



Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre
ICG-I: Stratosphäre

***Schnelle Spurengasretrieval für das
Satellitenexperiment Envisat MIPAS***

Lars Hoffmann

***Schnelle Spurengasretrieval für das
Satellitenexperiment Envisat MIPAS***

Lars Hoffmann

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 4207
ISSN 0944-2952
Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre
ICG-I: Stratosphäre Jül-4207
D 468 (Diss., Wuppertal, Univ., 2006)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
☎ 02461 61-5220 · Telefax: 02461 61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Abstract

Remote sensing measurements are most important to understand the complicated dynamical and chemical processes occurring in the Earth's atmosphere. Only the measurements made by space-borne experiments can give a continuous and global overview of the atmospheric state. Most exact and comprehensive measurements made by such experiments are necessary to validate and improve atmospheric models which combine the knowledge on numerous mechanisms in the atmosphere.

Since March 2002 the instrument MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) is operating aboard Envisat, which is the largest and most ambitious satellite ever built by the European Space Agency. MIPAS measures the thermal emissions of atmospheric constituents like trace gases, aerosols and clouds arising from the atmospheric limb. Within the retrieval process geophysical parameters like pressure, temperature, and trace gas concentrations are derived from these measurements. A special feature of MIPAS is its high spectral resolution which allows to gather information on a large number of atmospheric trace species.

The analysis of remote sensing measurements made by satellite experiments is an extensive task as time-consuming radiative transfer calculations and substantial amounts of data are typically involved. Envisat MIPAS provides 300 megabyte of measurement data during a single orbit. For future experiments, e. g. the GLORIA instrument (Global Limb Radiance Imager for the Atmosphere) recently proposed by the research centers Juelich and Karlsruhe, the amount of data may even increase by several orders of magnitude. A very important component in the analysis of atmospheric remote sensing measurements is the forward model. It is used to simulate the measurements of an instrument for a given atmospheric state. The rapid and flexible forward model JURASSIC (Juelich Rapid Spectral Simulation Code) was developed as part of this thesis. An innovative retrieval processor was created

based on JURASSIC that allows for the analysis of current satellite measurements, as e. g. made by Envisat MIPAS, but is also suited to be a basic module in the analysis of future experiments. The description of structure and possible applications of JURASSIC and the retrieval system are a principal topic of this thesis.

The JURASSIC retrieval system has been applied to derive the global distribution of the chlorofluorocarbons CFC-11 and CFC-12 from Envisat MIPAS measurements. These trace species are not part of the ESA operational retrieval at all. Scientific retrievals carried out by other working groups cover only rather limited sets of CFC-11 and CFC-12 data. Here, in contrast, the full measurement period from July 2002 to March 2004 is analyzed comprehensively. This could only be done, since the JURASSIC retrieval system allows for a very rapid processing of all these measurements. The derived CFC-11 and CFC-12 data are compared to external MIPAS retrievals and successfully validated using independent measurements. Hence, they are suited for further scientific analysis.

Being long-lived trace species, CFC-11 and CFC-12 are most useful for dynamical studies in the upper troposphere and lower stratosphere region. Zonal means and variances of these species have been analyzed. They are mainly influenced by the residual mean circulation of the stratosphere and the activity of planetary waves. MIPAS measurements are most useful as they allow to study the seasonal behavior of these processes. In addition, the derived CFC-11 and CFC-12 distributions are ideally suited to investigate strongly disturbed dynamical situations. An example is the antarctic major warming in September 2002, which led to a split of the antarctic polar vortex. Such an event has never been observed before. CFC-11 and CFC-12 measurements during this period compare well to simulations made by the atmospheric model CLaMS (Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere), which allows to study the processes occurring in such events in great detail.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Das Envisat MIPAS Experiment	4
2.1	Aufbau, Funktionsprinzip und Charakterisierung	7
2.2	Spektrale Auflösung und Apodisierung	13
2.3	Operationelle Datenprozessierung	17
2.4	Wolkenfilter und Beobachtungsstatistik	22
3	Vorwärtsmodellierung für Envisat MIPAS	26
3.1	Definition des Atmosphärenzustands	28
3.2	Bestimmung von Sehstrahlen	32
3.3	Berechnung des Strahlungstransports	37
3.4	Verwendung von Emissivitätstabellen	44
3.5	Berücksichtigung von Instrumenteffekten	51
4	Spurengasretrieval für Envisat MIPAS	53
4.1	Bayes-Ansatz für das lineare Umkehrproblem	56
4.2	Bestimmung von Kernel-Matrizen	59
4.3	Lösung moderat nicht-linearer Umkehrprobleme	62

4.4	Fehleranalyse für die Retrievalergebnisse	65
4.5	Einfluß von a priori Informationen	75
4.6	Optimierte Auswahl von Spektralbereichen	80
4.7	Tests des Retrievalsystems	85
4.8	Anwendungsmöglichkeiten des Retrievalsystems	90
5	Die globale Verteilung von FCKWs	95
5.1	Vergleich mit line-by-line Auswertungen	97
5.2	Vergleich mit klimatologischen Daten	100
5.3	Vergleich mit unabhängigen Experimenten	104
5.4	Saisonale Variabilität	108
5.5	CLaMS Modellstudie	115
6	Zusammenfassung und Ausblick	122
	Danksagung	125
	Literatur	126

Abbildungsverzeichnis

1	Aufbau der Envisat-Plattform	5
2	Meßgeometrie von Envisat MIPAS	8
3	Aufbau von Envisat MIPAS	9
4	Envisat MIPAS NESR	12
5	Idealisierte Instrumenten- und Filterfunktionen für Envisat MIPAS .	15
6	Envisat MIPAS Datenprozessierung durch die ESA	18
7	Envisat MIPAS L1B-Daten	20
8	Envisat MIPAS L2-Daten	21
9	Beobachtungsstatistik für Envisat MIPAS	25
10	Vorwärtsrechnungen für die $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11	27
11	Interpolation eines Temperaturprofils aus LIDAR-Messungen	31
12	Beugung von Sehstrahlen in der Horizontsondierungsgeometrie	33
13	Rechenzeit als Funktion der Schrittweite bei der Sehstrahlbestimmung	35
14	Fehler der Strahlungstransportrechnung für verschiedene Schrittweite bei der Sehstrahlbestimmung	36
15	Numerische Berechnung des Strahlungstransports	42
16	Vergleichsrechnung JURASSIC versus RFM	43

17	Einfluß der Auflösung der Emissivitätstabellen auf die Genauigkeit der Strahlungstransportrechnungen	46
18	Emissivitätskurven für CFC-11	48
19	Illustration zur EGA-Methode	49
20	Vergleichsrechnung zur EGA-Methode	50
21	Berücksichtigung des Gesichtsfelds von Envisat MIPAS	52
22	Beispiel für ein kombiniertes Retrieval von CFC-11 und Aerosol . . .	55
23	Kernel-Matrix für das Zentrum der $11.8\ \mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 . . .	60
24	Kernel-Matrix für das Zentrum der $11.8\ \mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 im Fall von 2D-Atmosphärendaten	61
25	Häufigkeitsverteilung der Kostenfunktionswerte	64
26	Gain-Matrix für die $11.8\ \mu\text{m}$ -Bande von CFC-11	66
27	Fehleranalyse für das CFC-11 Retrievalergebnis	73
28	Einfluß der vertikalen Korrelationslänge auf die CFC-11 Retrievalfehler	74
29	Averaging Kernel Matrix für das CFC-11 Retrieval	76
30	Einfluß von a priori Informationen auf das CFC-11 Retrievalergebnis	79
31	Emissionen atmosphärischer Spurengase im mittleren Infrarot	81
32	Optimierte Spektralbereiche für das CFC-11 Retrieval	86
33	End-to-end Tests des Retrievalsystems	88

34	Line-by-line Vorwärtsrechnungen für die Retrievalergebnisse	89
35	Freiheitsgrade für Signal bei unterschiedlicher Wahl des Retrievalgitters	92
36	Retrievalexperiment für GLORIA	94
37	Troposphärische Trends von CFC-11 und CFC-12.	96
38	Vergleich mit IMK-Daten	98
39	Vergleich von Envisat MIPAS CFC-11 Mittelwerten mit klimatologi- schen Daten	102
40	Vergleich von Envisat MIPAS CFC-12 Mittelwerten mit klimatologi- schen Daten.	103
41	Vergleich mit verschiedenen Satellitenexperimenten	106
42	Vergleich mit HAGAR in situ Messungen	107
43	Zonale Mittel und Standardabweichungen für CFC-11	109
44	Zonale Mittel und Standardabweichungen für CFC-12	110
45	Vergleich relativer Standardabweichungen für CFC-11	112
46	Kalman-Schätzung der Aktivität planetarer Wellen	114
47	Korrelationsanalyse zwischen Envisat MIPAS Messungen und einer CLaMS-Simulation.	118
48	Gemessene CFC-11 Verteilungen während des antarktischen Major- Warming Events im September 2002	120

49	Simulierte CFC-11 Verteilungen während des antarktischen Major-Warming Events im September 2002	121
----	---	-----

Tabellenverzeichnis

1	Instrumente an Bord von Envisat	6
2	Spezifikation der Envisat MIPAS Spektralbereiche	12

1 Einleitung

Um die komplexen dynamischen und chemischen Vorgänge in der Erdatmosphäre zu verstehen sind mit Fernerkundungsmethoden gewonnene Meßdaten von großer Bedeutung. Einen kontinuierlichen, globalen Überblick über den Atmosphärenzustand verschaffen hierbei nur Satellitenexperimente. Deren umfangreiche und genaue Meßdaten werden zwingend benötigt zur Validierung und Verbesserung von Atmosphärenmodellen, in denen das tatsächlich vorhandene Wissen über viele Vorgänge innerhalb der Erdatmosphäre zusammengefaßt ist.

Seit März 2002 befindet sich der europäische Umweltforschungssatellit Envisat im All. Ein Instrument an Bord der Plattform ist MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding), das die am Erdhorizont entstehenden thermischen Eigenemissionen von atmosphärischen Bestandteilen wie Spurengasen, Aerosolen und Wolken vermißt. Aus den von MIPAS gemessenen Infrarot-Strahlungsspektren werden im sogenannten Retrievalprozeß die tatsächlich interessierenden Atmosphärenparameter wie Druck, Temperatur und Spurengaskonzentrationen abgeleitet. Kennzeichen von MIPAS ist das hohe spektrale Auflösungsvermögen, das die Auswertung besonders vieler verschiedener Spurengase ermöglicht.

Die Auswertung von Satellitendaten ist bereits aufgrund von deren Umfang ein sehr aufwendiger Vorgang. Allein während einer Erdumrundung liefert Envisat MIPAS etwa 300 Megabyte an Meßdaten. Bei zukünftigen Experimenten, wie dem von den Forschungszentren Jülich und Karlsruhe vorgeschlagenen Instrument GLORIA (Global Limb Radiance Imager for the Atmosphere), werden die anfallenden Datenmengen noch um mehrere Größenordnungen anwachsen. Eine wichtige Komponente in der Datenauswertung atmosphärischer Fernerkundungsmessungen ist das Vorwärtsmodell, mit dem die Messungen eines Instruments für einen gegebenen At-

mosphärenzustand simuliert werden. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das besonders schnelle und flexible Vorwärtsmodell JURASSIC (Juelich Rapid Spectral Simulation Code) entwickelt. Darauf aufbauend wurde ein innovatives Retrievalsystem entworfen, das außer zur Auswertung konventioneller Satellitenmessungen, wie denen von Envisat MIPAS, auch ein Grundbaustein bei der Auswertung zukünftiger Experimente wie GLORIA sein kann. Die Beschreibung von Aufbau und Anwendungsmöglichkeiten von JURASSIC und des darauf aufbauenden Retrievalsystems sind Gegenstand dieser Arbeit.

Das JURASSIC Retrievalsystem wurde eingesetzt, um die globale Verteilung der Fluorchlorkohlenwasserstoffe CFC-11 und CFC-12 aus Envisat MIPAS Strahlungsmessungen abzuleiten. Diese Gase werden im operationellen ESA Retrieval nicht ausgewertet. Die wissenschaftlichen Retrieval anderer Arbeitsgruppen umfassen meist nur einen kleinen Teil aller vorhandenen Messungen. Im Gegensatz dazu deckt die hier durchgeführte Ableitung den Zeitraum von Juli 2002 bis März 2004 vollständig ab. Möglich wird dies überhaupt erst, weil JURASSIC eine sehr schnelle Vorwärtsmodellierung erlaubt. Die abgeleiteten Daten wurden mit externen MIPAS Auswertungen verglichen sowie mittels unabhängiger Messungen validiert und sind damit für die weitere wissenschaftliche Auswertung geeignet.

CFC-11 und CFC-12 sind langlebige Spurengase, die besonders für dynamische Studien im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre nützlich sind. Im Rahmen der Arbeit werden zonale Mittelwerte und Standardabweichungen analysiert, die wesentlich durch die mittlere residuale Zirkulation der Stratosphäre und die Aktivität planetarer Wellen beeinflusst sind. Die MIPAS Datensätze sind besonders hilfreich, da sie das Studium des saisonalen Verlaufs dieser Prozesse ermöglichen. Zusätzlich sind die im Rahmen der Arbeit abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Datensätze sehr gut geeignet, um Einzelereignisse mit außergewöhnlichen dynamischen

Verhältnissen zu untersuchen. Exemplarisch betrachtet wird hier das antarktische Major Warming Event im September 2002, bei dem erstmalig eine Aufspaltung des Südpolarwirbels in zwei Teilwirbel beobachtet wurde. CFC-11 und CFC-12 Messungen während dieses Zeitraums werden mit einer Simulation des Atmosphärenmodells CLaMS (Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere) verglichen, mit dem derartige Vorgänge besonders detailliert untersucht werden können.

2 Das Envisat MIPAS Experiment

In den vergangenen Jahrzehnten hat sich gezeigt, daß FTIR-Spektrometer (engl.: Fourier transform infrared spectrometer) von großem Nutzen für die Fernerkundung der Atmosphäre sind. Neben einer Vielzahl von bodengebundenen, ballon- und flugzeuggetragenen Experimenten wurde erstmals 1962 ein FTIR-Spektrometer zur Erforschung der Erdatmosphäre auf einer Satellitenplattform zum Einsatz gebracht [*Block und Zachor*, 1964]. Einen Überblick über Aufbau, Eigenschaften und Anwendungen vieler bekannter Satellitenexperimente, darunter IRIS (Infrared Interferometric Spectrometer), ATMOS (Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy) und CIRRIS-1A (Cryogenic Infrared Radiance Instrumentation for Shuttle), gibt *Persky* [1995]. Am Institut für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrum Karlsruhe werden seit mehr als zwanzig Jahren FTIR-Spektrometer unter dem Namen MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) zur Atmosphärenforschung eingesetzt [*Fischer*, 1992; *Fischer und Oelhaf*, 1996]. Zunächst wurde eine bodengebundene Ausführung in den Polargebieten verwendet [*Adrian et al.*, 1991, 1994]. In der zweiten Hälfte der 1980er Jahre wurden das Ballonexperiment MIPAS-B [*Oelhaf et al.*, 1991] und wenig später die flugzeuggetragene Version MIPAS-FT [*Gulde et al.*, 1994] entwickelt. In zahlreichen Feldkampagnen konnte mit diesen Geräten eine Vielzahl an Spurengasen in der Stratosphäre und oberen Troposphäre vermessen werden [*von Clarmann et al.*, 1993; *Blom et al.*, 1994; *Oelhaf et al.*, 1994; *Wetzel et al.*, 1995].

Aufgrund der erfolgreichen Vorläuferexperimente wählte die europäische Weltraumorganisation ESA das im Jahr 1988 vorgeschlagene MIPAS Satellitenexperiment als eine Komponente für den Umweltforschungssatellit Envisat aus. Der Umweltforschungssatellit Envisat (Environmental Satellite) [*Louet*, 2001; *Dubock et al.*, 2001] wurde Anfang März 2002 mit einer Ariane-5 Rakete vom Weltraumbahnhof

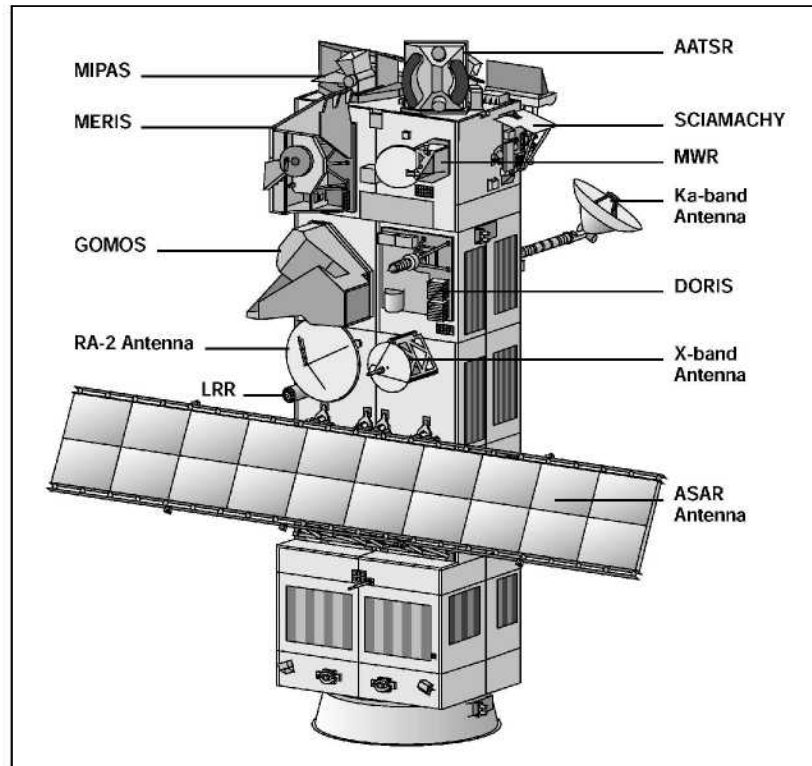


Abbildung 1: Aufbau der Envisat-Plattform [Louet, 2001].

Kourou, Französisch-Guayana, in eine 800 km hohe, nahezu polare, sonnensynchrone Erdumlaufbahn gebracht (Orbitinklination 98°). Bei einer Umlaufdauer des Satelliten von rund 100 min ergibt sich in Folge der Erdrotation eine tägliche globale Abdeckung durch 14 Orbits. Abbildung 1 zeigt schematisch den Aufbau der Envisat-Plattform. Die Aufgabengebiete der zehn Experimente an Bord des Satelliten sind in Tabelle 1 aufgeschlüsselt. Die unterschiedlichen Instrumente sollen für mindestens fünf Jahre Umweltforschungsdaten über verschiedene Aspekte der Erde und ihrer Atmosphäre sammeln. Die in diesem Zeitraum anfallende Datenmenge beträgt in etwa ein Petabyte (10^{15} Byte). Envisat ist der größte jemals in Europa gebaute Satellit mit einem Gewicht von 8.2 Tonnen und Gesamtmaßen von $10\text{ m} \times 4\text{ m} \times 4\text{ m}$ (ohne Solarpanel und ASAR-Antenne; vgl. Abb. 1).

An Bord von Envisat befinden sich drei Experimente, die primär der Atmosphärenforschung dienen [Nett et al., 2001]. GOMOS, MIPAS und SCIAMACHY

Envisat Instrumente und Aufgabengebiete
Atmosphäre (→ Strahlungshaushalt, Temperatur, Spurengase, Aerosole, Wolken) Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars (GOMOS), Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography (SCIAMACHY)
Ozeane (→ Temperatur und Topographie der Meeresoberfläche, Strömungen, Wellen)
Landmassen (→ Bodentemperatur, Vegetation, Topographie, Erdkruste und -inneres)
Kryosphäre (→ Ausdehnung, Eis-Typ, Schneebedeckung, Temperatur) Medium Resolution Imaging Spectrometer (MERIS), Advanced Synthetic Aperture Radar (ASAR), Microwave Radiometer (MWR), Radar Altimeter 2 (RA-2), Advanced Along Track Scanning Radiometer (AATSR)
Orbitbestimmung Doppler Orbitography and Radiopositioning Integrated by Satellite (DORIS), Laser Retro Reflector (LRR)

Tabelle 1: Instrumente an Bord von Envisat [nach Louet, 2001].

ergänzen sich, da sie auf verschiedenen Meßprinzipien basieren und die in der Atmosphäre absorbierte, emittierte und gestreute Strahlung in verschiedenen Spektralbereichen erfassen. GOMOS [Ratier et al., 1999] vermißt die atmosphärische Absorption von Sternspektren im UV-, sichtbaren und nahen IR-Bereich (250–950 nm) während eines Sternuntergangs am Erdhorizont. Vorteil der sogenannten Okkultationsmethode ist die inhärente Selbstkalibration, wodurch Spurengaskonzentrationen mit hoher Absolutgenauigkeit gemessen werden können. Die Messungen von GOMOS überdecken den Höhenbereich 20–100 km mit einer vertikalen Auflösung von 1.7 km. MIPAS [Endemann, 1999] mißt die von den atmosphärischen Spurengasen am Erdhorizont erzeugten thermischen Eigenemissionen im mittleren Infrarot (4–15 μm). Die Verwendung eines FTIR-Spektrometers erlaubt eine hohe spektrale Auflösung, so daß einzelne Emissionslinien isoliert und viele verschiedene Spurengase ausgewertet werden können. Abgedeckt wird im Nominalmode, der mehr als 95 % aller Messungen umfaßt, der Höhenbereich 5–70 km mit einer vertikalen Auflösung von etwa 3 km. Im Gegensatz zu GOMOS sind die Messungen von MIPAS nicht

an externe Quellen gebunden und damit prinzipiell an jedem Ort und zu jeder Lokalzeit möglich. Einschränkungen ergeben sich jedoch durch die Orbitgeometrie. Bei SCIAMACHY [Bovensmann *et al.*, 1999] werden neben Absorptions- und Emissionsmessungen (Spektralbereich 240–2400 nm) nach dem Horizontsondierungsverfahren auch Nadirmessungen ausgeführt. Beim Nadirverfahren erfolgt die Strahlungsmessung in Blickrichtung zum Erdboden. Es bietet eine gute horizontale Auflösung (Pixelgröße bis 30 km $\times$ 60 km bei SCIAMACHY), aber nur eine schlechte vertikale Auflösung. Bei der Horizontsondierung ist es umgekehrt. Vorteilhaft bei der Horizontsondierung sind die vergleichsweise hohen Signalstärken aufgrund der deutlich größeren Pfadlängen durch die Atmosphäre.

2.1 Aufbau, Funktionsprinzip und Charakterisierung

Die Blickrichtung in die Atmosphäre wird bei Envisat MIPAS über zwei Drehspiegel eingestellt, die Azimuth Scan Unit (ASU) und die Elevation Scan Unit (ESU). Mittels der ASU sind grundsätzlich zwei Blickrichtungen zum Horizont möglich, wie in Abbildung 2 dargestellt. Im Nominalmode ist der Sehstrahl entgegen der Flugrichtung des Satelliten ausgerichtet (Schwenkbereich 160°–190°). Für Spezialmoden, etwa zur Untersuchung atmosphärischer Prozesse die vom Tagesgang und damit einer Variation der Lokalzeit abhängig sind, kann der Sehstrahl senkrecht zur Flugrichtung ausgerichtet werden (Schwenkbereich 75°–110°). Mittels der ESU wird die Atmosphäre über dem Erdhorizont von oben nach unten abgetastet. Der Nominalmode sieht 17 Höhenstufen zur Aufnahme von Spektren bei 6, 9, 12, . . . , 42, 47, 52, 60 und 68 km vor. Meßmoden zur Erforschung der Meso- und Thermosphäre sehen auch größere Tangentenhöhen vor. Maximal erreichbar sind 250 km. Die Aufnahme eines Vertikalprofils dauert im Nominalmode 75 sec, so daß der Abstand zwischen zwei benachbarten Profilen entlang der Meßspur bei rund 500 km liegt. Die Stabilität

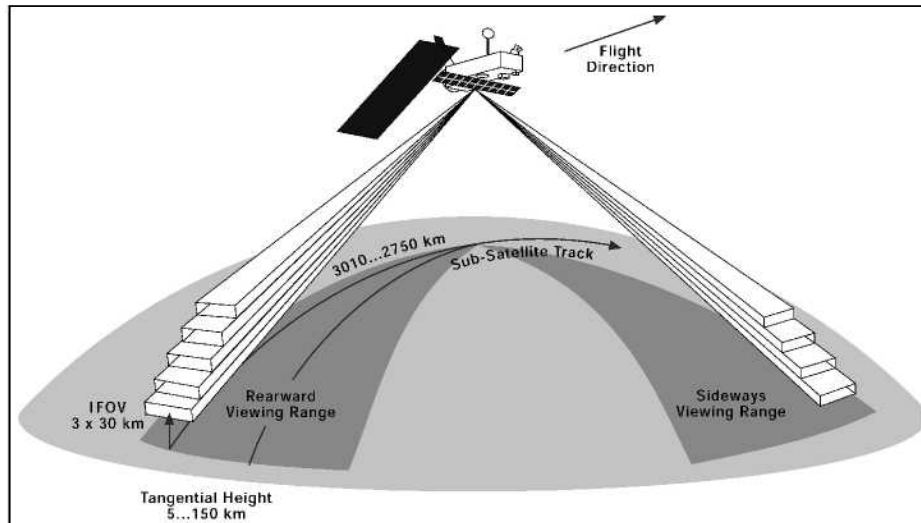


Abbildung 2: Meßgeometrie von Envisat MIPAS [Endemann, 1999].

der Tangentialhöhe bleibt während der Aufnahme eines Spektrums (4 sec) auf 300 m und während der Aufnahme eines Vertikalprofils (75 sec) auf 900 m gewahrt [Nett et al., 2002]. Zusammen mit ASU und ESU bildet das Teleskop die Eingangsoptik und damit eine der drei Hauptkomponenten von Envisat MIPAS, die in Abbildung 3 dargestellt sind. Das Teleskop ist anamorph, d. h. es weist eine Vergrößerung von 6 im Elevationswinkel und 1 im Azimutalwinkel auf. Es dient dazu, die einfallende Strahlung auf den Spektrometereintritt zu fokussieren. Das Strahlenbündel soll dabei möglichst parallel sein, um ein ungestörtes Interferenzbild zu erhalten. Streulicht wird durch zwei Lyot-Blenden unterdrückt. Die Eingangsöffnung des Teleskops und ein Begrenzungsspalt (Field Stop) in seinem Inneren legen das Gesichtsfeld fest. Erfasst wird Strahlung aus dem Winkelbereich $0.0523^\circ \times 0.523^\circ$ (Höhe $\times$ Breite). Dies entspricht am Tangentialpunkt, dem erdnächsten Punkt eines Sehstrahls in rund 3300 km Entfernung zum Instrument, einer Ausdehnung von $3 \text{ km} \times 30 \text{ km}$.

Im Interferometer trifft die Strahlung zunächst auf den Strahlteiler, wobei ein Einfallswinkel von 30° Polarisierungseffekte vermeidet. Die Teilstrahlen werden über zwei feste Spiegel auf Winkelreflexionsspiegel gelenkt, die auf beweglichen Schlitten montiert sind und sich gegenläufig zueinander bewegen. Nachdem die beiden Teil-

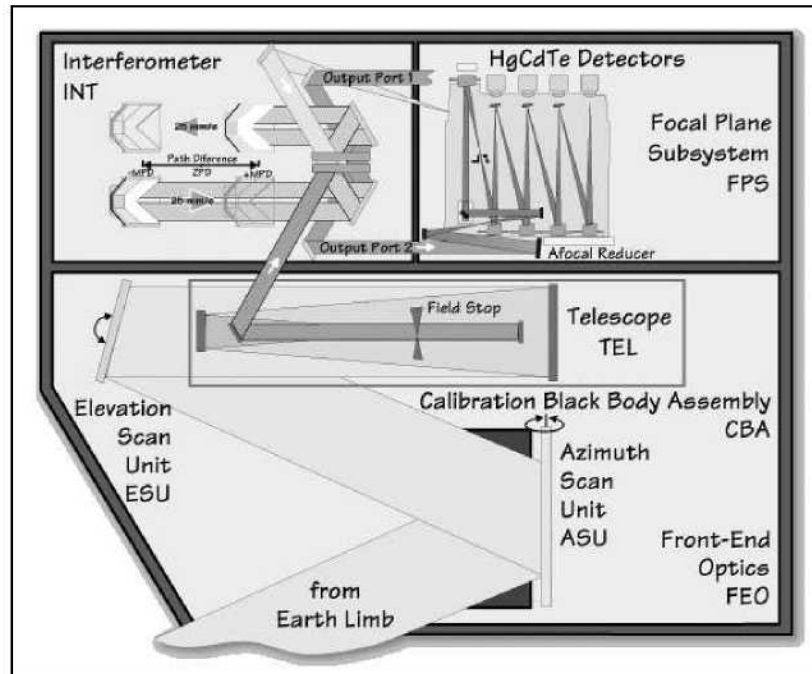


Abbildung 3: Aufbau von Envisat MIPAS [Endemann, 1999]. Schematisch dargestellt sind die drei Hauptkomponenten des Instruments, unten die Eingangsoptik, oben links das Interferometer und oben rechts die Detektoreinheit. Hilfssysteme wie Stromversorgung, Kühler, Referenzlaser etc. sind nicht skizziert.

strahlen verschieden lange Wegstrecken durchlaufen haben, treffen sie sich über die festen Spiegel wieder am Strahlteiler und interferieren. Das resultierende Strahlungssignal wird von der Detektoreinheit erfaßt. Beim klassischen Michelson-Interferometer geht stets die Hälfte der einfallenden Strahlung zurück in Richtung der Quelle verloren. Dies wird bei dem in Envisat MIPAS eingesetzten Dual-Port Spektrometer mit zwei Ein- und Austrittsöffnungen vermieden. Als Nachteil anzusehen sind eine vergrößerte Optik und die erforderliche Belegung des zweiten Eingangs. Damit das Atmosphärensignal nicht überlagert wird, wird der zweite Eingang auf einen möglichst kalten Schwarzkörper gerichtet. Dieser findet sich im Bereich der Detektoreinheit, dem kältesten Ort ($\approx 70\text{ K}$) innerhalb des Instruments. Durch die Verwendung von zwei beweglichen Spiegeln kann im Vergleich zum klassischen Michelson-Interferometer mit nur einem beweglichen und einem festen Spiegel auf relativ kleinem Raum eine maximale optische Wegdifferenz von 20 cm erzielt werden.

Das Durchfahren der Wegdifferenz beziehungsweise die Aufnahme eines Interferogramms dauert etwa 4 sec. Die Position der Winkelreflexionsspiegel wird mittels eines Referenzlasers mit einer Genauigkeit von 30 nm überwacht. Dies dient dazu, eine gute relative Genauigkeit bei der spektralen Kalibration zu erzielen. Die absolute Wellenlängenzuordnung erfolgt mittels bekannter atmosphärischer Emissionslinien. Fehler der spektralen Kalibration führen zu Wellenzahlungenauigkeiten kleiner 0.001 cm^{-1} [Burgess und Nett, 2002]. Innerhalb eines Jahres durchfahren die Winkelreflexionsspiegel die Wegstrecke etwa zehn Millionen Mal. Die vorgesehene Lebensdauer von 3–5 Jahren konnte aufgrund mechanischer Abnutzung nicht erreicht werden, so daß Ende März 2004 der kontinuierliche Betrieb des Instruments eingestellt werden mußte. Das Instrument wird nunmehr nur noch für einzelne Meßkampagnen eingeschaltet und vornehmlich in Sondermoden betrieben.

Die Detektoreinheit von Envisat MIPAS besteht aus je vier HgCdTe-Detektoren an den beiden Ausgangsports des Interferometers. Den Detektoren sind Spektralfilter vorgeschaltet, die jeweils nur langwellige Strahlungsanteile passieren lassen und kurzwellige Anteile zum nächsten Filter oder Detektor reflektieren. Erst durch den Einsatz mehrerer Detektoren und unterschiedlicher Filter kann eine gute radiometrische Empfindlichkeit über den insgesamt vermessenen Spektralbereich erzielt werden. Die Detektoren werden mittels Stirling-Kühlern auf eine für Messungen im mittleren Infrarot erforderliche Betriebstemperatur von 70 K gebracht. Um die Eigenemissionen des Geräts zu vermindern, werden zudem die optischen Komponenten durch einen großen Radiator auf eine Betriebstemperatur von 210 K abgesenkt. Im Rahmen der Datenprozessierung an den Bodenstationen werden aus den Interferogramm-Messungen der acht Detektoren Strahlungsspektren für fünf Spektralbereiche bestimmt, wie in Tabelle 2 aufgelistet. Jeder Spektralbereich ist redundant durch zwei Detektoren abgedeckt. Im Rahmen der radiometrischen Kalibration werden Eichfaktoren zur Umrechnung der gemessenen Signalstärken in physika-

lische Strahlungsdichte-Einheiten bestimmt (engl.: gain calibration) und der Strahlungsuntergrund festgestellt (engl.: offset calibration). Zur Durchführung der Gain-Kalibration wird die ASU so eingestellt, daß der Sehstrahl auf einen Schwarzkörper (Calibration Black Body Assembly) mit bekannten spektralen Eigenschaften gerichtet ist. Ursache für Variationen der Gain-Kalibration sind Eis-Ablagerungen an Optik und Detektoreinheit, die in regelmäßigen Abständen durch Aufwärmen des Instruments abgebaut werden müssen. Zur Offset-Kalibration wird die ESU auf eine Tangentenhöhe von 210 km eingestellt. Die hier durchgeführten Messungen des kalten Weltraums sind, abgesehen von Einzelfällen mit erhöhter solarer Aktivität bei polaren Breiten, frei von atmosphärischen Emissionen [López-Puertas *et al.*, 2002]. Gemessenen werden demnach nur die thermischen Eigenemissionen des Instruments. Die Gain-Kalibration wird wöchentlich durchgeführt. Die Offset-Kalibration erfolgt alle fünf Minuten. Im Rahmen einer Validierungsstudie stellen *Birk und Wagner* [2002] fest, daß die in Tabelle 2 aufgeführten Spezifikationen zur radiometrischen Kalibration eingehalten werden. Im Rahmen der laufenden Onboard-Kalibrationen wird stets auch das Rauschsignal (engl.: noise equivalent spectral radiance, NESR) mit abgeschätzt. Abbildung 4 zeigt, daß dies teilweise sogar deutlich unter der Spezifikation liegt. Während der hier betrachteten Zeitspanne hat sich keine nennenswerte Degradierung im Rauschsignal ergeben.

Kanal	Detektor	Spektral- bereich [cm ⁻¹]	NESR (unapodisiert) [nW/(cm ² sr cm ⁻¹)]	radiometrische Genauigkeit
A	A1, A2	685 – 970	50	2 × NESR +5 % [Signal]
AB	B1, A2	1020 – 1170	40	s. o.
B	B1, B2	1215 – 1500	20	s. o.
C	C1, C2	1570 – 1750	6	2 × NESR +2 ... 3 % [Signal]
D	D1, D2	1820 – 2410	4.2	s. o.

Tabelle 2: Spezifikation der Envisat MIPAS Spektralbereiche. Aufgeführt sind Rauschsignal (NESR) und radiometrische Genauigkeit [Nett et al., 2002]. Zur tatsächlichen Charakteristik vergleiche Abbildung 4.

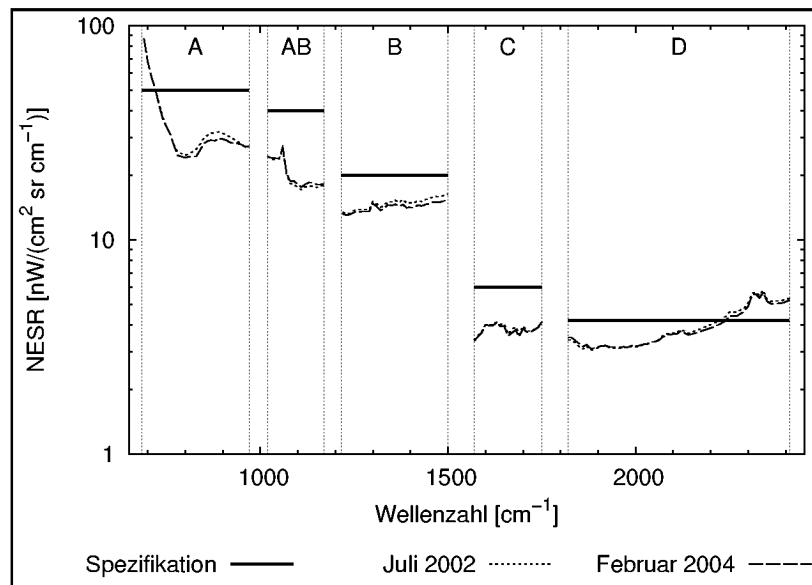


Abbildung 4: Envisat MIPAS NESR. Aufgeführt ist neben der Spezifikation die tatsächliche Charakteristik des Instruments in Form von Monatsmitteln.

2.2 Spektrale Auflösung und Apodisierung

Das Funktionsprinzip eines FTIR-Spektrometers kann in vielen Lehrbüchern nachgeschlagen werden [z. B. *Griffiths und de Haseth*, 1986; *Beer*, 1992]. Das Interferogramm einer polychromatischen Quelle, d. h. die Strahlungsdichte I als Funktion der optischen Weglängendifferenz δ , ergibt sich gemäß

$$I(\delta) = \mathcal{F}\{B(\nu)\} = \int_{-\infty}^{\infty} B(\nu) \exp(2\pi i \nu \delta) d\nu, \quad (2.1)$$

d. h. durch Überlagerung der Strahlungsdichten B verschiedener Wellenzahlen ν . $I(\delta)$ ist die Fouriertransformierte von $B(\nu)$. Aus dem gemessenen Interferogramm resultiert das gesuchte Strahlungsspektrum aus der Rücktransformation

$$B(\nu) = \mathcal{F}^{-1}\{I(\delta)\} = \int_{-\infty}^{\infty} I(\delta) \exp(-2\pi i \nu \delta) d\delta. \quad (2.2)$$

Hierbei ist $B(\nu)$ nicht das reine Atmosphärensignal, da noch Instrumenteffekte eingehen, etwa die variierende Empfindlichkeit der Infrarot-Detektoren, die nicht ideale Charakteristik des Strahlteilers oder Filtereigenschaften der Ausleseelektronik.

Theoretisch kann nach Gleichung (2.2) das komplette Spektrum mit unbegrenzter spektraler Auflösung bestimmt werden, wenn die Weglängendifferenz δ gegen unendlich läuft. Praktisch ist die Weglängendifferenz jedoch auf ein Maximum Δ begrenzt und das vermessene Spektrum hat eine endliche spektrale Auflösung. In Gleichung (2.2) wird deshalb die Rechteckfunktion $D(\delta)$ eingesetzt,

$$B_D(\nu) = \mathcal{F}^{-1}\{D(\delta) I(\delta)\} = \int_{-\infty}^{\infty} D(\delta) I(\delta) \exp(-2\pi i \nu \delta) d\delta, \quad (2.3)$$

$$D(\delta) = \begin{cases} 1 & \text{falls } |\delta| \leq \Delta \\ 0 & \text{falls } |\delta| > \Delta \end{cases}. \quad (2.4)$$

Das Faltungstheorem besagt, daß die Fouriertransformierte einer Faltung von zwei Funktionen dem Produkt der Fouriertransformierten der einzelnen Funktionen entspricht. Damit kann unmittelbar gezeigt werden

$$B_D(\nu) = B(\nu) * f(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} B(\nu') f(\nu - \nu') d\nu', \quad (2.5)$$

$$f(\nu) = \mathcal{F}^{-1}\{D(\delta)\} = \frac{2\Delta \sin(2\pi\nu\Delta)}{2\pi\nu\Delta} = 2\Delta \operatorname{sinc}(2\pi\nu\Delta). \quad (2.6)$$

Demnach ist das beliebig fein aufgelöste Spektrum $B(\nu)$ mit der Rücktransformierten $f(\nu)$ der Rechteckfunktion zu falten, um das Spektrum $B_D(\nu)$ bei eingeschränkter Weglängendifferenz zu bestimmen. Die Rücktransformierte $f(\nu)$ entspricht der Instrumentenfunktion (engl.: instrument line shape, ILS) eines idealen FTIR-Spektrometers, dessen Weglängendifferenz auf Δ begrenzt ist.

Das Auflösungsvermögen eines FTIR-Spektrometers kann auf verschiedene Arten definiert werden. Als einfachstes Kriterium kann der Abstand zwischen dem Hauptmaximum und der ersten Nullstelle der Instrumentenfunktion $f(\nu)$ herangezogen werden. Dieser Abstand beträgt $0.5/\Delta$. Für Envisat MIPAS folgt mit $\Delta = 20$ cm ein Auflösungsvermögen von 0.025 cm^{-1} . Dieser Wert entspricht dem spektralen Gitter, auf dem die Strahlungsdaten von der ESA zur Verfügung gestellt werden. Nach diesem einfachen Kriterium sind jedoch die Signale von zwei benachbarten Stützstellen des Meßspektrums noch nicht separiert. Dies ist erst erfüllt, wenn ihr Abstand die Halbwertsbreite der Instrumentenfunktion übersteigt, was bei ungefähr $0.605/\Delta$ beziehungsweise 0.030 cm^{-1} der Fall ist. Das ursprünglich für die sinc^2 -Funktion definierte Rayleigh-Kriterium schließlich verlangt einen Intensitätsabfall im überlagerten Signal zweier benachbarter Stützstellen von rund 20 %. Dieser Intensitätsabfall ergibt sich im Abstand $0.73/\Delta$ respektive 0.0365 cm^{-1} .

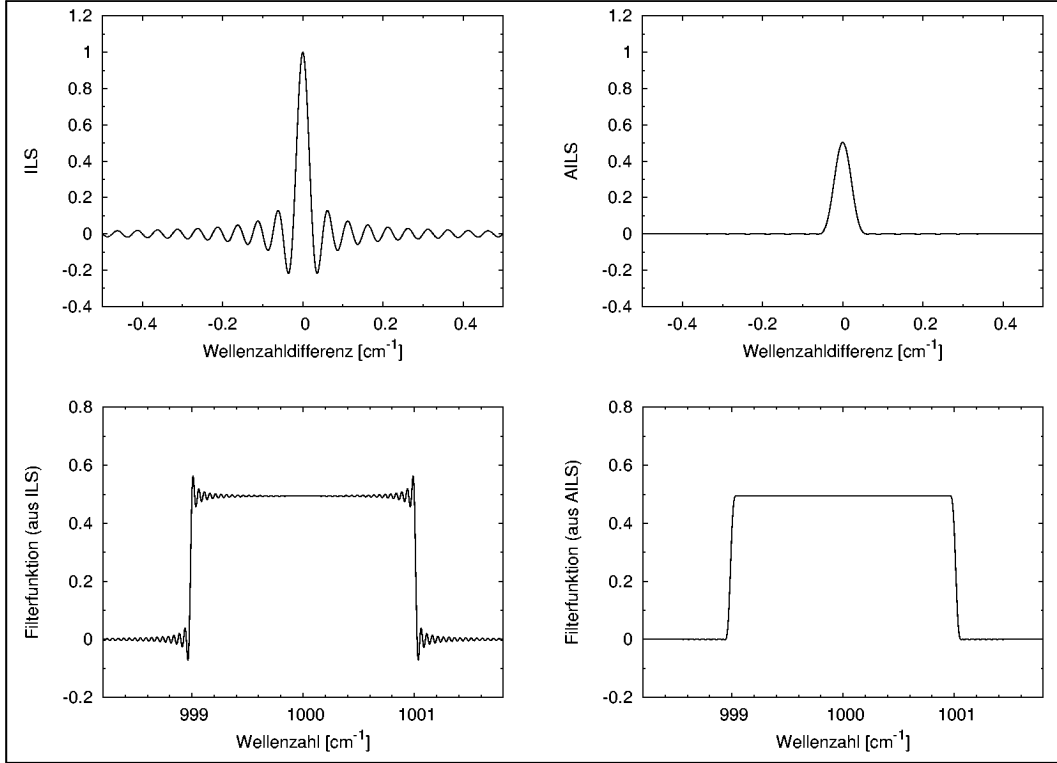


Abbildung 5: Idealisierte Instrumenten- und Filterfunktionen für Envisat MIPAS. Die Kurven sind theoretisch bestimmt unter der Annahme eines idealen FTIR-Spektrometers mit einer maximalen optischen Weglängendifferenz von 20 cm. Die Filterfunktionen werden durch Mittelung aller ILS- oder AILS-Kurven der Stützstellen des Meßspektrums im betrachteten Spektralbereich bestimmt.

Die Instrumentenfunktion gemäß Gleichung (2.6) zeigt ausgeprägte Nebenminima und -maxima (Abb. 5, links oben). Fallen diese mit starken Spektrallinien zusammen, ergibt sich ein deutlicher Effekt auf die gemessene Strahlung. Zur Unterdrückung der Nebenextrema wird die sogenannte Apodisierung der Spektren durchgeführt. Dazu wird das Interferogramm mit einer geeigneten Apodisierungsfunktion $D'(\delta)$ multipliziert. Analog zu den obigen Überlegungen ist die apodisierte Instrumentenfunktion (AILS) als Rücktransformierte von $D'(\delta)$ gegeben.

Häufig eingesetzt wird die starke Apodisierung nach *Norton und Beer* [1976, 1977]. Sie ist optimal in Hinblick auf die Verminderung des Auflösungsvermögens (Zunahme der Halbwertsbreite um 60 %), den Absolutwert der größten Nebenminima (Reduktion von 22 % auf 0.3 % des Funktionswertes am zentralen Maximum),

das Konvergenzverhalten der Nebenextrema und das Ausmaß, mit dem die spektrale Unabhängigkeit der Stützstellen des Meßspektrums reduziert wird (Abb. 5, rechts oben). Die Norton-Beer Apodisierungsfunktion ist gegeben durch

$$D'(\delta) = \sum_{i=0,2,4} C_i [1 - (\delta/\Delta)^2]^i, \quad (2.7)$$

$$C_0 = 0.045335, \quad C_2 = 0.554883, \quad C_4 = 0.399782. \quad (2.8)$$

Liegen unapodisierte Spektren und keine Interferogramme vor, wie im Fall des Datensatzes, der durch die ESA bereitgestellt wird, ist es weniger aufwendig, die Spektren nachträglich mit der AILS zu falten, anstatt die Fouriertransformation auf die Spektren anzuwenden, die resultierenden Interferogramme mit der Apodisierungsfunktion zu multiplizieren und schließlich die Rücktransformation auszuführen. Die AILS der Norton-Beer Apodisierung ist gegeben durch

$$f'(\nu) = \sum_{i=0,2,4} C_i Q_i(2\pi\nu\Delta), \quad (2.9)$$

$$Q_0(a) = \text{sinc } a, \quad (2.10)$$

$$Q_2(a) = -\frac{8}{a^2} \left[\left(1 - \frac{3}{a^2}\right) \text{sinc } a + \frac{3}{a^2} \cos a \right], \quad (2.11)$$

$$Q_4(a) = \frac{384}{a^4} \left[\left(1 - \frac{45}{a^2} + \frac{105}{a^4}\right) \text{sinc } a + \frac{5}{a^2} \left(2 - \frac{21}{a^2}\right) \cos a \right]. \quad (2.12)$$

Für Argumente $a = 2\pi\nu\Delta \ll 1$ sind bei der Auswertung Reihenentwicklungen der Funktionen Q_i zu verwenden, da die sinc-Funktion numerisch singulär wird.

Die ILS oder AILS eines FTIR-Spektrometers weicht aufgrund verschiedener Instrumenteffekte von der angegebenen Idealform ab. Grund sind etwa Beugungseffekte durch die endlichen Eintrittswinkel, Strahldivergenzen innerhalb des Spektrometers oder mögliche Fehlstellungen und Unregelmäßigkeiten in der Spiegelbe-

wegung sowie Ungenauigkeiten in deren Abtastung. Ein Vergleich der idealisierten AILS-Kurve mit dem MIPAS Reference Forward Model (RFM) [Dudhia, 2004] bei liegenden AILS-Kurven, in denen solche Effekte berücksichtigt sind, zeigt eine Reduktion des zentralen Maximums um 1.0 % für Kanal A, 3.3 % für die Kanäle AB und B, 3.5 % für Kanal C und 6.6 % für Kanal D. Die realen AILS-Kurven haben entsprechend größere Halbwertsbreiten. Sie weisen außerdem eine geringfügige Asymmetrie auf. In der hier durchgeführten Auswertung sind diese geringen Abweichungen nicht bedeutsam, da mittlere Strahlungsdichten über Spektralbereiche in der Größenordnung einiger Wellenzahlen betrachtet werden (Kapitel 3 und 4). Die Effekte können sich lediglich an den Rändern der Spektralbereiche auswirken und sind demnach mit zunehmender Breite der Spektralbereiche vernachlässigbar. Deutliche Randeffekte können sich nur ergeben, wenn auf eine Apodisierung der Spektren vor der spektralen Mittelung verzichtet wird (Abb. 5, unten).

2.3 Operationelle Datenprozessierung

Einer allgemeinen Konvention für die Satellitenauswertung folgend ist die operationelle Datenprozessierung bei Envisat MIPAS in mehrere Stufen unterteilt. Die Prozessierungskette ist in Abbildung 6 dargestellt. Level-0 Daten (L0-Daten) sind Rohdaten direkt vom Instrument, etwa die verschiedenen Detektor- und Monitorsignale. Aufgabe der L1A- und L1B-Prozessierung ist die Bereitstellung von Interferogrammen und kalibrierten Strahlungsspektren. Ziel der L2-Prozessierung ist die Ableitung geophysikalischer Parameter, wie etwa Druck-, Temperatur- und Spurengasvertikalprofilen, mittels Verfahren der inversen Modellierung. Wesentlicher Bestandteil der L1- und L2-Daten sind die Lagedaten, die Aufschluß über den Meßort geben. Im Rahmen einer L3-Prozessierung löst man sich vom Meßgitter des Satelliteninstruments und bringt die abgeleiteten Atmosphären Daten auf ein synoptisches, d. h.

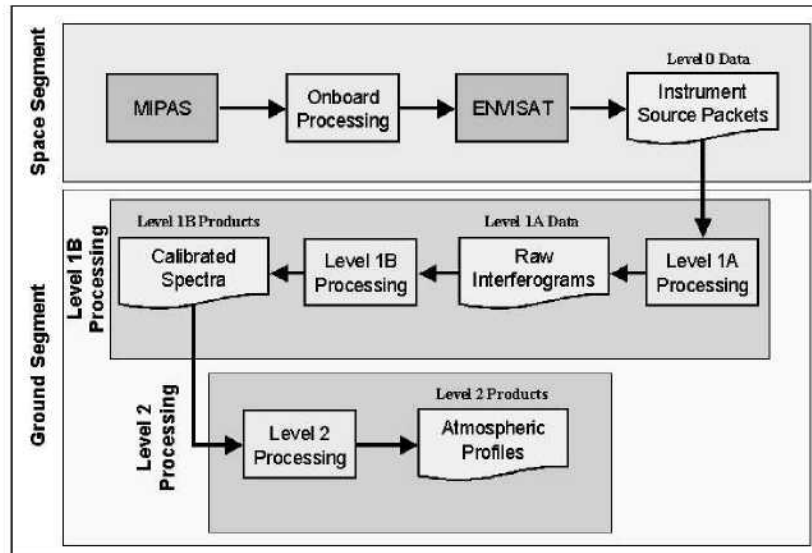


Abbildung 6: Envisat MIPAS Datenprozessierung durch die ESA [Endemann, 1999].

räumlich und zeitlich reguläres Gitter, z. B. unter Verwendung von Methoden der Datenassimilation mittels eines atmosphärischen Chemie- und Transportmodells. Von der ESA werden Envisat MIPAS L1B-Daten und ein begrenzter Satz L2-Daten (Druck, Temperatur und sechs Spurengase) zur weiteren Auswertung bereitgestellt. Eine L3-Prozessierung wird von der ESA nicht durchgeführt.

Wesentliche Schritte der Prozessierung von L0 nach L1B sind [Lachance, 1998, 1999; Nett et al., 1999]: (1) Qualitätskontrolle der Rohdaten und Interferogramme: Verworfen werden alle Interferogramme, bei denen zu viele oder nicht korrigierbare Fehler während der Aufnahme aufgetreten sind. (2) Phasen-Korrektur: Optische oder elektronische Abtasteffekte führen zur Aufnahme eines asymmetrischen Interferogramms und damit zu einem komplexwertigen Spektrum. Durch eine geeignete Korrektur der Phase kann ein reellwertiges Spektrum bestimmt werden. (3) Radiometrische Kalibration: Konvertierung der gemessenen Signalstärken in physikalische Strahlungsdichte-Einheiten [$\text{W}/(\text{m}^2 \text{sr cm}^{-1})$]. Hierbei ist insbesondere die Nicht-Linearität der Infrarot-Detektoren zu berücksichtigen. (4) Spektrale Kalibration: Möglichst genaue Bestimmung der Wellenzahlen [cm^{-1}] der Stützstellen des

Meßspektrums. (5) Auswertung der Lagedaten: Bestimmung von Zeit, geographischer Länge und Breite, sowie der Tangentenhöhe für jedes aufgenommene Strahlungsspektrum aus der Position der Envisat-Plattform und der Ausrichtung der MIPAS-Scanspiegel. Exemplarisch sind Envisat MIPAS L1B-Daten in Abbildung 7 dargestellt. Hier wird der Umfang der spektralen Messungen besonders deutlich.

Beschreibungen der operationellen L1B- nach L2-Prozessierung der ESA finden sich in [Carli *et al.*, 1999, 2004; Ridolfi *et al.*, 2000; Carlotti *et al.*, 2001b]. Die Ableitung von Atmosphärenparametern aus den Strahlungsdichtemessungen basiert auf dem Global-Fit-Ansatz [Carlotti, 1988]. Bei dieser Methode wird iterativ eine Schätzung des Atmosphärenzustands verbessert, indem die Abweichungen zwischen hierfür simulierten Strahlungsdichtemessungen und den tatsächlichen Strahlungsdichtemessungen minimiert werden. Die Variation der Zustandsgrößen erfolgt beim Global-Fit-Ansatz auf allen Höhenstufen eines Vertikalprofils gleichzeitig. Abgeleitet werden neben Druck (Fehler 2–3 %) und Temperatur (Fehler 1–2 K) die Volumengasgemischungsverhältnisse von H_2O , O_3 , HNO_3 , CH_4 , N_2O und NO_2 (Fehler je 5–10 %). Die Ableitung der Spurengasprofile erfolgt sequentiell in der angegebenen Reihenfolge. Durch eine geeignete Wahl von Spektralbereichen ist sichergestellt, daß die Fehlerpropagation während der Ableitung gering bleibt. Es werden keine expliziten a priori Annahmen oder andere Regularisierungsverfahren eingesetzt, um die Inversionsrechnung zu stabilisieren. Die L2-Prozessierung ist ein rechenaufwendiger Vorgang. Durch umfassende Optimierungsstudien während der Entwicklung der ESA-Software wurde erreicht, daß die Datenauswertung in nahezu Echtzeit erfolgen kann, d. h. innerhalb 3–6 Stunden nach Messung. In Abbildung 8 sind im Rahmen der operationellen Prozessierung abgeleitete Atmosphärenparametern zu den Strahlungsspektren aus Abbildung 7 dargestellt. Im Rahmen der operationellen Auswertung wird lediglich der statistische Fehler der Ergebnisse abgeschätzt.

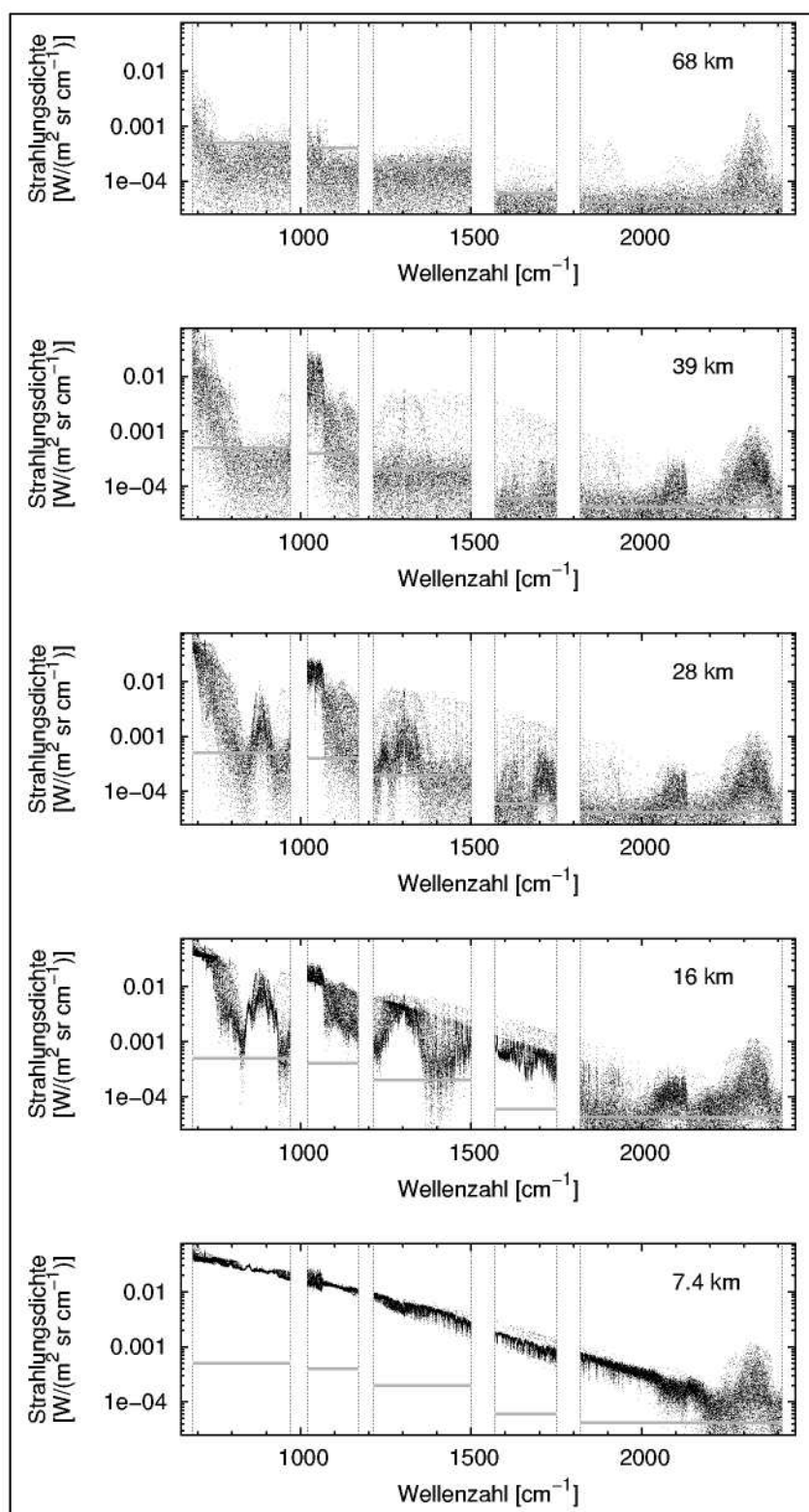


Abbildung 7: Envisat MIPAS L1B-Daten. Aufgenommen am 05.11.2003, 07:30 UTC bei 42° O, 67° N. Jedes Spektrum enthält fast 60 000 Meßstützstellen. Zum Vergleich eingetragen ist die NESR Spezifikation (graue Linien).

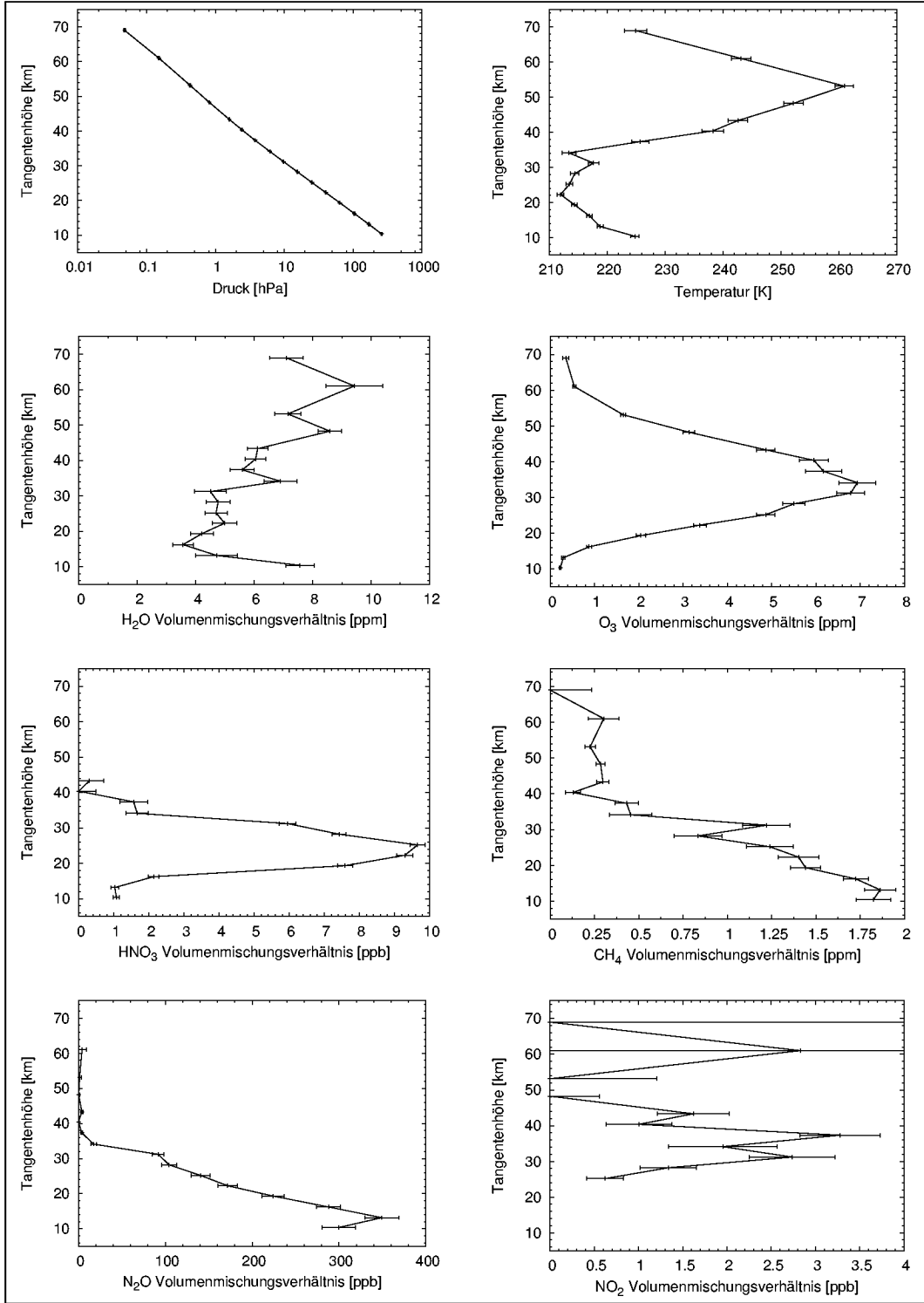


Abbildung 8: Envisat MIPAS L2-Daten. Abgeleitet im Rahmen der operationellen Datenprozessierung der ESA aus den L1B-Daten aus Abbildung 7. Die Fehlerbalken geben den statistischen Fehler der Ergebnisse an (1σ -Wert).

Außer den in Echtzeit bereitgestellten L1B- und L2-Daten sind nachträglich prozessierte “offline-Daten” verfügbar, in die zahlreiche Qualitätsverbesserungen eingegangen sind. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Auswertungen wird auf offline-Daten der Versionen 4.61 und 4.62 zurückgegriffen. Als verbleibende Mängel dieser Datenversionen sind bekannt [Koopman, 2004a,b]: (1) Ein kleiner Anteil der Spektren weist aufgrund eines Algorithmienfehlers residuale Oszillationen auf. Die Oszillation im Spektrum korrespondieren jeweils mit einer Über- oder Unterschätzung einzelner Stützstellen im zugehörigen Interferogramm. Sie pflanzen sich als Fehlerterme in die abgeleiteten Druck-, Temperatur- und Spurengasprofile fort. (2) Die Wolken-Erkennung ist in der Version 4.61 fehlerhaft (siehe Abschnitt 2.4). (3) Für den Zeitraum von Missionsbeginn bis 12.12.2003 sind die Tangentenhöhen durch Störungen des Envisat Lagesystems beeinflusst (tägliche Drift mit Amplituden bis zu 1 km). Langperiodische Störungen konnten durch Rekalibration korrigiert werden. Die Ableitung von Druck und Temperatur sind durch diese Störungen nicht beeinflusst. Bestandteil der ESA L2-Daten sind abgeleitete Tangentenhöhen, die über das hydrostatische Gleichgewicht, ausgehend vom Druck- und Temperaturprofil sowie der Meßhöhe des untersten Tangentenpunkts berechnet werden. Da der große Lagefehler des untersten Tangentenpunkts alle abgeleiteten L2-Tangentenhöhen negativ beeinflusst, sollte anstelle dieser besser direkt der Druck als Höhenkoordinate bei der weiteren Auswertung der Daten verwendet werden.

2.4 Wolkenfilter und Beobachtungsstatistik

Beim Horizontsondierungsverfahren besteht im mittleren Infrarot eine hohe Empfindlichkeit gegenüber Wolken im Gesichtsfeld des Instruments. Wolken weisen eine kontinuumsartige Emissionsstruktur auf. Das gemessene Spektrum geht bei ihrem Auftreten in eine Planckfunktion über (z. B. Abb. 7, unterste Tangentenhöhe). Die

Bestimmung von Druck, Temperatur und Spurengasen aus dem Meßspektrum ist dann nicht mehr oder nur mit großen Aufwand möglich. Zur Detektion von Wolken und Filterung der entsprechenden Spektren wird daher sowohl im Rahmen der ESA-Prozessierung als auch bei der im Rahmen der Arbeit durchgeführten Nachprozessierung ein Verfahren von *Spang et al.* [2004] angewendet. Betrachtet wird das als Cloud Index (CI) bezeichnete Verhältnis der Strahlungsdichte bei $788.2 - 796.25 \text{ cm}^{-1}$ zu $832.3 - 834.4 \text{ cm}^{-1}$. Während die Strahlungsdichte des ersten Bereichs durch CO_2 -Emissionen dominiert und nur geringfügig durch die Anwesenheit von Wolken beeinflusst ist, liegt der zweite Bereich in einem atmosphärischen Fenster und reagiert mit einem starken Strahlungsanstieg falls eine Wolke betrachtet wird. Wolkenfreie Bedingungen werden in der Nachprozessierung für $\text{CI} > 4$ angenommen (bei der ESA-Prozessierung ist $\text{CI} > 1.8$ gewählt). Unter diesem Grenzwert erfolgt ein Übergang von optisch dünnen zu optisch dichten Wolken. Der CI ist für Tangentenhöhen unter 10 km insbesondere im Bereich der tropischen Breiten aufgrund starker H_2O -Kontinuumsemissionen nur noch eingeschränkt zur Wolkendetektion geeignet. Für Tangentenhöhen oberhalb 30–40 km ist aufgrund des abnehmenden Signal/Rausch-Verhältnis ebenfalls keine sinnvolle Bestimmung des CI möglich. Wolken sind in diesem Höhenbereich jedoch auch nicht mehr zu erwarten.

Um eine Beobachtungsstatistik für Envisat MIPAS abzuleiten, wurde das Verhältnis der Anzahl wolkenfreier Spektren zur Gesamtzahl aller aufgenommenen Spektren bestimmt. Aus dieser Statistik kann nicht direkt auf die tatsächliche Verteilung der Wolken zurückgeschlossen werden, da auch bei einer bekannten Tangentenhöhe nicht eindeutig festzulegen ist, an welcher Stelle des Sehstrahls sich eine Wolke tatsächlich befindet. Auch das vergleichsweise große Gesichtsfeld von Envisat MIPAS macht die exakte Bestimmung der Lage einer Wolke schwierig. Die in Abbildung 9 gezeigte Statistik liefert hingegen eine direkte Aussage darüber, ob eine wolkenfreie Beobachtung möglich war oder nicht. Zumeist geht die Wahrscheinlichkeit einer

wolkenfreien Beobachtung von 100 % oberhalb der Tropopause bis auf unter 10 % in der mittleren Troposphäre zurück. In der südpolaren Winterhemisphäre nimmt die Wahrscheinlichkeit jedoch bereits im Höhenbereich 20–30 km aufgrund von polaren Stratosphärenwolken (engl.: polar stratospheric clouds, PSCs) stark ab (Abb. 9, oben links). Auf der nordpolaren Winterhemisphäre ist dies nicht zu beobachten, da die Schwelltemperatur zur Bildung von PSCs seltener unterschritten wird (Abb. 9, oben rechts). Dies gilt insbesondere für den außergewöhnlich warmen Nordwinter 2003/2004, in dem sich PSCs fast überhaupt nicht bilden konnten [Manney *et al.*, 2005]. Ein starkes Absinken der Beobachtungswahrscheinlichkeit findet sich weiter im Bereich der oberen tropischen Troposphäre aufgrund von hochreichender Konvektion. Dies gilt insbesondere für die Landmassen von Zentralafrika und das nördliche Südamerika sowie die Region von Südostasien, in der hohe Meeresoberflächentemperaturen ebenfalls die Konvektion begünstigen (Abb. 9, unten). Die hier gezeigten Resultate stimmen qualitativ mit Analysen der Wolkenverteilung basierend auf Daten der Satellitenexperimente SAGE II und CRISTA überein [Wang *et al.*, 1996; Spang *et al.*, 2002].

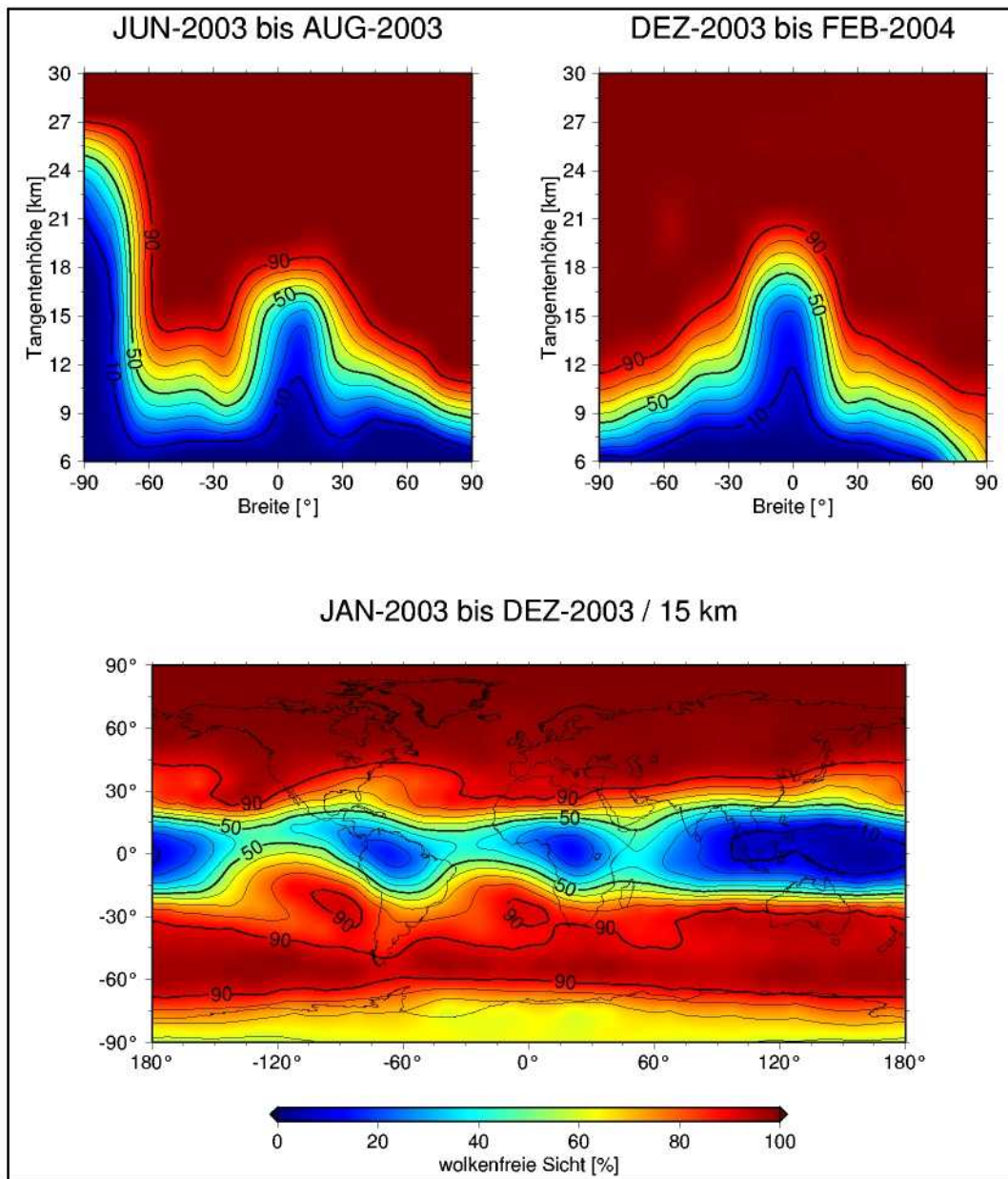


Abbildung 9: Beobachtungsstatistik für Envisat MIPAS. Für rund 2.4 Millionen, während des Jahres 2003 im Höhenbereich 5–30 km gemessene Spektren wurde bestimmt, ob eine wolkenfreie Sicht ($CI > 4$) vorgelegen hat. Die Auswertung der Daten erfolgt in Boxen von $10^\circ \times 3$ km (oben) respektive $15^\circ \times 10^\circ$ im Höhenbereich 15 ± 1.5 km (unten).

3 Vorwärtsmodellierung für Envisat MIPAS

Eine wichtige Komponente bei der Auswertung von Fernerkundungsmessungen ist das Vorwärtsmodell. Mit dem Vorwärtsmodell werden die Messungen eines Instruments für einen gegebenen Atmosphärenzustand simuliert. Die Modellierung besteht im wesentlichen aus der Berechnung des Strahlungstransports innerhalb der Atmosphäre sowie einer Nachbildung des physikalischen Meßvorgangs des Instruments. Das Meßprinzip von Envisat MIPAS wurde bereits in Kapitel 2 erörtert. Eine Einführung in den Strahlungstransport in planetaren Atmosphären findet sich z. B. bei *Goody und Yung* [1989], *Thomas und Stamnes* [1999] oder *López-Puertas und Taylor* [2002]. In diesem Kapitel wird speziell die Auswertung von tropo- und stratosphärischen Fernerkundungsmessungen nach dem Horizontsondierungsverfahren im mittleren Infrarot ($4-15\text{ }\mu\text{m}$) diskutiert. Umfangreiche Satellitenmessungen wie die von Envisat MIPAS stellen besondere Ansprüche an die Geschwindigkeit, mit der eine Auswertung erfolgen kann. Die Anforderungen werden sich zukünftig noch verschärfen, falls Experimente wie GLORIA (Global Limb Radiance Imager for the Atmosphere) [*Riese et al.*, 2005; *Fiedl-Vallon et al.*, 2005] oder IMIPAS (Imaging-MIPAS) [*Kerridge*, 2005] realisiert werden. Bei diesen Experimenten wird die zu verarbeitende Datenmenge im Vergleich zu heutigen Instrumenten um mehrere Größenordnungen anwachsen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Softwarebibliothek JURASSIC (Juelich Rapid Spectral Simulation Code) entwickelt, die eine Auswertung umfangreicher Satellitenmessungen durch schnelle Vorwärtsrechnungen ermöglicht. Exemplarisch zeigt Abbildung 10 die Ergebnisse einer Vorwärtsrechnung mit JURASSIC für die $11.8\text{ }\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 (CCl_3F). Die Durchführung derartiger Vorwärtsrechnungen wird im Folgenden genauer diskutiert. Envisat MIPAS Messungen im Bereich der $11.8\text{ }\mu\text{m}$ -Bande wurden hier zur Ableitung der globalen Verteilung von CFC-11 herangezogen (Kapitel 4 und 5).

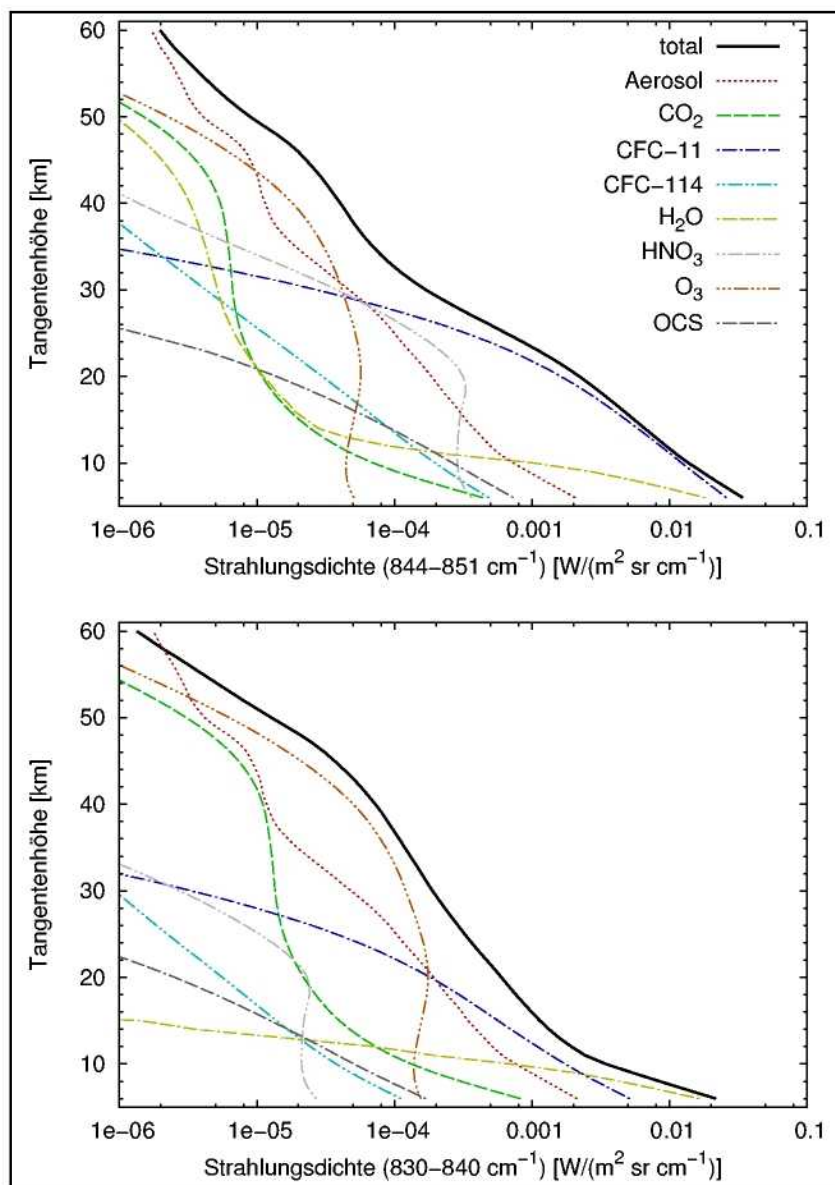


Abbildung 10: Vorwärtsrechnungen für die $11.8\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11. Die Berechnung für zwei unterschiedliche Strahlungskanäle (oben: Zentrum der Bande, unten: langwellige Flanke der Bande) basiert auf einer von Remedios [1999] zusammengestellten Atmosphärenklimatologie für mittlere Breiten. Gezeigt sind der Höhenverlauf der Gesamtstrahlungsdichte und die Strahlungsdichten für Atmosphären, die jeweils nur eines der berücksichtigten Spurengase oder Aerosol beinhalten.

3.1 Definition des Atmosphärenzustands

Typischerweise werden in Strahlungstransportmodellen Feldgrößen wie Druck p , Temperatur T , Volumenmischungsverhältnisse q_j (mit Spurengas-Index j) oder Aerosol Extinktionskoeffizienten k in Form einzelner Vertikalprofile vorgegeben [Gordley *et al.*, 1994; Stiller, 2000; Dudhia, 2004]. Für JURASSIC wurde ein etwas allgemeinerer Ansatz zur Festlegung des Atmosphärenzustands gewählt. Die Atmosphäre wird hier durch Vorgabe eines Satzes räumlich und zeitlich beliebig verteilter Luftpakete beschrieben. Damit ist das Programm universell anwendbar und kann außer zur direkten Simulation einzelner Vertikalprofile bei der Satellitenauswertung auch dazu verwendet werden, um räumlich hoch aufgelöste Eingangsdaten aus Atmosphärenmodellen zu verarbeiten. Dies ist beispielsweise bei Studien zum Strahlungstransport in der Tropopausenregion wünschenswert, in der starke Gradienten und komplexe Strukturen in der atmosphärischen Zusammensetzung auftreten und die in der Stratosphäre häufig gebrauchte Annahme einer homogen geschichteten Atmosphäre oft nicht mehr gerechtfertigt ist. Ein allgemeinerer Ansatz ist außerdem bei der Implementation fortgeschrittener Retrievalverfahren erforderlich.

Die Position eines Luftpakets wird in JURASSIC bestimmt über die Zeitangabe (Julianische Sekunden seit dem 01.01.2000, 00:00 UTC) sowie Länge, Breite und Höhe in Bezug auf das WGS 84 Referenzsystem (World Geodetic System – 1984) [z. B. Eurocontrol, 1998]. In diesem System wird der lokale Erdradius gemäß der Formel für das Rotationsellipsoid berechnet,

$$R = \frac{R_e R_p}{\sqrt{R_e^2 \sin^2 \psi + R_p^2 \cos^2 \psi}}. \quad (3.1)$$

Es bezeichnet $R_e = 6378.137$ km den äquatorialen Radius, $R_p = 6356.752$ km den polaren Radius und ψ die geozentrische Breite (über den Erdmittelpunkt definiert).

Der Atmosphärenzustand für einen beliebigen Ort und Zeitpunkt ist nach Angabe der Luftpakete eindeutig durch das gewählte Interpolationsverfahren bestimmt. In JURASSIC wird zur Interpolation des Atmosphärenzustands für eine gegebene Position eine Mittelung von $\log p$, T , q_j und k benachbarter Luftpakete durchgeführt. Dabei wird der abstandsabhängige Gewichtungsfaktor

$$w(\Delta h, \Delta z, \Delta t) = \exp\left(-\frac{\Delta h}{c_h}\right) \exp\left(-\frac{\Delta z}{c_z}\right) \exp\left(-\frac{\Delta t}{c_t}\right) \quad (3.2)$$

angewendet, wobei Δh , Δz und Δt die horizontale, vertikale und zeitliche Distanz zwischen der untersuchten Position und jeweils einem der benachbarten Luftpakete angibt. Die Korrelationslängen c_h , c_z und c_t müssen so gewählt werden, daß sie sowohl der räumlichen und zeitlichen Auflösung der Luftpakete entsprechen als auch den natürlichen Skalenverhältnissen der Feldgrößen in der Atmosphäre angepaßt sind. Hierzu zählt insbesondere das Rossby-Verhältnis $c_h/c_z \approx 250$ [*Lindzen und Fox-Rabinovitz*, 1989; *Haynes und Anglade*, 1997].

Durch Verwendung der Gewichtungsfunktion (3.2) ist das in JURASSIC eingesetzte Interpolationsverfahren approximativ, d. h. die interpolierten Werte entsprechen an den Orten der Luftpakete im Allgemeinen nicht den dort vorgegebenen Werten. Dies verdeutlicht Abbildung 11, in der das Interpolationsergebnis für den eindimensionalen Fall (einzelnes Vertikalprofil) bei verschiedenen Korrelationslängen c_z dargestellt ist. Die Interpolation mit Hilfe von laufenden Mittelwerten führt bei großen Korrelationslängen zu einer Glättung atmosphärischer Strukturen (Abb. 11, oben). Bei kleinen Korrelationslängen können künstlich stufenartige Strukturen erzeugt werden (Abb. 11, unten). Im Vergleich zu einer linearen Interpolation, auf die in JURASSIC für Atmosphärendaten in Form eines einzelnen Vertikalprofils normalerweise standardmäßig zurückgegriffen wird, ergeben sich die geringsten Interpolationsfehler, wenn die Korrelationslängen etwa 25–50 % des mittleren Abstands der Luftpakete

entsprechen. Das beschriebene Verfahren ist bei einer größeren Zahl von Luftpaketen (Größenordnung 10 000 und mehr) relativ rechenaufwendig. In einem solchen Fall müssen die Daten geeignet vorsortiert werden. Trotz des erhöhten Rechenaufwands bietet der beschriebene Ansatz die größte Flexibilität im Hinblick auf die Interpolation von 1D-Daten (d. h. für ein einzelnes Vertikalprofil), 2D-Daten (z. B. ein Satz von Vertikalprofilen entlang der Meßspur eines Satelliten) oder 3D- und 4D-Daten (wie sie durch Atmosphärenmodelle geliefert werden).

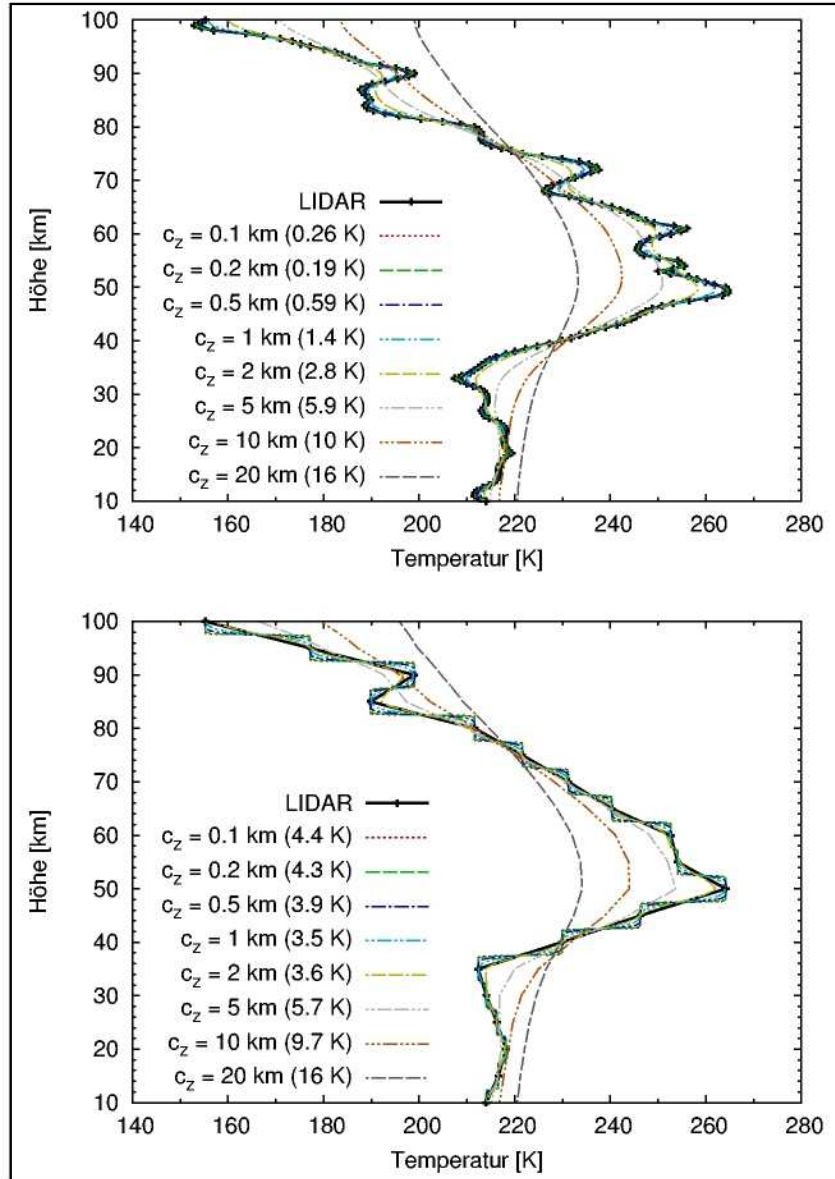


Abbildung 11: Interpolation eines auf einem Höhengitter von 500 m (oben) und 5 km (unten) vorgegebenen Temperaturprofils aus LIDAR-Messungen [Alpers et al., 2004]. Werte in runden Klammern geben die Standardabweichung zwischen der approximierenden Interpolation von JURASSIC und einer linearen Interpolation bei verschiedenen vertikalen Korrelationslängen c_z an.

3.2 Bestimmung von Sehstrahlen

Bevor der Strahlungstransport berechnet werden kann, muß der Verlauf der Sehstrahlen durch die Atmosphäre bestimmt werden. Unterhalb von 20–25 km führt die Refraktion in der Erdatmosphäre zu einer Ablenkung der Sehstrahlen in Richtung des Erdbodens, so daß etwa bei der Horizontsondierungsgeometrie die tatsächlichen Tangentenhöhen unterhalb der geometrisch berechneten Tangentenhöhen liegen. Abbildung 12 stellt dar, wie sich dieser Effekt bei verschiedenen Tangentenhöhen und unter unterschiedlichen klimatologischen Bedingungen auswirkt.

Ein einzelner Sehstrahl $\mathbf{r}(s)$ ergibt sich als Lösung der sogenannten Eikonal-Gleichung [z. B. *Born und Wolf*, 1999]

$$\frac{d}{ds} \left(n \frac{d\mathbf{r}}{ds} \right) = \nabla n. \quad (3.3)$$

Hierbei ist s die Ortskoordinate entlang des Sehstrahls mit Ursprung $s = 0$ am Ort des Instruments. Der Brechungsindex n hängt von der Wellenlänge λ , dem Druck p , der Temperatur T und dem Wasserdampf-Partialdruck e ab [*Ciddor*, 1996],

$$n = 1 + \left(N_g \frac{p}{p_0} \frac{T_0}{T} - \frac{11.27e}{T} \frac{\text{K}}{\text{hPa}} \right) \times 10^{-6}, \quad (3.4)$$

$$N_g = 287.6155 + 4.8866 \mu\text{m}^2/\lambda^2 + 0.068 \mu\text{m}^4/\lambda^4. \quad (3.5)$$

Weiterhin gibt N_g die Refraktivität trockener Luft unter Standardbedingungen an ($p_0 = 1013.25 \text{ hPa}$, $T_0 = 273.15 \text{ K}$). Die Variation mit der Wellenlänge ist im Bereich des mittleren Infrarot vernachlässigbar (Abweichungen in N_g kleiner 0.1 %). Ein Vergleich der Summanden in Gleichung (3.4) für verschiedene klimatologische Bedingungen zeigt, daß Wasserdampf in diesem Wellenlängenbereich ebenfalls keinen nennenswerten Einfluß auf die Refraktion hat (Variation in $n - 1$ kleiner 0.5 %).

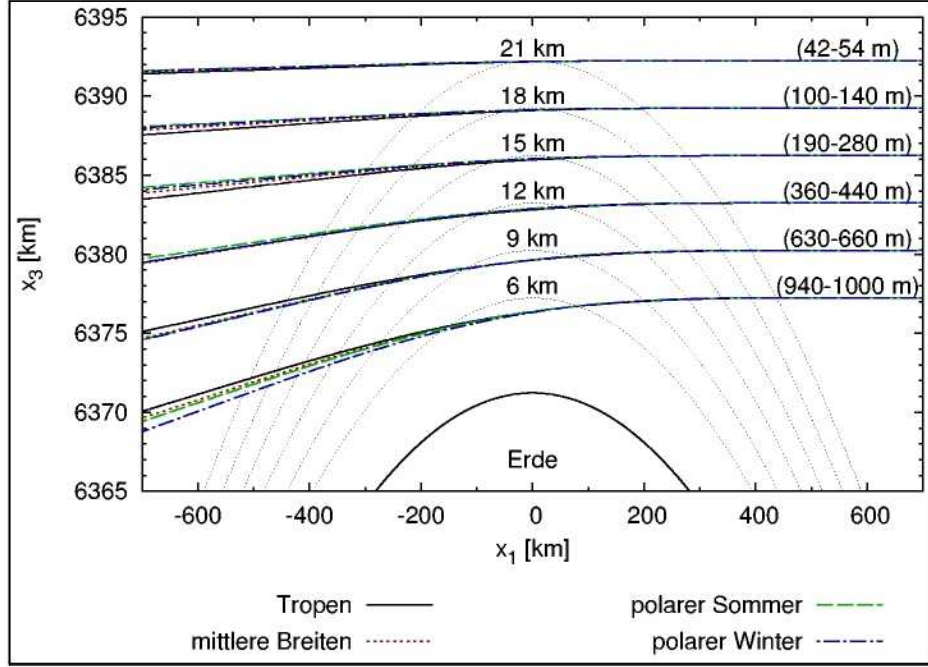


Abbildung 12: Beugung von Sehstrahlen in der Horizontsondierungsgeometrie. Die Berechnung gilt für $10\mu\text{m}$ Wellenlänge, verschiedene klimatologische Bedingungen und geometrische Tangentialhöhen im Bereich 6–21 km. Werte in runden Klammern geben den Bereich der Differenzen zwischen geometrischer und tatsächlicher Tangentialhöhe für die verschiedenen klimatologischen Fälle an.

Die Eikonal-Gleichung (3.3) wird unter Verwendung kartesischer Koordinaten numerisch durch ein iteratives Schema von *Hase und Höpfner* [1999] gelöst,

$$\mathbf{r}_{i+1} = \mathbf{r}_i + 0.5 ds (\mathbf{e}_{t,i} + \mathbf{e}_{t,i+1}), \quad (3.6)$$

$$\mathbf{e}_{t,i+1} = \frac{\mathbf{e}_{t,i} n(\mathbf{r}_i) + ds \nabla n(\mathbf{r}_i + 0.5 ds \mathbf{e}_{t,i})}{|\mathbf{e}_{t,i} n(\mathbf{r}_i) + ds \nabla n(\mathbf{r}_i + 0.5 ds \mathbf{e}_{t,i})|}. \quad (3.7)$$

Darin bezeichnet ds die Schrittweite entlang des Sehstrahls. Die Bestimmung des Sehstrahls beginnt am Ort $\mathbf{r}_0$ des Instruments. Durch Angabe eines weiteren Ortes in der Atmosphäre wird der anfängliche Tangentenvektor $\mathbf{e}_{t,0}$ definiert. Als Blickpunkt kann der geometrische Tangentialpunkt gewählt werden, notwendig ist dies aber nicht. Über diese allgemeine Vorgabe können beliebige Beobachtungsgeometrien für Instrumentträger innerhalb und außerhalb der Atmosphäre festgelegt werden.

Die Wahl der Schrittweite ds ist von großer Bedeutung für die Geschwindigkeit und Genauigkeit der Strahlungstransportrechnungen. In guter Näherung ist die mittlere Rechenzeit t für die Sehstrahlbestimmung plus anschließende Berechnung des Strahlungstransports proportional zum Kehrwert der Schrittweite, $t \sim 1/ds$, wie die in Abbildung 13 dargestellte Untersuchung zeigt. Wird die Schrittweite zu klein gewählt, nimmt die Berechnung des Strahlungstransports zuviel Rechenzeit in Anspruch. Bei großen Schrittweiten wird zwar der Verlauf der Sehstrahlen noch recht gut durch das beschriebene Verfahren bestimmt, allerdings wird die Inhomogenität der Atmosphäre entlang der Sehstrahlen nur noch unzureichend abgetastet. Abbildung 14 illustriert, daß dies mit der Schrittweite anwachsende Fehler in der Strahlungstransportrechnung verursacht, deren Ausmaß von den atmosphärischen Bedingungen abhängt und zudem für feste Bedingungen selbst bei nur geringen Änderungen der Schrittweite stark variieren kann. Wird die Atmosphäre in homogene Schichten unterteilt, so werden bei zu großer Wahl der Schrittweite in den oberen Höhen mehrere Schichten in einem Schritt durchquert. Beispielsweise korrespondiert ein maximaler Eintrittswinkel der Sehstrahlen in die Atmosphäre von 8° und eine Schrittweite von 10 km mit einer Schichtdicke von 1.4 km. Feiner vorgegebene Schichten werden nicht mehr abgetastet. Mit abnehmender Höhe reduzieren sich die Fehler aufgrund unzureichender Abtastung, da der Eintrittswinkel der Sehstrahlen in die Schichten gegen Null geht. Andererseits fallen bei niedrigen Höhen auch kleinere Fehler bei der Abtastung stärker bei der Strahlungstransportrechnung ins Gewicht, da aufgrund der meist exponentiell anwachsenden Teilchendichten dort die größten Beiträge zur Gesamtstrahlung entstehen. Die für die $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 durchgeführten Betrachtungen lassen eine Schrittweite von 10 km sinnvoll erscheinen. Der Mittelwert des Strahlungsdichtefehlers liegt unter 0.15 %, die Standardabweichung unter 0.3 % und die mittlere Rechenzeit auf dem verwendeten Rechner (2.4 GHz Intel Pentium IV PC) bei 0.6 msec.

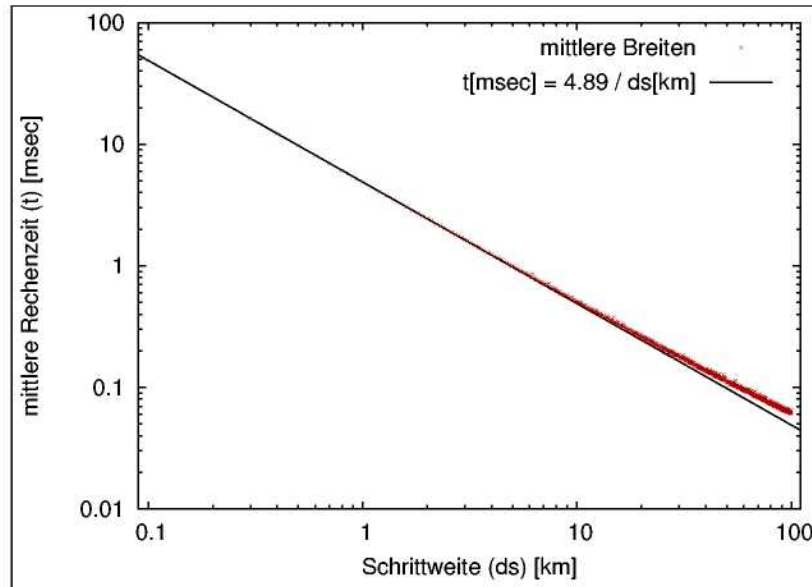


Abbildung 13: Rechenzeit als Funktion der Schrittweite bei der Sehstrahlbestimmung. Die mittlere Rechenzeit pro Sehstrahl, Emittor und Strahlungskanal wurde auf einem 2.4 GHz Intel Pentium IV PC bestimmt. Es besteht keine signifikante Abhängigkeit von den klimatologischen Bedingungen.

Im Fall der Horizontsondierung erlaubt eine parabolische Interpolation basierend auf den drei erdnächsten Punkten des Sehstrahls eine sehr exakte Bestimmung des Tangentenpunkts. Der Fehler in der Tangentenhöhe liegt bei der parabolischen Interpolation unter 1 m und damit 1–2 Größenordnungen unter Wert, mit dem diese Größe in der Regel meßtechnisch zu erfassen ist. Bei Studien zum Strahlungstransport oder beim Auswerten der MIPAS-Messungen ist es wünschenswert, wenn statt der geometrischen Tangentenhöhe die tatsächliche Tangentenhöhe vorgegeben werden kann. Dies wird durch eine iterative Wiederholung der Sehstrahlbestimmung ermöglicht. Dazu wird die Höhe des angepeilten Blickpunkts innerhalb der Atmosphäre (dies sollte hierbei möglichst der geometrische Tangentenpunkt sein) jeweils um die Differenz zwischen tatsächlicher Tangentenhöhe und Zielhöhe korrigiert. In der Regel ist bereits nach 2–4 Wiederholungen der Verlauf des Sehstrahls für die gewünschte Zielhöhe korrekt bestimmt. Mit der iterativen Anpassung der Tangentenhöhe ist eine horizontale Verschiebung des Tangentenpunkts verbunden, die in JURASSIC momentan nicht nachkorrigiert wird.

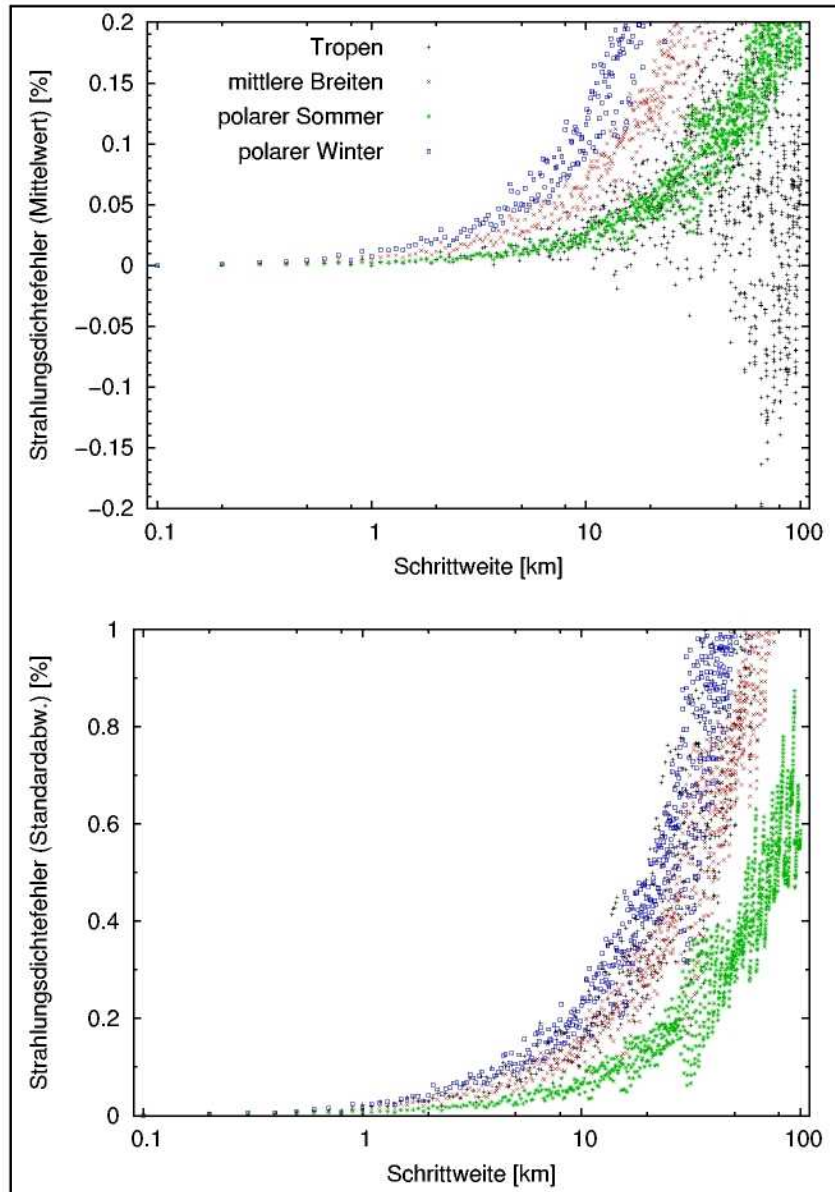


Abbildung 14: Fehler der Strahlungstransportrechnung für verschiedene Schrittweiten bei der Sehstrahlbestimmung. Aufgeführt sind Mittelwert (oben) und Standardabweichung (unten) des relativen Fehlers der mittleren Strahlungsdichte im Zentralbereich der $11.8\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11. Gemittelt wird über den Höhenbereich 6–60 km. Bezugspunkt ist eine Referenzrechnung mit 100 m Schrittweite für den jeweiligen klimatologischen Fall.

3.3 Berechnung des Strahlungstransports

Die Ausbreitung monochromatischer Strahlung I entlang eines beliebigen Sehstrahls durch die Atmosphäre berechnet sich gemäß der allgemeinen Strahlungstransportgleichung [Chandrasekhar, 1960]

$$I(\nu, x) = I(\nu, 0)\tau(\nu, 0, x) + \int_0^x J(\nu, x') \frac{d}{dx'} \tau(\nu, x', x) dx'. \quad (3.8)$$

Es bezeichnet ν die Wellenzahl, x die Ortskoordinate entlang des Strahls, $I(\nu, 0)$ die am Startpunkt einfallende Strahlung, $I(\nu, x)$ die am anderen Ende austretende Strahlung, $\tau(\nu, x', x)$ die Transmission entlang des Strahls von x' nach x und $J(\nu, x')$ die Quellfunktion, die im allgemeinen Fall sowohl die thermischen Emissionen der Emmitter entlang des Strahls als auch die Streuung der Strahlung beschreibt.

Liegt lokales thermodynamisches Gleichgewicht vor und sind Streueffekte zu vernachlässigen, wird als Quellfunktion die Planck-Funktion

$$B(\nu, T) = \frac{c_1 \nu^3}{\exp(c_2 \nu / T) - 1} \quad (3.9)$$

$$c_1 = 2hc^2 = 1.19104 \times 10^{-8} \text{ W}/(\text{m}^2 \text{ sr cm}^{-4}) \quad (3.10)$$

$$c_2 = hc/k = 1.43878 \text{ K}/\text{cm}^{-1} \quad (3.11)$$

mit den spektroskopischen Konstanten c_1 und c_2 beziehungsweise der Planck-Konstanten h , der Lichtgeschwindigkeit c und der Boltzmann-Konstanten k eingesetzt. Abweichungen vom lokalen thermodynamischen Gleichgewicht treten meist erst oberhalb der Stratopause auf [z.B. *Manuilova et al.*, 1998; *López-Puertas et al.*, 1998]. Streueffekte können aufgrund der kleinen Streuquerschnitte im mittleren Infrarot vernachlässigt werden, solange keine Wolken oder hohe Aerosolkonzentrationen in der Atmosphäre vorhanden sind [z.B. *Höpfner und Emde*, 2005].

Die Transmission der Atmosphäre ist sowohl durch die spezifischen molekularen Rotations-Vibrations-Übergänge der in ihr enthaltenen Spurengase als auch durch eine Reihe von Kontinuums-Prozessen bestimmt. Für molekulare Emitter hängt die Transmission entlang des Sehstrahls mit deren Absorptionskoeffizienten κ_i und Teilchendichten ρ_i zusammen gemäß

$$\tau(\nu, x', x) = \exp \left[- \int_{x'}^x \sum_i \kappa_i(\nu, x'') \rho_i(x'') dx'' \right]. \quad (3.12)$$

Hierbei indiziert i den Emitter. Der Absorptionskoeffizient ist durch Summation über eine große Zahl von Spektrallinien (indiziert mit j) zu berechnen,

$$\kappa_i(\nu, x'') = \sum_j k_{ij}[T(x'')] f_{ij}[\nu, p(x''), T(x'')]. \quad (3.13)$$

Das Phänomen des Line-Mixing [z. B. *Strow*, 1988], bei dem die Wechselwirkung von Spektrallinien nicht mehr durch einfache Addition zu beschreiben ist, wird hier nicht weiter diskutiert. In der konkreten Auswertungen ist es jedoch berücksichtigt. Parameter zur Bestimmung von Linienstärke k_{ij} und Linienprofilfunktion f_{ij} abhängig von Druck p und Temperatur T finden sich in Datenbanken tabelliert. Für die hier durchgeführten Auswertungen wird auf die Datenbank HITRAN (High Resolution Transmission) zurückgegriffen [*Rothman et al.*, 2003]. Die Datenbank enthält neben den Parametern für rund eine Million Spektrallinien von 40 einfach aufgebauten Spurengasen auch direkt gemessene IR-Absorptionsquerschnitte von komplexer strukturierten Molekülen, wie etwa CFC-11. Die Linienübergänge liegen bei den komplexen Molekülen so dicht, daß sie selbst bei Gaszellen-Messungen mit FTIR-Spektrometern im Labor nicht mehr aufgelöst werden können. Ebenso sind die Übergänge nur schwierig theoretisch zu berechnen. Bei einigen Gasen, insbesondere bei H_2O , CO_2 , N_2 und O_2 , gehen bei vergleichsweise hohem Druck, wie er etwa in der Troposphäre und unteren Stratosphäre vorliegt, die Spektrallinien durch eine starke Verbreite-

rung ineinander über, so daß ein kontinuumsartiger Emissionsuntergrund entsteht [z. B. *Lafferty et al.*, 1996; *Thibault et al.*, 1997; *Mlawer et al.*, 2003]. Kontinuumsmissionen werden auch durch Aerosole verursacht. In JURASSIC wird der Einfluß von Aerosolen auf die Transmission durch direkte Vorgabe von Extinktionskoeffizienten σ_{ext} beschrieben. Die Extinktion gibt die Abschwächung der Strahlung pro Weglänge an und ist verknüpft mit der Transmission gemäß

$$\tau(\nu, x', x) = \exp \left[- \int_{x'}^x \sigma_{ext}(\nu, x'') dx'' \right]. \quad (3.14)$$

Die allgemeine Strahlungstransportgleichung (3.8) muß der konkreten Meßgeometrie von Envisat MIPAS angepaßt werden. Für die am Ort des Instruments auftretende Strahlung ergibt sich

$$I = \int_{\nu_0}^{\nu_1} f(\nu) \int_0^\infty B[\nu, T(s)] \frac{d}{ds} \varepsilon(\nu, s, 0) ds d\nu, \quad (3.15)$$

$$\varepsilon(\nu, s, 0) = 1 - \tau(\nu, s, 0). \quad (3.16)$$

Es wird von der Ortskoordinaten x auf die in entgegengesetzter Richtung verlaufende Ortskoordinate s der Sehstrahlbestimmung aus Abschnitt 3.2 gewechselt. Bei der Horizontsondierung liegt der Ursprung der Sehstrahlen im kalten Weltraum. Im Infrarotbereich entfallen die anfänglichen Quellterme, $I(s \rightarrow \infty) = 0$. Aus praktischen Erwägungen wird die Transmission τ durch die Emissivität ε ersetzt. Bei der numerischen Auswertung per Computer ist in Bezug auf einen möglichen Genauigkeitsverlust die direkte Speicherung einer kleinen Größe ε sinnvoller als die Speicherung von $1 - \varepsilon$. In Gleichung (3.15) ist weiter berücksichtigt, daß jedes Instrument die zu vermessende Strahlung nur mit einer endlichen spektralen Auflösung erfassen kann. Für jeweils einen Strahlungskanal gibt die Filterfunktion $f(\nu)$ die normierte spektrale Empfindlichkeit zur Wellenzahl ν an. Bei Envisat MIPAS kann eine einzel-

ne Stützstelle des Meßspektrums ein Strahlungskanal sein. In diesem Fall entspricht die Filterfunktion der Instrumentenfunktion (siehe Abschnitt 2.2). Wird die mittlere Strahlungsdichte über einen größeren Spektralbereich betrachtet, ergibt sich die Filterfunktion durch Mittelung der Instrumentenfunktionen aller Stützstellen, die bei der Bestimmung der mittleren Strahlungsdichte herangezogen werden.

Die genaueste Methode zur Berechnung der monochromatischen Emissivität ε ist die line-by-line Auswertung [erstmal bei *Hitschfeld und Houghton*, 1961; *Drayson*, 1966], wie in Gleichung (3.12) und (3.13) skizziert. Diese Methode ist jedoch sehr rechenaufwendig, denn je nach Spektralbereich können zehntausende molekularer Emissionslinien beteiligt sein, für die abhängig von Druck und Temperatur Linienstärke und -profil bestimmt werden müssen. Eine Möglichkeit zur Beschleunigung der Strahlungstransportrechnungen bietet eine approximative Lösung der Strahlungstransportgleichung (3.15), die von *Gordley und Russel* [1981] und *Mars-hall et al.* [1994] ausgearbeitet wurde. Hier wird auf eine leicht abgewandelte Formulierung von *Rodgers* [2000] zurückgegriffen,

$$I \approx \int_0^\infty \bar{B}[T(s)] \frac{d}{ds} \bar{\varepsilon}(s, 0) ds, \quad (3.17)$$

$$\bar{\varepsilon}(s, 0) = \int_{\nu_0}^{\nu_1} f(\nu) \varepsilon(\nu, s, 0) d\nu, \quad (3.18)$$

$$\bar{B}(T) = \int_{\nu_0}^{\nu_1} f(\nu) B(\nu, T) d\nu. \quad (3.19)$$

Statt des detaillierten spektralen Verlaufs von Strahlungsdichte, Emissivität und Planck-Funktion werden bei dieser Näherung nur noch die spektralen Mittelwerte (angezeigt durch Überstriche) innerhalb des durch die Filterfunktion definierten Strahlungskanals verwendet. Die spektral gemittelte Emissivität kann zum Beispiel mittels eines Bandmodells bestimmt werden oder, wie in dieser Auswertung, durch Rückgriff auf einen Satz vorausberechneter Emissivitätstabellen (Abschnitt 3.4).

Die Gleichungen (3.17) bis (3.19) liefern lediglich eine approximative Lösung des Strahlungstransports, da die spektralen Korrelationen der Emissivität beziehungsweise ihrer Ableitung entlang des Sehstrahls mit dem Verlauf der Planck-Funktion vernachlässigt werden. Der damit verbundene Fehler ist gegeben durch

$$\Delta I = \int_0^\infty \int_{\nu_0}^{\nu_1} f(\nu) [B(\nu, T) - \bar{B}(T)] \frac{d}{ds} [\varepsilon(\nu, s, 0) - \bar{\varepsilon}(s, 0)] d\nu ds. \quad (3.20)$$

Der mit der Vernachlässigung dieser Korrelationen verbundene Fehler wird wesentlich reduziert durch Rückgriff auf ein spezielles Verfahren zur Bestimmung der mittleren Emissivität, die sogenannte EGA-Methode (Abschnitt 3.4).

Ein weiterer Fehler resultiert in der hier durchgeführten Auswertung daher, daß die spektralen Korrelationen verschiedener Emittter vernachlässigt werden. Aus Gleichung (3.12) ist abzulesen, daß sich die monochromatische Gesamttransmission bei mehreren Emitttern multiplikativ aus deren Einzeltransmissionen ergibt. Für die monochromatische und mittlere Gesamtemissivität folgt damit

$$\varepsilon(\nu) = 1 - \tau(\nu) = 1 - \prod_i \tau_i(\nu) = 1 - \prod_i [1 - \varepsilon_i(\nu)] \quad (3.21)$$

$$\stackrel{(3.18)}{\Rightarrow} \bar{\varepsilon} = 1 - \prod_i (1 - \bar{\varepsilon}_i) + \Delta\varepsilon. \quad (3.22)$$

Der Restterm $\Delta\varepsilon$ ist durch die spektralen Korrelationen der Emittter bestimmt. Bei zwei Emitttern ergibt sich beispielsweise

$$\Delta\varepsilon = \int_{\nu_0}^{\nu_1} f(\nu) [\varepsilon_1(\nu) - \bar{\varepsilon}_1] [\varepsilon_2(\nu) - \bar{\varepsilon}_2] d\nu. \quad (3.23)$$

In der hier durchgeführten Auswertung werden derartige Korrelationsterme vernachlässigt. Der damit verbundene Fehler bleibt klein, wenn zumindest einer der Emittter einen relativ konstanten spektralen Verlauf aufweist. Die Näherung $\Delta\varepsilon \approx 0$

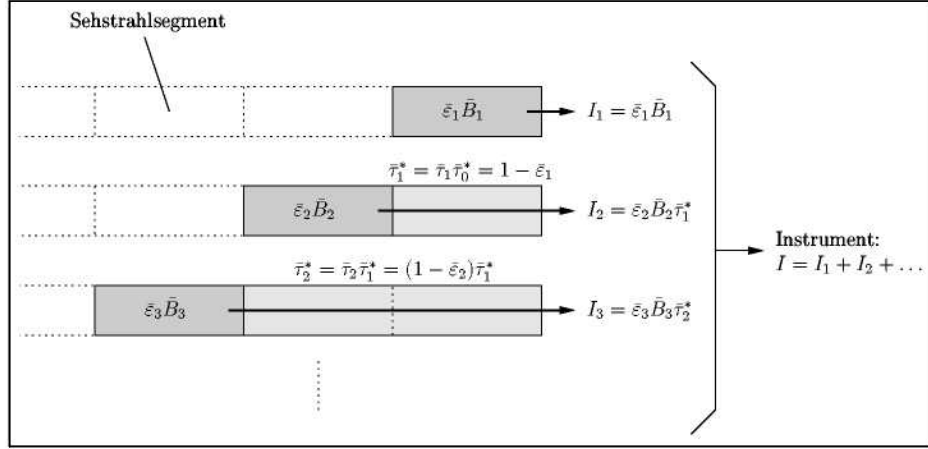


Abbildung 15: Numerische Berechnung des Strahlungstransports.

wird daher auch als Kontinuums-Approximation bezeichnet. Der Fehler bleibt ebenfalls klein, wenn ein hinreichend großer Spektralbereich mit vielen Spektrallinien betrachtet wird. Auf der Annahme, daß die Spektrallinien in einem solchen Fall als zufällig verteilt anzusehen sind, baut etwa das Bandmodell von Goody auf [z. B. Goody und Yung, 1989; Houghton, 2002].

Zur numerischen Berechnung des Strahlungstransports gemäß Gleichung (3.17) wird der Sehstrahl in Segmente zerlegt. Für jedes Segment werden homogene Atmosphärenbedingungen angenommen. Bei JURASSIC wird vereinfachend angesetzt, daß jeweils ein Punkt der Sehstrahlbestimmung nach Abschnitt 3.2 ein Segment der Länge ds definiert. Die approximierte Strahlungstransportgleichung (3.17) wird durch ein iteratives Schema gelöst,

$$I_{k+1} = I_k + \bar{\varepsilon}_{k+1} \bar{B}_{k+1} \bar{\tau}_k^*, \quad \bar{\tau}_k^* = (1 - \bar{\varepsilon}_k) \bar{\tau}_{k-1}^*, \quad \bar{\tau}_0^* = 1, \quad I_0 = 0. \quad (3.24)$$

Das Prinzip des Schemas ist in Abbildung 15 verdeutlicht: Angenommen der Sehstrahl besteht bereits aus k Segmenten, die am Ort des Instruments die Strahlungsdichte I_k erzeugen. Durch Hinzunahme eines weiteren Segments $k+1$ fällt ein Strahlungsbeitrag $\bar{\varepsilon}_{k+1} \bar{B}_{k+1}$ auf die k Segmente ein. Auf dem Weg zum Instrument wird

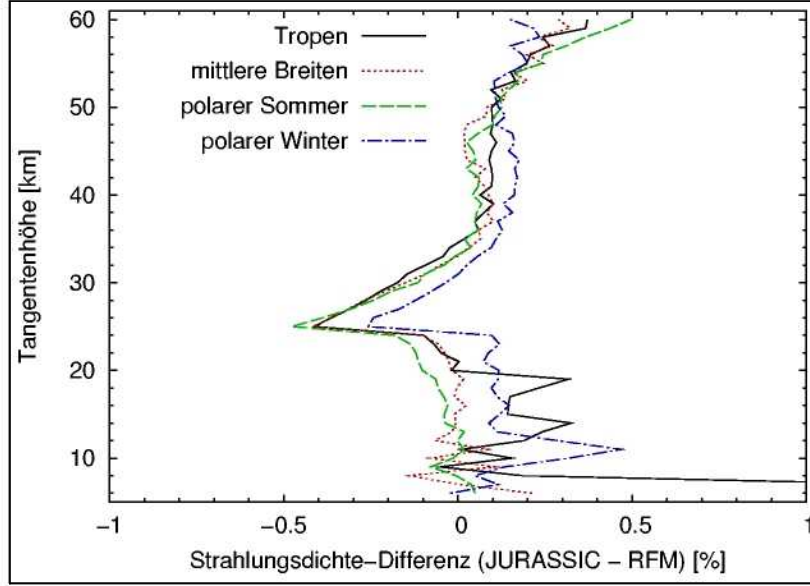


Abbildung 16: Vergleichsrechnung zwischen JURASSIC und dem MIPAS Reference Forward Model für das Zentrum der $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11.

die einfallende Strahlung teilweise absorbiert. Die Absorption ist durch die Gesamttransmission $\bar{\tau}_k^*$ der dazwischen liegenden k Segmente bestimmt. Beim Instrument kommt durch Hinzunahme des $(k+1)$ -ten Segments der zusätzliche Strahlungsbeitrag $\bar{\varepsilon}_{k+1}\bar{B}_{k+1}\bar{\tau}_k^*$ an. Die Pfadtransmission $\bar{\tau}_k^*$ ergibt sich hierbei multiplikativ aus der Transmission $\bar{\tau}_k = 1 - \bar{\varepsilon}_k$ der Einzelsegmente.

Die mit den beschriebenen Approximationen verbundenen Fehler können konkret jeweils nur für den Einzelfall mit Hilfe von line-by-line Vergleichsrechnungen abgeschätzt werden. Exemplarisch ist in Abbildung 16 ein Vergleich zwischen approximativen Strahlungstransportrechnungen mit JURASSIC und exakten line-by-line Auswertungen mit dem MIPAS Reference Forward Model (RFM) [Dudhia, 2004] gezeigt. Das RFM selbst ist ein Vergleichsstandard und wurde im Rahmen des Projekts AMIL2DA (Advanced MIPAS Level 2 Data Analysis) [von Clarmann et al., 2003c] erfolgreich mit fünf weiteren Strahlungstransportprogrammen verglichen. Die hier durchgeführte Vergleichsrechnung stimmt mit aufwendigeren Betrachtungen von Gordley und Russel [1981], Marshall et al. [1994] und Riese [1994] überein, wo-

nach der Methodenfehler bei Verwendung der approximierten Strahlungstransportgleichung in der Regel bei 0.5–2 % liegt. Dieser Fehler ist oft vernachlässigbar, etwa im direkten Vergleich zu Fehlern, die aufgrund von Unsicherheiten der spektroskopischen Daten in der Strahlungstransportrechnung entstehen. Dies ist insbesondere im Hinblick auf die später gezeigte Fehlerrechnung bei der Ableitung von Spurengasen von Bedeutung. Der Vorteil der approximierten Strahlungstransportrechnung liegt in der deutlich reduzierten Rechenzeit, die im untersuchten Fall drei Größenordnungen kleiner ist (RFM im Sekunden-Bereich, JURASSIC im Millisekunden-Bereich).

3.4 Verwendung von Emissivitätstabellen

Im Rahmen einer operationellen Datenauswertung muß eine große Zahl von Vorwärtsrechnungen ausgeführt werden. Der volle Geschwindigkeitsvorteil der approximierten Strahlungstransportrechnung gemäß Abschnitt 3.3 kann nur genutzt werden, wenn die spektral gemittelten Emissivitäten einmal mit Hilfe von line-by-line Rechnungen bestimmt und in tabellierter Form abgespeichert werden. In der späteren Auswertung wird die Emissivität dann durch einfache und schnelle Interpolation aus den Tabellen bestimmt. Zur Berechnung der Emissivitätstabellen kann jedes konventionelle Strahlungstransportmodell eingesetzt werden, mit dem die Transmission einer homogenen Gaszelle abhängig vom Druck p , der Temperatur T und der aus dem idealen Gasgesetz abgeleiteten Säulendichte $u = q p / (kT) ds$ (mit Volumenmischungsverhältnis q) bestimmt werden kann. Für die hier gezeigten Auswertungen wird zur Erzeugung der Emissivitätstabellen das MIPAS RFM verwendet.

Die Druck-, Temperatur- und Säulendichtestützstellen in den Emissivitätstabellen müssen den Bereich atmosphärischer Bedingungen vollständig abdecken. Da eine zu geringe Anzahl an Stützstellen beziehungsweise eine zu niedrige Auflösung der Emissivitätstabellen die Genauigkeit der Strahlungstransportrechnungen deut-

lich verschlechtern kann, muß diese genauer abgeschätzt werden. Als Referenz werden deshalb zunächst Emissivitätstabellen mit vergleichsweise feiner Auflösung angelegt. Gewählt werden hierfür die Druckniveaus $p_i = p_0 \exp(-z_i/7 \text{ km})$ mit $z_i = 2, 4, \dots, 80 \text{ km}$. Für jedes Druckniveau werden Temperaturen im Bereich $\Delta T_{i,j} = -70, -65, \dots, +70 \text{ K}$ um den klimatologischen Mittelwert für mittlere Breiten abgedeckt. Für jede $(p_i, T_{i,j})$ -Kombination werden dann die Säulendichten $u_{i,j,k}$ des jeweiligen Emitters so gewählt, daß die mittlere Emissivität $\bar{\varepsilon}(p_i, T_{i,j}, u_{i,j,k})$ den Bereich $[10^{-10}, 0.99]$ abdeckt und zwischen den Stützstellen ein Zuwachs von 12 % auftritt (eine maximale Emissivität von 1 und ein glatter Zahlenwert für den Zuwachs der Säulendichte sind aus technischen Gründen nicht möglich). Aus den Emissivitätstabellen dieser recht feinen Auflösung werden anschließend Tabellen mit reduzierter Auflösung abgeleitet, für welche dann die Abweichungen bei Strahlungstransportrechnungen unter verschiedenen klimatologischen Bedingungen bestimmt werden. Die Ergebnisse für verschiedene Testfälle sind in Abbildung 17 zusammengestellt. Aus der Forderung, daß die Abweichungen in der Regel unter 0.5 % liegen sollen folgt, daß die Zahl der Druckniveaus um einen Faktor fünf reduziert werden kann (empfehlenswerter Stützstellenabstand $dz = 10 \text{ km}$). Es empfiehlt sich allerdings, den Bereich der unteren und mittleren Troposphäre ($z_i < 10 \text{ km}$) hiervon auszunehmen. Im Fall der tropischen Breiten zeigt sich, daß sonst der Übergang in den optisch dichten Bereich nicht richtig beschrieben wird. Eine Reduzierung der Temperatur-Stützstellen erscheint nicht sinnvoll (empfehlenswerter Stützstellenabstand $dT = 5 \text{ K}$). Der Zuwachs in der Säulendichte kann verdoppelt werden (empfehlenswerter Stützstellenabstand $du = 26 \%$). Schließlich wurde der Einfluß des Minimalwerts der mittleren Emissivität untersucht. Dieser kann ohne signifikante Fehler auf $\varepsilon_{\min} = 10^{-6} - 10^{-5}$ heraufgesetzt werden. Bei niedrigeren Emissivitäten liefert der jeweilige Emitter innerhalb eines Segments keine signifikanten Beiträge zur Gesamtstrahlung.

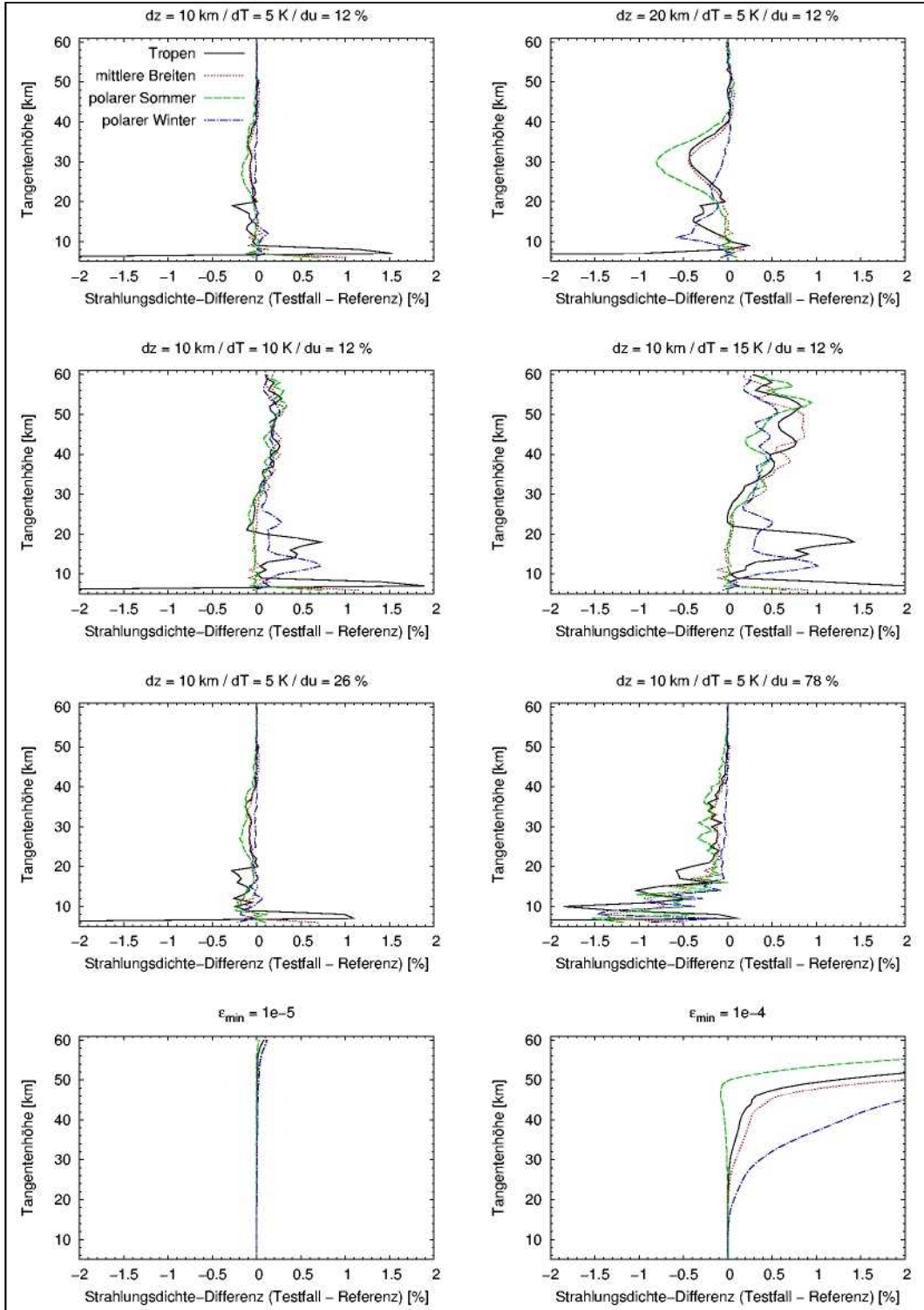


Abbildung 17: Einfluß der Auflösung der Emissivitätstabellen auf die Genauigkeit der Strahlungstransportrechnungen. Die Auflösung ist durch die Abstände der Stützstellen innerhalb der Tabellen gegeben (dz für den Druck, dT für die Temperatur und du für die Säulendichte). Die minimale Emissivität ist mit $\epsilon_{\min}$ bezeichnet. Betrachtet wird das Zentrum der $11.8 \mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 unter verschiedenen klimatologischen Bedingungen. Aufgetragen ist jeweils die Abweichung der Vorwärtsrechnungen.

Da bereits im Rahmen einer einzelnen Vorwärtsrechnung mehrere zehntausend Interpolationsvorgänge auf den Emissivitätstabellen erforderlich sind, muß dieser Vorgang effizient gestaltet werden. Dies ist durch die Verwendung eines bei *Press et al.* [2002] beschriebenen Bisektionsverfahrens zum Auffinden der Stützstellen in den Emissivitätstabellen, die in JURASSIC prinzipiell auch irregulär aufgebaut sein dürfen, in Verbindung mit linearen Interpolationen gewährleistet. Andere Interpolationsvorschriften (Polynom 2. Grades, interpolierender kubischer Spline, einfach oder doppelt logarithmische Interpolation) beschreiben den exemplarisch in Abbildung 18 dargestellten tatsächlichen Verlauf der Emissivitätskurven zwar bei einer geringeren Zahl an Stützstellen besser, wurden aber nach Tests aufgrund des deutlich erhöhten Rechenaufwands bei der Interpolation verworfen. So ist etwa der numerische Aufwand bei der Berechnung von Logarithmus und Exponentialfunktion im Rahmen der doppelt logarithmischen Interpolation ungleich höher als bei der linearen Interpolation, die lediglich eine Division und eine Multiplikation erfordert. Der erhöhte Mehraufwand kann nicht dadurch abgefangen werden, daß weniger Stützstellen erforderlich sind. Mit allen weiter getesteten Verfahren verhält es sich ähnlich.

Die Interpolation der Emissivität aus den Tabellen kann auf zwei Arten geschehen, erstens mittels einer direkten Interpolation oder zweitens nach der EGA-Methode (Emissivity Growth Approximation) [*Weinreb und Neuendorffer*, 1973; *Gordley und Russel*, 1981]. Vereinfachend sei hier nur die Bestimmung der Emissivität im Falle eines einzelnen Emitters diskutiert. Bei mehreren Emitttern verläuft die Bestimmung analog, wobei im Anschluß an die Bestimmung der Einzelemissivitäten der Emitter die Gesamtemissivität gemäß Gleichung (3.22) gebildet wird. Im Rahmen des einfachen Ansatzes wird für jeweils ein Segment k des Sehstrahls mit dem Druck p_k , der Temperatur T_k und der Emittersäulendichte u_k die mittlere Emissivität $\bar{\varepsilon}_k(p_k, T_k, u_k)$ direkt aus den Tabellen interpoliert. Bei der EGA-Methode wird die direkte Interpolation aus den Emissivitätstabellen ersetzt durch:

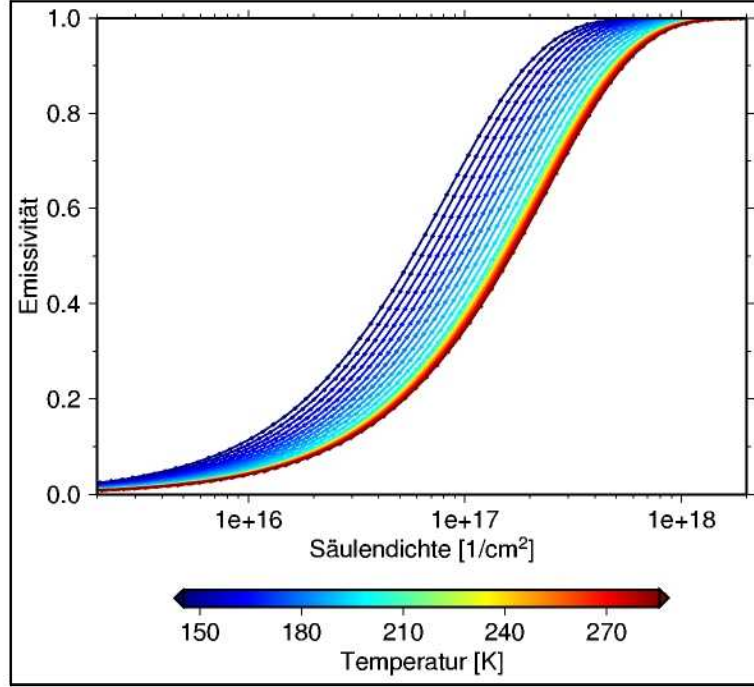


Abbildung 18: Emissivitätskurven für CFC-11 im Bereich des Zentrums der $11.8\mu\text{m}$ -Bande bei einem Druck von 100 hPa .

1. Für einen gegebenen Strahl aus k Segmenten, zu dem ein Segment $k+1$ hinzugefügt werden soll, ist zunächst eine effektive Säulendichte u^* zu bestimmen, so daß $\bar{\varepsilon}(u^*, p_{k+1}, T_{k+1}) = \bar{\varepsilon}_k^*$. Hierbei bezeichne $\bar{\varepsilon}_k^*$ die Gesamtemissivität des Strahls aus k Segmenten. Zur Bestimmung von u^* muß eine inverse Interpolation in den Emissivitätstabellen durchgeführt werden.
2. Die Emissivität des erweiterten Strahls aus $k+1$ Segmenten wird bestimmt gemäß $\bar{\varepsilon}_{k+1}^* = \bar{\varepsilon}(u^* + u_{k+1}, p_{k+1}, T_{k+1})$. Dabei wird auf die direkte Interpolation aus den Emissivitätstabellen zurückgegriffen. Die Emissivität des $(k+1)$ -ten Segments ergibt sich gemäß $\bar{\varepsilon}_{k+1} = 1 - (1 - \bar{\varepsilon}_{k+1}^*)/(1 - \bar{\varepsilon}_k^*) \approx \bar{\varepsilon}_{k+1}^* - \bar{\varepsilon}_k^*$.

Die Grundannahme besteht also darin, daß sich die Gesamtemissivität von k Sehstrahlsegmenten auf die Emissivitätskurve $\bar{\varepsilon}(u, p_{k+1}, T_{k+1})$ des aktuell betrachteten Segments übertragen läßt und hiervon ausgehend der Emissivitätszuwachs infolge der hinzukommenden Säulendichte berechnet werden kann.

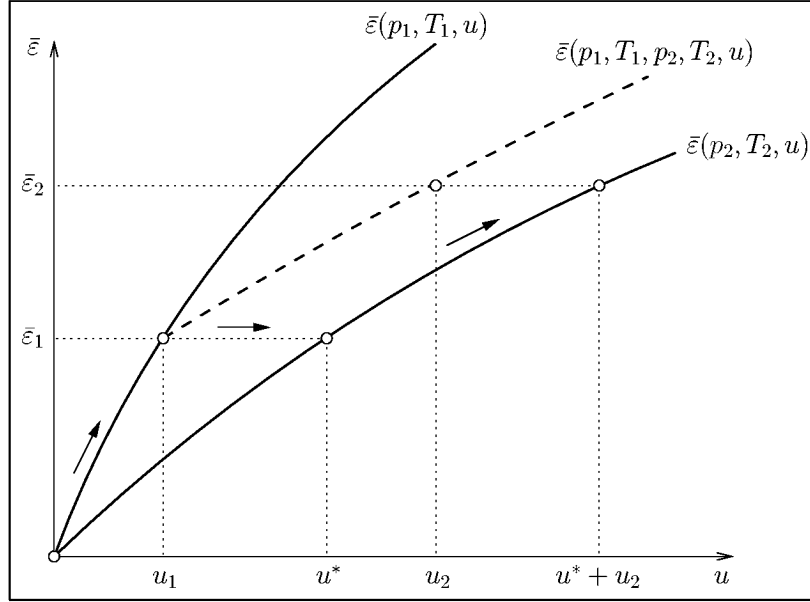


Abbildung 19: Illustration zur EGA-Methode.

Das Prinzip der EGA-Methode ist in Abbildung 19 für die ersten zwei Segmente eines Sehstrahls weiter verdeutlicht. Zur Bestimmung der Emissivität $\bar{\varepsilon}_1$ des ersten Sehstrahlsegments folgt man der Emissivitätskurve $\bar{\varepsilon}(p_1, T_1, u)$, so daß $\bar{\varepsilon}_1 = \bar{\varepsilon}(p_1, T_1, u_1)$. Bei Hinzunahme eines zweiten Segments folgt die Emissivität real (d. h. bei monochromatischer Rechnung und anschließender Faltung mit der Filterfunktion) der Emissivitätskurve $\bar{\varepsilon}(p_1, T_1, p_2, T_2, u)$, so daß $\bar{\varepsilon}_2 = \bar{\varepsilon}(p_1, T_1, p_2, T_2, u_2)$. Es steht jedoch lediglich ein Emissivitätsmodell für homogene Pfade zur Verfügung. Daher wird zur Bestimmung von $\bar{\varepsilon}_2$ die Emissivitätskurve $\bar{\varepsilon}(p_2, T_2, u)$ benutzt. Die Schwierigkeit ist, den idealen Startpunkt u^* auf $\bar{\varepsilon}(p_2, T_2, u)$ zu bestimmen. Dieser ist dadurch gekennzeichnet, daß der detaillierte spektrale Verlauf der Emissivität $\varepsilon(p_1, T_1, u_1, \nu)$ mit dem bei $\varepsilon(p_2, T_2, u^*, \nu)$ übereinstimmt. Die Lösung $\bar{\varepsilon}_2 = \bar{\varepsilon}(p_2, T_2, u^* + u_2)$ wäre dann sogar exakt. Ein solcher Punkt existiert jedoch in aller Regel nicht. Im Rahmen der EGA-Methode geht man davon aus, daß der beste Startpunkt auf $\bar{\varepsilon}(p_2, T_2, u)$ der ist, bei dem zumindest die spektral gemittelte Emissivität übereinstimmt, d. h. man bestimmt u^* so, daß $\bar{\varepsilon}(p_2, T_2, u^*) = \bar{\varepsilon}_1$. Bei der direkten Interpolation wird hingegen $u^* = 0$ gewählt.

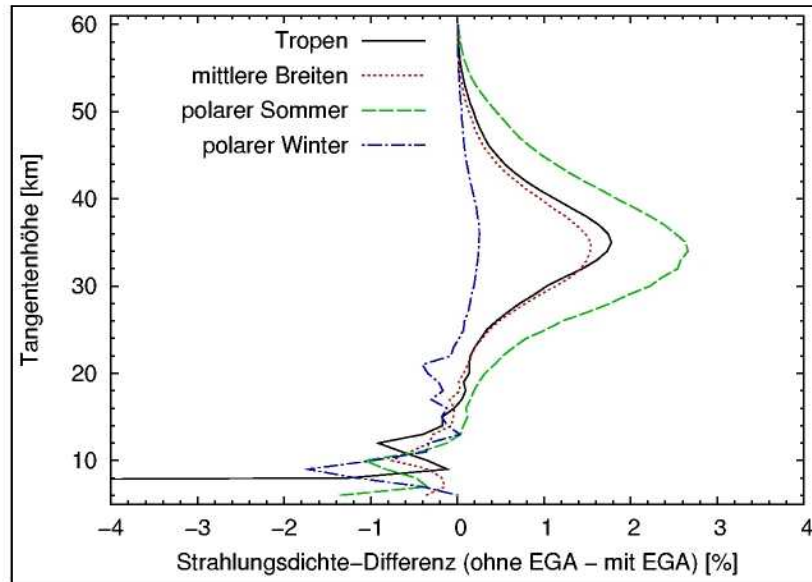


Abbildung 20: Vergleichsrechnung zur EGA-Methode. Für die vier klimatologischen Standardfälle werden die Abweichungen bei Vorwärtsrechnungen für das Zentrum der $11.8\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 bestimmt, wenn die EGA-Methode eingesetzt wird oder statt dessen die mittleren Emissivitäten direkt, d. h. unter Vernachlässigung ihres Verlaufs entlang der Sehstrahlen, aus den Tabellen interpoliert werden.

Zwar ist die EGA-Methode rechenaufwendiger, der Fehler der Strahlungstransportrechnungen kann hiermit aber vom Prozent- auf den Promille-Bereich reduziert werden. Die in Abbildung 16 gezeigte Vergleichsrechnung zwischen JURASSIC und dem MIPAS RFM basiert bereits auf dem Einsatz der EGA-Methode. Es ergeben sich Abweichung in der mittleren Strahlungsdichte kleiner 0.5 %. Der in Abbildung 20 dargestellte Vergleich einer JURASSIC-Rechnung mit Einsatz der EGA-Methode im Gegensatz zu einer Rechnung, die auf der direkten Interpolation der Emissivität beruht, zeigt hingegen Abweichungen von bis zu 3 %. In weniger gutmütigen Fällen können sich noch weit größere Abweichungen ergeben, wenn auf die EGA-Methode verzichtet wird [M. Riese, pers. Mtlg.].

3.5 Berücksichtigung von Instrumenteffekten

Ein wichtiger Punkt in der Vorwärtsmodellierung für Envisat MIPAS ist die Berücksichtigung des Gesichtsfelds des Instruments. Tatsächlich stammt die gemessene Strahlung nicht aus einem infinitesimal dünnen Sehstrahl, sondern aus endlichen horizontalen und vertikalen Raumwinkeln, die durch den optischen Aufbau des Geräts bestimmt sind. Während das horizontale Gesichtsfeld in der Regel vernachlässigt werden kann, muß das vertikale Gesichtsfeld berücksichtigt werden, da in dieser Richtung deutlich stärkere Strahlungsänderungen in der Atmosphäre auftreten. Die Strahlungsempfindlichkeit ist bei Envisat MIPAS über den Elevationswinkelbereich $\Delta\varphi = \pm 0.025^\circ$ (entspricht $\Delta z = \pm 1.3 \text{ km}$ am Tangentenpunkt) konstant und fällt darüber hinaus bis $\Delta\varphi = \pm 0.035^\circ$ ($\Delta z = \pm 2 \text{ km}$) linear auf Null ab.

Um den Effekt des Gesichtsfelds zu berechnen muß das Winkelprofil der Strahlungsdichte $I(\varphi)$ aufintegriert werden, wobei ein Gewichtungsfaktor $w(\varphi)$ zu berücksichtigen ist, der die Strahlungsempfindlichkeit beschreibt,

$$I_{FOV} = \int_{\varphi_a}^{\varphi_b} w(\varphi) I(\varphi) d\varphi. \quad (3.25)$$

Es wird zunächst der Verlauf der Strahlungsdichte bestimmt, indem für n infinitesimale Hilfsstrahlen unter den Elevationswinkeln

$$\varphi_i = \varphi_a + (\varphi_b - \varphi_a) \frac{i}{n+1} \quad , \quad i = 1, \dots, n \quad (3.26)$$

der Strahlungstransport ausgewertet wird. Die numerische Bestimmung der Integrals (3.25) erfolgt dann gemäß der Trapezregel auf einem feinen Winkelgitter (erforderlich sind ≈ 200 Stützstellen), auf das der Strahlungsverlauf $I(\varphi)$ und die Gewichtungsfunktion $w(\varphi)$ inter- und extrapoliert werden. Im Hinblick auf die Effizienz der Vorwärtsrechnungen ist es wichtig, die Anzahl n der Hilfsstrahlen so klein wie

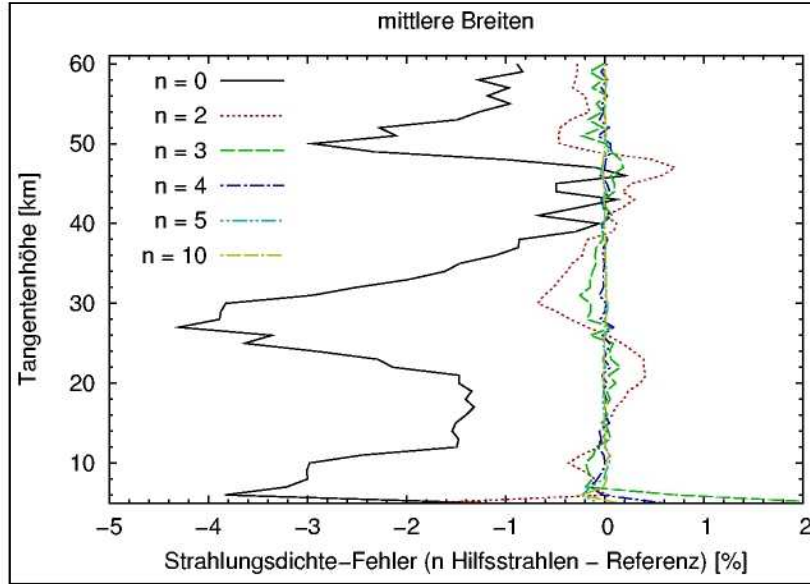


Abbildung 21: Berücksichtigung des Gesichtsfelds von Envisat MIPAS. Dargestellt ist die Genauigkeit von Strahlungstransportrechnungen für das Zentrum der $11.8\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 bei variierender Anzahl n an Hilfsstrahlen im Vergleich zu einer Referenzrechnung mit 20 Hilfsstrahlen. Im Fall $n = 0$ wird mit einer Rechnung ohne Berücksichtigung des Gesichtsfelds verglichen.

möglich zu halten. Der Vergleich mit einer Referenzrechnung in Abbildung 21 zeigt, daß 3–4 Hilfsstrahlen ausreichen, um den Effekt des Gesichtsfelds mit einem Fehler kleiner 0.2–0.5 % in der Strahlungsdichte zu beschreiben. Der Effekt des Gesichtsfelds selbst macht im untersuchten Beispiel einen Unterschied von bis zu 4 % in der Strahlungsdichte aus. Für andere Atmosphärenbedingungen sind auch größere Abweichungen zu verzeichnen. Bei der Wahl der Stützstellen φ_i gemäß Gleichung (3.26) wird ausgenutzt, daß die Gewichtsfunktion $w(\varphi)$ an den Rändern φ_a und φ_b auf Null abfällt. Durch Extrapolation des Strahlungsverlaufs in den Randbereichen kann jeweils ein Hilfsstrahl eingespart werden (Rechenzeitgewinn von 20–25 %).

4 Spurengasretrieval für Envisat MIPAS

Die Ableitung von Temperatur-, Druck- und Spurengasverteilungen der Atmosphäre aus den Strahlungsmessungen eines Fernerkundungsinstruments ist aus mathematischer Sicht ein Umkehrproblem (engl.: retrieval problem). Für einen gegebenen Atmosphärenzustand kann im Rahmen einer Vorwärtsrechnung der Strahlungstransport in der Atmosphäre berechnet und der Meßprozeß eines Instruments simuliert werden. Gesucht wird jedoch der Atmosphärenzustand, der eine gegebene Messung verursacht hat. Die Schwierigkeit besteht darin, daß die Berechnungen im Vorwärtsmodell normalerweise analytisch nicht invertierbar sind. Bei der Auswertung atmosphärischer Fernerkundungsmessungen wird dieses Umkehrproblem gelöst durch eine iterative Anpassung des Atmosphärenzustands, ausgehend etwa von einer klimatologischen Vorhersage, mit dem Ziel, mit dem Vorwärtsmodell simulierte Beobachtungen und tatsächliche Messungen in Übereinstimmung zu bringen.

Die Theorie der inversen Modellierung im Bereich der atmosphärischen Fernerkundung ist detailliert in einigen Lehrbüchern beschrieben. Als Standardwerk gilt das Buch von *Rodgers* [2000]. Mathematische Grundlagen werden ausführlich in einem älteren Buch von *Twomey* [1977] behandelt. Ein wesentlicher Punkt besteht darin, die allgemeine Theorie auch für konkrete Fälle umzusetzen, hier die Envisat MIPAS Auswertung. Zu den wichtigsten Aufgaben zählen dabei die vollständige Analyse von Meß-, Parameter- und Modellfehlern und die Behandlung schlecht konditionierter Probleme. Die Fehlerbetrachtung beruht meist auf der Annahme, daß das zugrunde liegende Problem im Rahmen der Fehler selbst linear ist und die Fehler der Gaußschen Normalverteilung genügen. Die Kondition eines mathematischen Problems bemißt, wie empfindlich dessen Lösung auf Störungen der Eingangsdaten reagiert. Bei einem schlecht konditionierten Retrievalproblem kann schon ein kleiner Strahlungsmeßfehler große Fehler in den abgeleiteten Atmosphären Daten bewirken.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Retrievalsystem entwickelt, das zunächst speziell auf die Ableitung von Spurengasverteilungen aus Envisat MIPAS Strahlungsmessungen zugeschnitten war, inzwischen aber auch universeller einsetzbar ist (Abschnitt 4.8). Die schnelle Vorwärtsmodellierung erfolgt im Normalfall mittels der Softwarebibliothek JURASSIC (Kapitel 3). Alternativ kann ein beliebiges externes Vorwärtsmodell eingebunden werden, zum Beispiel das MIPAS RFM. Das System wurde bereits eingesetzt, um für einen Zeitraum von fast zwei Jahren die globale Verteilung von CFC-11 und CFC-12 aus Envisat MIPAS Strahlungsmessungen abzuleiten (Kapitel 5). Das Retrievalproblem wird in diesem Kapitel für die Ableitung von CFC-11 aus Messungen im Bereich der $11.8\ \mu\text{m}$ -Bande diskutiert.

Abbildung 22 zeigt die Ergebnisse eines typischen Retrievals für eine einzelne Horizontsondierung von Envisat MIPAS. Durch Variation der Vertikalprofile des CFC-11 Mischungsverhältnis und des Aerosol Extinktionskoeffizienten werden simulierte Strahlungsdichten und Envisat MIPAS Messungen im Rahmen der Meßfehler in Übereinstimmung gebracht. Die Messungen im CFC-11 Kanal ($844 - 851\ \text{cm}^{-1}$) liegen im Beispiel unterhalb, die Messungen im Aerosol-Kanal ($830 - 840\ \text{cm}^{-1}$) oberhalb dessen, was entsprechend der klimatologischen Verhältnisse (a priori) der tropischen Breiten erwartet wird. Beim Retrieval führt dies auf eine Reduktion der CFC-11 Volumenmischungsverhältnisse gegenüber der klimatologischen Erwartung. Das Aerosol Extinktionsprofil wird zwar ebenfalls variiert, der durch Aerosol verursachte Strahlungsbeitrag zur Gesamtstrahlung bleibt jedoch eher gering. Dieser geringe Anteil ist im Retrieval nur schwer exakt zu bestimmen. Da klimatologisch betrachtet weit stärkere Variationen der Extinktion zu erwarten sind, muß stets ein Aerosol-Retrieval mit dem Spurengasretrieval kombiniert werden, auch wenn dies, wie im Fallbeispiel, nicht direkt erforderlich scheint.

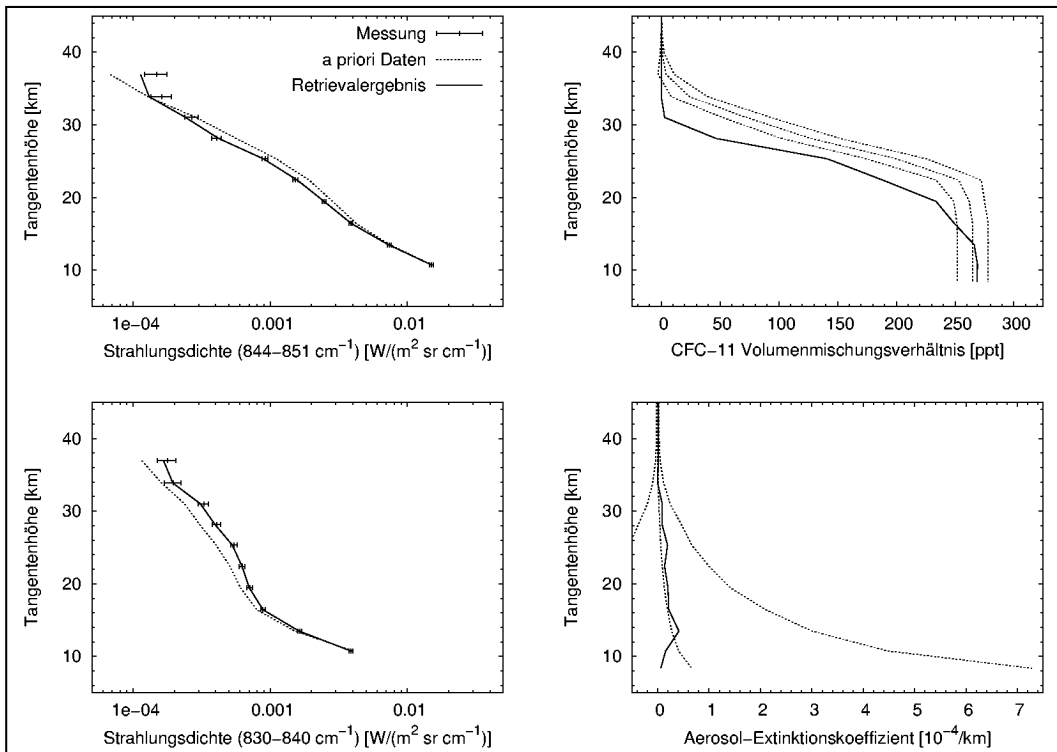


Abbildung 22: Beispiel für ein kombiniertes Retrieval von CFC-11 und Aerosol. Die Envisat MIPAS Messungen erfolgten am 05.11.2003, 06:55 UTC bei 128°W , 13°S . Fehlerbalken geben den Meßfehler der Strahlungsdichten, die punktierten Linien die klimatologische Variabilität von CFC-11 und Aerosol an (jeweils 1σ -Werte).

4.1 Bayes-Ansatz für das lineare Umkehrproblem

Die hier gezeigte mathematische Behandlung des Umkehrproblems orientiert sich einschließlich der Notation an *Rodgers* [2000]. Im Folgenden wird der Atmosphärenzustand, d. h. die Druck-, Temperatur- und Spurengasverteilung, im Zustandsvektor $\mathbf{x} = (x_1, \dots, x_n)$ zusammengefaßt. Meßgrößen, d. h. im Fall der hier durchgeführten Auswertung mittlere Strahlungsdichten für ausgesuchte Spektralbereiche der Envisat MIPAS Meßspektren, werden zum Meßvektor $\mathbf{y} = (y_1, \dots, y_m)$ zusammengestellt. Im einfachsten Fall beinhalten $\mathbf{x}$ und $\mathbf{y}$ Vertikalprofile der Atmosphärendaten und Strahlungsdichten einer Horizontsondierung von Envisat MIPAS. Den Zusammenhang zwischen $\mathbf{x}$ und $\mathbf{y}$ beschreibt das Vorwärtsmodell $\mathbf{F}$,

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}) + \epsilon = \mathbf{y}_0 + \mathbf{K}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) + \epsilon. \quad (4.1)$$

Diese Gleichung entspricht der mathematischen Abbildung des Meßvorgangs, wobei ϵ den Meßfehler bezeichne. Vereinfachend wird zunächst angenommen, daß das Vorwärtsmodell linear ist, sich also darstellen läßt, wie auf der rechten Seite der Gleichung (4.1) gezeigt. Die $m \times n$ Kernel-Matrix $\mathbf{K}$ beschreibt die lineare Abbildung von einer Referenz $(\mathbf{x}_0, \mathbf{y}_0)$ nach $(\mathbf{x}, \mathbf{y})$. Konkret gibt

$$\mathbf{K} = \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \mathbf{x}} = \frac{\partial \mathbf{F}(\mathbf{x})}{\partial \mathbf{x}}, \quad K_{ij} = \frac{\partial y_i}{\partial x_j} = \frac{\partial F_i(\mathbf{x})}{\partial x_j}, \quad (4.2)$$

die Empfindlichkeit an, mit der die Komponenten des Meßvektors beziehungsweise das Vorwärtsmodell auf Änderungen des Zustandsvektors reagieren. Näher diskutiert wird dies in Abschnitt 4.2. Im linearen Fall sind die Elemente K_{ij} konstant, während sie im nicht-linearen Fall zustandsabhängig sind.

Gemäß Gleichung (4.1) ergibt sich jede Meßkomponente y_i als Skalarprodukt aus Gewichtsfunktion $\mathbf{k}_i$ (i -te Zeile der Kernel-Matrix) und Zustandsvektor $\mathbf{x}$. Beim Um-

kehrproblem wird nun der Satz von Linearfaktoren für die Spalten von $\mathbf{K}$ gesucht, zusammengefaßt im Zustandsvektor $\mathbf{x}$, der alle in $\mathbf{y}$ zusammengefaßten Messungen am besten wiedergibt. Eine triviale Lösung für den linearen Fall lautet unter Vernachlässigung der Meßfehler

$$\mathbf{x} = \mathbf{x}_0 + \mathbf{K}^{-1}(\mathbf{y} - \mathbf{y}_0). \quad (4.3)$$

Diese Lösung ist jedoch nur zu bestimmen, wenn die Zahl an Beobachtungen und Unbekannten gleich ist ($m = n$) und die Gewichtsfunktionen eine Basis bilden. Unter diesen Voraussetzungen hat $\mathbf{K}$ vollen Rang und die Inverse $\mathbf{K}^{-1}$ existiert.

Eine allgemeinere Lösungsmethode, mit der sowohl Meßfehler als auch ein eventuell bestehendes Vorwissen über den Atmosphärenzustand zwecks besserer Konditionierung des Retrievalproblems in der Auswertung berücksichtigt werden können, ergibt sich durch Rückgriff auf das Bayes-Theorem für multivariate Wahrscheinlichkeitsdichten [z. B. *Malakoff*, 1999; *Gelman et al.*, 2003],

$$P(\mathbf{x}|\mathbf{y}) = \frac{P(\mathbf{y}|\mathbf{x})P(\mathbf{x})}{P(\mathbf{y})}. \quad (4.4)$$

Hierbei beschreiben die a priori Dichte $P(\mathbf{x})$ und die a posteriori Dichte $P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$ das Wissen über den Zustand $\mathbf{x}$ vor und nach Durchführung einer Messung $\mathbf{y}$. Die Normierung $P(\mathbf{y})$ beschreibt die Wahrscheinlichkeit der Messung vor ihrer Realisierung. Die Likelihood-Dichte $P(\mathbf{y}|\mathbf{x})$ beschreibt die Wahrscheinlichkeit der Messung von $\mathbf{y}$, unter der Bedingung, daß der Zustand $\mathbf{x}$ vorliegt.

Konkret ergibt sich die Likelihood-Dichte unter der Annahme normalverteilter Meßfehler aus dem Vorwärtsmodell,

$$-2 \ln P(\mathbf{y}|\mathbf{x}) = (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x})^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}) + \text{const.} \quad (4.5)$$

Größe und Korrelationen der Meßfehler seien in der Kovarianzmatrix $\mathbf{S}_\epsilon$ zusammengefaßt. Das Vorwissen über den Atmosphärenzustand wird in der Regel ebenfalls durch eine Normalverteilung beschrieben,

$$-2 \ln P(\mathbf{x}) = (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \text{const.} \quad (4.6)$$

Mittel $\mathbf{x}_a$ und Kovarianz $\mathbf{S}_a$ sind Klimatologien zu entnehmen oder müssen konservativ geschätzt werden. Die Normierung $P(\mathbf{y})$ ist nur von untergeordneter Bedeutung, denn letztlich interessiert nicht unbedingt die a posteriori Dichte selbst, sondern nur die Stelle $\hat{\mathbf{x}}$, an der sie ihr Maximum annimmt. Unter Berücksichtigung des Bayes-Theorems führt dies auf die Forderung

$$(\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x})^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}) + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \stackrel{!}{=} \text{Min.} \quad (4.7)$$

Die Lösung $\hat{\mathbf{x}}$ der Gleichung (4.7) wird als Maximum-a-posteriori-Schätzung (MAP-Schätzung) des Atmosphärenzustands bezeichnet.

Die MAP-Schätzung $\hat{\mathbf{x}}$ kann im linearen Fall analytisch bestimmt werden, denn Gleichung (4.7) ist quadratisch in $\mathbf{x}$, muß also in die Form $(\mathbf{x} - \hat{\mathbf{x}})^T \hat{\mathbf{S}}^{-1} (\mathbf{x} - \hat{\mathbf{x}}) + \text{const}$ gebracht werden können. Ein Komponentenvergleich liefert

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}_a), \quad (4.8)$$

$$\hat{\mathbf{S}}^{-1} = \mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1}. \quad (4.9)$$

Im nicht-linearen Fall kann die Lösung $\hat{\mathbf{x}}$ nicht nach Gleichung (4.8) bestimmt werden. Es wird jedoch im moderat nicht-linearen Fall, der in aller Regel vorliegt, die Kovarianzmatrix $\hat{\mathbf{S}}$ für die Fehlerabschätzung herangezogen.

4.2 Bestimmung von Kernel-Matrizen

Prinzipiell kann die Kernel-Matrix über analytische Ausdrücke bestimmt werden. Wesentlich einfacher, allerdings rechenaufwendiger, ist die hier durchgeführte numerische Berechnung durch Anwendung kleiner Störungen auf den Zustandsvektor und Bestimmung der Differenzen zwischen den Vorwärtsrechnungen für den ungestörten und gestörten Atmosphärenzustand (Perturbations-Methode). Von Bedeutung ist die Größe der Störung. Bei einer zu großen Störung wird der Bereich der Linearität verlassen. Eine zu kleine Störung kann aufgrund der Fehlerbehaftung des Vorwärtsmodells große Unsicherheiten in den Ableitungswerten bedingen. Eine Störung in der Größe von 1–5 % hat sich als praxistauglich erwiesen. Es ist weiter zu beachten, daß die jeweilige Störung auf einen zeitlichen und räumlichen Einflußbereich innerhalb der Atmosphäre begrenzt ist. Der Einflußbereich wird durch die Korrelationslängen des in Abschnitt 3.1 beschriebenen Interpolationsverfahrens für Atmosphären Daten festgelegt. Die Absolutwerte der Strahlungsdichteableitungen nehmen zu, wenn der Einflußbereich vergrößert wird. Im Umkehrschluß läßt sich ableiten, daß Aussagen über kleine Einflußbereiche Beobachtungsdaten mit immer geringer werdenden Meßfehlern erforderlich machen.

In Abbildung 23 ist die Kernel-Matrix für das Zentrum der $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 für die klimatologischen Bedingungen tropischer Breiten gezeigt. Die Berechnung erfolgt zur besseren Veranschaulichung nicht auf dem Meßgitter von Envisat MIPAS, sondern auf einem regulären 1 km Höhengitter. Aufgetragen sind die Gewichtsfunktionen, die jeweils die Empfindlichkeit der Strahlungsdichte einer festen Tangentenhöhe auf Änderungen der CFC-11 Konzentration an der auf der Ordinate aufgetragenen Höhe angeben. Typischerweise ergibt sich die stärkste Empfindlichkeit im Bereich der Tangentenhöhe, da dort aufgrund der zum Erdboden hin zunehmenden CFC-11 Teilchendichte ein Großteil der Gesamtstrahlung entsteht.

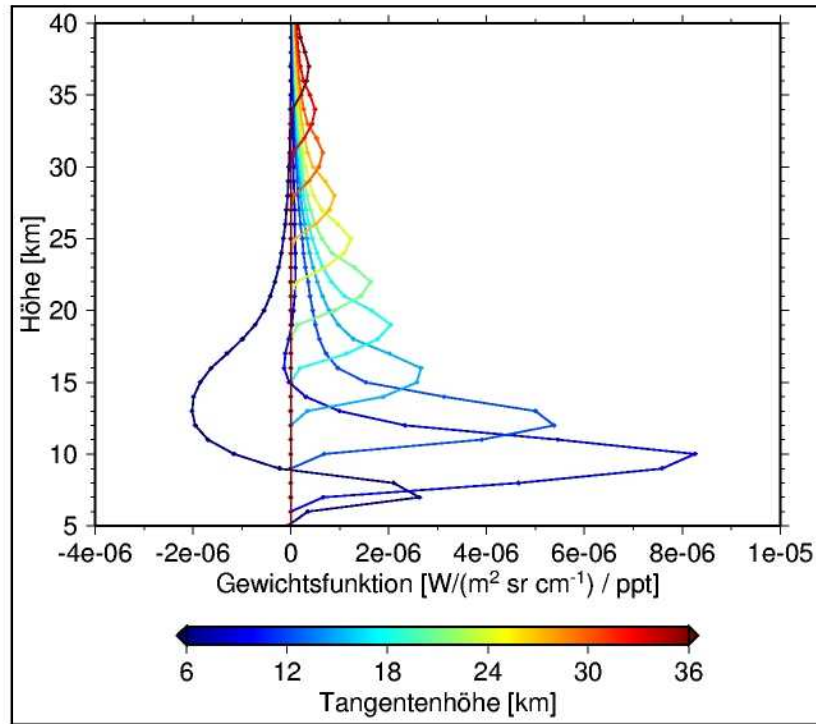


Abbildung 23: Kernel-Matrix für das Zentrum der $11.8\mu\text{m}$ -Bande ($844 - 851\text{ cm}^{-1}$) von CFC-11. Die Berechnung gilt für die klimatologischen Bedingungen tropischer Breiten. Es wird eine homogen geschichtete Atmosphäre angenommen.

Die Gewichtungsfunktionen weisen an der Tangentenhöhe eine gewisse Mindestbreite auf, die durch das Gesichtsfeld von Envisat MIPAS vorgegeben ist. Abweichungen von diesem regulären Verhalten ergeben sich unterhalb von 10 km Tangentenhöhe. Das Zentrum der $11.8\mu\text{m}$ -Bande wird hier optisch dicht.

Mit JURASSIC kann detailliert untersucht werden, wie der Strahlungstransport entlang der Sehstrahlen abläuft, indem der Atmosphärenzustand mit hoher räumlicher Auflösung vorgegeben wird. In Abbildung 24 sind die Atmosphärendaten nicht in Form eines Vertikalprofils sondern in Form vieler einzelner Luftpakete (Punkte in der Abbildung) entlang der Sehstrahlen für 6, 15 und 24 km Tangentenhöhe vorgegeben. Das Instrument befindet sich in dieser Fallstudie im Bild rechts. Die Farbkodierung gibt die Empfindlichkeit der Strahlungsdichte auf Änderungen der CFC-11 Konzentration am jeweiligen Ort der Luftpakete an. Luftpakete mit hoher Empfindlichkeit zeigen demnach an, wo der tatsächliche Meßort innerhalb

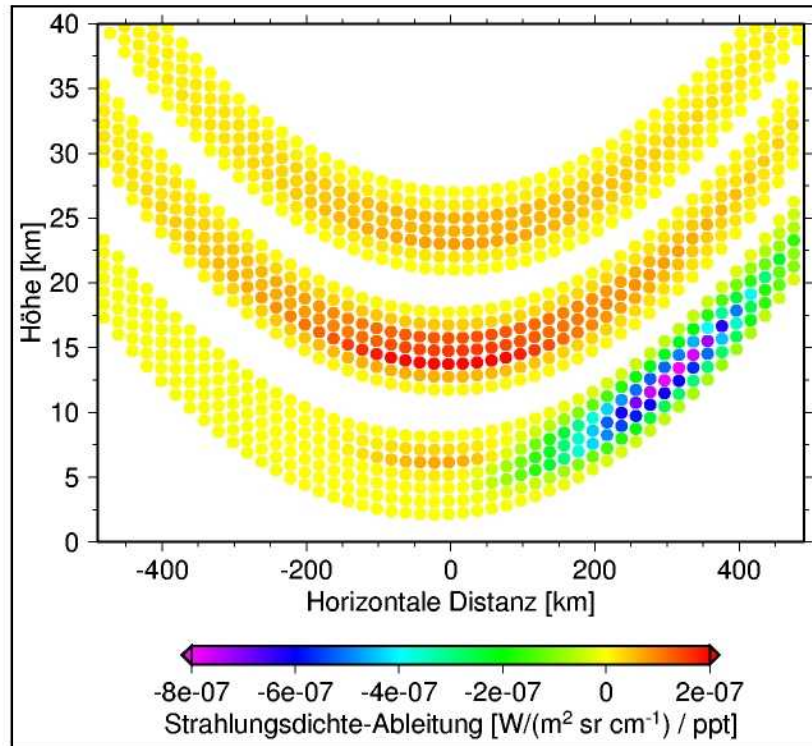


Abbildung 24: Kernel-Matrix für das Zentrum der $11.8\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 im Fall von 2D-Atmosphärendaten. Der Atmosphärenzustand wird durch viele einzelne Luftpakete vorgegeben. Die Farbkodierung in der Abbildung zeigt die Empfindlichkeit in der Strahlung auf Änderung der CFC-11 Konzentration am Ort des jeweiligen Luftpakets. Das Instrument befindet sich im Bild rechts.

der Atmosphäre liegt und wie das Meßvolumen gestaltet ist. Bei 15 und 24 km Tangentenhöhe liegt der Normalfall vor. Die Strahlung stammt mehrheitlich aus einem etwa 3 km hohen, 400 – 600 km langen Raumvolumen um den Tangentenpunkt. Deutliche Abweichungen ergeben sich bei 6 km Tangentenhöhe. Die am Tangentenpunkt erzeugte Strahlung wird auf dem Weg zum Instrument in größeren Höhen (um 10 – 15 km) wieder absorbiert. In der gemessenen oder simulierten Strahlung besteht deshalb nur eine geringe Empfindlichkeit auf Änderungen der CFC-11 Konzentration am Tangentenpunkt. Gleichzeitig emittieren in den größeren Höhen die CFC-11 Moleküle bei niedrigerer Temperatur, was dazu führt, daß die beobachtete Strahlung für die untersten Tangentenhöhen abnimmt, wenn die CFC-11 Konzentration in den darüber liegenden Höhenschichten zunimmt.

4.3 Lösung moderat nicht-linearer Umkehrprobleme

Analog zum linearen Fall bestimmt sich die MAP-Schätzung des Atmosphärenzustands im nicht-linearen Fall durch Minimierung der Kostenfunktion

$$J(\mathbf{x}) = [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x})]^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x})] + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \stackrel{!}{=} \text{Min}. \quad (4.10)$$

Die Minimierung beliebiger Funktionen ist eine Standardaufgabe der Numerik, die durch Iterationsverfahren bewältigt wird. Hier wird ein modifiziertes Verfahren nach *Levenberg* [1944] und [Marquardt, 1963] eingesetzt, mit dem die Nullstellen des Gradienten der Kostenfunktionen ermittelt werden. Es resultiert die Iterationsformel

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i + \gamma (\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K}_i + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \{ \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_i)] - \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a) \}. \quad (4.11)$$

Der Parameter γ skaliert die Schrittweite im Zustandsraum und wird so gewählt, daß die Konvergenz des Verfahrens stets sichergestellt ist [für Details siehe *Press et al.*, 2002]. Ähnlich dem Newton-Verfahren bietet die Methode eine schnelle, quasi quadratische Konvergenz nahe der tatsächlichen Lösung. Oft ist bereits nach 1–2 Iterationsschritten eine hinreichend genaue Lösung bestimmt.

Bei der Bestimmung einer iterativen Lösung spielen Konvergenztests eine wichtige Rolle. Ziel ist es, den Konvergenzzeitpunkt richtig zu ermitteln, so daß einerseits nicht vorzeitig, bei einer noch ungenauen Lösung, Konvergenz angenommen wird und andererseits nicht zu lange iteriert und Rechenzeit vergeudet wird. In der hier durchgeführten Auswertung wird ein Test eingesetzt, der die mit dem Retrievalfehler $\hat{\mathbf{S}}$ skalierte Schrittweite im Zustandsraum untersucht,

$$d_i^2 = (\mathbf{x}_{i+1} - \mathbf{x}_i)^T \hat{\mathbf{S}}^{-1} (\mathbf{x}_{i+1} - \mathbf{x}_i) < \delta \cdot n. \quad (4.12)$$

Das Retrieval wird beendet, wenn die Änderungen des Zustandsvektors von einer Iteration zur nächsten im Vergleich zum Retrievalfehler verschwindend sind. Ein solcher Schritt wäre statistisch nicht signifikant. Die Kostenfunktion weist in unmittelbarer Umgebung des Minimums oft eine flache, aber komplexe Topologie auf. Da hierdurch der Konvergenztest bei zu strenger Wahl der Toleranzschwelle δ versagen kann, ist es erforderlich, die Maximalzahl der Iterationen zu begrenzen.

Eine einfache Qualitätskontrolle für das Ergebnis eines Retrievals ergibt sich durch Betrachtung des Endwerts der Kostenfunktion. Mittels eines χ^2 -Test wird überprüft, ob die durch das Iterationsverfahren bestimmte Lösung mit den Messungen und a priori Daten konsistent ist. Berechnet wird dazu die Wahrscheinlichkeit Q nach der eine χ^2 -Verteilung mit ν Freiheitsgraden den tatsächlich gefundenen Minimalwert der Kostenfunktion (4.10) übersteigt. Die Zahl der Freiheitsgrade wird auf $\nu = m$ gesetzt, da n Unbekannte an $n + m$ Messungen angepaßt werden. Die a priori Daten (n Größen) sind hierbei als sogenannte virtuelle Messungen mitzuzählen. Das Retrieval wird als erfolgreich eingestuft, wenn Q ein vorgegebenes Signifikanzniveau übersteigt. Falls der Test nicht bestanden wird, kann dies mehrere Ursachen haben: (1) Es besteht ein Fehler in der Vorwärtsmodellierung, beispielsweise weil ein wichtiges Spurengas versehentlich nicht berücksichtigt wurde. (2) Die Meßfehler sind zu klein angegeben oder nicht normalverteilt. (3) Die a priori Daten genügen nicht der Normalverteilung oder ihre Variabilität ist zu klein angegeben. Da eine Überschreitung der Variabilität insbesondere mit dem Auftreten eines außergewöhnlichen atmosphärisches Ereignisses verbunden sein kann, sollten die beim χ^2 -Test aussortierten Daten genauer überprüft werden.

Abbildung 25 zeigt die Häufigkeitsverteilung der Kostenfunktionswerte für einen größeren Satz einzelner Retrievals. Da in der hier durchgeführten Auswertung als Anfangszustand für das Retrieval der a priori Zustand gewählt wird, sind die Ko-

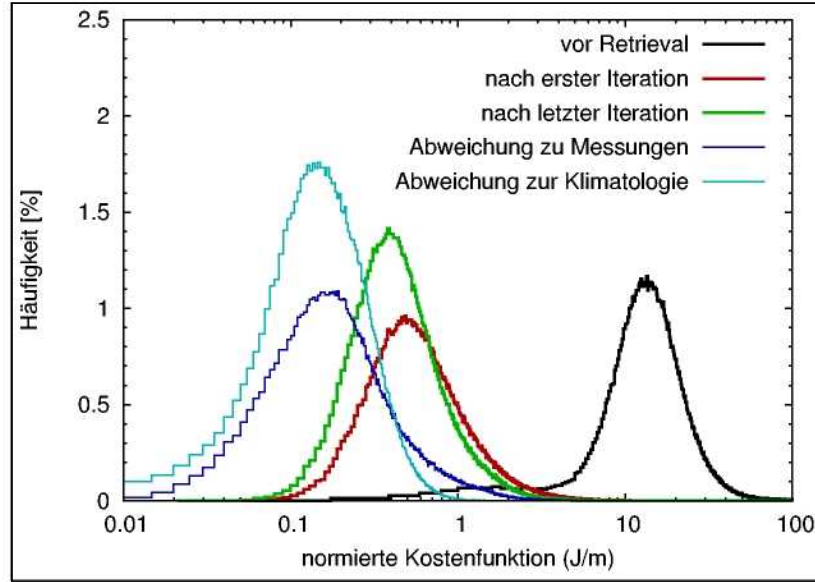


Abbildung 25: Häufigkeitsverteilung der Kostenfunktionswerte. Die Statistik beruht auf einer Auswertung von 425000 Envisat MIPAS Horizontsondierungen.

stenfunktionswerte vor dem Retrieval allein durch die Abweichungen zwischen den Messungen und der Vorwärtsrechnung für den a priori Zustand bestimmt. Die normierten Kostenfunktionswerte liegen anfänglich im Mittel bei $J/m \approx 14$, d.h. die Strahlungsresiduen übersteigen die Meßfehler um einen Faktor 3.7. Bereits beim ersten Iterationsschritt wird eine sehr gute Anpassung erzielt, der Mittelwert der Kostenfunktionswerte liegt hiernach bei $J/m \approx 0.49$. Nach der letzten Iteration liegt er bei $J/m \approx 0.39$. Durchschnittlich werden 2.61 Iterationen ausgeführt. Hier wird ein Nachteil des Konvergenztests (4.12) deutlich. Auch wenn sich bereits im ersten Iterationsschritt eine sehr gute Anpassung ergibt, benötigt das Testverfahren immer noch einen zweiten Iterationsschritt, um die Konvergenz festzustellen. Um die Effizienz des Retrievalsystems zu steigern, sollte später ein fortgeschrittener Konvergenztest implementiert werden. So kann etwa anhand der zugehörigen Kostenfunktionswerte geprüft werden, in wie weit die gegenwärtige, iterativ bestimmte Vorwärtsrechnung $\mathbf{F}(\mathbf{x}_i)$ der linearen Extrapolation $\mathbf{F}_{lin}(\mathbf{x}_i) = \mathbf{F}(x_{i-1}) + \mathbf{K}_{i-1}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_{i-1})$ aus der vorhergehenden Iteration entspricht. Bei weitgehender Übereinstimmung ist die Linearitätsannahme erfüllt und die endgültige Lösung bereits erreicht.

4.4 Fehleranalyse für die Retrievalergebnisse

Bei der Lösung des Retrievalproblems und für die Fehleranalyse der Retrievalergebnisse ist die Gain-Matrix $\mathbf{G}$ von besonderer Bedeutung. Sie gibt die Empfindlichkeit des Lösungszustands $\hat{\mathbf{x}}$ gegenüber Änderungen des Meßzustands $\mathbf{y}$ an,

$$\mathbf{G} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{y}} \stackrel{(4.8)}{\Rightarrow} \mathbf{G} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1}. \quad (4.13)$$

Gemäß Gleichung (4.8) und (4.11) werden mit der Gain-Matrix die Abweichungen zwischen den Messungen und dem Vorwärtsmodell $\Delta \mathbf{y} = \mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}_a$ und $\Delta \mathbf{y} = \mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_i)$ in Differenzen $\Delta \mathbf{x} = \hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a$ und $\Delta \mathbf{x} = \mathbf{x}_{i+1} - \mathbf{x}_i + \mathbf{S}_i \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)$ im Atmosphärenzustand umgerechnet. Der Atmosphärenzustand muß um $\Delta \mathbf{x}$ korrigiert werden, um Messungen und Vorwärtsmodell in Übereinstimmung zu bringen. In diesem Sinne ist $\mathbf{G}$ eine verallgemeinerte Inverse der Kernel-Matrix $\mathbf{K}$, die im Gegensatz zu $\mathbf{K}^{-1}$ fast immer gebildet werden kann (vgl. Abschnitt 4.1). Die Gain-Matrix wird für die Fehlerabschätzung verwendet, da für einen direkten Meßfehler $\Delta \mathbf{y}$ mittels $\mathbf{G}$ der Retrievalfehler $\Delta \mathbf{x} = \mathbf{G} \Delta \mathbf{y}$ bestimmt werden kann. Indirekte Fehler, beispielsweise Fehler der Parameter des Vorwärtsmodells, müssen vor der Fehlerschätzung vom Zustands- in den Meßraum abgebildet werden [z. B. *Raspolini und Ridolfi*, 2000; *von Clarmann et al.*, 2001].

In Abbildung 26 ist die mittels der Kernel-Matrix aus Abbildung 23 berechnete Gain-Matrix dargestellt. In die Berechnung fließen außerdem die Meßfehler-Kovarianzmatrix von Envisat MIPAS und die a priori Kovarianzmatrix ein. Für die hier gezeigte illustrative Darstellung werden diese Matrizen vereinfacht als diagonal angenommen. Meßfehler und a priori Daten sind in diesem Fall vollkommen unkorreliert. Als Standardabweichung werden $2 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ plus 2% der Strahlungsdichte (approximiert in guter Näherung den tatsächlichen Meßfehler) bezie-

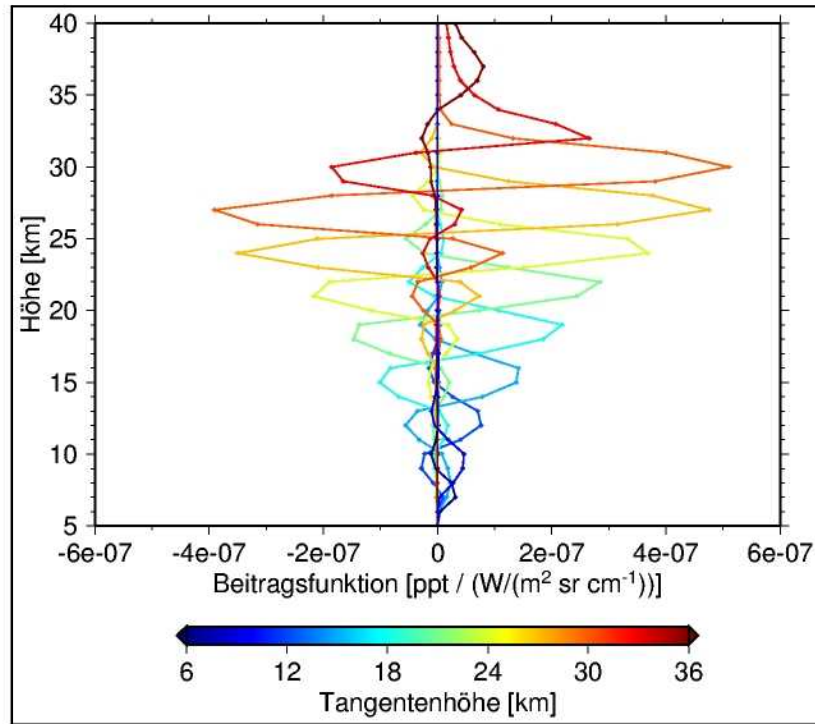


Abbildung 26: Gain-Matrix für die $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11. Die Berechnung basiert auf der Kernel-Matrix für tropische Breiten aus Abbildung 23. Die Kovarianzmatrizen der Meßfehler und a priori Daten wurden approximiert (siehe Text).

hungsweise 50 % des klimatologischen Mittelwerts von CFC-11 eingesetzt. Die realen Matrizen im Retrieval sind komplexer aufgebaut. Die resultierende Gain-Matrix ist dann aber nur noch begrenzt anschaulich zu erklären. Jede der in Abbildung 26 dargestellten Beitragsfunktionen (Spalten der Gain-Matrix) gibt die Empfindlichkeit des Retrievalergebnis an der auf der Ordinaten aufgetragenen Höhe auf Strahlungsänderungen bei einer festen Tangentenhöhe an. Greift man eine einzelne Beitragsfunktion heraus, etwa die zu 27 km Tangentenhöhe (orange Kurve), so zeigt sich zunächst eine stark positive Abhängigkeit an der Tangentenhöhe selbst. Eine Strahlungserhöhung geht mit einer direkten Erhöhung des abgeleiteten CFC-11 Mischungsverhältnis einher. Zu niedrigeren Höhen hin zeigt sich ein oszillierendes Verhalten. So führt die Strahlungserhöhung bei 27 km Höhe zu einer Verminderung des abgeleiteten CFC-11 Mischungsverhältnis auf 24 km Höhe. Dies ist vom Strahlungstransport her verständlich, denn um eine feste gemessene Gesamtstrahlung

bei 24 km Tangentenhöhe zu erhalten, muß der auf 24 km Höhe entstehende Anteil an der Gesamtstrahlung abnehmen, wenn die Strahlungsbeiträge aus 27 km Höhe anwachsen. Entsprechend muß das CFC-11 Mischungsverhältnis auf 24 km Höhe abnehmen. Auf 21 km Höhe ergibt sich durch die gegenseitige Wechselwirkung mehrerer Gewichtsfunktionen und Beobachtungen wieder eine positive, allerdings schon deutlich abgeschwächte Antwort im Retrievalergebnis und so fort.

Um den Gesamtfehler eines Retrievalergebnis angeben zu können, ist eine Erweiterung der Notation erforderlich. Beim Vorwärtsmodell $\mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b})$ wird nunmehr unterschieden nach den Zustandsgrößen $\mathbf{x}$, die tatsächlich Gegenstand des Retrievals sind, und den fest vorgegebenen Parametern $\mathbf{b}$, von denen das Vorwärtsmodell außerdem noch abhängt. Die Abhängigkeit des Vorwärtsmodell von den Parametern beschreibt die Kernel-Matrix $\mathbf{K}_b = \partial \mathbf{F} / \partial \mathbf{b}$. Es ist zu berücksichtigen, daß das Vorwärtsmodell lediglich eine möglichst genaue Annäherung an die Vorwärtsfunktion $\mathbf{f}$ darstellt, die der vollständigen Beschreibung der Physik des Strahlungstransports und des Meßvorgangs des Instruments entspricht. Der Fehler hierbei ist

$$\Delta \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}') = \mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}') - \mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}), \quad (4.14)$$

wobei $\mathbf{b}'$ bei der Konstruktion des Vorwärtsmodells vernachlässigte Fehler umfaßt. Im Folgenden sollen weiter $\mathbf{x}$ und $\mathbf{b}$ den wahren, aber unbekannten Zustand und Parametersatz bezeichnen, sowie $\hat{\mathbf{x}}$ und $\hat{\mathbf{b}}$ die konkret vorliegenden, besten Schätzungen hierzu. Die Fehleranalyse beruht auf dem Konzept der Transferfunktion

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{R}(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{c}) = \mathbf{R}(\mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}') + \epsilon, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a, \mathbf{c}). \quad (4.15)$$

Es bezeichnet $\mathbf{R}$ die Retrievalmethode, die selbst durch einen Parametersatz $\mathbf{c}$ beeinflusst ist. Die Transferfunktion beschreibt das Beobachtungssystem vollständig,

denn neben der Retrievalmethode ist durch die Ersetzung $\mathbf{y} = \mathbf{f}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}') + \epsilon$ auch eine Beschreibung von Strahlungstransport und Meßvorgang enthalten. Durch Linearisierung der Transferfunktion (4.15) und unter Berücksichtigung der Gleichung (4.14) leitet *Rodgers* [1990] für den Gesamtfehler eines Retrievals ab:

$$\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x} = \underbrace{\mathbf{G}\epsilon}_{(1)} + \underbrace{\mathbf{G}\mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}})}_{(2)} + \underbrace{\mathbf{G}\Delta\mathbf{F}(\mathbf{x}, \mathbf{b}, \mathbf{b}')}_{(3)} + \underbrace{(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)}_{(4)} \quad (4.16)$$

Die Summanden beschreiben hierbei (1) den Retrievalfehler durch Meßfehler, (2) den Retrievalfehler durch Fehler der Parameter des Vorwärtsmodells, (3) den Retrievalfehler durch Fehler des Vorwärtsmodells und (4) den Einfluß von a priori Informationen auf das Retrieval (siehe Abschnitt 4.5).

Die Summanden der Gleichung (4.16) sind nicht direkt auswertbar, da etwa der konkrete Meßfehler ϵ oder die wahren Parameterwerte $\mathbf{b}$ unbekannt sind. Stattdessen wird mit Kovarianzmatrizen gearbeitet, welche die Standardabweichungen und Korrelationen der entsprechenden Fehlerverteilungen angeben und zur Bestimmung der Kovarianzmatrizen der Retrievalfehler verwendet werden können. Für eine Kovarianzmatrix $\mathbf{S}_\epsilon$ von Strahlungsdichtefehlern beziehungsweise eine Kovarianzmatrix $\mathbf{S}_b$ von Parameterfehlern ist die Kovarianzmatrix der Retrievalfehler gegeben durch $\mathbf{S} = \mathbf{G}\mathbf{S}_\epsilon\mathbf{G}^T$ respektive $\mathbf{S} = \mathbf{G}\mathbf{K}_b\mathbf{S}_b\mathbf{K}_b^T\mathbf{G}^T$. In der konkreten Auswertung für Envisat MIPAS sind die Kovarianzmatrizen der Eingangsfehler zumeist nicht genau bekannt. Daher wird auf ein einfaches Modell für die Kovarianzmatrizen der Eingangsfehler zurückgegriffen, wonach deren Elemente gebildet werden gemäß

$$S_{ij} = \sigma_i\sigma_j \exp\left(-\frac{\Delta\nu}{c_\nu}\right) \exp\left(-\frac{\Delta t}{c_t}\right) \exp\left(-\frac{\Delta z}{c_z}\right) \exp\left(-\frac{\Delta h}{c_h}\right). \quad (4.17)$$

Es bezeichnet σ_i die Standardabweichung und c_x die spektrale, zeitliche, vertikale oder horizontale Korrelationslänge. Mittels der Korrelationslängen wird festge-

legt, auf welchen Skalen der betrachtete Fehler von statistischer oder systematischer Natur ist. Das Modell orientiert sich bezüglich der Festlegung der zeitlichen und räumlichen Korrelationen am Interpolationsverfahren für Atmosphärendaten (Abschnitt 3.1). Zusätzlich kann bei Strahlungsdichtefehlern eine Korrelation entsprechend der spektralen Distanz $\Delta\nu$ zwischen den Strahlungskanälen vorgegeben werden. Mittels eines optionalen Vorfaktors $(-1)^{|i-j|}$ können Antikorrelationen zwischen benachbarten Matrixelementen eingeführt werden. Eingesetzt wird letzteres insbesondere, um bei der Auswertung von Vertikalprofilen Antikorrelationen zwischen benachbarten Höhenstufen vorgeben zu können.

In Abbildung 27 sind die Ergebnisse der Fehleranalyse für das Eingangsbeispiel (Abb. 22) dargestellt. Für Einzelprofile wird der Gesamtfehler des Retrievalergebnis durch Summation der Kovarianzmatrizen der Einzelfehler abgeschätzt. Der Gesamtfehler liegt im Beispiel bei 10–14 ppt beziehungsweise 4–15 % im Höhenbereich 10–30 km. Die Zusammensetzung des Gesamtfehlers hängt stark von der Höhe ab. In den oberen Höhen spielt die statistische Komponente eine wichtige Rolle. In den unteren Höhen dominieren die systematischen Anteile. Im Folgenden wird die Abschätzung der Einzelfehler genauer diskutiert.

Der Rauschfehler der Envisat MIPAS Strahlungsdichten ist unkorreliert mit einer Standardabweichung von $30 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ für die einzelne Stützstelle des Meßspektrums angesetzt (gemäß Abb. 4). Aufgrund des mit der Höhe annähernd exponentiell abnehmenden Strahlungssignals variiert das Signal/Rausch-Verhältnis in den für das Retrieval gewählten Spektralbereichen etwa zwischen 10 und 1000. Der durch Rauschen verursachte Retrievalfehler ist auf den untersten Tangentenhöhen praktisch vernachlässigbar, wird jedoch darüber schnell führend bis zu einem Maximalwert von 10 ppt bei 28 km Tangentenhöhe. In noch größeren Höhen (oberhalb 35 km) geht der Term wieder zurück, da das Retrievalergebnis nicht mehr durch Meß-

resultate sondern durch a priori Informationen bestimmt ist (siehe Abschnitt 4.5). Meßfehler können sich unter diesen Umständen weniger stark auf Ergebnis und Fehlerabschätzung auswirken. Die Fehler der Offset- und Gain-Kalibration werden mit Standardabweichungen von $2 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ beziehungsweise 2% der mittleren Strahlungsdichte [A. Dudhia, pers. Mtlg.] sowie den Korrelationslängen $c_\nu = 10 \text{ cm}^{-1}$ und $c_z = 10 \text{ km}$ angesetzt. Die Korrelationslängen sind ad hoc gewählt. Eine genauere Diskussion des Einflusses der Korrelationslängen auf die Fehlerabschätzung erfolgt am Ende dieses Abschnitts. Ähnlich dem Rauschfehler dominiert der Retrievalfehler durch Unsicherheiten der Offset-Kalibration in den oberen Höhen (bis 9 ppt bei 33 km) während er bei niedrigen Höhen vernachlässigbar ist. Bei den Unsicherheiten der Gain-Kalibration ist der Höhenverlauf umgekehrt (bis 9 ppt bei 11 km). Unsicherheiten bei der spektralen Kalibration und in der Bestimmung der ILS sind in der Fehlerabschätzung vernachlässigbar, da mittlere Strahlungsdichten über relativ breite Spektralbereiche betrachtet werden (siehe Abschnitt 2.2). Unsicherheiten der Tangentenhöhen werden implizit mit abgeschätzt über Unsicherheiten der ESA Druck- und Temperaturdaten, aus denen die L2-Tangentenhöhen mittels des hydrostatischen Gleichgewichts abgeleitet sind (siehe Abschnitt 2.3).

Zu den Parametern des Vorwärtsmodells zählen in dieser Auswertung Druck, Temperatur, die Volumenmischungsverhältnisse aller Spurengase außer CFC-11, sowie die spektroskopischen Daten. Die Fehler der Atmosphären Daten werden jeweils als antikorreliert zwischen den Tangentenhöhen angenommen. Derartige Antikorrelationen sind ein typisches Resultat bei der Ableitung von Atmosphären Daten aus Fernerkundungsmessungen nach dem Horizontsondierungsverfahren. Die Korrelationslänge wird auf $c_z = 5 \text{ km}$ geschätzt. Die Standardabweichungen für Druck, Temperatur und die Volumenmischungsverhältnisse von H_2O , HNO_3 und O_3 werden der operationellen ESA-Auswertung entnommen. Da die ESA-Auswertung nur Schätzungen der statistischen und nicht der systematischen Fehlerkomponenten bein-

halten, werden zusätzlich Mindestwerte für die Standardabweichungen vorgeschrieben (Druck 3 %, Temperatur 2 K, Volumenmischungsverhältnisse 5 % [Ridolfi *et al.*, 2000; Dudhia, 2001]), um eine Unterschätzung der Retrievalfehler in der hier durchgeführten Betrachtung zu vermeiden. Die Standardabweichungen für CO₂, CFC-114 und OCS entsprechen der klimatologischen Variabilität [Remedios, 1999]. Bei den spektroskopischen Daten richten sich die Korrelationen danach, ob bei der Berechnung der Emissivitätstabellen auf Liniendaten (korreliert) oder gemessene Absorptionsquerschnitte (unkorreliert, falls eine große Zahl von (p, T) -Kombinationen vermessen wurde) zurückgegriffen wurde. Fehlerangaben der spektroskopischen Daten sind [Rothman *et al.*, 2003] entnommen (3 % für die Absorptionsquerschnitte von CFC-11 und CFC-114, 5 % für die Linienstärken von CO₂, H₂O, HNO₃ und O₃ sowie 10 % für die Linienstärken von OCS). Der größte Retrievalfehler durch Parameterfehler ergibt sich durch Unsicherheiten der Temperatur (bis 7 ppt bei 13 km), gefolgt von den spektroskopischen Fehlern (bis 5 ppt bei 11 km, dominiert durch CFC-11 Fehler) und Unsicherheiten des Drucks (bis 4 ppt bei 11 km). Retrievalfehler durch Unsicherheiten der Spurengase sind aufgrund einer darauf hin optimierten Wahl der ausgewerteten Spektralbereiche gering oder ganz vernachlässigbar (jeweils kleiner 1–2 ppt auf allen Höhen).

Fehler des Vorwärtsmodells ergeben sich durch die approximative Strahlungstransportrechnung (siehe Abschnitt 3.3). Sie werden mit einer Standardabweichung von 0.5 % der mittleren Strahlungsdichte sowie den Korrelationslängen $c_z = 3$ km und $c_\nu = 10$ cm⁻¹ angesetzt (gemäß Abb. 16). Der resultierende Retrievalfehler ist gering (kleiner 2–3 ppt auf allen Höhen), was letztlich den Einsatz der approximativen Verfahren rechtfertigt. Ein weiterer Fehler in der Vorwärtsmodellierung resultiert aus der Anwendung eines einfachen Interpolationsverfahrens zur Bestimmung des spektralen Verlaufs der Aerosol-Extinktion für Kanäle, für die keine Spezifikation vorliegt. Konkret wird hier die im Aerosol-Kanal (830–840 cm⁻¹) abgeleitete

Extinktion auf den CFC-11 Kanal ($844-851\text{ cm}^{-1}$) konstant übertragen. Tatsächlich wäre jedoch ein Anstieg der Extinktion um etwa 15 % zu erwarten [*R. Spang*, pers. Mtlg.]. Die Vernachlässigung des tatsächlichen spektralen Verlaufs führt zu einer systematischen Überschätzung des CFC-11 Mischungsverhältnis von bis zu 6 ppt in 28 km Höhe. Geschätzt wird dieser Fehlerwert mit der Korrelationslänge $c_z = 10\text{ km}$. Im Hinblick auf zukünftige Auswertungen ist das einfache Interpolationsverfahren bereits erweitert worden, so daß nunmehr auch ein spektraler Gradient bei der Übertragung der Extinktion vorgegeben werden kann.

Im Rahmen einer ausführlichen Betrachtung konnten für alle Eingangsfehler nur geringe Abhängigkeiten des CFC-11 Retrievalfehlers von der spektralen Korrelationslänge c_ν festgestellt werden. Große Abhängigkeiten ergeben sich jedoch in Bezug auf die vertikale Korrelationslänge c_z , wie Abbildung 28 zeigt. Beim Übergang von räumlich unkorrelierten Eingangsfehlern ($c_z = 0.1\text{ km}$) zu räumlich vollständig korrelierten Fehlern ($c_z = 10000\text{ km}$) variieren die Retrievalfehler durch Unsicherheiten der Offset-Kalibration um maximal 7.6 ppt, bei der Temperatur um 7.3 ppt, bei der Gain-Kalibration um 3.6 ppt, beim Druck um 3.4 ppt, bei den spektroskopischen Daten um 2.3 ppt, beim Extinktionsverlauf um 2.2 ppt und beim Vorwärtsmodell um 1.5 ppt. Bei der Gain- und Offset-Kalibration, bei Druck und Temperatur sowie beim Vorwärtsmodell nimmt der Retrievalfehler mit wachsenden Korrelationslängen ab. Bei den spektroskopischen Daten und dem Extinktionsverlauf wächst er hingegen an. Ein Anwachsen der Retrievalfehler mit der Korrelationslänge ist auch bei Druck und Temperatur zu beobachten, wenn die Fehler nicht antikorreliert sondern korreliert zwischen den Höhenstufen angesetzt werden. Da die realen Korrelationslängen nicht genau bekannt sind, müssen sie so gut wie möglich geschätzt werden. Da sich eine Über- oder Unterschätzung der Korrelationslängen teilweise recht deutlich auf den Retrievalfehler auswirkt, ist dessen Bestimmung erheblich erschwert.

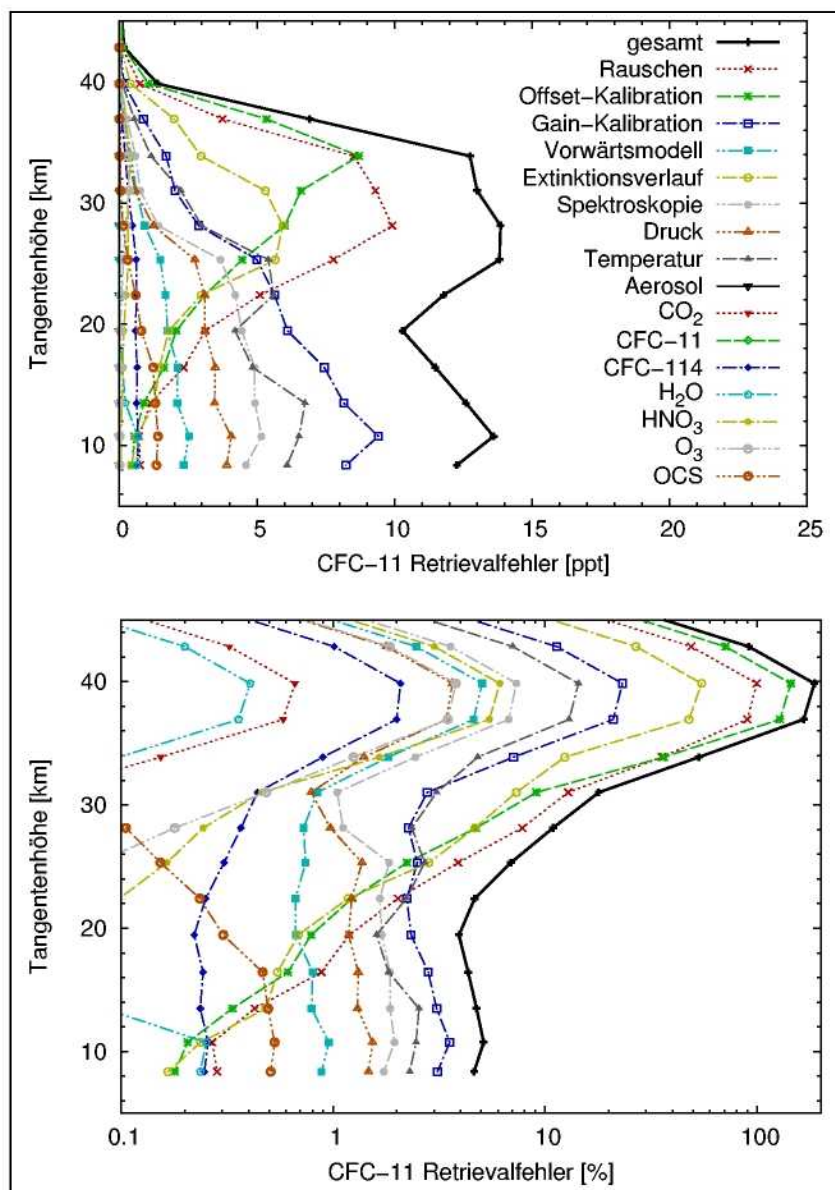


Abbildung 27: Fehleranalyse für das CFC-11 Retrievalergebnis. Aufgeführt sind zur besseren Einordnung der absolute Fehler (oben) und der relative Fehler (unten). Zur Abschätzung der Einzelfehler (Legende) siehe Text.

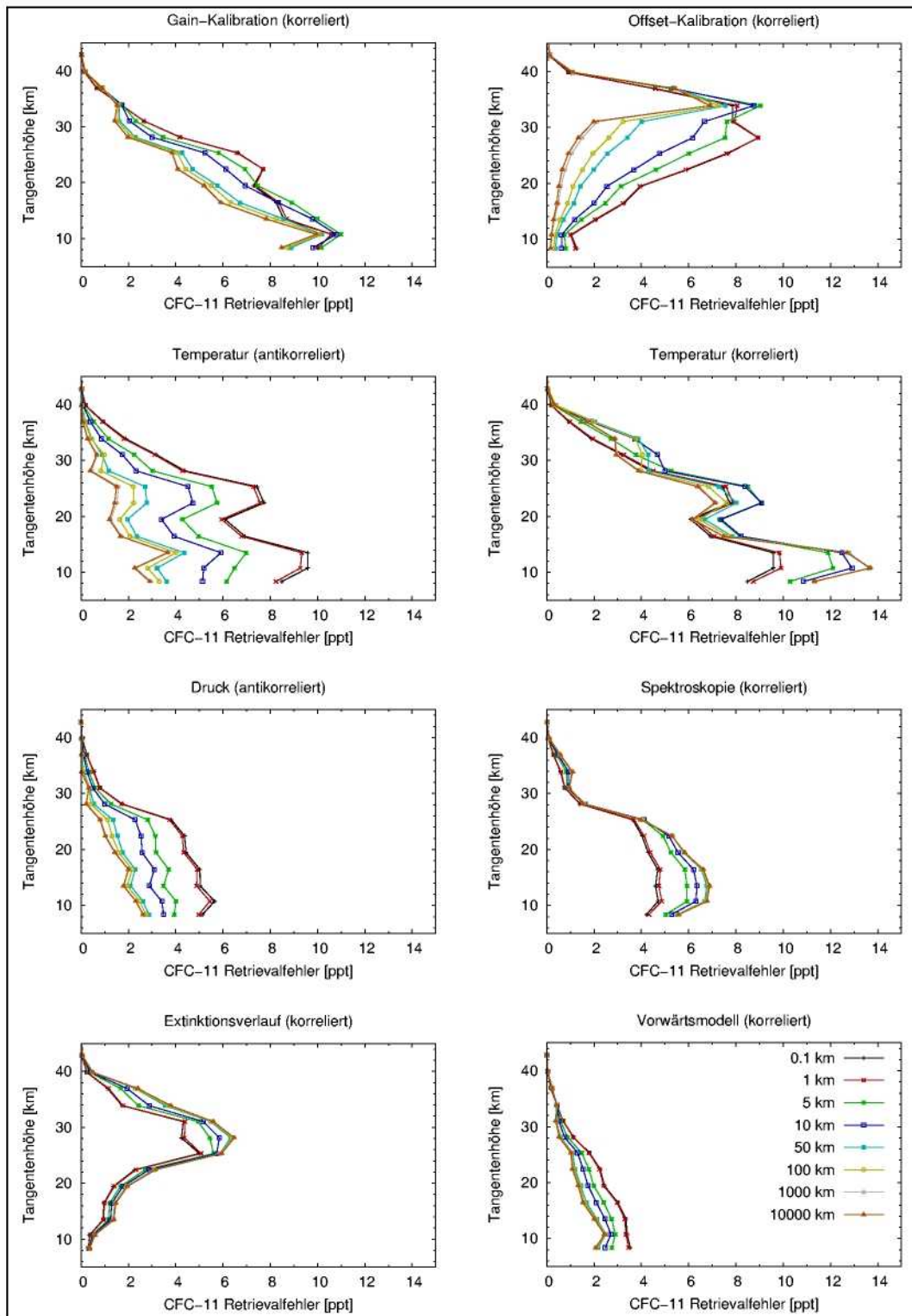


Abbildung 28: Einfluß der vertikalen Korrelationslänge auf die CFC-11 Retrievalfehler. Die untersuchten Korrelationslängen sind in der Legende unten rechts aufgeführt.

4.5 Einfluß von a priori Informationen

Nach Gleichung (4.16) bestimmt sich das Retrievalergebnis $\hat{\mathbf{x}}$ unter Vernachlässigung der Retrievalfehler als gewichtetes Mittel aus dem unbekannten wahren Atmosphärenzustand $\mathbf{x}$ und dem a priori Zustand $\mathbf{x}_a$,

$$\hat{\mathbf{x}} \approx \mathbf{A}\mathbf{x} + (\mathbf{I}_n - \mathbf{A})\mathbf{x}_a. \quad (4.18)$$

Die Averaging Kernel Matrix $\mathbf{A}$ beschreibt die Empfindlichkeit der Schätzung $\hat{\mathbf{x}}$ gegenüber dem wahren Zustand $\mathbf{x}$,

$$\mathbf{A} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{x}} \Rightarrow \mathbf{A} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{y}} \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \mathbf{x}} = \mathbf{GK}. \quad (4.19)$$

Im Gegensatz dazu beschreibt die Matrix $\mathbf{I}_n - \mathbf{A}$ die Empfindlichkeit gegenüber dem a priori Zustand. Jeweils eine Spalte der Averaging Kernel Matrix gibt die Antwort des Gesamtretrievals auf eine Delta-Störung des wahren Zustands wieder (Perturbation eines Elements von $\mathbf{x}$). Dies gestattet neben dem analytischen Ausdruck in Gleichung (4.19) eine numerische Berechnung der Averaging Kernel Matrix. Die Averaging Kernel (Zeilen von $\mathbf{A}$) geben den Anteil an, mit dem jedes Element des Zustandsvektors zum Retrievalergebnis (zu jeweils einem Element von $\hat{\mathbf{x}}$) beiträgt. Die Integration eines Averaging Kernels (Summe seiner Elemente) liefert den Anteil, den die Messungen insgesamt am Ergebnis haben.

In Abbildung 29 ist die Averaging Kernel Matrix dargestellt, die sich aus der eingangs diskutierten Kernel-Matrix (Abb. 23) und Gain-Matrix (Abb. 26) ergibt. Die farbkodierten Kurven entsprechen den einzelnen Averaging Kernels und zeigen an, wie das Retrievalergebnis auf einer festen Höhe mit dem tatsächlichen Atmosphärenzustand bei dem auf der Ordinate aufgetragenen Höhe verknüpft ist. Im Idealfall besteht eine eindeutige Zuordnung und die Averaging Kernel Matrix ist

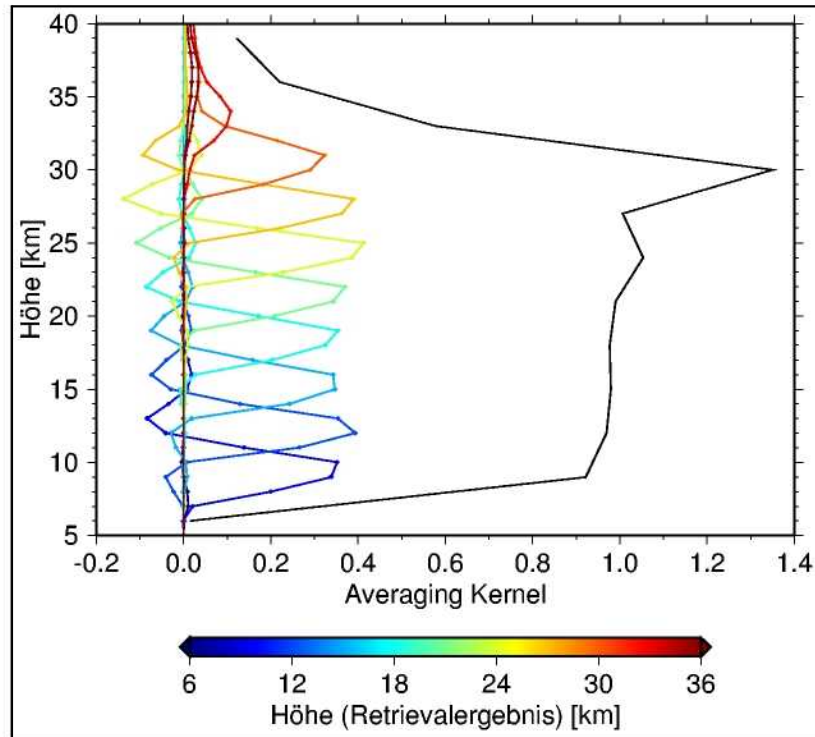


Abbildung 29: Averaging Kernel Matrix für das CFC-11 Retrieval.

diagonal. Abweichungen ergeben sich jedoch bei unzureichenden Meßinformationen (d. h. bei großen Meßfehlern), durch die Meßgeometrie selbst (beschrieben durch die Kernel-Matrix) und abhängig von der Wahl der a priori Daten (wirken sich auf die Gain-Matrix aus). In der konkreten Betrachtung zeigen die Averaging Kernel im Höhenbereich 9–30 km die stärkste Empfindlichkeit jeweils im Bereich der Tangentenhöhe (Werte bis 0.3–0.4). Sie weisen eine Halbwertsbreite von 3–4 km auf, die etwa dem Gesichtsfeld von Envisat MIPAS entspricht. Die bereits bei der Gain-Matrix festgestellten Oszillationen zwischen benachbarten Tangentenhöhen übertragen sich im geringeren Umfang auch auf die Averaging Kernel. Für 6 km Höhe und oberhalb von 30 km Höhe flachen die Averaging Kernel deutlich ab. Das Retrievalergebnis ist hier nur geringfügig an die Messungen und den tatsächlichen Atmosphärenzustand gebunden. Bei 6 km Höhe wird die $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 optisch dicht, so daß effektiv keine Messungen für diese Höhe verfügbar sind. In den oberen Höhen kommt es zu einer Verschiebung in Richtung a priori, da der relative Meßfehler nahezu ex-

ponentiell anwächst. Die schwarze Kurve in Abbildung 29 ist durch Integration der Averaging Kernel bestimmt und gibt für eine einzelne Höhe näherungsweise den Gesamtanteil aller Messungen am Retrievalergebnis an. Im Höhenbereich 9–27 km liegt dieser Anteil bei 1. Das Retrieval ist hier als verlässlich zu bewerten. Bei 6 km und oberhalb von 30 km geht der Integralwert gegen Null, da keine verwertbaren Meßinformationen vorliegen. Bei 30 km steigt der Integralwert auf über 1.3. Hier kommt zum tragen, daß Gleichung (4.18) nur approximativ gilt, da die Retrievalfehler vernachlässigt werden. Bei 30 km Höhe ist dies nicht mehr gerechtfertigt, da der Retrievalfehler im Bereich der Mischungsverhältnisse liegt.

Die Averaging Kernel Matrix ist gemäß der Gleichungen (4.13) und (4.19) wesentlich durch die Wahl der a priori Kovarianzmatrix bestimmt. Zur Festlegung dieser Matrix wird auf das bereits beschriebene Markov-Modell (4.17) zurückgegriffen. Um den Einfluß von a priori Informationen auf das Retrievalergebnis genauer zu untersuchen, wird für das Eingangsbeispiel (Abb. 22) systematisch bestimmt, wie sich eine Skalierung der Standardabweichungen und die Wahl der vertikalen Korrelationslänge auf das Retrievalergebnis auswirkt. Neben dem Retrievalergebnis selbst werden der sogenannte Glättungsfehler, der Meßanteil (Integralwert der Averaging Kernel) und das vertikale Auflösungsvermögen als diagnostische Größen betrachtet. Der Glättungsfehler bemißt, wie stark sich a priori Informationen auf das Retrievalergebnis auswirken und ist insbesondere beim Datenvergleich von Interesse. Die Kovarianzmatrix des Glättungsfehlers ist [Rodgers, 2000]

$$\mathbf{S} = (\mathbf{I}_n - \mathbf{A})\mathbf{S}_a(\mathbf{I}_n - \mathbf{A})^T. \quad (4.20)$$

Die räumliche Auflösung der abgeleiteten Daten kann auf verschiedene Arten bestimmt werden. Hier wird auf das Konzept der Informations- oder Daten-Dichte von Purser und Huang [1993] zurückgegriffen. Die Diagonalelemente der Avera-

ging Kernel Matrix stellen für sich allein betrachtet ein Maß für jeweils voneinander unabhängig abgeleitete Informationen dar. Genauer geben sie die Zahl der Freiheitsgrade für Signal bezogen auf das dem jeweiligen Retrievalgitterpunkt zugeordnete Raumvolumen an. Ihr Kehrwert gibt also das Raumvolumen pro Freiheitsgrad für Signal an, was ein direktes Maß für die Auflösung darstellt. Dieser Ansatz ist vorteilhaft etwa im Vergleich zur direkten Bestimmung der Halbwertsbreite der Averaging Kernel oder anderen Kriterien [Rodgers, 2000].

Einige Resultate der Untersuchung zum a priori Einfluß sind in Abbildung 30 zusammengefaßt. Als Grenzfälle seien zunächst Skalierungen der a priori Standardabweichungen auf 25 % und 400 % bei geringer Korrelationslänge ($c_z = 0.1 \text{ km}$) betrachtet. Im Fall der 25 % Skalierung ist das Retrievalergebnis eng an das a priori Profil gebunden, der Meßanteil liegt im günstigsten Fall bei 20–50 % und das vertikale Auflösungsvermögen wird nie besser als 10 km. Der Glättungsfehler ist entsprechend groß und liegt im Höhenbereich 10–35 km bei 12–22 ppt. Im Fall der Skalierung auf 400 % besteht hingegen fast keine Bindung des Retrievalergebnis an die a priori Daten, der Meßanteil geht über einen weiten Höhenbereich gegen 100 % und das vertikale Auflösungsvermögen gegen den durch das Gesichtsfeld vorgegebenen optimalen Wert von 2–3 km. Der Glättungsfehler sinkt auf 3–6 ppt. Beim Übergang von 25 % auf 400 % Skalierung fällt das zunehmende Anwachsen meßfehlerbedingter Retrievaloszillationen auf. Unterdrückt werden diese Oszillation durch die Wahl einer großen vertikalen Korrelationslänge ($c_z = 20 \text{ km}$), die einen glättenden Einfluß auf das Retrievalergebnis hat. Mit zunehmender Korrelationslänge wächst der Meßanteil, da Informationen über größere Höhenbereiche akkumuliert werden. Das vertikale Auflösungsvermögen nimmt mit wachsenden Korrelationslängen nur geringfügig ab (Verschlechterung um weniger als 1–2 km bei der 400 %-Skalierung). Der Glättungsfehler wächst insbesondere bei der 400 %-Skalierung mit der Korrelationslänge an. Für die Standardauswertung wird eine Skalierung von 300 % und

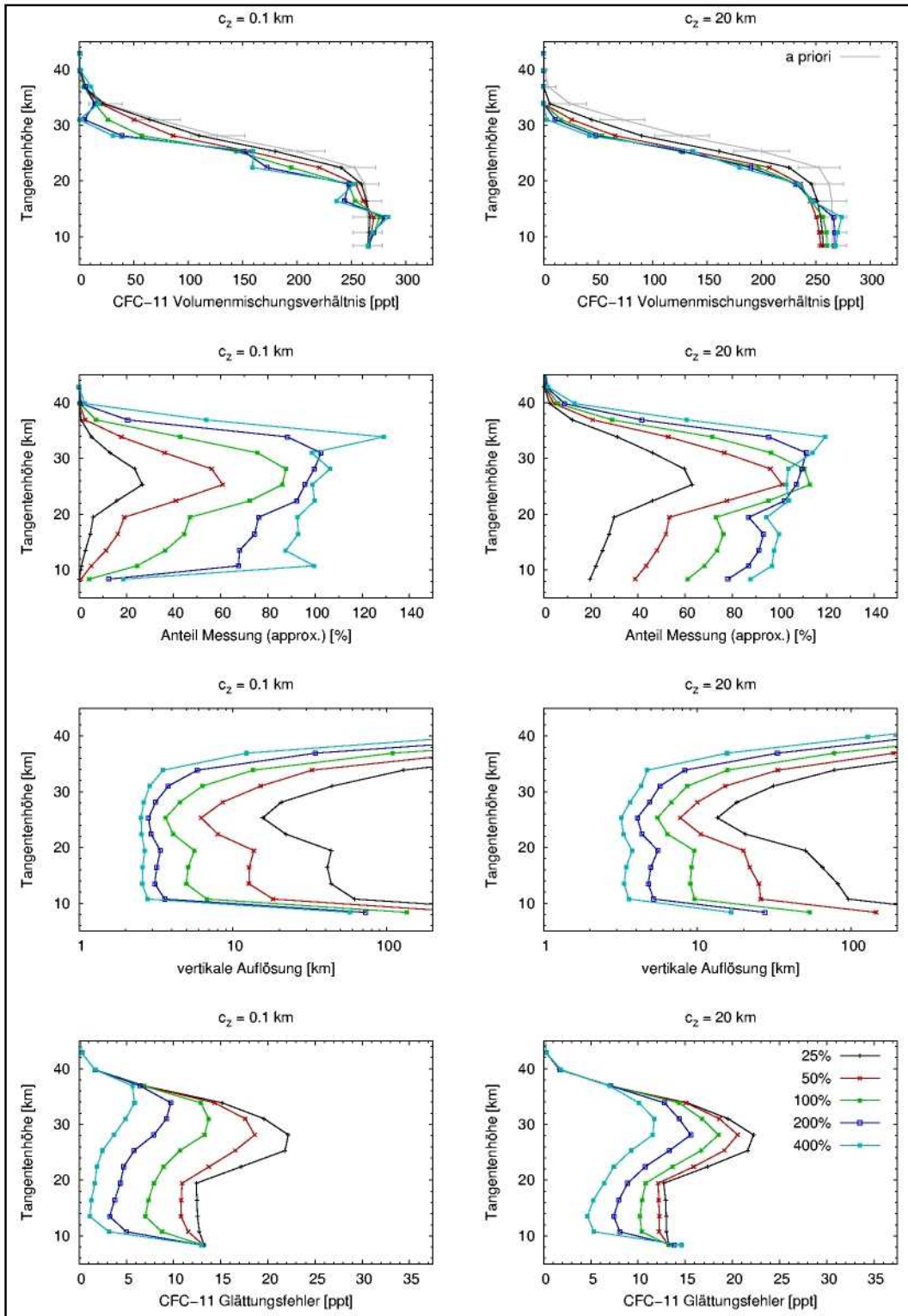


Abbildung 30: Einfluß von *a priori* Informationen auf das CFC-11 Retrievalergebnis. Variiert werden die Skalierung der *a priori* Standardabweichungen (Legende unten rechts) und die vertikale Korrelationslänge c_z (linke bzw. rechte Spalte).

eine Korrelationslänge von 10 km gewählt. Bei dieser Parameterwahl ergibt sich ein hoher Meßanteil (über 80–90 %), eine nur geringe Verschlechterung des vertikalen Auflösungsvermögens (in der Regel bei 3–4 km) und eine wirkungsvolle Unterdrückung der Retrievaloszillationen. Gegen Skalierungen der a priori Standardabweichungen größer 100 % bestehen keine prinzipiellen Einwände. Dies bringt lediglich zum Ausdruck, daß das Vorwissen über den Atmosphärenzustand schlechter ist, als durch die Klimatologie vorhergesagt.

4.6 Optimierte Auswahl von Spektralbereichen

Die Genauigkeit der Retrievalergebnisse hängt von den Spektralbereichen ab, die für die Auswertung herangezogen werden. Sind die Bereiche schlecht gewählt, kann ein Retrieval auch ganz scheitern. Eine erste Vorauswahl geeigneter Bereiche kann anhand einer einfachen Betrachtung von Referenzspektren erfolgen. Ein solcher Satz von Spektren wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit mittels recht aufwendigen line-by-line Vorwärtsrechnungen bestimmt (Zeitaufwand 4–5 Wochen auf einem 2.4 GHz Intel Pentium IV PC). Abgedeckt sind fünf verschiedene klimatologische Fälle (mittlere Breiten bei Tag und Nacht, polarer Sommer und Winter, tropische Breiten) sowie der komplette von Envisat MIPAS erfaßte Spektralbereich (650–2450 cm^{-1}) und Höhenbereich (6–68 km). Die Rechnung umfaßt 40 verschiedene Spurengase, wobei neben der Gesamtstrahlung auch der jeweilige Anteil der einzelnen Gase an der Gesamtstrahlung ermittelt wurde. Eine Zusammenfassung dieser Berechnungen findet sich in Abbildung 31. Eine Betrachtung des Strahlungsanteils an der Gesamtstrahlung wie auch ein Vergleich der mittleren Strahlungsdichten mit dem Meßfehler erlaubt bereits eine recht brauchbare ad hoc Festlegung der Spektralbereiche [z. B. *Hoffmann et al.*, 2004, 2005].

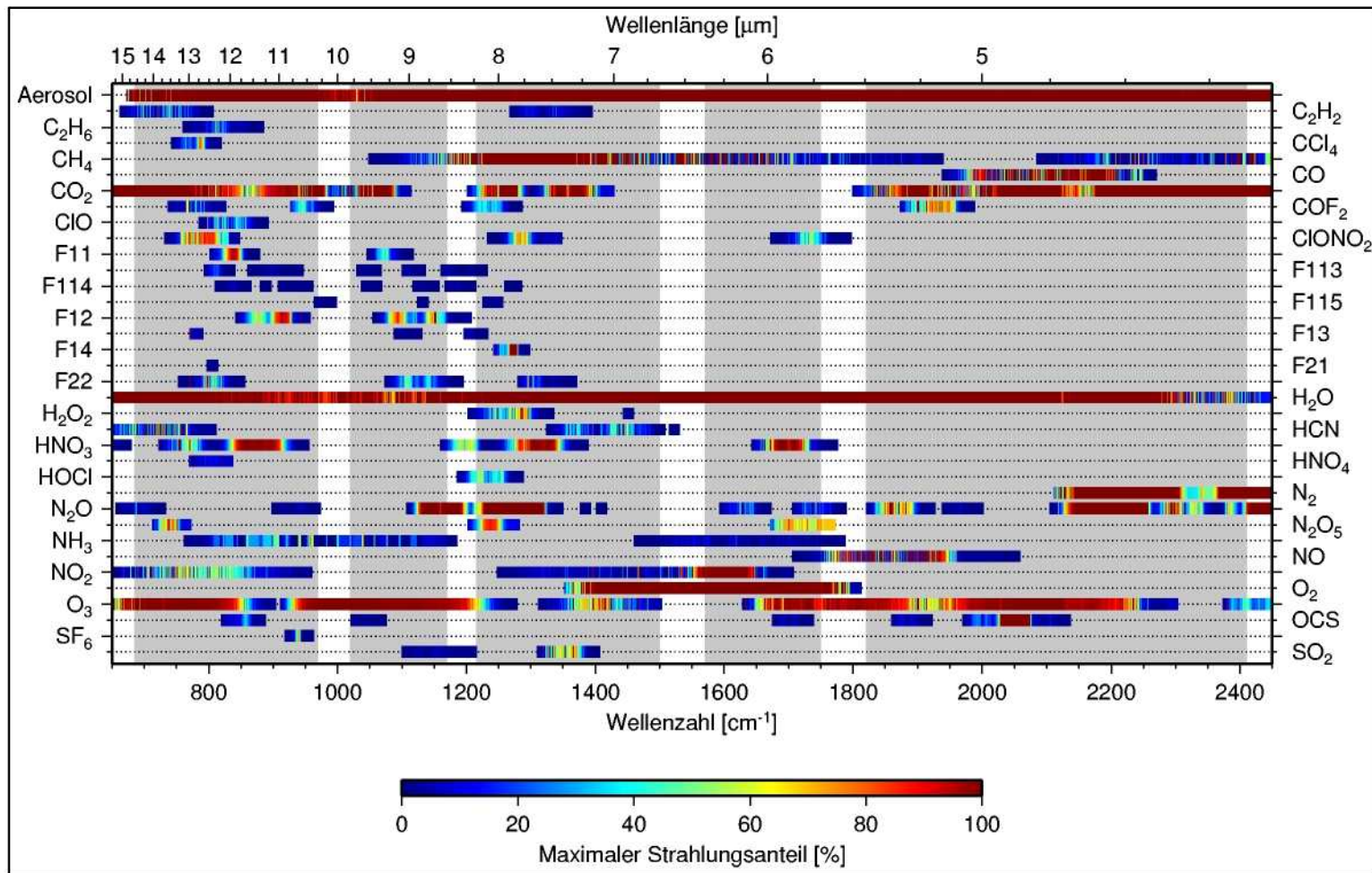


Abbildung 31: Emissionen atmosphärischer Spurengase im mittleren Infrarot. Aufgetragen ist für jedes Gas der maximale Anteil an der Gesamtstrahlung im Bereich 1–100 %. Der maximale Strahlungsanteil wurde über alle nominellen Tangentenhöhen von Envisat MIPAS (6–68 km) und verschiedene klimatologische Bedingungen hinweg ermittelt. Ein hoher Anteil legt nahe, daß das jeweilige Gas zumindest auf einer Höhe und in einem klimatologischen Fall auswertbar ist. Grau unterlegt sind die Envisat MIPAS Meßkanäle.

Um die Auswahl der Spektralbereiche zu optimieren, wird der Informationsgehalt nach *Shannon* [1948] analysiert. In ähnlicher Weise gehen *Dudhia et al.* [2002] vor, die innerhalb kleiner Spektralbereiche (sogenannter Microwindows mit $1-3 \text{ cm}^{-1}$ Breite) die für die line-by-line Auswertung von MIPAS Messungen am besten geeigneten Stützstellen bestimmen. Die Definition des Shannon Informationsgehalt beruht auf der Betrachtung der Entropie von Wahrscheinlichkeitsverteilungen,

$$S(P) = - \int P(\mathbf{x}) \log_2 P(\mathbf{x}) d\mathbf{x}. \quad (4.21)$$

Die Entropie $S(P)$ stellt, in Anlehnung an die physikalische Entropie, ein Maß für die Unsicherheit dar, die der Verteilung P innewohnt. Der Informationsgehalt wird berechnet als Änderung der Entropie in Folge einer Messung,

$$H = S[P(\mathbf{x})] - S[P(\mathbf{x}|\mathbf{y})]. \quad (4.22)$$

Für Normalverteilungen ist $S(P) = \frac{1}{2} \log_2 |\mathbf{S}|$. Aus den Gleichungen (4.9) und (4.22) ergibt sich damit für das Retrievalproblem

$$H = \frac{1}{2} \log_2 |(\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1}) \mathbf{S}_a|. \quad (4.23)$$

Diese Formel wird anschaulicher, wenn sie für die Messung einer Einzelgröße angegeben wird. Für univariate Verteilungen folgt mit $\mathbf{K} \rightarrow k$, $\mathbf{S}_\epsilon \rightarrow \sigma_\epsilon^2$ und $\mathbf{S}_a \rightarrow \sigma_a^2$

$$H = \frac{1}{2} \log_2 \left[1 + \left(\frac{k\sigma_a}{\sigma_\epsilon} \right)^2 \right]. \quad (4.24)$$

Der Shannon Informationsgehalt ist also eine Funktion des effektiven Signal/Rausch-Verhältnis $k\sigma_a/\sigma_\epsilon$. Im Gegensatz zum konventionellen Signal/Rausch-Verhältnis x/σ_ϵ wird hier nicht der Absolutwert x des Signals sondern die Variabilität $k\sigma_a$ im Signal, die sich aufgrund der natürlichen Variabilität σ_a der Meßgröße ergibt, mit dem

Meßfehler σ_ϵ verglichen. Die Ableitung k beschreibt, wie sich die Variabilität σ_a in den Meßraum übersetzt. Gemessen wird der Informationsgehalt in der Einheit Bit. Die Messung einer Einzelgröße hat einen Informationsgehalt von n Bit, wenn der resultierende Fehler σ im Vergleich zum Vorwissen σ_a um einen Faktor 2^n reduziert ist. Dies folgt mit $\mathbf{S} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\epsilon \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \rightarrow \sigma^2$ direkt aus Gleichung (4.23).

Die eigentliche Auswahl der Spektralbereiche stellt ein kombinatorisches Optimierungsproblem dar. Für mehrere tausend Stützstellen muß anhand des resultierenden Shannon Informationsgehalt entschieden werden, ob diese in einen Spektralbereich aufgenommen werden sollen oder nicht. Bei n Stützstellen gibt es $\mathcal{O}(2^n)$ mögliche Spektralbereichs-Kombinationen. Da das einzelne Abtesten aller Kombinationen ausscheidet, wurden drei alternative Lösungsstrategien für das Optimierungsproblem erprobt. (1) Sequentielle Suche von Stützstellen: Wie bei *Rodgers* [1998] beschrieben, wird nacheinander jeweils die Stützstelle des Meßspektrums bestimmt, die den Zuwachs zum Informationsgehalt maximiert. Der Rechenaufwand für die Bestimmung der einzelnen Stützstelle liegt bei $\mathcal{O}(n)$. (2) Sequentielle Suche von Spektralbereichen: Es wird nacheinander jeweils der Spektralbereich bestimmt, der den Zuwachs zum Informationsgehalt maximiert und bereits gewählte Bereiche nicht überdeckt. Der Aufwand für die Bestimmung eines Spektralbereichs liegt bei $\mathcal{O}(n^2/2)$. (3) Simulated Annealing (der englische Begriff Annealing bezeichnet in der Metallurgie das langsame und kontrollierte Erwärmen und Abkühlen von Materialien mit dem Ziel, besonders reine Kristalle herzustellen): Hierbei handelt es sich um ein überaus effizientes, zufallsgestütztes Suchverfahren, bei dem Konzepte der statistischen Physik angewendet werden, um den Optimierungsvorgang zu kontrollieren [*Kirkpatrick et al.*, 1983; *Cerny*, 1985]. Die benötigte Rechenzeit ist bei den hier untersuchten Fällen mit (2) vergleichbar. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Simulated Annealing Methode vermutlich erstmals zur Lösung des Optimierungsproblems bei der Spektralbereichsauswahl herangezogen.

In Abbildung 32 sind die Ergebnisse der verschiedenen Lösungsstrategien gegenübergestellt. Zur Orientierung ist in die oberen Teilabbildungen das sogenannte Informationsspektrum eingezeichnet. Dies gibt summiert über alle analysierten Höhen (6–36 km) den Shannon Informationsgehalt jeder Stützstelle des Meßspektrums an. Das Informationsspektrum ändert sich, sobald eine Stützstelle tatsächlich für das Retrieval ausgewählt wird. Die bei den drei Suchverfahren resultierenden Spektralbereiche werden so sortiert, daß der Zuwachs zum Informationsgehalt maximiert ist. Die Höhe einer grauen Säulen in Abbildung 32 gibt den jeweiligen den Zuwachs an. Eingetragen sind der Übersicht halber nur die Spektralbereiche, die mindestens 1 % Informationszuwachs liefern. Die Absolutwerte des Shannon Informationsgehalt hängen stark von der a priori Unsicherheit ab. Beim Aerosol resultiert im Vergleich zu CFC-11 ein deutlich höherer Informationsgehalt, da die klimatologische Unsicherheit hier weit größer ist. Der Vergleich der Suchverfahren in Abbildung 32 zeigt, daß keine Methode universell anwendbar ist. So endet die sequentielle Suche nach einzelnen Stützstellen im Fall von CFC-11 vorschnell in einem lokalen Maximum des Informationsgehalt und liefert damit das schlechteste Ergebnis, während bei Aerosol mit dieser Methode das beste Resultat erzielt wird. Die sequentielle Suche nach Spektralbereichen und das Simulated Annealing Verfahren führen bei beiden Emittlern zu annähernd gleichwertigen, guten Ergebnissen. Auffallend bei allen Verfahren ist, daß in der Regel der erste Spektralbereich bereits so gewählt wird, daß ein Großteil des maximal möglichen Informationsgehalt erzielt wird. Grund ist, daß bei kleinen Spektralbereichen mit geringer Stützstellenzahl N der Rauschfehler dominiert. Mit wachsender Breite der Spektralbereiche skaliert dieser Fehler jedoch mit $1/\sqrt{N}$ und systematische Fehler, die schwächer oder gar nicht mit N skalieren, treten in den Vordergrund. Wachstumskurven des Informationsgehalts zeigen (Abb. 32, unten), daß bei $N \approx 100-200$ eine Sättigung eintritt. Im Vergleich zu ad hoc gewählten Spektralbereichen [Hoffmann *et al.*, 2004, 2005] liefern die aufwendigen

Optimierungsverfahren bei CFC-11 nur relativ geringe Verbesserungen (3.4 %) im Informationsgehalt. Bei CFC-11 ist die ad hoc Wahl allerdings auch vergleichsweise einfach. Es kommt im wesentlichen darauf an, einen hinreichend breiten Spektralbereich zu wählen, so daß der Rauschfehler genügend unterdrückt ist. In komplizierteren Fällen sind mit den drei beschriebenen Verfahren größere Verbesserungen zu erzielen. Dies zeigt sich schon beim Aerosol, wo durch die Optimierung immerhin 10 % Zuwachs gewonnen werden können. Komplizierter gestaltet sich die Wahl von Spektralbereichen aufgrund der spezifischen Absorptionsquerschnitte und des Einfluß von Störgasen auch bei CFC-12 (nicht dargestellt). Hier konnte im Vergleich zur eher schlechten ad hoc Wahl eine Verbesserung von 30 % erzielt werden.

4.7 Tests des Retrievalsystems

Mit Hilfe sogenannter End-to-end Tests kann überprüft werden, ob ein Retrievalsystem ordnungsgemäß funktioniert [z. B. *von Clarmann et al.*, 2003a]. Zur Durchführung eines solchen Tests wird für einen gegebenen Atmosphärenzustand eine Vorwärtsrechnung ausgeführt. Den simulierten Beobachtungen werden dann unterschiedliche Meßfehler aufgeprägt. Basierend auf den simulierten Beobachtungen wird ein Retrieval ausgeführt, dessen Ergebnis wiederum mit den Eingangsdaten verglichen werden kann. Ein wichtiger Vortest dieser Art ist der Biastest, bei dem überprüft wird, ob das Retrievalsystem den a priori Zustand bei hierfür simulierten Messungen ohne aufgeprägte Meßfehler exakt reproduziert. Zur Prüfung des Retrievalsystems wurden zwei einfache End-to-end Tests durchgeführt. Als Eingangsdaten sind rund 1000 global verteilte Atmosphärenprofile aus einer Studie mit dem NCAR ROSE-Modell [*Smith*, 1995] herangezogen worden. Das Modell wird durch externe meteorologische Daten des UK Meteorological Office angetrieben [*Swinbank und O'Neill*, 1994]. Weiter wurden CFC-11 Messungen des CRISTA Satellitenex-

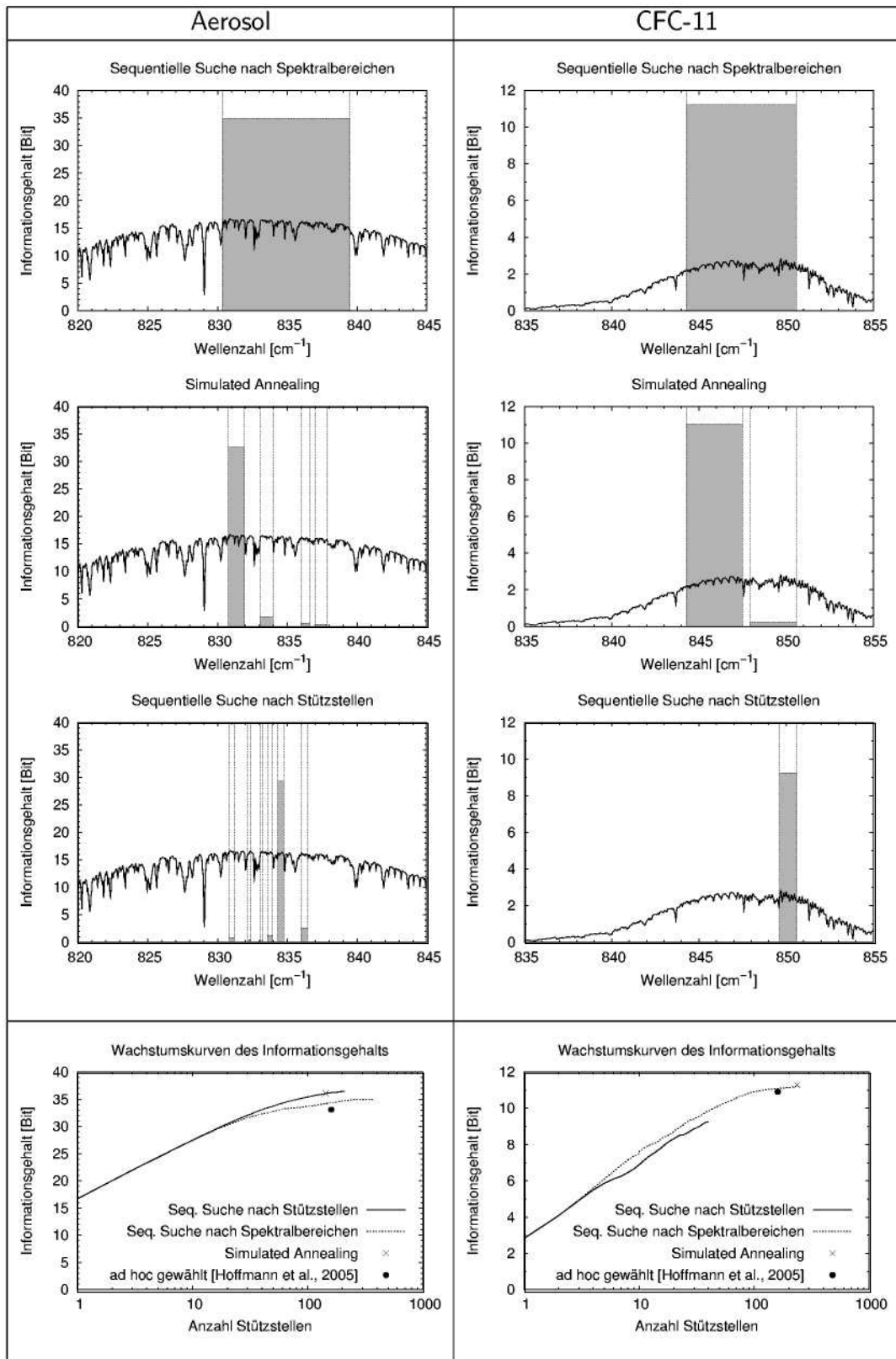


Abbildung 32: Optimierte Spektralbereiche für das CFC-11 Retrieval. Gegenübergestellt sind die Ergebnisse verschiedener Suchstrategien (siehe Text).

periments [Offermann *et al.*, 1999; Riese *et al.*, 1999a] durch ein einfaches Assimilierungsschema in das Modell eingebracht [Riese *et al.*, 1999b; Hoffmann und Riese, 2004]. Die Ergebnisse der End-to-end Tests sind in Abbildung 33 zusammengefaßt. Zunächst wurde den simulierten Beobachtungsdaten kein Meßfehler aufgeprägt. Oberhalb von 20 km Höhe befinden sich Retrievalergebnisse und Eingangsdaten in guter Übereinstimmung (schwarze Kurve). Mit abnehmender Höhe zeigt sich jedoch eine systematische Abweichung zwischen den Retrievalergebnissen und den Eingangsdaten. Bei 9 km liegen die Retrievalergebnisse im Mittel 18 ppt (entspricht 7 % des troposphärischen Volumenmischungsverhältnis) unter den Eingangsdaten. Im Höhenbereich 10–20 km macht die Abweichung 5–7 ppt (2–3 %) aus. Die Differenzen resultieren aus vergleichsweise großen systematischen Abweichungen zwischen den Eingangsdaten und den für das Retrieval verwendeten a priori Daten (grüne Kurve). Die Eingangsdaten liegen bei 9 km um 50 ppt (20 %) über der Klimatologie. Da bei 9 km Höhe die Varianz der klimatologischen Daten vergleichsweise klein und der Meßfehler vergleichsweise groß ist, ergibt sich ein geringerer Meßanteil am Retrievalergebnis. Dies führt zur beobachteten Verschiebung der Retrievalergebnisse in Richtung der a priori Daten. Für den zweiten Test wurde den simulierten Beobachtungsdaten normalverteiltes Rauschen mit einer Standardabweichung von $2 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ plus 2 % der mittleren Strahlungsdichte aufgeprägt. Die bereits beim Test ohne Meßfehler beobachteten systematischen Abweichungen bleiben hier nahezu unverändert bestehen. Die Streuung der Abweichungen wächst jedoch in Folge der Meßfehler an (Fehlerbalken der roten Kurve).

Weitere Testmöglichkeiten für das Retrievalsystem ergeben sich, wenn Line-by-line Vorwärtsrechnungen für einzelne Retrievalergebnisse ausgeführt und direkt mit den gemessenen Envisat MIPAS Spektren verglichen werden. Bei den End-to-end Tests werden Fehler in der Vorwärtsmodellierung nicht aufgespürt, da bei der Erzeugung der simulierten Beobachtungsdaten auf das gleiche Vorwärtsmodell

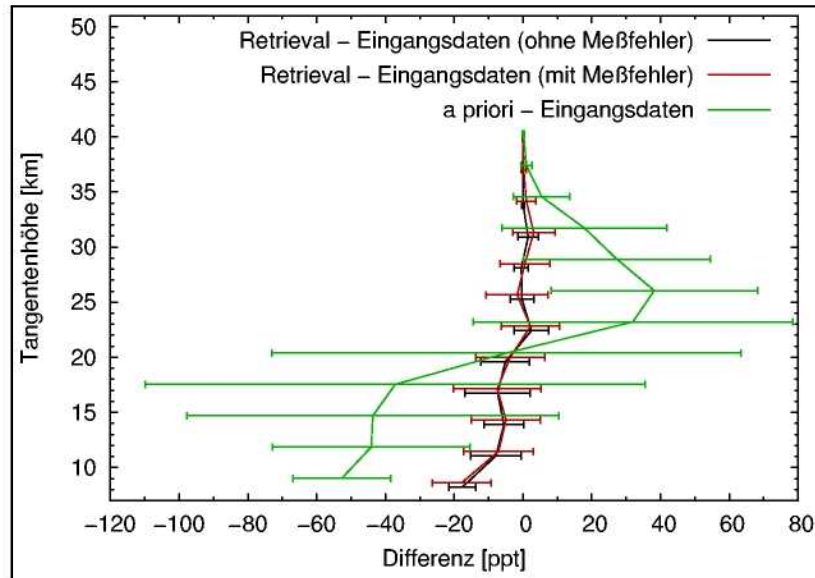


Abbildung 33: End-to-end Tests des Retrievalsystems. Es wird überprüft inwieweit das Retrievalsystem verschiedene Eingangsdaten reproduzieren kann.

zurückgegriffen wird. Bei den line-by-line Vergleichen ist das eher möglich, da hier ein unabhängiges Vorwärtsmodell eingesetzt wird, das MIPAS Reference Forward Model (RFM) [Dudhia, 2004]. Eine gewisse Abhängigkeit besteht darin, daß das RFM zur Erzeugung der Emissivitätstabellen für JURASSIC verwendet wird. Die eigentlichen Strahlungstransportrechnungen sind jedoch entkoppelt. Die Ergebnisse einer line-by-line Vergleichsrechnung für das Eingangsbeispiel (Abb. 22) sind in Abbildung 34 dargestellt. Das Strahlungsresiduum liegt auf allen Tangentenhöhen im Bereich der Meßfehler. Die für jede Tangentenhöhe bestimmte mittlere quadratische Abweichung χ^2/m über alle Stützstellen eines Strahlungskanal hinweg liegt ebenfalls unter Eins. Im CFC-11 Kanal gelingt die Anpassung teilweise deutlich besser als aufgrund der Meßfehler erwartet. Bei den beiden untersten Tangentenhöhen fällt der spektrale Verlauf der Residuen beziehungsweise des gleitenden Mittels auf. Dieser Verlauf ist vermutlich durch Aerosol-Emissionen verursacht, deren spektraler Verlauf in der hier durchgeführten Auswertung konstant angesetzt wird, real jedoch einen Gradienten aufweist (siehe Abschnitt 4.4). Anhand von line-by-line Vergleichen ist insbesondere festzustellen, ob wichtige Spurengase in der Vorwärtsmodellierung übersehen

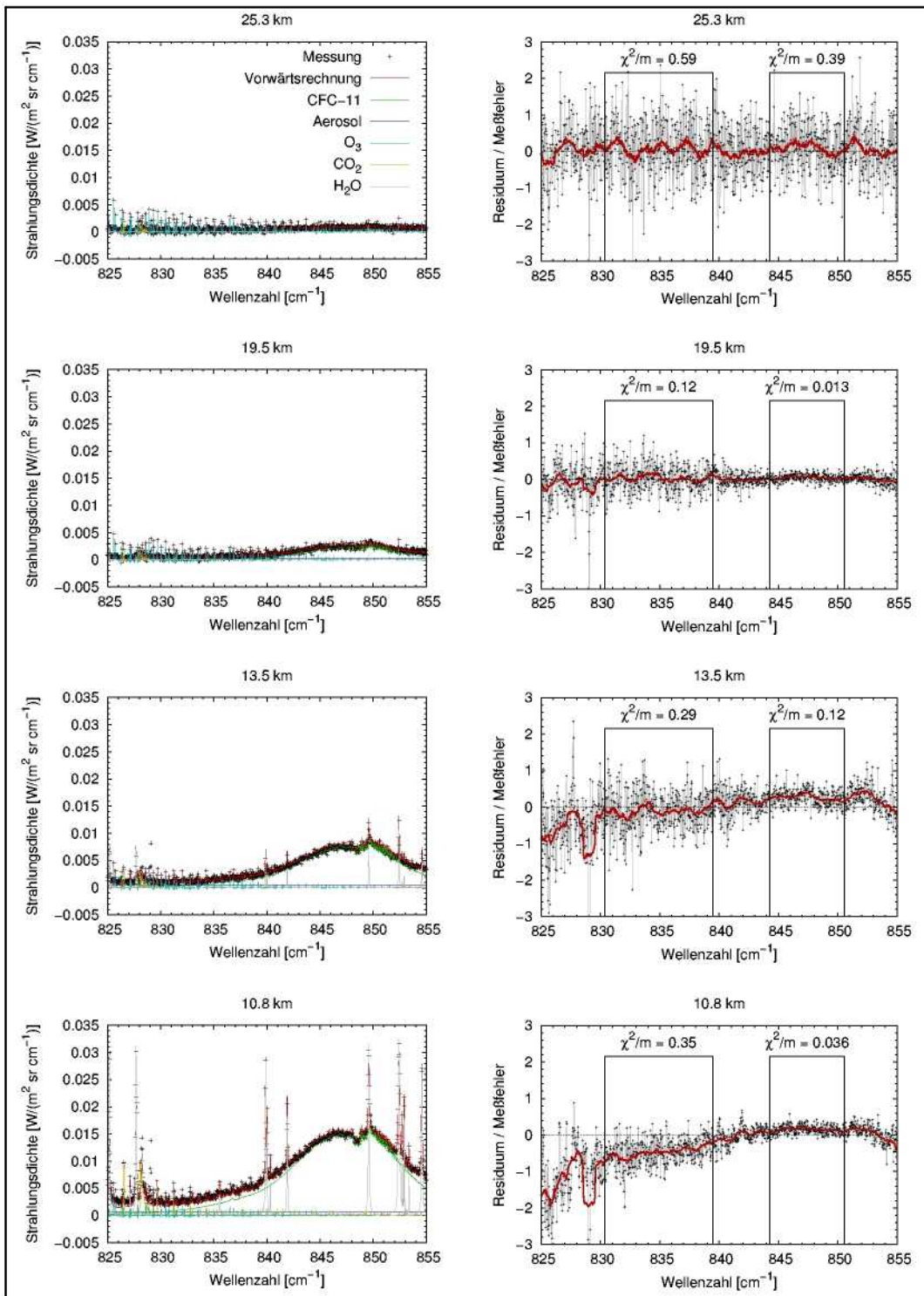


Abbildung 34: Line-by-line Vorwärtsrechnungen für die Retrievalergebnisse. Untersucht wird das Eingangsbeispiel (Abb. 22). In der linken Spalte sind gemessene und simulierte Strahlungsdichten für verschiedene Tangentenhöhen direkt dargestellt. In der rechten Spalte sind die auf den Meßfehler normierten Strahlungsresiduen aufgetragen. Das gleitende Mittel über die Residuen (rote Kurve) erfaßt jeweils 1 cm^{-1} .

wurden. In einem solchen Fall wird das Strahlungsresiduum den Meßfehler deutlich übersteigen. Zu beobachten ist dies etwa bei 829 cm^{-1} , wo das Strahlungsresiduum den Meßfehler um einen Faktor 10 und mehr übersteigt. Ursache sind Emissionen von HCFC-22, wie sich anhand von Referenzspektren zeigen läßt. HCFC-22 wird in der Vorwärtsmodellierung nicht berücksichtigt, da es außerhalb der hier ausgewerteten Spektralbereiche liegt. Innerhalb der im Retrieval ausgewerteten Strahlungskanäle sind solche Abweichungen nicht zu verzeichnen.

4.8 Anwendungsmöglichkeiten des Retrievalsystems

Das im Rahmen der Arbeit entwickelte Retrievalsystem ist sehr flexibel einsetzbar. So kann es in seiner derzeitigen Form bereits zur Durchführung sogenannter Multi-Target Retrieval eingesetzt werden [z. B. *Schwarz et al.*, 2002; *Dinelli et al.*, 2004]. Bei dieser Form des Retrievals werden verschiedene Zustandsgrößen (insbesondere die unterschiedlichen Spurengase) nicht sequentiell sondern parallel abgeleitet. Die parallele Ableitung hat den Vorteil, daß alle Korrelationen zwischen den Zustandsgrößen korrekt berücksichtigt werden. Die mit einer sequentiellen Ableitung verbundene Fehlerpropagation wird vermieden. Zu Testzwecken wurde das CFC-11 Retrieval erweitert, so daß neben CFC-11 und Aerosol auch die restlichen Spurengase sowie Druck und Temperatur mit zu den Variationsgrößen gehörten. Auch in diesem erweiterten Fall war eine stabile Ableitung von CFC-11 möglich.

Mit dem Optimal Estimation Ansatz können unter- wie überbestimmte Probleme gelöst werden. Diese treten beispielsweise auf, wenn die Messungen und der abzuleitende Atmosphärenzustand nicht auf demselben räumlichen Gitter vorgegeben sind. In Bezug auf die Genauigkeit der Ergebnisse lautet eine allgemeine Regel für das Optimal Estimation Retrieval, daß der Atmosphärenzustand mit möglichst hoher räumlicher Auflösung vorgegeben werden sollte. Das Retrievalproblem ist dadurch

zunächst stark unterbestimmt. Eine Lösung wird jedoch durch den Rückgriff auf explizite a priori Daten ermöglicht. In Hinblick auf die Effizienz der Retrievalrechnungen wiederum ist ein extrem feines Gitter nur begrenzt sinnvoll. Um den Einfluß der Wahl des Retrievalgitters genauer zu untersuchen, ist die Betrachtung diagnostischer Größen aufschlußreich, etwa des Shannon Informationsgehalt $H = -\frac{1}{2} \log_2 |\mathbf{I}_n - \mathbf{A}|$ oder der Zahl der Freiheitsgrade für Signal $d_s = \text{tr}(\mathbf{A})$. Hierbei bezeichnet $\mathbf{A}$ die in Abschnitt 4.5 eingeführte Averaging Kernel Matrix. In Abbildung 35 ist dargestellt, wie sich die Wahl des Retrievalgitters im Eingangsbeispiel (Abb. 22) auf die Zahl der Freiheitsgrade d_s auswirkt. Der Wert von d_s entspricht der Zahl an Höhenstufen, für die effektiv voneinander unabhängige Informationen abgeleitet werden. Diese Maßzahl nimmt im Normalfall ab, wenn das Retrievalgitter gröber wird, da dann Teilbereiche des Zustandsraumes nicht mehr für Lösungen zugänglich sind. Wie das Beispiel zeigt, kommt es zu einem besonders deutlichen Abfall, wenn der vertikale Gitterabstand der Atmosphärendaten das 3 km Meßgitter von Envisat MIPAS übersteigt. Unter dieser Grenze ergibt sich hingegen nur ein geringer Zuwachs, sofern die Korrelationslänge der a priori Kovarianzmatrix über 2 km liegt. Bei kleineren Korrelationslängen ist ebenfalls wieder eine Abnahme in d_s festzustellen. In der hier durchgeführten Standardauswertung erfolgt das Retrieval direkt auf dem irregulären Meßgitter von Envisat MIPAS. Dieses Vorgehen bedingt nur geringe Einbußen bei der effektiven Zahl der Freiheitsgrade und vermindert zudem Interpolationsfehler innerhalb des Vorwärtsmodells.

Durch den flexiblen Aufbau des Retrievalsystems können auch fortgeschrittene Retrievalverfahren direkt umgesetzt werden. Als Beispiel sei die Durchführung eines Geo-Fit-Retrievals [z. B. *Carlotti et al.*, 2001a; *Ridolfi et al.*, 2004] für ein zukünftiges satellitengetragenes Fernerkundungsexperiment wie GLORIA (Global Limb Radiance Imager for the Atmosphere) [*Riese et al.*, 2005; *Friedl-Vallon et al.*, 2005] vorgestellt. Bei GLORIA wird ein Detektor-Array eingesetzt, mit dem innerhalb weniger

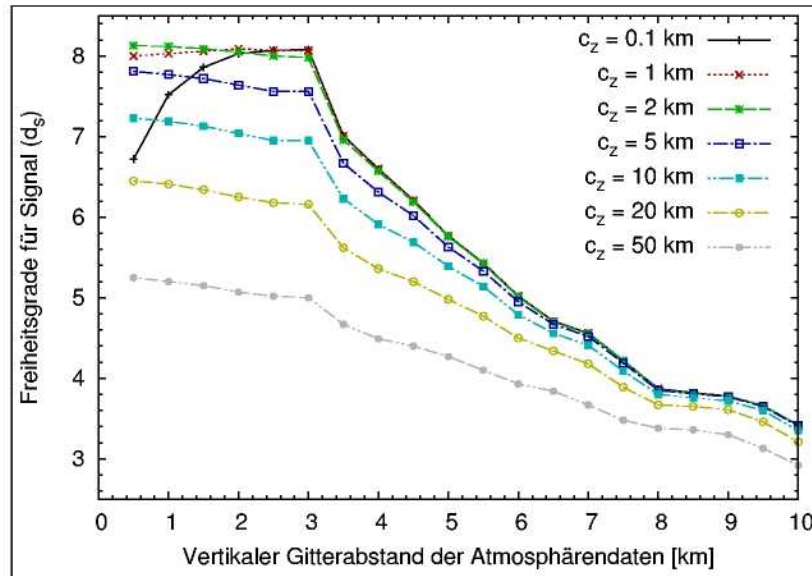


Abbildung 35: Freiheitsgrade für Signal bei unterschiedlicher Wahl des Retrievalgitters. Untersucht wird, wie sich verschiedene Vertikalabstände des Retrievalgitters und Korrelationslängen c_z der *a priori* Kovarianzmatrix im Eingangsbeispiel (Abb. 22) auswirken.

Sekunden ein komplettes Bild der vom Erdhorizont ausgehenden Infrarot-Strahlung erfaßt wird. Auf diese Weise ergibt sich eine im Vergleich zu allen bisherigen Satellitenexperimenten extrem feine dreidimensionale räumliche Abtastung der Atmosphäre. Bei GLORIA deckt ein Horizontbild den Höhenbereich 5–65 km und einen horizontalen Bereich von 400 km mit einer Abtastung von $500 \text{ m} \times 20 \text{ km}$ ab. Die einfallende Strahlung wird mit einem FTIR-Spektrometer zerlegt. Die Meßzeit liegt bei 4 sec, so daß der Abstand zwischen den Horizontbildern entlang der Meßspur des Trägersatelliten rund 30 km beträgt. In der hier durchgeführten Betrachtung wird eine Blickrichtung entgegen der Flugrichtung des Satelliten angenommen.

Als konkretes Beispiel wird untersucht, inwieweit mit GLORIA eine sogenannte Tropopausenfalte sichtbar gemacht werden kann, wenn diese in einer der 20 Meßspuren des Geräts auftritt. Hierzu wird in Anlehnung an *Shapiro* [1980] ein rein synthetischer Datensatz generiert, der einen schichtförmigen Eintrag CFC-11 ärmerer Luftmassen aus der Stratosphäre in die Troposphäre widerspiegelt. Das weitere Vorgehen entspricht einem End-to-end Test. Für den synthetischen Datensatz werden

Beobachtungen simuliert (hier ohne aufgeprägte Beobachtungsfehler), die anschließend einem Retrieval unterzogen werden. Die a priori Annahme und Startverteilung für das Retrieval ist eine homogen geschichtete Atmosphäre. Erprobt werden zwei Retrievalverfahren. Die Resultate sind in Abbildung 36 dargestellt. Im Rahmen eines klassischen 1D-Retrievals werden die Vertikalprofile sequentiell unter der Annahme einer homogen geschichteten Atmosphäre ausgewertet. Die Struktur der Tropopausenfalte wird hier zwar grundsätzlich erkannt, es treten jedoch einige artifizielle Strukturen auf. So scheint sich die Tropopausenfalte tiefer in die Troposphäre auszudehnen. Im Bild rechts hinter der Falte bildet sich ein lokales Maximum. Durch Vernachlässigung der horizontalen Gradienten ergeben sich bei der 1D-Methode Abweichungen von bis zu 20 % zwischen den abgeleiteten Daten und den Originaldaten. Im Rahmen eines 2D- oder Geo-Fit-Retrievals werden alle Vertikalprofile gleichzeitig ausgewertet. Bei dieser Vorgehensweise fließen die horizontalen Gradienten in die Strahlungstransportrechnung ein. Berücksichtigt werden ferner auch die Korrelationen, die aus dem Überlapp unterschiedlicher Sehstrahlen resultieren. Die 2D-Methode ist deutlich rechenaufwendiger (≈ 2 Größenordnungen), die maximalen Abweichungen zwischen Retrievalergebnis und Referenz liegen allerdings auch unter 2–3 %. Dieses einfache Retrievalexperiment läßt erwarten, daß ein Instrument wie GLORIA in der Tat gut geeignet wäre, um mesoskalige Strukturen und dynamische Ereignisse im Grenzbereich von Tropo- und Stratosphäre zu untersuchen.

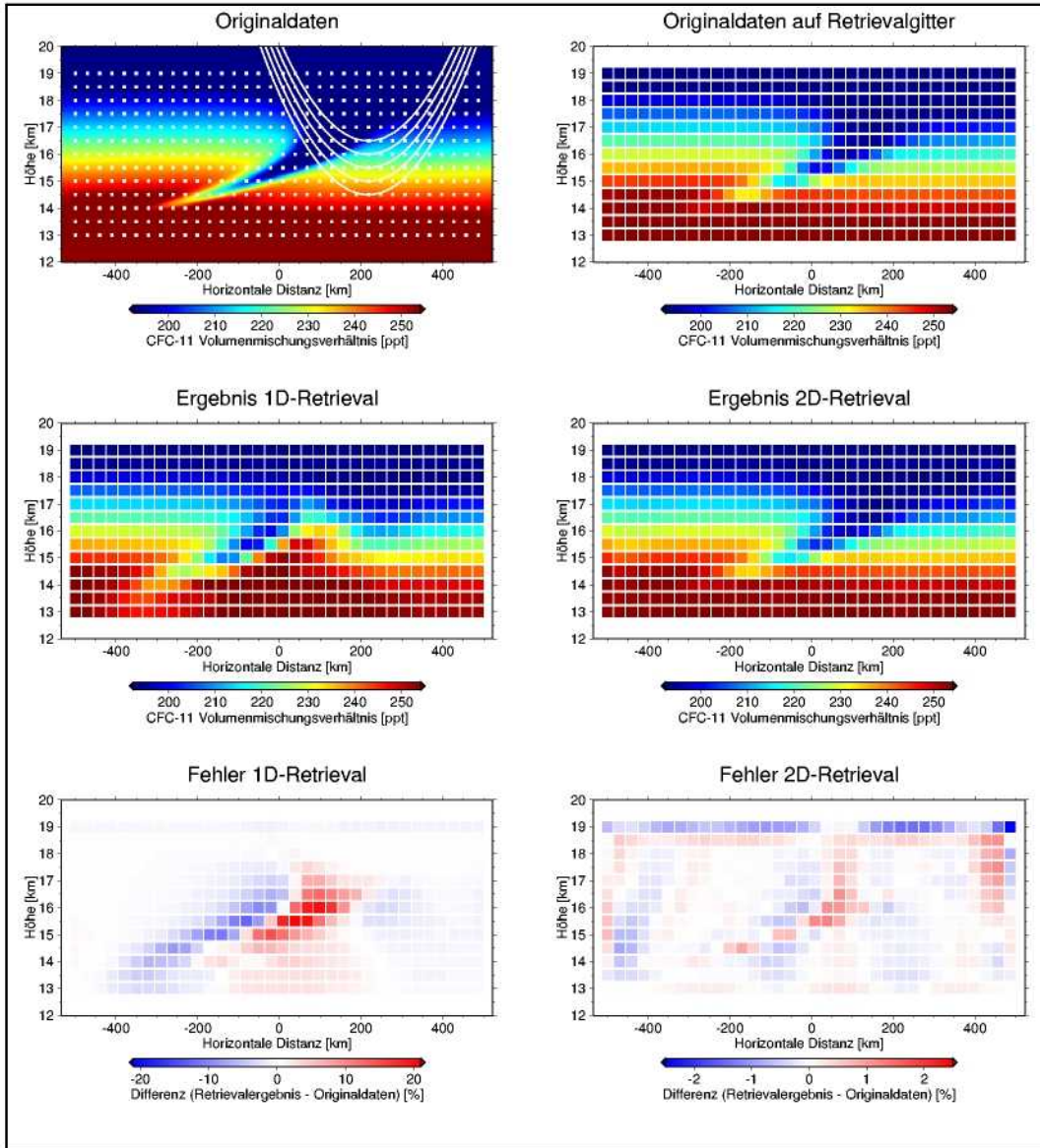


Abbildung 36: Retrieval experiment für GLORIA. Untersucht wird eine synthetisch generierte CFC-11 Verteilung, die eine Tropopausenfalte widerspiegelt. Das Retrieval erfolgt auf dem Meßgitter von GLORIA (oben links skizziert sowie Kästchen-Einteilung in den restlichen Plots). Es ist zu beachten, daß die Abweichungen zwischen Retrievalergebnis und Originaldaten (unten) im 1D- und 2D-Fall in unterschiedlichen Skalen aufgetragen sind.

5 Die globale Verteilung von FCKWs

Die langfristige Beobachtung der globalen Verteilung von Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKWs) ist aus verschiedenen Gründen von großer Relevanz. Das bei der photolytischen Zersetzung der FCKWs freigesetzte Chlor spielt eine wichtige Rolle bei der katalytischen Ozonzerstörung in der polaren Stratosphärenchemie [*Molina und Rowland*, 1974; *Stolarski und Cicerone*, 1974]. Weiterhin sind FCKWs starke Infrarot-Absorber und tragen zum anthropogen verursachten Treibhauseffekt bei [z. B. *Christidis et al.*, 1997; *Naik et al.*, 2000]. Schließlich sind FCKWs aufgrund ihrer langen chemischen Lebensdauer gut geeignet, um Transportvorgänge in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre zu analysieren. Dies ist nützlich bei der Untersuchung einzelner dynamischer Prozesse oder der Validierung der Transportmodellierung in Atmosphärenmodellen [z. B. *Golombek und Prinn*, 1986; *Kao et al.*, 1992; *Rind und Lerner*, 1996; *Gupta et al.*, 2001].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das eingangs beschriebene Retrievalsystem eingesetzt, um die globale Verteilung der Fluorchlorkohlenwasserstoffe CFC-11 und CFC-12 in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre aus Envisat MIPAS Messungen abzuleiten. Der Datensatz umfaßt für beide Spurengase jeweils rund 430 000 Vertikalprofile (Höhenbereich 10–40 km) im Zeitraum Juli 2002 bis März 2004. In den folgenden Abschnitten werden die Daten mit line-by-line Auswertungen und unabhängigen Experimenten verglichen, auf ihre saisonale Variabilität hin analysiert und Modellergebnissen gegenübergestellt.

CFC-11 und CFC-12 wurden ab etwa 1960–1970 in ständig wachsendem Umfang industriell hergestellt. FCKWs sind aufgrund ihrer chemischen Inertheit technisch interessant. CFC-11 und CFC-12 wurden vorwiegend als Kühlmittel und bei der Herstellung von Schaumstoffen eingesetzt. Mit der Entdeckung, daß das bei

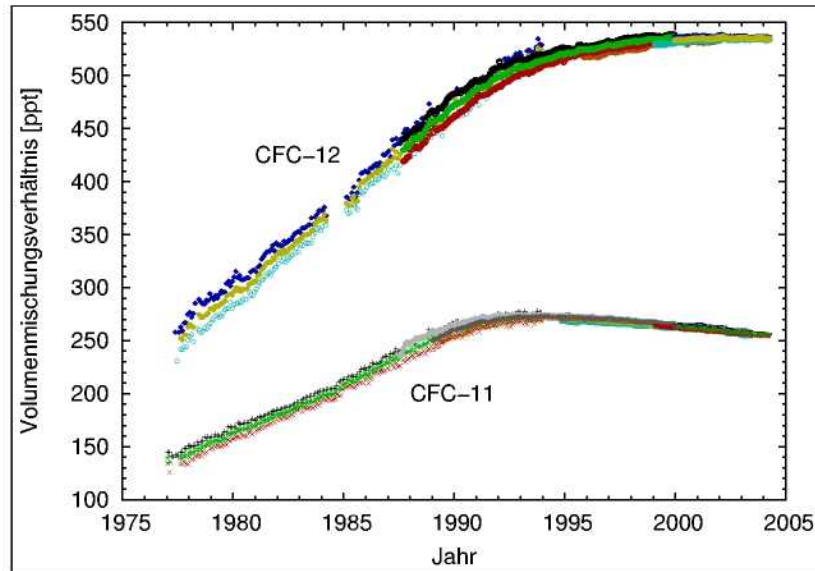


Abbildung 37: Troposphärische Trends von CFC-11 und CFC-12. Dargestellt sind jeweils Monatsmittel der Volumenmischungsverhältnisse, die mit verschiedenen Meßmethoden an global verteilten Meßorten des NOAA/CMDL Netzwerkes gewonnen wurden [erweiterte Arbeiten von Elkins et al., 1993, 1996].

der photolytischen Zersetzung der FCKWs in der Stratosphäre freigesetzte Chlor einen massiven Ozonabbau in den Polarregionen bewirkt, wurde die Produktion von FCKWs durch das Montreal-Protokoll von 1987 und seine Nachfolgeabkommen weltweit untersagt. Abbildung 37 gibt einen Überblick über die troposphärischen Mischungsverhältnisse von CFC-11 und CFC-12 in den Jahren 1977–2005. CFC-11 und CFC-12 sind die am häufigsten vorkommenden FCKWs. Mitte des Jahres 2000 macht der Anteil von CFC-11 und CFC-12 rund 53 % des gesamten organischen Chlors (CCl_y) aus. Die aus mehreren Meßnetzen bestimmte Bodenkonzentration liegt im globalen Mittel bei 260.5 ppt für CFC-11 und 542.9 ppt für CFC-12 [WMO, 2003]. Die Wachstumsraten 1999–2000 liegen bei CFC-11 zwischen $-0.39\%/ \text{Jahr}$ und $-0.76\%/ \text{Jahr}$ sowie bei CFC-12 zwischen $+0.34\%/ \text{Jahr}$ und $+0.42\%/ \text{Jahr}$ [erweiterte Arbeiten von Montzka et al., 1999; Prinn et al., 2000; Blake et al., 2001].

Die globale Verteilung der FCKWs in der Stratosphäre ist neben der Photochemie wesentlich durch die mittlere Zirkulation und großskalige isentrope Eddytrans-

porte bestimmt. Neben einer Vielzahl lokaler Ballon- und Flugzeug-Messungen wurde die globale stratosphärische Verteilung von CFC-11 und CFC-12 durch verschiedene satellitengestützte Fernerkundungsexperimente bestimmt [z. B. *Zander et al.*, 1992; *Nightingale et al.*, 1996; *Bingham et al.*, 1997; *Riese et al.*, 1999a; *Yokota et al.*, 2002; *Coheur et al.*, 2003]. Direkte Trends sind aus diesen Daten aufgrund der recht hohen Variabilität der stratosphärischen Verteilungen und der größeren Meßfehler der Instrumente nur schwer abzuleiten. Bei *Zander et al.* [1996] finden sich Trendabschätzungen, die auf Messungen des Space Shuttle Instruments ATMOS (Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy) in den Jahren 1985–1994 beruhen. *Engel et al.* [1998] untersuchen, basierend auf in-situ Messungen während des Zeitraums 1978–1997, mit welcher Zeitverschiebung sich die troposphärischen Trends in die unterste Stratosphäre fortpflanzen.

5.1 Vergleich mit line-by-line Auswertungen

Die abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Daten sind detailliert mit Ergebnissen aus unabhängigen Envisat MIPAS Auswertungen der Universität Leicester und des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung (IMK), Forschungszentrum Karlsruhe, verglichen worden. Zwar können diese Vergleiche keine direkten Meßfehler des Instruments aufdecken, sie geben aber Hinweise, ob Fehler in der Vorwärtsmodellierung oder im Retrieval bestehen. Das Retrieval der Universität Leicester erfolgt ebenfalls nach dem Optimal Estimation Verfahren. Es wird auf operationelle ESA L2-Daten und klimatologische Daten von *Remedios* [1999] zurückgegriffen. Als Vorwärtsmodell wird das MIPAS RFM eingesetzt. Analog zur hier durchgeführten Auswertung werden im Leicester-Retrieval keine detaillierten Strahlungsspektren sondern geeignet gewählte radiometrische Mittelwerte verglichen. Da das RFM zwar sehr exakt, aber vergleichsweise langsam rechnet, konzentriert sich die Auswertung in Lei-

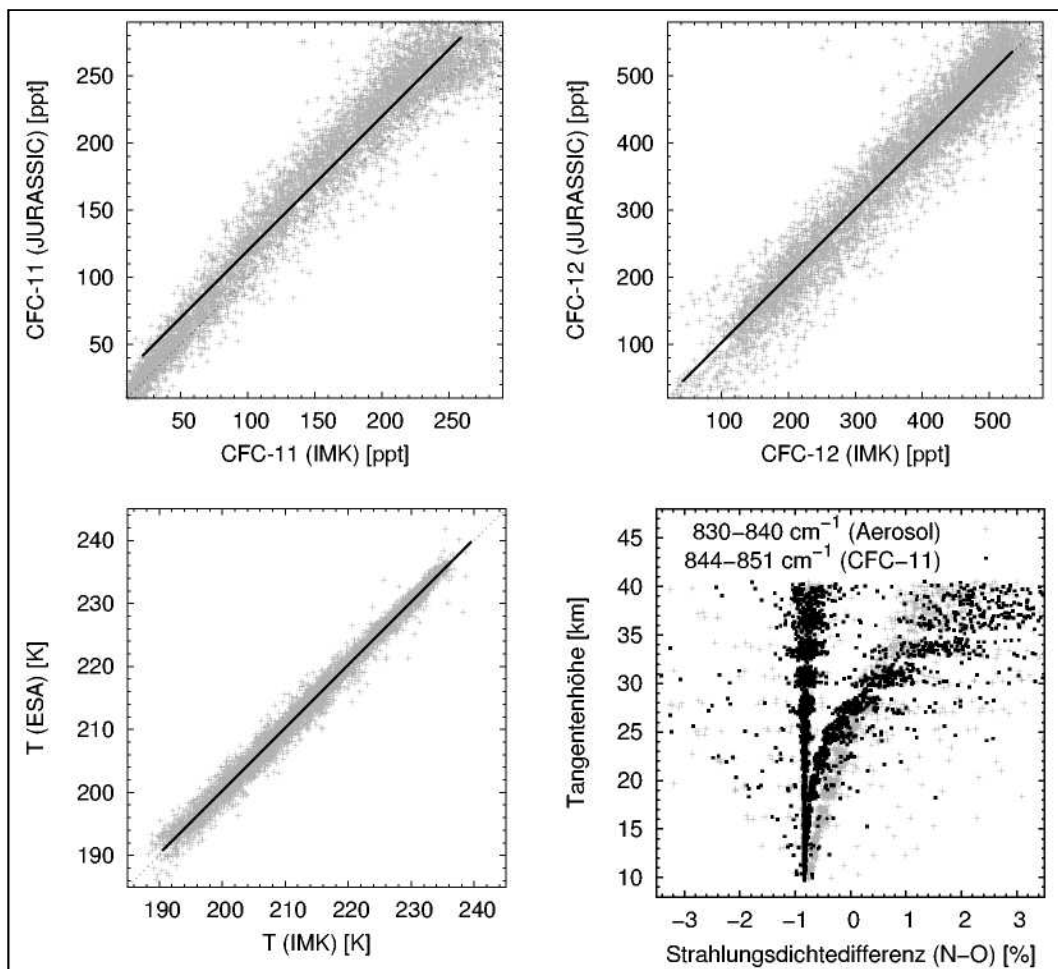


Abbildung 38: Vergleich mit IMK-Daten. Verglichen werden für den 16.12.2002 CFC-11 und CFC-12 Retrievalergebnisse, IMK- und ESA-Temperaturen sowie near-real-time und offline prozessierten Strahlungsdichten (N-O). In die Korrelationsdiagramme sind jeweils Ausgleichsgeraden eingezeichnet (dicke Linien).

cester auf einen kleinen Teil der Envisat MIPAS Messungen [Moore *et al.*, 2005]. Ein direkter Vergleich der wenigen abgeleiteten Einzelprofile hat zumeist eine gute Übereinstimmung ergeben (besser 2–3 %), was angesichts der nahezu identischen Vorgehensweise auch zu erwarten war. Kleine Unterschiede bestehen lediglich in der Wahl der für das Retrieval herangezogenen Spektralbereiche und der Konstruktion der Meßfehler- und a priori Kovarianzmatrix.

Das IMK-Retrieval beruht auf einem regularisierten Global-Fit Ansatz und der Verwendung des Vorwärtsmodell KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radia-

tive Transfer Algorithm) [*Stiller, 2000; Stiller et al., 2002*]. Vergleiche zwischen simulierten und tatsächlichen Beobachtungen werden auf line-by-line Basis durchgeführt. Da diese exakte Auswertung sehr rechenaufwendig ist, wurden am IMK für CFC-11 und CFC-12 bisher nur rund 10 % aller Messungen ausgewertet (Stand 05.12.2005). Die CFC-11 und CFC-12 Daten des IMK sind noch nicht validiert [*T. von Clarmann, pers. Mtlg.*]. In Abbildung 38 sind im Rahmen der Arbeit mit JURASSIC gewonnene Retrievalergebnisse den IMK-Daten für einen Tag gegenübergestellt. Während die CFC-12 Daten im Mittel sehr gut, d. h. bis auf 5 ppt (1 %) übereinstimmen (Abb. 38, oben rechts) zeigt sich bei CFC-11 eine etwas größere systematische Abweichung von 20 ppt (8 %) (Abb. 38, oben links). Die systematische Abweichung fällt bei niedrigen Mischungsverhältnissen geringer aus. Bei hohen Mischungsverhältnissen liegen die JURASSIC-Daten teilweise noch etwas deutlicher über den IMK-Daten. Bei beiden Gasen ist eine größere Streuung der Abweichungen festzustellen. Eine Korrelationsanalyse für einen weiteren Tag zeigt äquivalente Ergebnisse.

Die systematischen Abweichungen bei CFC-11 sind hauptsächlich durch die Verwendung unterschiedlicher spektroskopischer Daten für CFC-11 (gemessene Absorptionsquerschnitte) verursacht. Die JURASSIC-Auswertung baut auf RFM-Originaldaten auf, die IMK-Auswertung auf HITRAN2k-Daten. Zu Vergleichszwecken durchgeführte Vorwärtsrechnungen zeigen, daß die spektroskopischen Daten aus HITRAN2k bei gleichen Atmosphärendaten etwa 5–10 % höhere Strahlungsdichten im CFC-11 Kanal ($844–851\text{ cm}^{-1}$) erzeugen. Im Aerosol-Kanal ($830–840\text{ cm}^{-1}$) fallen die Abweichungen aufgrund des kleineren CFC-11 Strahlungsanteils geringer aus. Werden beim JURASSIC-Retrieval ebenfalls HITRAN2k-Daten eingesetzt, sollten sich um 10–20 ppt geringere CFC-11 Volumenmischungsverhältnisse ergeben (durch Skalierung des Spektroskopie-Fehlers in Abb. 27 abgeschätzt). Eine systematische Überschätzung bis 6 ppt ist bei der JURASSIC-Auswertung weiter zu erwarten, da ein konstanter Extinktionsverlauf für Aerosol angenommen wird (Abschnitt 4.4). Bei

CFC-12 sind entsprechende Abweichungen nicht festzustellen, da in der JURASSIC-Auswertung bereits auf HITRAN2k-Daten zurückgegriffen und ein Gradient im spektralen Extinktionsverlauf für Aerosol berücksichtigt wird.

Die Streuung der Retrievalergebnisse liegt vermutlich in Unterschieden der Eingangsdaten begründet. Die IMK-Auswertung baut auf near-real-time L1B-Daten auf, die JURASSIC-Auswertung auf den verbesserten, offline prozessierten L1B-Daten (Abschnitt 2.3). Ein Vergleich der Strahlungsdichten für die Spektralbereiche des CFC-11 Retrievals zeigt (Abb. 38, unten rechts), daß ein Großteil der Strahlungsdichten im Rahmen der offline-Prozessierung um etwa 1 % reduziert wurde. Da dies den Aerosol- und den CFC-11 Kanal gleichermaßen betrifft, ergibt sich nur eine geringe Auswirkung auf das CFC-11 Retrievalergebnis. Stärker betroffen sind die abgeleiteten Aerosol-Extinktionen. Gelegentlich auftretende, deutlich über 1 % hinausgehende Korrekturen der Strahlungsdichten erklären allerdings einen Teil der Streuung zwischen den JURASSIC- und IMK-Retrievalergebnissen. Weitere Unterschiede zwischen den Auswertungen bestehen in den verwendeten Atmosphärenparametern. Die JURASSIC-Auswertung beruht auf ESA L2-Daten. Bei der IMK-Auswertung werden alle Atmosphärenparameter eigenständig abgeleitet. Mit zu den wichtigsten Parametern zählt die Temperatur. Ein Vergleich von ESA- und IMK-Temperaturen [von Clarmann *et al.*, 2003b] zeigt lediglich einen geringen mittleren Offset von 0.3 K (Abb. 38, unten links), der nur geringen systematischen Abweichungen (wenige ppt) im Retrieval entspricht. Die große Streuung der Temperatur-Abweichungen (2–3 K) erklärt jedoch wesentlich die Streuung der Retrievalergebnisse.

5.2 Vergleich mit klimatologischen Daten

Für das Retrieval werden für CFC-11 und CFC-12 a priori Daten aus einer von Remedios [1999] zusammengestellte und auf das Jahr 2000 hin angepaßten Atmo-

sphärenklimatologie verwendet. Diese enthält Mittelwerte und Standardabweichungen für Druck, Temperatur und rund 40 Spurengase im Höhenbereich 0–120 km. Es wird zwischen fünf klimatologischen Fällen unterschieden (Tropen, mittlere Breiten bei Tag oder Nacht, polarer Sommer oder Winter). Die Klimatologie beruht auf Beobachtungsdaten, reanalysierten Daten und Modellergebnissen. An direkten Beobachtungen gehen die Messungen verschiedener Instrumente an Bord des Upper Atmosphere Research Satellite (UARS) [Reber *et al.*, 1993] ein. Insbesondere hat das Instrument CLAES (Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer) [Roche *et al.*, 1993] im Zeitraum 1991–1993 die globale Verteilung von CFC-11 und CFC-12 vermessen. Weiter sind ERA-15 Reanalysen des European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) berücksichtigt sowie bei einigen Gasen und atmosphärischen Regionen, die nur schlecht durch Beobachtungen abgedeckt sind, Daten der Atmosphärenmodelle SLIMCAT [Chipperfield, 1999] für die Stratosphäre und MOZART [Brasseur *et al.*, 1998] für die Troposphäre.

In Abbildung 39 sind mittlere CFC-11 Vertikalprofile aus Envisat MIPAS Messungen den klimatologischen Daten von Remedios [1999] gegenübergestellt. Für Envisat MIPAS sind nur die Höhenstufen dargestellt, bei denen mindestens 10 000 Vertikalprofile in die Mittelung eingegangen sind. Einzelmessungen mit einem a priori Anteil über 10 % wurden von der Auswertung ausgeschlossen. Dies betrifft die obersten Höhenstufen mit Mischungsverhältnissen unterhalb weniger ppt und entsprechend geringem Signal sowie alle Höhenstufen, bei denen, etwa aufgrund von Wolken, keine verwertbare Strahlungsmessung vorgelegen hat. Für die mittleren Profile ist durch die strenge Wahl des Grenzwertes nur ein geringer Bias in Richtung a priori zu erwarten (kleiner 0.5–1 % [Hoffmann *et al.*, 2005]). Beim direkten Vergleich der Envisat MIPAS Mittelwerte mit den klimatologischen Daten stimmen die Profilformen grundsätzlich recht gut überein. Es fallen allerdings auch signifikante Abweichungen auf. So liegen die abgeleiteten Mischungsverhältnisse in der

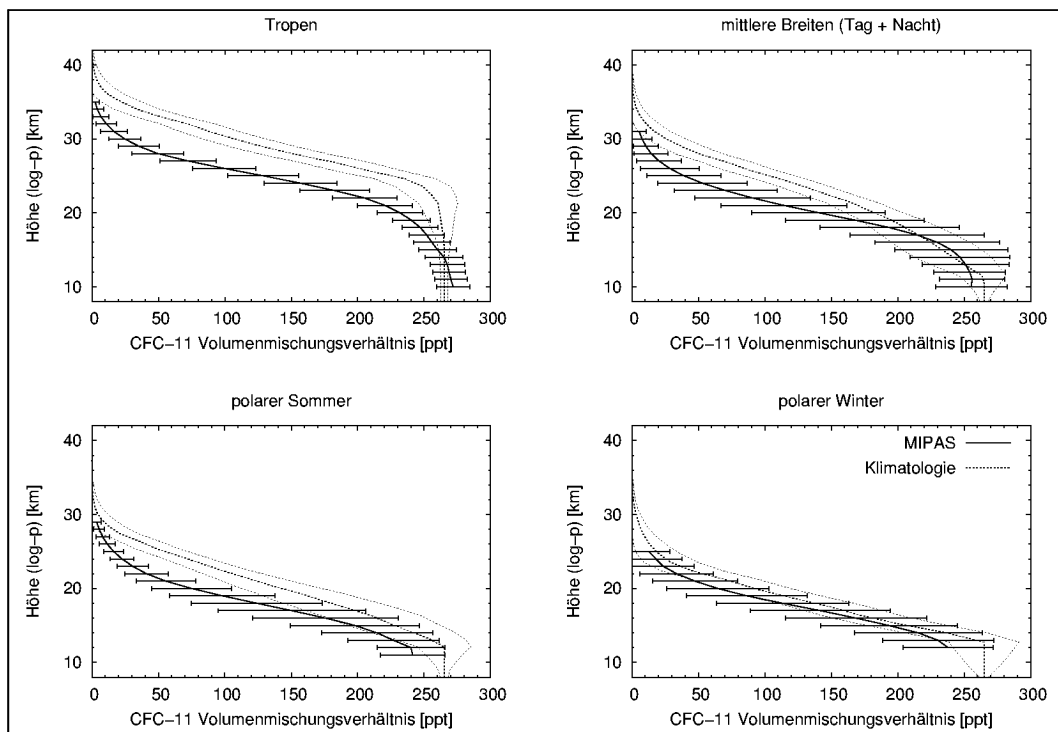


Abbildung 39: Vergleich von Envisat MIPAS CFC-11 Mittelwerten mit klimatologischen Daten. Die klimatologischen Daten wurden von Remedios [1999] im Hinblick auf die MIPAS Auswertung zusammengestellt. Fehlerbalken beziehungsweise gepunktete Linien geben jeweils die Standardabweichung an.

Stratosphäre teils deutlich unter den klimatologischen Angaben. Dies liegt jedoch an Unzulänglichkeiten der Klimatologie und nicht an den Envisat MIPAS Daten (Abschnitt 5.3). Die vergleichsweise großen Abweichungen zur Klimatologie werden im Retrievalprozeß nicht übermäßig stark gewichtet, da die klimatologischen Standardabweichungen gegenüber den in Abbildung 39 dargestellten Originaldaten um einen Faktor 3 vergrößert wurden (Abschnitt 4.5). Der Übergang in die Troposphäre vollzieht sich im Vergleich zur Klimatologie bei den Messungen weniger abrupt, d. h. über einen größeren Höhenbereich. Dies ist zum Teil durch die begrenzte räumliche Auflösung der Beobachtungen (3–5 km) verursacht. In den Tropen liegt der troposphärische Mittelwert um etwa 15 ppt (5 %) über dem globalen Mittelwert aus Bodenmessungen. Diese Abweichung liegt noch im Rahmen der systematischen Fehler. Bei mittleren Breiten ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung in der Tro-

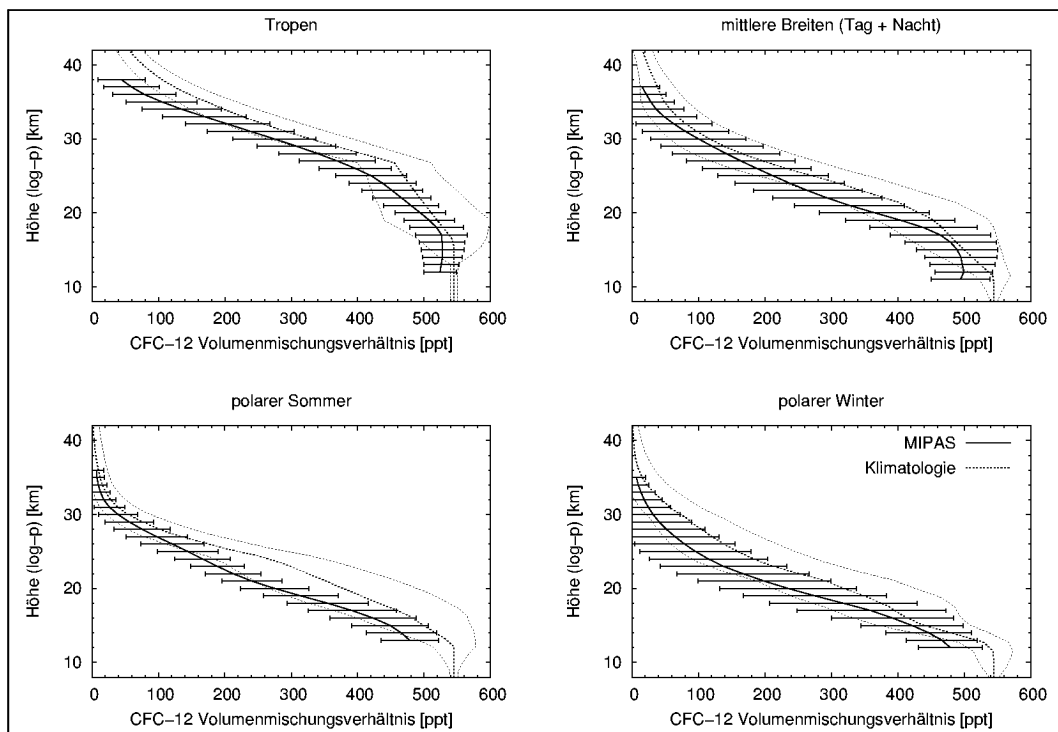


Abbildung 40: Vergleich von Envisat MIPAS CFC-12 Mittelwerten mit klimatologischen Daten (siehe auch Abb. 39).

posphäre. Die Abweichung beträgt hier nur 2 ppt (0.8%). Für die Polgebiete können keine Abweichungen ermittelt werden, da die Troposphäre durch die Auswertung nicht abgedeckt ist. Die abgeleiteten Standardabweichungen vergleichen sich in der Stratosphäre gut mit der Klimatologie. In der Troposphäre weisen die Meßresultate hingegen eine deutlich größere Variabilität auf. Ursache sind systematische Meßfehler, die im Gegensatz zum dominierenden Rauschfehler in größeren Höhen nicht oder nur zum Teil durch Mittelung der Daten reduziert werden können.

Abbildung 40 zeigt, daß auch im Fall von CFC-12 die abgeleiteten Mischungsverhältnisse eher unter den klimatologischen Angaben liegen. Die Abweichungen sind allerdings weniger deutlich ausgeprägt und befinden sich mehrheitlich im Bereich der klimatologischen Variabilität. Prinzipiell wären auch größere Abweichungen möglich, da wie bei CFC-11 die klimatologischen Standardabweichungen für das Retrieval auf 300 % skaliert wurden. Das troposphärische Mischungsverhältnis wird

in tropischen und mittleren Breiten um 21 ppt (4 %) respektive 50 ppt (9 %) unterschätzt. Die Standardabweichungen vergleichen sich wieder recht gut. Abgesehen von den troposphärischen Werten ist lediglich die vergleichsweise geringe Variabilität der Messungen im polaren Sommer in 20–25 km Höhe auffällig.

5.3 Vergleich mit unabhängigen Experimenten

In Abbildung 41 sind mittlere Vertikalprofile verschiedener Satellitenexperimente den Envisat MIPAS-Daten gegenüber gestellt. Verglichen wird mit Messungen der Experimente ATMOS (Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy) [Daten aus *Zander et al.*, 1992, sowie von <http://remus.jpl.nasa.gov/atmos>], CIRRIS-1A (Cryogenic Infrared Radiance Instrumentation for Shuttle) [Daten aus *Bingham et al.*, 1997] und CRISTA (Cryogenic Infrared Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere) [*Offermann et al.*, 1999; *Riese et al.*, 1999a; *Grossmann et al.*, 2002, Daten von <http://www.crista.uni-wuppertal.de>]. Im Allgemeinen ist eine gute Übereinstimmung zwischen den verschiedenen Experimenten festzustellen. Insbesondere bei CFC-11 ist der Verlauf der mittleren Profile nahezu identisch. Es tritt oft lediglich ein konstanter Offset auf. Dieser kann durch systematische Fehler bei der Messung und langfristige Trends verursacht sein. Trends werden in der hier durchgeführten Betrachtung nicht herauskorrigiert. Die CFC-11 und CFC-12 Einzelmessungen von ATMOS weisen eine recht hohe Absolutgenauigkeit auf (Fehler deutlich unter 5 % [*Gunson et al.*, 1996]). Die mittleren Profile zeigen allerdings eine größere Variabilität, da insgesamt nur wenige Messungen verfügbar sind. Die Mittelwerte sind stark vom konkreten Ort und Zeitpunkt der Einzelmessungen abhängig. Da nach dem Sonnenokkultationsverfahren gemessen wird, konzentrieren sich die Messungen auf bestimmte Breitenbänder. Bei den CRISTA-1 Messungen fällt bei CFC-11 und CFC-12 der etwas steilere Gradient in der Stratosphäre auf.

Die Datenauswertung ist bei CRISTA-1 (Messung im Jahr 1994) insbesondere für Höhen unterhalb 20 km durch einen hohen Aerosol-Strahlungsuntergrund infolge eines Ausbruchs des Vulkans Pinatubo im Jahr 1992 erschwert [*P. Preuße*, pers. Mtlg.]. Das CRISTA-2 Profil für CFC-11 (Messung im Jahr 1997) korrespondiert besser mit den übrigen Messungen und in seinem Verlauf sehr gut mit dem von Envisat MIPAS. Die ebenfalls in Abbildung 41 eingetragenen klimatologischen Daten von *Remedios* [1999] entsprechen im Fall von CFC-12 recht gut den verschiedenen Satellitenmessungen. Im Fall von CFC-11 sind jedoch deutlich zu hohe Werte (2–3 klimatologische Standardabweichungen) oberhalb von 20 km festzustellen. Ursache ist möglicherweise, daß die Klimatologie auf CLAES-Daten basiert. Diese Daten (Messungen in den Jahren 1991–1993) sind in einem noch stärkeren Maß als die CRISTA-1 Daten durch einen hohen Aerosol-Strahlungsuntergrund beeinflusst. Wie der direkte Vergleich zeigt, wirken sich Unzulänglichkeiten der Klimatologie offenbar gar nicht oder nur in geringem Umfang auf das Retrievalergebnis aus.

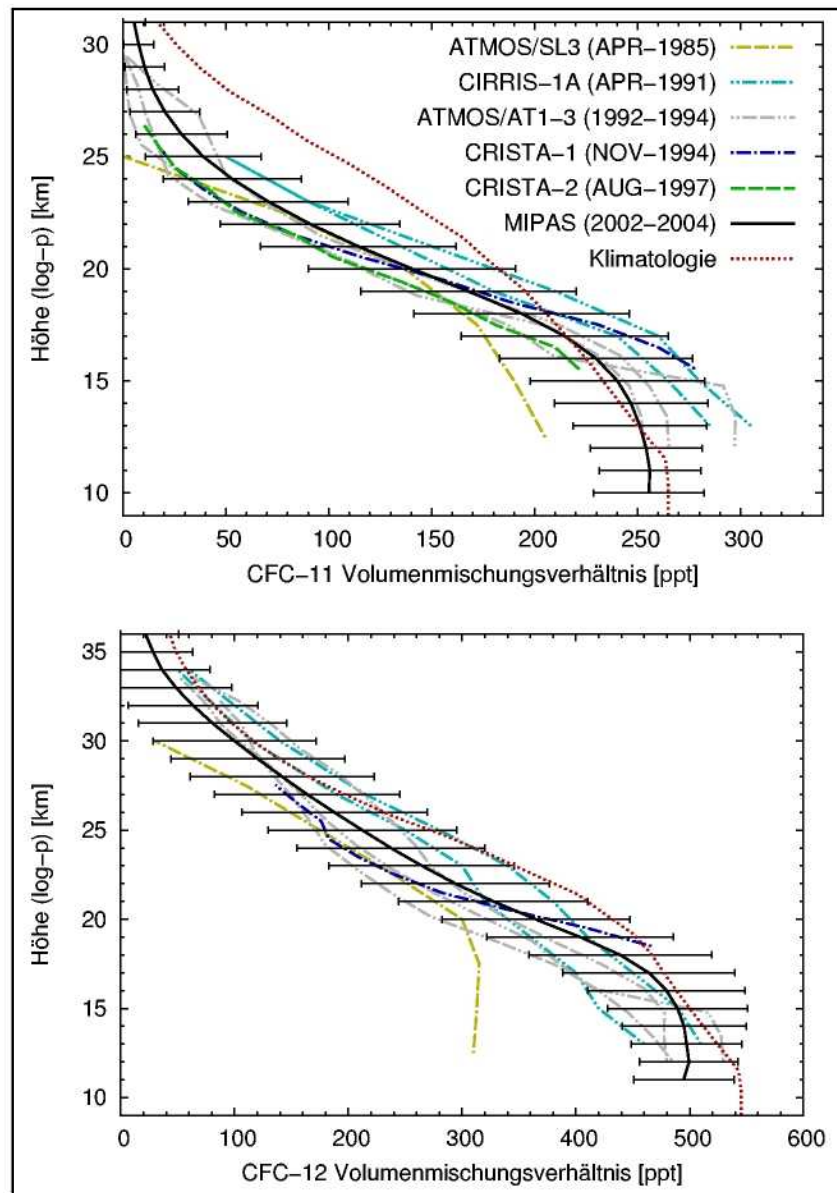


Abbildung 41: Vergleich mit verschiedenen Satellitenexperimenten. Berücksichtigt sind jeweils Messungen bei mittleren Breiten ($20^\circ - 65^\circ$ N/S). Trends wurden nicht herauskorrigiert. Referenzen zu den verschiedenen Instrumenten sind im Text aufgeführt.

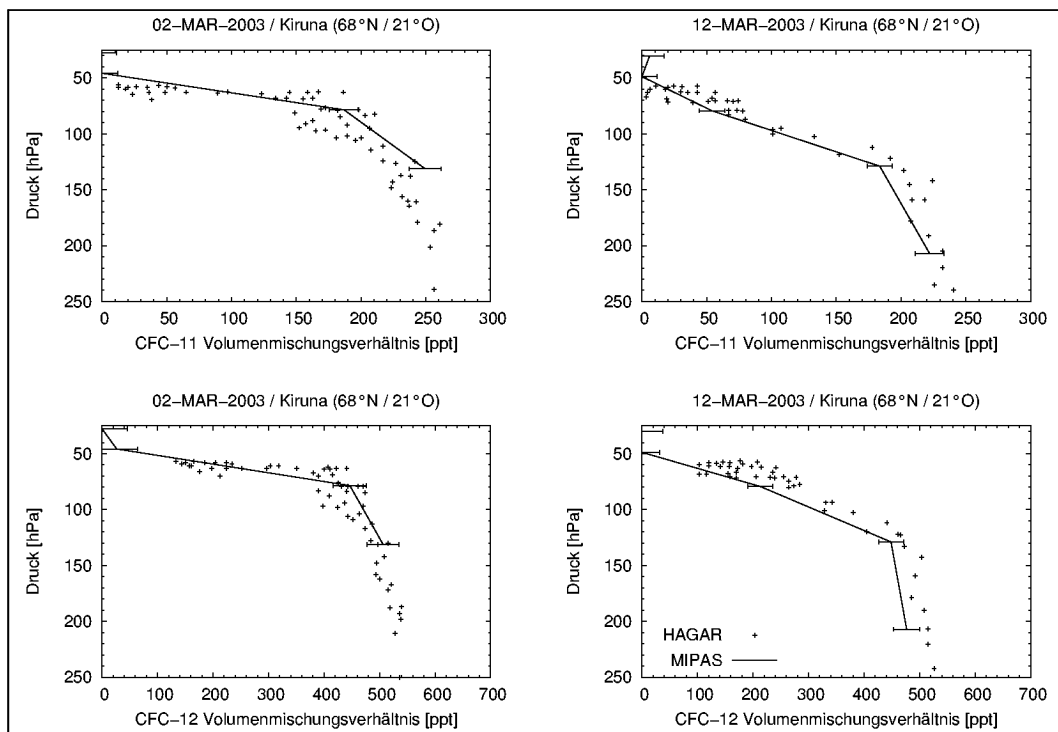


Abbildung 42: Vergleich mit HAGAR in situ Messungen. Dargestellt sind MIPAS-Daten und korrespondierende Meßresultate des Instruments HAGAR für zwei Validierungsflüge des Höhenforschungsflugzeug M-55 Geophysica in Nordschweden im März 2003.

Die im Rahmen der Arbeit abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Daten sind bisher lediglich in geringem Umfang mit Einzelmessungen aus unabhängigen Methoden verglichen worden. Exemplarisch sind in Abbildung 42 Vergleiche mit Messungen des Instruments HAGAR (High Altitude Gas Analyzer) [Riediger et al., 2000] an Bord des russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 Geophysica dargestellt. HAGAR vermisst Spurengaskonzentrationen unter Verwendung eines Gaschromatographen in situ mit einer Genauigkeit von 1 %. Die in Abbildung 42 gezeigten Messungen wurden im Rahmen einer Validierungskampagne für Envisat MIPAS im März 2003 bei Kiruna, Schweden (68°N, 21°O) durchgeführt [Baehr et al., 2004]. Die Flugplanung der Geophysica wurde bei dieser Kampagne speziell darauf ausgerichtet, daß Envisat MIPAS und die Validierungsexperimente dieselben Luftmassen vermessen. Bei den vier Einzelprofilen ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen HAGAR-Messungen und MIPAS-Daten.

5.4 Saisonale Variabilität

Aufgrund des eher moderaten räumlichen Auflösungsvermögens (etwa 1000 global verteilte Profile pro Tag mit 3 km vertikaler Abtastung) ist Envisat MIPAS vorwiegend zum Studium dynamischer Prozesse auf synoptischer oder planetarer Skala geeignet. Besonders interessant ist allerdings, daß von Juli 2002 bis März 2004 ein nahezu lückenlos durch Messungen abgedeckter Zeitraum vorliegt, der eine Betrachtung des saisonalen Verlaufs verschiedenster atmosphärischer Vorgänge ermöglicht. Voraussetzung ist jedoch, daß die Envisat MIPAS Messungen möglichst lückenlos ausgewertet werden, wie es bei der ESA-Prozessierung oder den hier mit JURASSIC durchgeführten Ableitungen für CFC-11 und CFC-12 der Fall ist. Dies bisher durchgeführten Validierungsmaßnahmen (Abschnitt 5.1 bis 5.3) legen nahe, daß die im Rahmen der Arbeit abgeleiteten Datensätze bereits für eine weitergehende wissenschaftliche Auswertung geeignet sind.

In Abbildung 43 und 44 sind zonale Mittelwerte und Standardabweichungen für CFC-11 und CFC-12 für die Zeiträume Dezember 2002 bis Februar 2003 und Juni bis August 2003 dargestellt. Die beobachteten Verteilungen sind prinzipiell wie folgt zu erklären: FCKWs wurden und werden am Erdboden in Folge verschiedenster anthropogener Aktivitäten freigesetzt. Sie sind in der Troposphäre chemisch äußerst stabil und gut durchmischt. Am Erdboden ist lediglich ein geringer Breitengang zu beobachten (im Ausmaß kleiner 5–10 %, siehe Abb. 37). In Abbildung 43 und 44 sind dementsprechend keine signifikanten Variationen im zonalen Mittel und bei den Standardabweichungen unterhalb der 240 ppt Konturlinie bei CFC-11 und 500 ppt Konturlinie bei CFC-12 festzustellen. Diese markieren jeweils in grober Näherung den Tropopausenverlauf. Spurengase passieren die Tropopause bevorzugt in tropischen Breiten. Durch die mittlere residuale Zirkulation werden sie aus der unteren tropischen Stratosphäre in größere Höhen und zu mittleren und hohen Brei-

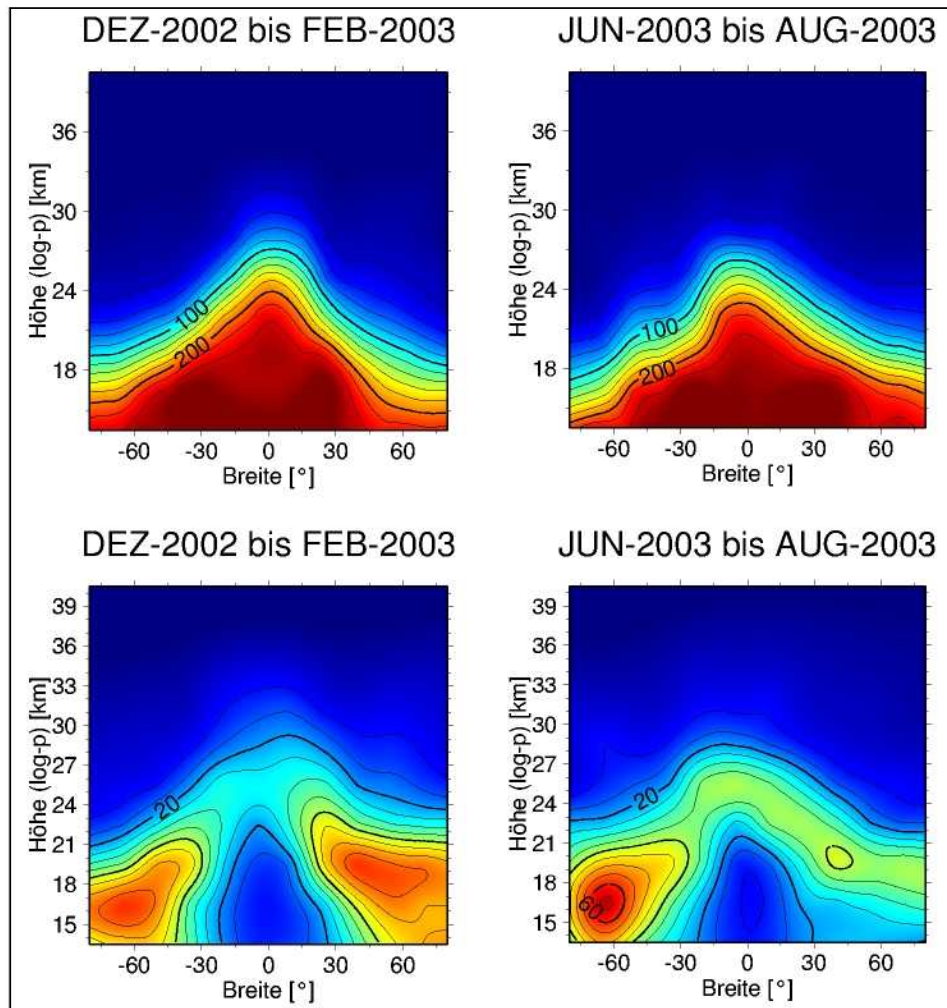


Abbildung 43: Zonale Mittel und Standardabweichungen für CFC-11. Die Beschriftung der Konturlinien weist ppt-Werte aus. Die Mittelung erfolgt bei den zonalen Mitteln (oben) mit einer Einteilung von $5^\circ \times 3 \text{ km}$, bei den Standardabweichungen (unten) mit $15^\circ \times 3 \text{ km}$. Einbezogen wurden jeweils rund 70 000 Vertikalprofile.

ten transportiert. Angetrieben wird die mittlere Zirkulation vorwiegend durch das Brechen planetarer Wellen [z. B. *Holton et al.*, 1995]. Die Tropen bilden eine recht gut abgeschlossene Region innerhalb der unteren und mittleren Stratosphäre, in der Aufwärtstransporte dominieren. Durchmischung an den Rändern der “tropical pipe” [*Plumb*, 1996] führt dazu, daß ursprünglich tropische Luftmassen auch in die mittleren Breiten gelangen können. In der unteren Stratosphäre (20–30 km) führt photolytische Zersetzung zum Abbau der FCKWs. CFC-12 (CCl_2F_2) weist weniger CCl-Bindungen auf als CFC-11 (CCl_3F). Es ist photolytisch stabiler und kann sich

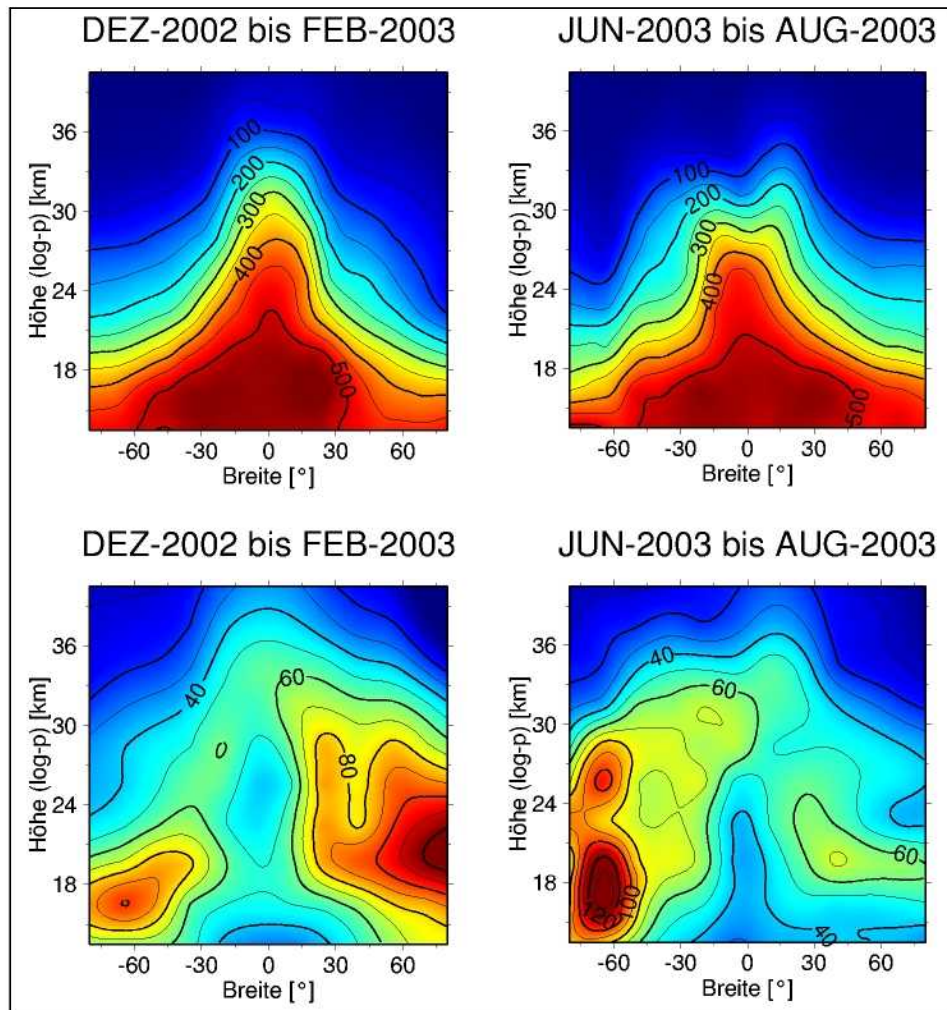


Abbildung 44: Zonale Mittel und Standardabweichungen für CFC-12 (vgl. Abb. 43).

höher in die Stratosphäre ausbreiten, was direkt aus dem Vergleich von Abbildung 43 und 44 ersichtlich ist. FCKW-ärmere Luftmassen werden durch die mittlere Zirkulation aus den mittleren Breiten in die Polarregionen getrieben, wo es insbesondere in den Wintermonaten zu einem starken Absinken von Luftmassen innerhalb des Polarwirbels kommt. Dies ist ebenfalls an den zonalen Mitteln abzulesen, bei denen die Konturlinien bei polaren Breiten in den Wintermonaten enger zusammenfallen und tiefer liegen als in den Sommermonaten. Neben der Advektion hat der großskalige isentrope Eddytransport, der mit dem Brechen planetarer Wellen einhergeht, einen wesentlichen Einfluß auf die beobachtete Spurengasverteilung. Tropen, mittlere Breiten und Polarregionen bilden jeweils separate atmosphärische Regime, die

durch Transportbarrieren voneinander getrennt sind [z.B. *Haynes und Shuckburgh*, 2000a,b]. In der Winterhemisphäre kommt es in mittleren Breiten verstärkt zum Auftreten und Brechen planetarer Wellen. *McIntyre und Palmer* [1983, 1984] bezeichnen diese Region als “surf-zone”. Während Advektion allgemein zu einem Anwachsen von Spurengasgradienten führt, wirkt turbulente Durchmischung diesem Vorgang entgegen. Deshalb ist in der Surf-Zone insbesondere im Südwinter ein deutliches Abflachen der Spurengasgradienten bei mittleren Breiten zu beobachten.

Wie bereits erwähnt sind CFC-11 und CFC-12 aufgrund der starken Gradienten im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre sehr gut geeignet, um Transportvorgänge sichtbar zu machen. Werden einzelne Luftmassen, etwa beim Auftreten oder Brechen einer planetaren Welle, hinreichend weit aus ihrer Ruhelage ausgelenkt, ist dies anhand erhöhter oder verminderter Mischungsverhältnisse gegenüber der Hintergrundatmosphäre deutlich auszumachen. War der zugrunde liegende Transportvorgang irreversibel, führt Durchmischung zumeist im Verlauf weniger Tage dazu, daß sich die unterschiedlichen Spurengaskonzentrationen aneinander angleichen. Die in Abbildung 43 und 44 dargestellten Standardabweichungen für CFC-11 und CFC-12 liefern demnach ein sehr einfaches Maß für die dynamische Aktivität in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Höhen-Breiten-Querschnitte der Standardabweichungen für CFC-11 und CFC-12 wurden bisher nur selten publiziert. Ein Beispiel bilden die CFC-11 Standardabweichungen für die CRISTA-2 Mission im August 1997 von *Kueller et al.* [2004]. Analog ermittelte Werte aus Envisat MIPAS Messungen im August 2003 finden sich in Abbildung 45. Der direkte Datenvergleich zeigt trotz der unterschiedlichen Zeiträume eine überraschend gute Übereinstimmung. Die geringste relative Variabilität findet sich im Bereich der Tropen um 18–20 km Höhe. Eine deutlich erhöhte Variabilität ist bei CRISTA wie Envisat MIPAS insbesondere in den südlichen mittleren Breiten sowie allgemein mit wachsender Höhe und zunehmender Breite zu beobachten. Neben CRISTA kann

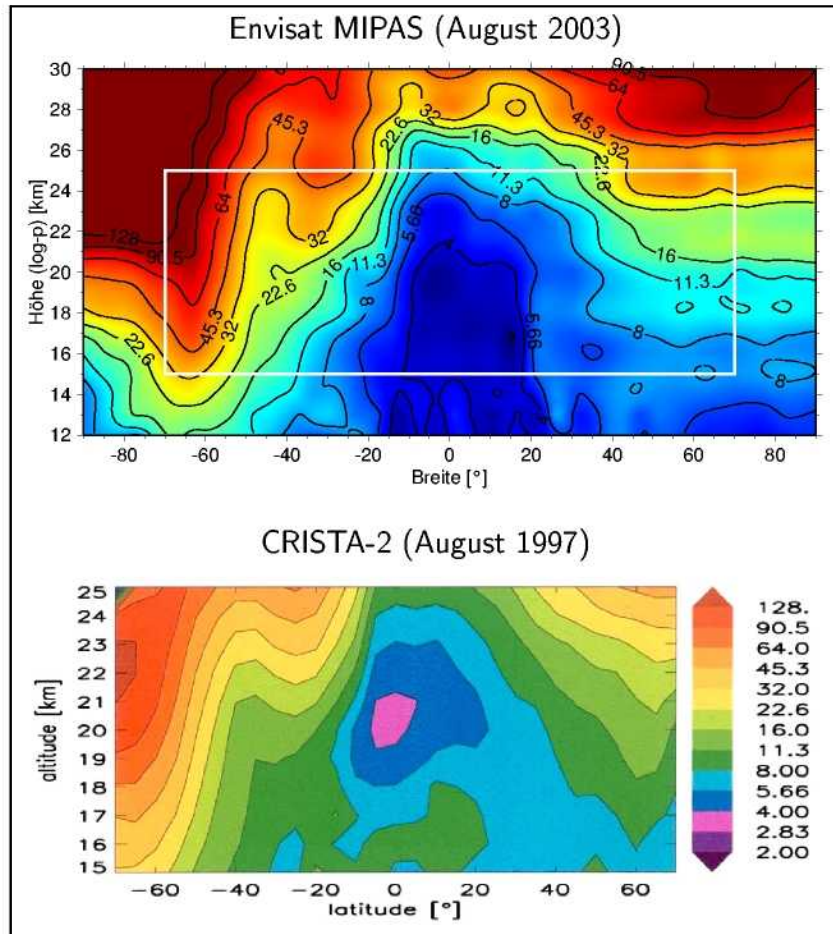


Abbildung 45: Vergleich relativer Standardabweichungen für CFC-11. Oben dargestellt sind aus Envisat MIPAS abgeleitete relative Standardabweichung für CFC-11 im August 2003. Die Konturlinien geben jeweils prozentual den Wert der Standardabweichung im Vergleich zum zonalen Mittel wieder. Der innerhalb des weißen Rahmens liegende Bereich ist direkt mit Abb. 5 aus Kuell et al. [2004] (unten dargestellt) zu vergleichen.

auch Envisat MIPAS die atmosphärische Variabilität auf synoptischer und planetarer Skala hinreichend gut erfassen. Zusätzlich liefern die hier abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Daten bessere Informationen über die jahreszeitliche Abhängigkeit.

In Abbildung 46 (oben) sind für CFC-11 Zeitreihen des zonalen Mittels und der Standardabweichung auf 20 km Höhe dargestellt. Diese Höhe ist für Transportstudien besonders geeignet, da CFC-11 hier die stärksten meridionalen Gradienten zeigt und die relative Meßgenauigkeit von Envisat MIPAS vergleichsweise hoch ist. Das zonale Mittel zeigt eine gewisse saisonale Abhängigkeit. Erhöhte CFC-11 Mischungs-

verhältnisse treten jeweils in der Sommerhemisphäre auf. Deutlicher ist die saisonale Abhängigkeit jedoch in der Variabilität festzustellen. Während in tropischen Breiten (je nach Jahreszeit bei $10^{\circ}\text{S} - 20^{\circ}\text{N}$ oder $20^{\circ}\text{S} - 10^{\circ}\text{N}$) die Standardabweichung meist unter $5 - 10$ ppt liegt, finden sich bei mittleren und hohen Breiten Werte bis über 50 ppt. In hohen Breiten sind nur kurze, $3 - 5$ Monate andauernde Phasen deutlich reduzierter Variabilität jeweils im Spätsommer und Frühherbst beobachtbar. Auf der Südhemisphäre konzentrieren sich die Bereiche höchster Variabilität auf etwa 60° . Auf der Nordhemisphäre ist eine solche Konzentrierung nicht festzustellen. Während sich im Südwinter in der Regel ein sehr stabiler Polarwirbel ausbildet, ist dies im Nordwinter durch orographisch angeregte Störungen nur vermindert möglich. In der Südhemisphäre führen kleine Verschiebungen oder leichte Dehnungen des Polarwirbels zum beobachteten Variabilitätsband. Auf der Nordhemisphäre wird der Polarwirbel komplexer verformt und die Polarregion ist weniger deutlich von den mittleren Breiten separiert. Die vermehrte Durchmischung FCKW-armer polarer Luftmassen mit mäßig bis stark mit FCKWs angereicherter Luft aus mittleren Breiten führt hier zur Verteilung der Variabilität über einen größeren Breitenbereich.

Die in Abbildung 46 dargestellte Variabilitätsverteilung ist zu einem erheblichen Grad durch die Aktivität planetarer Wellen verursacht. Um die Wellenaktivität genauer zu untersuchen, wird ein Kalman-Filter eingesetzt, der auf ein einfaches Wellenmodell aufbaut [Ern, 1993]. Für einen festen Zeitpunkt werden breitenabhängig (in 5° -Unterteilung) die Amplituden und Phasen planetarer Wellen unterschiedlicher Wellenzahlen abgeschätzt. Die Schätzung bezieht jeweils die global gemessenen CFC-11 Verteilungen bis sieben Tage vor oder nach dem betrachteten Zeitpunkt in die Analyse ein. Aufgrund der beschränkten räumlichen Auflösung der meisten Satellitenmessungen (bei Envisat MIPAS rund 29 Breitenüberquerungen pro Tag) sind die Schätzungen nur bis zur Wellenzahl $6 - 7$ verlässlich [P. Preuße, pers. Mtg.]. In Abbildung 46 (unten) sind Zeitreihen der Amplituden der planetaren Welle-1

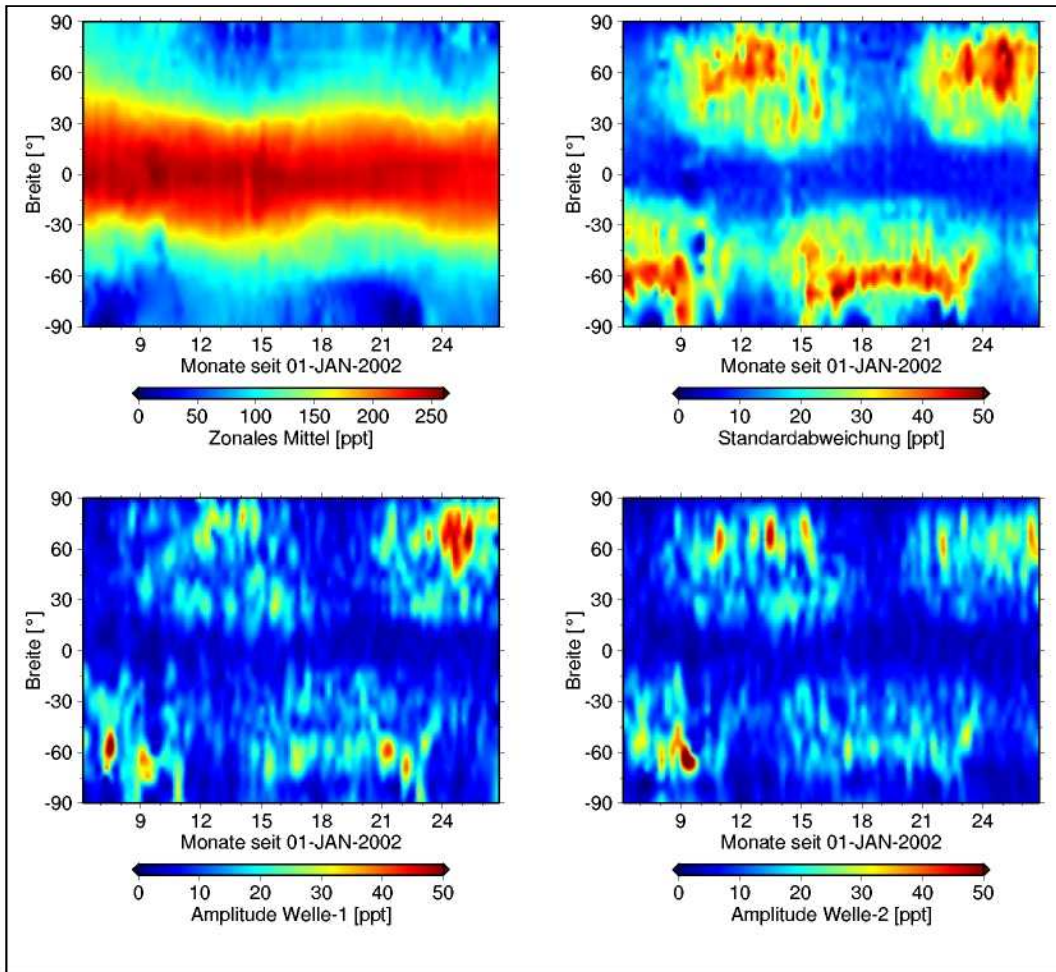


Abbildung 46: Kalman-Schätzung der Aktivität planetarer Wellen auf 20 km Höhe. Es wurde mit einem Boxmittel von 7 Tagen mal 5° geglättet. Die Daten für Oktober 2002 sind auf der Südhemisphäre mit Vorsicht zu behandeln, da hier teilweise sehr große Datenlücken vorliegen. Die Wellen-Amplituden sind möglicherweise überschätzt [M. Ern, pers. Mtlg.].

und Welle-2 dargestellt. Anschaulich entspricht eine große Amplitude der Welle-1 bei hohen Breiten einer Verschiebung des Polarwirbels vom Pol weg. Eine hohe Amplitude der Welle-2 zeigt eine Dehnung des Polarwirbels an. Höhere Wellenzahlen entsprechen komplizierteren Verformungen. Die zeitliche und räumliche Verteilung der Amplituden korreliert recht deutlich mit den direkt ermittelten Standardabweichungen. So sind insbesondere in den Amplituden der Welle-1 und Welle-2 Einzelereignisse auszumachen, die sich in gleicher Form in der Standardabweichung wiederfinden. Die Einzelereignisse treten meist in Zusammenhang mit einer ungewöhnlich starken Erwärmung der Stratosphäre auf (engl.: minor/major stratospheric war-

ming), bei der sich der Temperaturgradient zwischen mittleren und polaren Breiten abschwächt oder sogar umkehrt [z. B. *Labitzke und Naujokat*, 2000; *Naujokat und Grunow*, 2003; *Manney et al.*, 2005]. Mit diesem Vorgang geht eine starke Störung oder sogar ein Zusammenbruch des Polarwirbels einher. In der Nordhemisphäre ist dies nahezu regelmäßig in jedem Winter zu beobachten. In der Südhemisphäre ist ein Major Warming Event mit entsprechender Störung des Polarwirbels erstmals Ende September 2002 beobachtet worden (Abschnitt 5.5). Am auffälligsten ist die sehr hohe Aktivität der Welle-1 (Amplitude über 50 ppt) im Januar und Februar 2004 bei nördlichen polaren Breiten. Ebenfalls recht signifikante Welle-1 Ereignisse (Amplitude über 30 ppt) sind bei südpolaren Breiten im Juli, August und Oktober 2002, sowie im Oktober und November 2003 zu verzeichnen. Welle-2 Ereignisse treten aufgrund der weniger stabilen dynamischen Verhältnisse eher in der Nordhemisphäre auf. Wesentliche Ereignisse fanden hier im Dezember 2002, Februar, April und November 2003, sowie im Januar 2004 statt.

5.5 CLaMS Modellstudie

Neben der direkten Auswertung der aus Envisat MIPAS Messungen abgeleiteten globalen und saisonalen Verteilung von CFC-11 und CFC-12 wurde eine reine Simulation der Beobachtungen unter Verwendung des Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) [*McKenna et al.*, 2002a,b] durchgeführt. Die Simulation deckt den Zeitraum Juni 2002 bis März 2004 ab, für den nahezu kontinuierlich Vergleichsmessungen von Envisat MIPAS vorliegen. CLaMS wurde ursprünglich entwickelt, um Simulationen für saisonale Zeiträume auf jeweils einer Hemisphäre durchzuführen, etwa in Hinblick auf Studien des Ozonverlusts während eines polaren Winters und des anschließenden Frühjahrs [z. B. *Grooß et al.*, 2002]. Die Vorhersagekraft und Stabilität von CLaMS-Simulationen, insbesondere der darin modellierten

Transportvorgänge, wurde jedoch auch schon für längere Zeiträume und auf globaler Basis untersucht [*P. Konopka*, pers. Mtlg.]. Die im Rahmen der Arbeit abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Daten können zur Validierung und Verbesserung der Transportmodellierung im Bereich der unteren Stratosphäre und Tropopausenregion in CLaMS eingesetzt werden.

In CLaMS wird der Atmosphärenzustand durch ein großes Ensemble von Luftpaketen beschrieben (in der durchgeführten Simulation $\approx 600\,000$). Das Modell wird mit einer quasi äquidistanten Gleichverteilung der Luftpakete auf 33 isentropen Schichten im Bereich 300–2400 K (≈ 10 –55 km) initialisiert. Der mittlere horizontale Abstand der Luftpakete beträgt rund 200 km. Die anfänglichen Spurengaskonzentrationen für CFC-11 und CFC-12 sind einem 2D-Modell entnommen [*Grooß*, 1996]. Aus diesem Modell stammen auch die FCKW-Konzentrationen, die während der CLaMS-Simulation monatlich wechselnd als untere Randbedingung vorgegeben werden. Die FCKW-Konzentrationen am Oberrand werden stetig auf Null gesetzt. Für alle Luftpakete werden während des Modellaufs Trajektorien basierend auf ECMWF-Analysen berechnet. Die Berechnung des diabatischen Vertikaltransports erfolgt unter Rückgriff auf ein Strahlungsschema [*Mocrette*, 1991] basierend auf klimatologischen Ozon- und Wasserdampfdaten [*Grooß und Russell*, 2005]. Alle 24 h erfolgt eine Durchmischung der Luftpakete, bei der nahe benachbarte Luftpakete zusammengefaßt und, im Falle größerer Lücken im Modell, neue Luftpakete eingefügt werden. Die Stärke der Durchmischung ist einstellbar und den tatsächlichen atmosphärischen Verhältnissen bestmöglich angepaßt [z. B. *Konopka et al.*, 2005]. Im Hinblick auf die Rechenzeit wird das Modell für die in dieser Arbeit verwendete Simulation nicht mit einem vollständigen chemischen Schema betrieben. Es wird lediglich die photolytische Zersetzung von CFC-11 und CFC-12 in der

Stratosphäre berechnet [z. B. *Brasseur et al.*, 1999]:



FCKWs werden auch durch Reaktion mit angeregtem atomarem Sauerstoff $\text{O}(^1\text{D})$ abgebaut, der in der Stratosphäre bei der Photolyse von Ozon entsteht. Dieser Mechanismus verursacht 30 % des Gesamtverlusts bei CFC-12 und 1 % bei CFC-11 [*Brasseur et al.*, 1999]. Der Anteil ist für CFC-12 höher, da dieses Molekül photochemisch stabiler ist und sich in größere stratosphärische Höhen mit höheren $\text{O}(^1\text{D})$ -Konzentrationen ausbreiten kann. Der FCKW-Abbau durch atomaren Sauerstoff ist in der CLaMS-Simulation nicht berücksichtigt. Auch mit dem reduzierten chemischen Schema ist die globale CLaMS-Simulation für den MIPAS-Zeitraum vergleichsweise rechenaufwendig (mehrere Wochen auf einem konventionellen PC).

Die in Abbildung 47 dargestellte Korrelationsanalyse basierend auf CFC-11 Monatsmitteln aus der CLaMS-Simulation und Envisat MIPAS Messungen zeigt eine Überschätzung der stratosphärischen Mischungsverhältnisse um 30–50 ppt in der Modellsimulation. Die tatsächliche Überschätzung gegenüber den atmosphärischen Werten ist eher noch größer, da die gemessenen Mischungsverhältnisse vermutlich selbst noch um 10–20 ppt überschätzt sind (siehe Abschnitt 5.2). Die troposphärischen Mischungsverhältnisse sind im Modell um 20–30 ppt unterschätzt. Über den hier untersuchten Zeitraum von 21 Monaten ist keine wesentliche Änderung in der Systematik der Abweichungen erkennbar. Die Abweichungen liegen in einer den Messungen nicht angepaßten Initialisierung des Modells begründet. Das Altersspektrum stratosphärischer Luftmassen kann signifikant meist erst über Zeitskalen in der Größenordnung mehrerer Jahre oder Jahrzehnte variiert werden [z. B. *Waugh und Hall*, 2002]. Die Folgen einer unpassenden Initialisierung können, selbst wenn

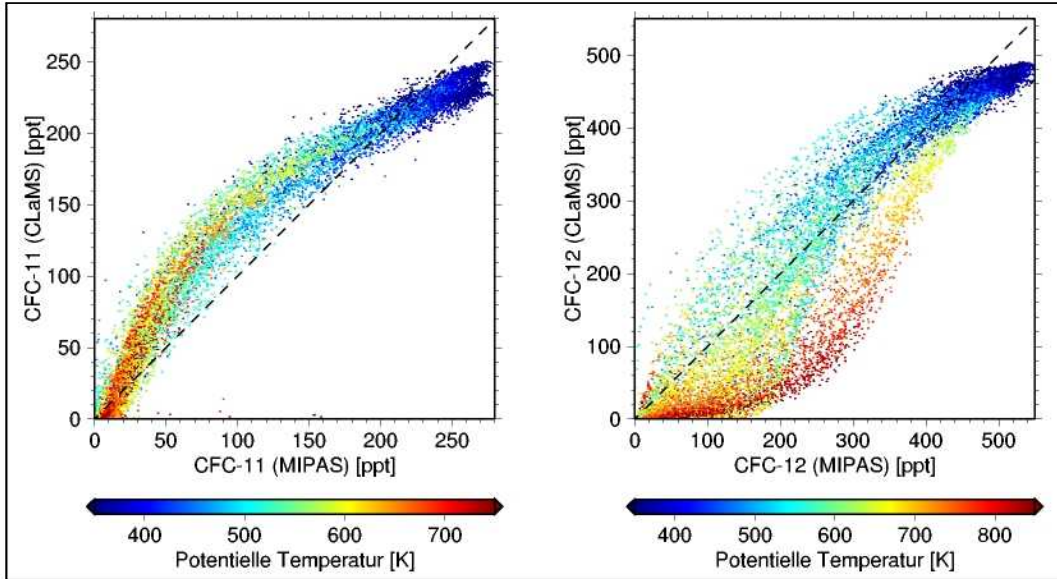


Abbildung 47: Korrelationsanalyse zwischen Envisat MIPAS Messungen und einer CLaMS-Simulation. Gegeneinander aufgetragen sind jeweils die zonalen Monatsmittel von CFC-11 und CFC-12 aus Messung und Simulation. Gemittelt wird basierend auf einer Boxeinteilung von 5° (geographische Breite) und 50 K (potentielle Temperatur).

die Dynamik durch ECMWF-Daten vorgegeben und damit den realen Verhältnissen angepaßt ist, im hier betrachteten, vergleichsweise kurzen Zeitraum im Altersspektrum nicht kompensiert werden. Bei CFC-12 zeigt die Korrelationsanalyse im Vergleich zu CFC-11 eine deutlich größere Streuung. Da auch hier keine starke zeitliche Abhängigkeit in der Systematik der Abweichungen festgestellt werden konnte, ist zu vermuten, daß die Abweichungen wieder wesentlich durch die Initialisierung beeinflusst sind. Im Unterschied zu CFC-11 besteht bei CFC-12 eine relativ stark ausgeprägte Breitenabhängigkeit in den Abweichungen. Insbesondere die stratosphärischen Mischungsverhältnisse in den Tropen sind im Modell stark unterschätzt (100–200 ppt). Diese bilden fast ausschließlich den Zweig hoher potentieller Temperaturen im CFC-12 Korrelationsdiagramm. Bei mittleren und polaren Breiten fallen die Abweichungen etwas moderater aus.

Trotz der beschriebenen systematischen Abweichungen können die Ergebnisse der CLaMS-Simulation zumindest für qualitative Vergleiche mit Envisat MIPAS

Daten herangezogen werden. Um zukünftig auch quantitative Vergleiche durchführen zu können, ist derzeit ein Modul in Entwicklung, mit dem CLaMS zum Kalman-Filter erweitert wird. Das Modell kann dann zu Beginn oder kontinuierlich während der Simulation mit Meßdaten abgeglichen werden. Die Diagnosen des Kalman-Filters liefern genauere Aussagen über die Qualität der Modellvorhersagen und die interne Konsistenz der eingesetzten Meßdaten.

Die CLaMS Simulationsergebnisse sind aufgrund ihrer hohen räumlichen Auflösung hilfreich bei der Interpretation der MIPAS Satellitendaten, die nur in vergleichsweise moderater Auflösung vorliegen. Exemplarisch wurden für einen qualitativen Vergleich Envisat MIPAS Messungen und CLaMS Modellergebnisse für CFC-11 während des antarktischen Major-Warming Events im September 2002 in Abbildung 48 und 49 zusammengestellt. Der Polarwirbel ist in den Karten an sehr niedrigen CFC-11 und CFC-12 Mischungsverhältnissen auszumachen. Diese ergeben sich infolge des großskaligen Abwärtstransports FCKW-armer Luftmassen während der Wintermonate. Eine deutliche Dehnung des Polarwirbels spricht für eine hohe Aktivität der planetaren Welle-2. Im Verlauf der hier betrachteten Periode von neun Tagen erfährt der gedehnte Vortex eine Rotation um knapp 90° mit dem zonalen Grundstrom. Der direkte Vergleich zeigt, daß Struktur und Lage des Polarwirbels in Messungen und Modell sehr gut übereinstimmen. Insbesondere die Ausbildung der zwei nahezu separierten Teilwirbel in der Zeitperiode 23.–27. September ist in Messungen und Modell deutlich zu erkennen.

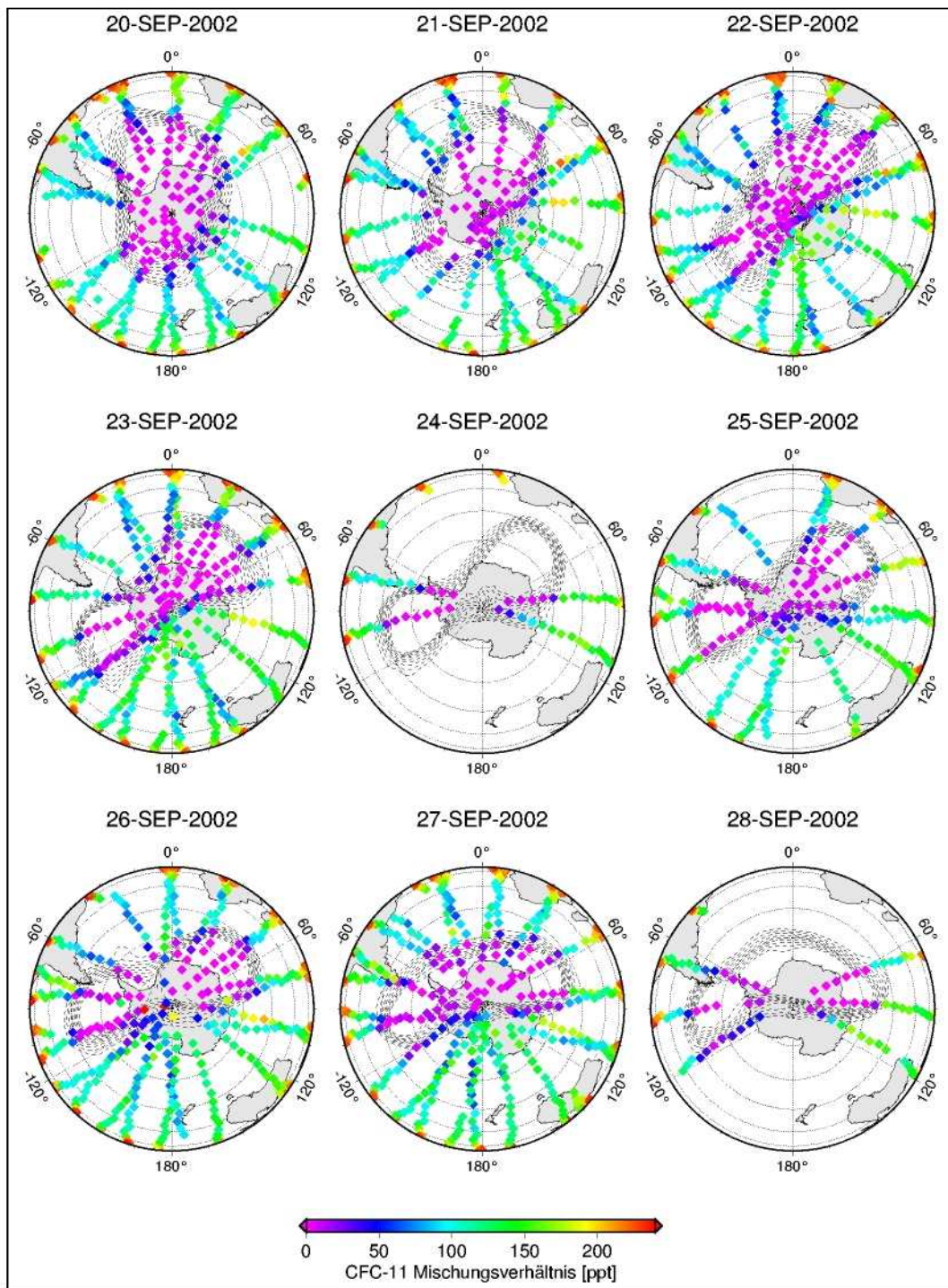


Abbildung 48: Gemessene CFC-11 Verteilungen während des antarktischen Major-Warming Events im September 2002. Die Meßdaten wurden auf die 500 K isentrope Fläche interpoliert. Gestrichelte Konturlinien geben Werte der Potentiellen Vorticity von -30 PVU bis -70 PVU an und markieren den Rand des Polarwirbels.

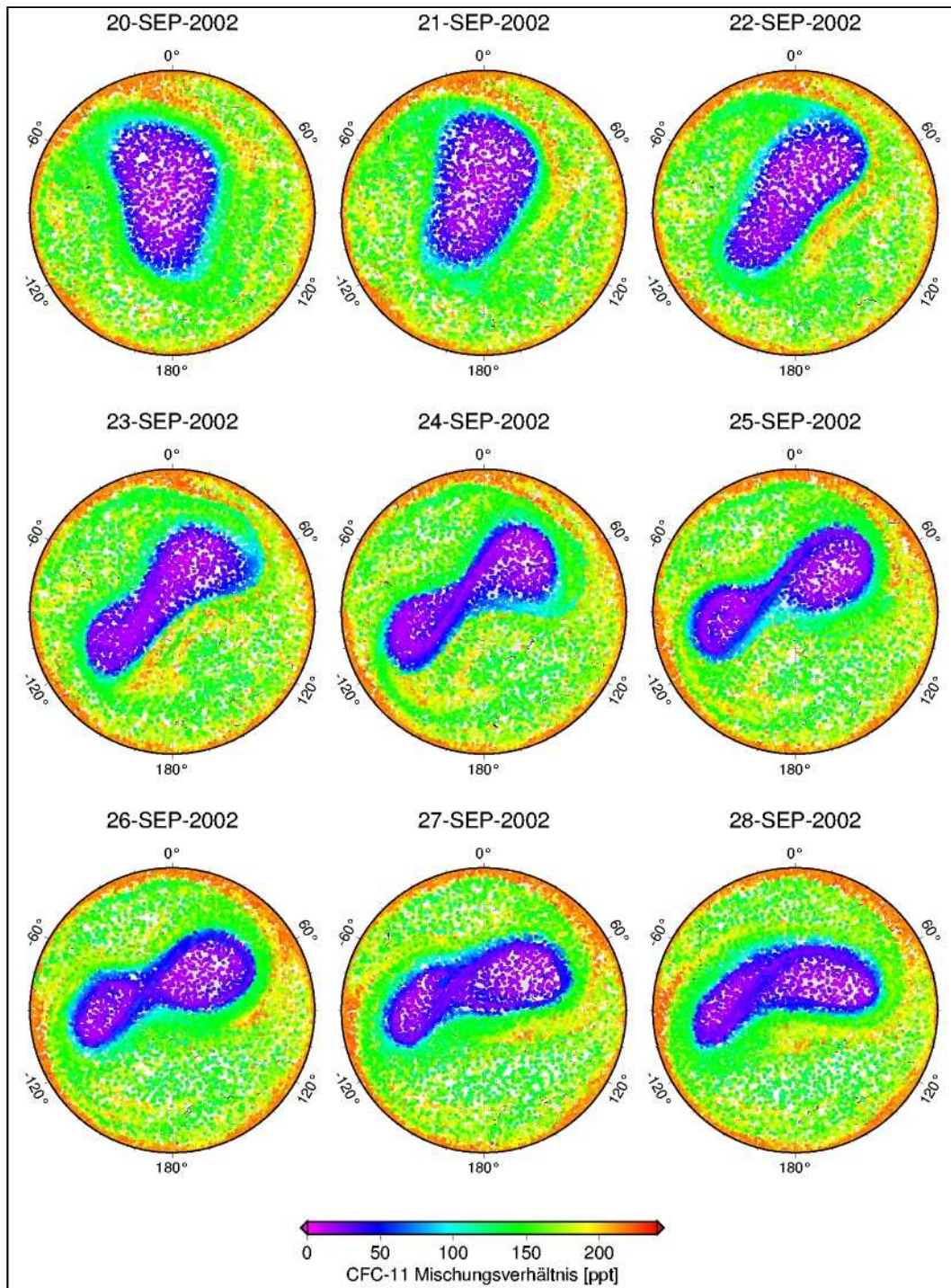


Abbildung 49: Simulierte CFC-11 Verteilungen während des antarktischen Major-Warming Events im September 2002. Die Einzelpunkte entsprechen Luftpaketen aus der CLaMS-Simulation mit potentiellen Temperaturen im Bereich 500 ± 20 K.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Vorwärtsmodell JURASSIC zur Simulation von Fernerkundungsmessungen im mittleren Infrarot entwickelt. Durch Verwendung der EGA-Methode können Vorwärtsrechnungen mit JURASSIC besonders schnell und ohne wesentliche Genauigkeitsverluste ausgeführt werden. Die Vorwärtsrechnungen wurden im Rahmen mehrerer Parameterstudien speziell für die $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande von CFC-11 optimiert. Viele Ergebnisse sind jedoch auch allgemein gültig und können auf andere Fälle übertragen werden. JURASSIC ist flexibel aufgebaut, so daß nahezu beliebige Eingangsdaten verarbeitet werden können. Mögliche Eingangsdaten sind etwa im Rahmen des konventionellen Satellitenretrievals einzelne Vertikalprofile oder bei Studien zum Strahlungstransport irregulär verteilte, mit hoher räumlicher Auflösung vorgegebene Datenpunkte. Auch bezüglich der Meßgeometrie bestehen bei JURASSIC keine Einschränkungen.

Basierend auf JURASSIC wurde ein Retrievalsystem zur Ableitung von Atmosphärendaten wie Druck, Temperatur, Spurengaskonzentrationen und Aerosol-Extinktionskoeffizienten aus entsprechenden Strahlungsmessungen entworfen. Das Umkehrproblem wird durch den Optimal-Estimation Ansatz gelöst. Die zugrundeliegende Theorie wird hier speziell am Beispiel der Ableitung von CFC-11 aus Strahlungsmessungen im Bereich der $11.8\,\mu\text{m}$ -Bande diskutiert. Im Rahmen von zwei Fallstudien wird untersucht, wie sich Korrelationen der Eingangsfehler auf die Abschätzung des Retrievalfehlers auswirken und wie die Wahl der a priori Daten die Retrievalergebnisse beeinflusst. Es wird eine Methode vorgeschlagen, mit der, basierend auf Analysen des Shannon Informationsgehalt, die Retrievalergebnisse optimiert werden können. Weiterhin wird diskutiert, wie das Retrievalsystem und die damit abgeleiteten Ergebnisse über End-to-end Tests und line-by-line Vergleiche überprüft werden können. Ein Retrievalexperiment für GLORIA zeigt, daß das

auf JURASSIC aufbauende Retrievalsystem prinzipiell auch für tomographische 2D-Retrieval und somit für die Auswertung zukünftiger, komplexer aufgebauter Satellitenexperimente geeignet ist.

Das auf JURASSIC aufbauende Retrievalsystem wurde eingesetzt, um die globale Verteilung der Fluorchlorkohlenwasserstoffe CFC-11 und CFC-12 aus Envisat MIPAS Messungen für den Zeitraum Juli 2002 bis März 2004 vollständig abzuleiten. Wesentliche Schritte in der Vorbereitung der MIPAS-Daten für das Retrieval sind die Apodisierung der Spektren und die Wolkenfilterung, wie im zweiten Kapitel der Arbeit dargestellt. Die abgeleiteten Datensätze wurden erfolgreich anhand externer Retrieval und unabhängiger Messungen validiert und sind für die wissenschaftliche Auswertung geeignet. Die abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Verteilungen können insbesondere Informationen über den saisonalen Verlauf von Transportvorgängen auf synoptischer oder planetarer Skala im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre liefern. Die abgeleiteten Verteilungen wurden hier eingesetzt, um mittels eines auf einem Wellenmodell basierenden Kalman-Filters die Aktivität planetarer Wellen während des MIPAS Meßzeitraums zu bestimmen. Auch Einzelereignisse, wie etwa das antarktische Major Warming Event im September 2002, können anhand der Daten genauer untersucht werden. Die abgeleiteten CFC-11 und CFC-12 Daten wurden mit einer Simulation des Atmosphärenmodells CLaMS verglichen. Die Meßdaten sind hier von großem Nutzen für die Validierung und Verbesserung der Modellierung von Transportprozessen.

Das vorgestellte Gesamtsystem ist nun soweit ausgereift, daß mit relativ wenig Aufwand zahlreiche weitere Spurengase aus Envisat MIPAS Messungen abgeleitet werden können. Da die Strahlungsmessungen von MIPAS nur einen sehr geringen instrumentellen Untergrund aufweisen, sind mit gewissen Aufwand außerdem verlässliche Informationen über Art und Verteilung atmosphärischer Aerosol-

le abzuleiten. Schließlich wird es eine interessante Aufgabe sein, JURASSIC bei der Auswertung der Messungen des flugzeuggetragenen Fernerkundungsexperiment CRISTA-NF des Forschungszentrum Jülich und der Universität Wuppertal mit seiner komplizierteren Meßgeometrie einzusetzen.

Danksagung

Mein herzlicher Dank gilt Prof. Dr. Martin Riese für die Ermöglichung und Betreuung der vorliegenden Doktorarbeit. Allen Mitarbeitern des Instituts für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG-I) des Forschungszentrums Jülich danke ich ebenso herzlich für Ihre Hilfsbereitschaft und Unterstützung.

Mein Dank gilt weiter der europäischen Weltraumorganisation ESA für die Bereitstellung von Envisat MIPAS-Daten (CAT-1 Projekt 2515, Informationen unter <http://eopi.esa.int/>), Dr. Anu Dudhia, Universität Oxford, für die Bereitstellung des MIPAS Reference Forward Model, Dr. Thomas von Clarmann, Forschungszentrum Karlsruhe, für den Zugang zu dort abgeleiteten MIPAS L2-Daten und Dr. Michael Volk, Universität Frankfurt, für die Bereitstellung von HAGAR-Daten.

Schließlich danke ich meinen Eltern, daß sie mich bei meiner Ausbildung und darüber hinaus immer unterstützt haben.

Lars Hoffmann, Dezember 2005

Literatur

- Adrian, G. P., M. Baumann, T. Blumenstock, H. Fischer, A. Friedle, L. Gerhardt, G. Mau-
cher, H. Oelhaf, W. Scheuerpflug, P. Thomas, O. Trieschmann und A. Wegner, First
results of ground-based FTIR measurements of atmospheric trace gases in north Sweden
and Greenland during EASOE, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1343–1346, 1994.
- Adrian, G. P., T. Blumenstock, H. Fischer, L. Gerhardt, T. Gulde, H. Oelhaf, P. Tho-
mas und O. Trieschmann, Column amounts of trace gases derived from ground-based
measurements with MIPAS during CHEOPS III, *Geophys. Res. Lett.*, 18, 783–786,
1991.
- Alpers, M., R. Eixmann, C. Fricke-Begemann, M. Gerding und J. Höffner, Temperature
lidar measurements from 1 to 105 km altitude using resonance, Rayleigh, and Rotational
Raman scattering, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 923–938, 2004.
- Baehr, J., C. M. Volk, E. Ivanova, A. Werner, T. Wetter, A. Engel, H.-P. Haase, T. Möbius,
U. Schmidt, G. Stiller, T. von Clarmann, N. Glatthor, S. Kellmann, K. Grunow und
I. Levin, Validation of MIPAS-Envisat CH₄, N₂O, CFC-11 and CFC-12 by airborne
in situ observations, in *Proc. of the 2004 Envisat & ERS Symposium*, ESA SP-572,
Salzburg, Austria, 2004.
- Beer, R., *Remote Sensing by Fourier Transform Spectrometry*, Wiley-Interscience, 1992.
- Bingham, G. E., D. K. Zhou, B. Y. Bartschi, G. P. Anderson, D. R. Smith, J. H. Chetwynd
und R. M. Nadile, Cryogenic Infrared Radiance Instrumentation for Shuttle (CIRRIS
1A) Earth limb spectral measurements, calibration, and atmospheric O₃, HNO₃, CFC-
12, and CFC-11 profile retrieval, *J. Geophys. Res.*, 102, 3547–3558, 1997.
- Birk, M. und G. Wagner, Radiometric Accuracy Assessment of MIPAS on Envisat, in *Pro-
ceedings of the Envisat Calibration Review*, SP-520, ESA Publications Division, ESTEC,
Keplerlaan 1, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2002.

- Blake, N. J., D. R. Blake, I. J. Simpson, J. P. Lopez, N. A. C. Johnston, A. L. Swanson, A. S. Katzenstein, S. Meinardi, B. C. Sieve, J. J. Colman, E. Atlas, F. Flocke, S. A. Vay, M. A. Avery und F. S. Rowland, Large-scale latitudinal and vertical distributions of NMHCs and selected halocarbons in the troposphere over the Pacific Ocean during the March-April 1999 Pacific Exploratory Mission (PEM-Tropics B), *J. Geophys. Res.*, 106, 32627–32644, 2001.
- Block, L. C. und A. S. Zachor, Inflight satellite measurements of infrared spectral radiance of the earth, *Appl. Optics*, 3, 209–214, 1964.
- Blom, C. E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde und M. Höpfner, Airborne measurements during the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment: column amount of HNO_3 and O_3 derived from FTIR emission sounding, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1351–1354, 1994.
- Born, M. und E. Wolf, *Principles of Optics*, Cambridge University Press, 1999.
- Bovensmann, H., J. P. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. Noël, V. V. Rozanov, K. V. Chance und A. P. H. Goede, SCIAMACHY: Mission Objectives and Measurement Modes, *J. Atmos. Sci.*, 56, 127–150, 1999.
- Brasseur, G. P., D. A. Hauglustaine, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, C. Granier und X. X. Tie, MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 1, Model description, *J. Geophys. Res.*, 103, 28265–28289, 1998.
- Brasseur, G. P., J. J. Orlando und G. S. Tyndall, Herausgeber, *Atmospheric Chemistry and Global Change*, Oxford University Press, 1999.
- Burgess, A. und H. Nett, Spectral Characterization and Calibration of MIPAS, in *Proceedings of the Envisat Calibration Review*, SP-520, ESA Publications Division, ESTEC, Keplerlaan 1, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2002.
- Carli, B., D. Alpaslan, M. Carlotti, E. Castelli, S. Ceccherini, B. M. Dinelli, A. Dudhia, J. M. Flaud, M. Höpfner, V. Jay, L. Magnani, H. Oelhaf, V. Payne, C. Piccolo,

- M. Prosperi, P. Raspollini, J. Remedios, M. Ridolfi und R. Spang, First results of MIPAS/ENVISAT with operational Level 2 code, *Adv. Space Res.*, 33, 1012–1019, 2004.
- Carli, B., E. Battistini, M. Carlotti, T. von Clarmann, B. M. Dinelli, A. Dudhia, G. Echle, J.-M. Flaud, A. Gignoli, M. Höpfner, E. Lunedei, F. Mencaraglia, P. E. Morris, P. Raspollini, M. Ridolfi, G. Stiller, A. Vigiani und R. J. Wells, MIPAS Level 2 Algorithm, in *Proceedings of ESAMS '99 - European Symposium on Atmospheric Measurements from Space*, Seiten 65–76, 1999.
- Carlotti, M., Global-fit approach to the analysis of limb-scanning atmospheric measurements, *Appl. Optics*, 27, 3250–3254, 1988.
- Carlotti, M., B. M. Dinelli, P. Raspollini und M. Ridolfi, Geo-fit approach to the analysis of limb-scanning satellite measurements, *Appl. Optics*, 40, 1872–1885, 2001a.
- Carlotti, M., M. Höpfner, P. Raspollini und M. Ridolfi, MIPAS Level 2 Algorithm Theoretical Baseline Document, Technischer Bericht TN-IROE-RSA9601, Istituto di Ricerca sulle Onde Elettromagnetiche Nello Carrara (IROE), Firenze, Italy, 2001b.
- Cerny, V., Thermodynamical Approach to the Traveling Salesman Problem: An Efficient Simulation Algorithm, *J. Opt. Theory Appl.*, 45, 41–51, 1985.
- Chandrasekhar, S., *Radiative Transfer*, Dover, 1960.
- Chipperfield, M. P., Multiannual Simulations with a Three-Dimensional Chemical Transport Model, *J. Geophys. Res.*, 104, 1781–1805, 1999.
- Christidis, N., M. D. Hurley, S. Pinnock, K. P. Shine und T. J. Wallington, Radiative forcing of climate change by CFC-11 and possible CFC replacements, *J. Geophys. Res.*, 102, 19597–19609, 1997.
- Ciddor, P. E., Refractive index of air: new equations for the visible and near infrared, *Appl. Optics*, 35, 1566–1573, 1996.

- Coheur, P. F., C. Clerbaux und R. Colin, Spectroscopic measurements of halocarbons and hydrohalocarbons by satellite-borne remote sensors, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002649, 2003.
- Dinelli, B., D. Alpaslan, M. Carlotti, L. Magnani und M. Ridolfi, Multi-target retrieval (MTR): the simultaneous retrieval of pressure, temperature and volume mixing ratio profiles from limb-scanning atmospheric measurements, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 84, 141–157, 2004.
- Drayson, S. R., Atmospheric Transmission in the CO₂ Bands Between 12 μ and 18 μ , *Appl. Optics*, 5, 385–392, 1966.
- Dubock, P. A., F. Spoto, J. Simpson, D. Spencer, E. Schutte und H. Sontag, The Envisat Satellite and Its Integration, *ESA Bull.*, 106, 26–45, 2001.
- Dudhia, A., MIPAS Predicted Retrieval Accuracy, Technischer Bericht PO-TN-OXF-GS-0018, AOPP, Oxford University, 2001, <http://www.atm.ox.ac.uk/group/mipas/err>.
- Dudhia, A., *RFM Software User's Manual*, Department of Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics, University of Oxford, United Kingdom, 2004, <http://www.atm.ox.ac.uk/rfm>.
- Dudhia, A., V. L. Jay und C. D. Rodgers, Microwindow selection for high-spectral-resolution sounders, *Appl. Optics*, 41, 3665–3673, 2002.
- Elkins, J. W., D. W. Fahey, J. M. Gilligan, G. S. Dutton, T. J. Baring, C. M. Volk, R. E. Dunn, R. C. Myers, S. A. Montzka, P. R. Wamsley, A. H. Hayden, J. H. Butler, T. M. Thompson, T. H. Swanson, E. J. Dlugokencky, P. C. Novelli, D. F. Hurst, J. M. Lobert, S. J. Ciciora, R. J. McvLaughlin, T. L. Thompson, R. H. Winkler, P. J. Fraser, L. P. Steele und M. P. Lucarelli, Airborne gas chromatograph for in situ measurements of long-lived species in the upper troposphere and lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 347–350, 1996.

- Elkins, J. W., T. M. Thompson, T. H. Swanson, J. H. Butler, B. D. Hall, S. O. Cummings, D. A. Fisher und A. G. Raffo, Decrease of growth rates of atmospheric chlorofluorocarbons 11 and 12, *Nature*, 364, 780–783, 1993.
- Endemann, M., MIPAS Instrument Concept and Performance, in *Proceedings of ESAMS '99 - European Symposium on Atmospheric Measurements from Space*, Seiten 29–43, 1999.
- Engel, A., U. Schmidt und D. McKenna, Stratospheric trends of CFC-12 over the past two decades: Recent observational evidence for declining growth rates, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 3319–3322, 1998.
- Ern, M., *Interpolation asynoptischer Satellitendaten*, Diplomarbeit, Universität Wuppertal, 1993.
- Eurocontrol, *WGS 84 Implementation Manual*, EUROCONTROL European Organization for the Safety of Air Navigation, Brussels, Belgium, 1998, <http://www.wgs84.com>.
- Fischer, H., Remote Sensing of Atmospheric Trace Constituents Using Fourier Transform Spectrometry, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, 96, 306–314, 1992.
- Fischer, H. und H. Oelhaf, Remote sensing of vertical profiles of atmospheric trace constituents with MIPAS limb-emission spectrometers, *Appl. Optics*, 35, 2787–2796, 1996.
- Friedl-Vallon, F., M. Riese, G. Maucher, A. Lengel, F. Hase, P. Preusse und R. Spang, Instrument concept and preliminary performance analysis of GLORIA, *Adv. Space Res.*, 2005, in press.
- Gelman, A., J. B. Carlin und H. S. Stern, *Bayesian Data Analysis*, Band 2nd, CRC Press, 2003.
- Golombek, A. und R. G. Prinn, A global three-dimensional model of the circulation and chemistry of CFCl_3 , CF_2Cl_2 , CH_3CCl_3 , CCl_4 and N_2O , *J. Geophys. Res.*, 91, 3985–4001, 1986.

- Goody, R. M. und Y. L. Yung, *Atmospheric Radiation, Theoretical Basis*, Oxford University Press, 1989.
- Gordley, L. L., B. T. Marshall und D. A. Chu, LINEPAK: Algorithms for Modeling Spectral Transmittance and Radiance, *Appl. Optics*, 52, 563–580, 1994.
- Gordley, L. L. und J. M. Russel, Rapid inversion of limb radiance data using an emissivity growth approximation, *Appl. Optics*, 20, 807–813, 1981.
- Griffiths, P. R. und J. A. de Haseth, *Fourier Transform Infrared Spectrometry*, Band 83 von *Chemical Analysis*, John Wiley & Sons, 1986.
- Grooß, J.-U., G. Günther, P. Konopka, R. Müller, D. S. McKenna, F. Stroh, B. Vogel, A. Engel, M. Müller, K. Hoppel, R. Bevilacqua, E. Richard, C. R. Webster, J. W. Elkins, D. F. Hurst, P. A. Romashkin und D. G. Baumgardner, Simulation of ozone depletion in spring 2000 with the Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS), *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000456, 2002.
- Grooß, J.-U., *Modelling of stratospheric chemistry based on HALOE/UARS satellite data*, Dissertation, Universität Mainz, 1996.
- Grooß, J.-U. und J. M. Russell, Technical Note: A stratospheric climatology for O₃, H₂O, CH₄, NO_x, HCl and HF derived from HALOE measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2797–2807, 2005.
- Grossmann, K. U., D. Offermann, O. Gusev, J. Oberheide, M. Riese und R. Spang, The CRISTA-2 mission, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000667, 2002.
- Gulde, T., C. Piesch, C. E. Blom, H. Fischer, F. Fergg und G. Wildgruber, The airborne MIPAS infrared emission experiment, in *Proceedings of the International Airborne Remote Sensing Conference*, Band II, Seiten 301–311, Environmental Research Institute of Michigan, Ann Arbor, Mich., 1994.
- Gunson, M. R., M. M. Abbas, M. C. Abrams, M. Allen, L. R. Brown, T. L. Brown, A. Y. Chang, A. Goldman, F. W. Irion, L. L. Lowes, E. Mahieu, G. L. Manney, H. A.

- Michelsen, M. J. Newchurch, C. P. Rinsland, R. J. Salawitch, G. P. Stiller, G. C. Toon, Y. L. Yung und R. Zander, The Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy (ATMOS) experiment: Deployment on the ATLAS Space Shuttle missions, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2333–2336, 1996.
- Gupta, M. L., R. P. Turco, C. R. Mechoso und J. A. Spahr, On-line simulations of passive chemical tracers in the University of California, Los Angeles, atmospheric general circulation model. 1. CFC-11 and CFC-12, *J. Geophys. Res.*, 106, 12401–12417, 2001.
- Hase, F. und M. Höpfner, Atmospheric ray path modeling for radiative transfer algorithms, *Appl. Optics*, 38, 3129–3133, 1999.
- Haynes, P. und J. Anglade, The vertical scale cascade in atmospheric tracers due to large-scale differential advection, *J. Atmos. Sci.*, 54, 1121–1136, 1997.
- Haynes, P. und E. Shuckburgh, Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport – 1. Stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 105, 22777–22794, 2000a.
- Haynes, P. und E. Shuckburgh, Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport – 2. Troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 105, 22795–22810, 2000b.
- Hitschfeld, W. und J. T. Houghton, Radiative Transfer in the Lower Stratosphere due to the 9.6-Micron Band of Ozone, *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 87, 562–577, 1961.
- Hoffmann, L. und M. Riese, Quantitative transport studies based on trace gas assimilation, *Adv. Space Res.*, 33, 1068–1072, 2004.
- Hoffmann, L., R. Spang, M. Kaufmann und M. Riese, Retrieval of CFC-11 and CFC-12 from Envisat MIPAS observations by means of rapid radiative transfer calculations, *Adv. Space Res.*, 36, 915–921, 2005.
- Hoffmann, L., R. Spang und M. Riese, Retrieval of chlorofluorocarbon distributions from Envisat MIPAS measurements, in *Proceedings of SPIE*, Band 5571, Seiten 193–204, 2004.

- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood und L. Pfister, Stratosphere-Troposphere Exchange, *Rev. Geophys.*, 33, 403–439, 1995.
- Höpfner, M. und C. Emde, Comparison of single and multiple scattering approaches for the simulation of limb-emission observations in the mid-IR, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 91, 275–285, 2005.
- Houghton, J., *The Physics of Atmospheres*, Cambridge University Press, 2002.
- Kao, C.-Y., J. X. Tie, E. Mroz, D. Cunnold und F. Alyea, Simulations of the global CFC-11 using the Los Alamos chemical tracer model, *J. Geophys. Res.*, 95, 15827–15838, 1992.
- Kerridge, B., PREMIER - PRocess Exploration through Measurements of Infrared and millimetre-wave Emitted Radiation, Proposal to ESA, 2005.
- Kirkpatrick, S., C. D. Gelatt Jr. und M. P. Vecchi, Optimization by Simulated Annealing, *Science*, 220, 671–680, 1983.
- Konopka, P., R. Spang, G. Günther, R. Müller, D. S. McKenna, D. Offermann und M. Riese, How homogeneous and isotropic is stratospheric mixing? Comparison of CRISTA-1 observations with transport studies based on the Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS), *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 131, 565–579, 2005.
- Koopman, R., Product Quality Disclaimer ENVI-GSOP-EOGD-QD-04-0067, <http://envisat.esa.int/dataproducts/availability/>, 2004a.
- Koopman, R., Product Quality Disclaimer ENVI-GSOP-EOGD-QD-04-0070, <http://envisat.esa.int/dataproducts/availability/>, 2004b.
- Kuell, V., F. Olschewski, M. Jarisch, D. Offermann und K. U. Grossmann, Trace gas variability in the stratosphere, *Adv. Space Res.*, 34, 1722–1730, 2004.
- Labitzke, K. und B. Naujokat, The lower arctic stratosphere in winter since 1952, *SPARC Newsletter*, 15, 11–14, 2000.

- Lachance, R. L., Algorithm Technical Baseline Document (ATBD) for MIPAS Level 1B Processing, Technischer Bericht PO-TN-BOM-GS-0012, BOMEM, Inc., Québec, Canada, 1998.
- Lachance, R. L., MIPAS Level 1B Algorithm Technical Baseline Document: An Overview, in *Proceedings of ESAMS '99 - European Symposium on Atmospheric Measurements from Space*, Seiten 51–63, 1999.
- Lafferty, W. J., A. M. Solodov, A. Weber, W. B. Olson und J.-M. Hartmann, Infrared collision-induced absorption by N_2 near $4.3\,\mu m$ for atmospheric applications: measurements and empirical modeling, *Appl. Optics*, 35, 5911, 1996.
- Levenberg, K., A method for the solution of certain nonlinear problems in least squares, *Quart. Appl. Math.*, 2, 164–168, 1944.
- Lindzen, R. S. und M. S. Fox-Rabinovitz, Consistent vertical and horizontal resolution, *Month. Weath. Rev.*, 117, 2575–2583, 1989.
- López-Puertas, M. und F. W. Taylor, *Non-LTE Radiative Transfer in the Atmosphere*, Band 3 von *Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics*, World Scientific, 2002.
- López-Puertas, M., T. von Clarmann, A. Dudhia, J.-M. Flaud, B. F. M. García-Comas, S. Gil-López, N. Glatthor, U. Grabowski, V. Jay, M. Kiefer, M. Á. López-Valverde, G. Perron und G. Stiller, Analysis of non-LTE effects in the MIPAS/Envisat data, in *Proceedings of the Envisat Calibration Review*, SP-520, ESA Publications Division, ESTEC, Keplerlaan 1, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2002.
- López-Puertas, M., G. Zaragoza, M. Á. López-Valverde, F. J. Martín-Torres, G. Shved, R. O. Manuilova, A. A. Kutepov, O. Gusev, T. von Clarmann, A. Linden, G. Stiller, A. Wegner, H. Oelhaf, D. P. Edwards und J.-M. Flaud, Non-Local Thermodynamic Equilibrium Limb Radiances for the MIPAS Instrument on Envisat-1, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 59, 377–403, 1998.

- Louet, J., The Envisat Mission and System, *ESA Bull.*, 106, 11–25, 2001.
- Malakoff, D., Bayers Offers a 'New' Way to Make Sense of Numbers, *Science*, 286, 1460–1464, 1999.
- Manney, G. L., K. Krüger, J. L. Sabutis, S. A. Sena und S. Pawson, The remarkable 2003-2004 winter and other recent warm winters in the Arctic stratosphere since the late 1990s, *J. Geophys. Res.*, 110, doi:10.1029/2004JD005367, 2005.
- Manuilova, R. O., O. A. Gusev, A. A. Kutepov, T. von Clarmann, H. Oelhaf, G. P. Stiller, A. Wegner, M. López-Puertas, F. J. Martín-Torres, G. Zaragoza und J.-M. Flaud, Modelling of Non-LTE Limb Spectra of IR Ozone Bands for the MIPAS Space Experiment, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 59, 405–422, 1998.
- Marquardt, D. W., An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters, *J. Soc. Indust. Appl. Math.*, 11, 431–441, 1963.
- Marshall, B. T., L. L. Gordley und D. A. Chu, BANDPAK: Algorithms for Modeling Broadband Transmission and Radiance, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 52, 581–599, 1994.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, Breaking planetary waves in the stratosphere, *Nature*, 305, 593–600, 1983.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, The “surf zone” in the stratosphere, *J. Atm. Terr. Phys.*, 46, 825–849, 1984.
- McKenna, D. S., J.-U. Grooß, G. Günther, P. Konopka, R. Müller, G. Carver und Y. Sasano, A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 2. Formulation of chemistry scheme and initialization, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2000JD000113, 2002a.
- McKenna, D. S., P. Konopka, J.-U. Grooß, G. Günther, R. Müller, R. Spang, D. Offermann und Y. Orsolini, A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 1.

- Formulation of advection and mixing, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2000JD000114, 2002b.
- Mlawer, M. J., D. C. Tobin und S. A. Clough, A Revised Perspective on the Water Vapor Continuum: The MT-CKD Model, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 2003, in preparation.
- Mocrette, J.-J., Radiation and cloud radiative properties in the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts forecasting system, *J. Geophys. Res.*, 95, 9121–9132, 1991.
- Molina, M. J. und F. S. Rowland, Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalyzed destruction of ozone, *Nature*, 249, 810–812, 1974.
- Montzka, S. A., J. H. Butler, J. W. Elkins, T. M. Thompson, A. D. Clarke und L. T. Lock, Present and future trends in the atmospheric burden of ozone-depleting halogens, *Nature*, 398, 690–694, 1999.
- Moore, D. P., A. M. Waterfall und J. J. Remedios, The potential for radiometric retrievals of halocarbon concentrations from the MIPAS-E instrument, *Adv. Space Res.*, 2005, in press.
- Naik, V., A. K. Jain, K. O. Patten und D. J. Wuebbles, Consistent sets of atmospheric lifetimes and radiative forcings on climate for CFC replacements: HCFCs and HFCs, *J. Geophys. Res.*, 105, 6903–6914, 2000.
- Naujokat, B. und K. Grunow, The stratospheric arctic winter 2002/2003: balloon flight planning by trajectory calculations, in *Proceedings of the 16th ESA Symposium on European Rocket and Ballon Programmes and Related Research*, ESA SP-530, Seiten 421–425, St. Gallen, 2003.
- Nett, H., B. Carli, M. Carlotti, A. Dudhia, H. Fischer, J. M. Flaud, G. Perron, P. Raspollini und M. Ridolfi, MIPAS Ground Processor and Data Products, in *Geoscience and Remote*

- Sensing Symposium, 1999. IGARSS'99 Proceedings. IEEE 1999 International*, Band 3, Seiten 1692–1696, Hamburg, Germany, 1999.
- Nett, H., J. Frerick, T. Paulsen und G. Levrini, The Atmospheric Instruments and Their Applications: GOMOS, MIPAS and SCIAMACHY, *ESA Bull.*, 106, 77–87, 2001.
- Nett, H., G. Perron, M. Sanchez, A. Burgess und P. Mosner, MIPAS In-Flight Calibration and Processor Verification, in *Proceedings of the Envisat Calibration Review*, SP-520, ESA Publications Division, ESTEC, Keplerlaan 1, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2002.
- Nightingale, R. W., A. E. Roche, J. B. Kumer, J. L. Mergenthaler, J. C. Gille, S. T. Massie, P. L. Bailey, D. P. Edwards, M. R. Gunson, G. C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier und P. S. Connell, Global CF₂Cl₂ measurements by UARS Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer: Validation by correlative data and a model, *J. Geophys. Res.*, 101, 9711–9736, 1996.
- Norton, R. H. und R. Beer, New apodizing functions for Fourier spectrometry, *J. Opt. Soc. Am.*, 66, 259–264, 1976, see errata.
- Norton, R. H. und R. Beer, Errata for 'New apodizing functions for Fourier spectrometry', *J. Opt. Soc. Am.*, 67, 419, 1977.
- Oelhaf, H., T. von Clarmann, F. Fergg, H. Fischer, F. Friedl-Vallon, C. Fritzsche, C. Piesch, D. Rabus, M. Seefeldner und W. Völker, Remote sensing of trace gases with a balloon borne version of the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), in *Proceedings of the Tenth ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research*, Band ESA-SP-317, Seiten 207–213, European Space Agency, Paris, 1991.
- Oelhaf, H., T. von Clarmann, H. Fischer, F. Friedl-Vallon, C. Fritzsche, A. Linden, C. Piesch, M. Seefeldner und W. Völker, Stratospheric ClONO₂ and HNO₃ profiles inside the Arctic vortex from MIPAS-B limb emission spectra obtained during EASOE, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1263–1266, 1994.

- Offermann, D., K.-U. Grossmann, P. Barthol, P. Knieling, M. Riese und R. Trant, Cryogenic Infrared Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere (CRISTA) experiment and middle atmosphere variability, *J. Geophys. Res.*, 104, 16311–16325, 1999.
- Persky, M. J., A review of spaceborne infrared Fourier transform spectrometers for remote sensing, *Rev. Sci. Instrum.*, 66, 4763–4797, 1995.
- Plumb, R. A., A 'tropical pipe' model of stratospheric transport, *J. Geophys. Res.*, 101, 3957–3972, 1996.
- Press, W. H., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling und B. P. Flannery, *Numerical Recipes in C, The Art of Scientific Computing*, Band 1, Cambridge University Press, 2. Auflage, 2002.
- Prinn, R. G., R. F. Weiss, P. J. Fraser, P. G. Simmonds, D. M. Cunnold, F. N. Alyea, S. O'Doherty, P. Salameh, B. R. Miller, J. Huang, R. H. J. Wang, D. E. Hartley, C. Harth, L. P. Steele, G. Sturrock, P. M. Midgley und A. McCulloch, A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE, *J. Geophys. Res.*, 105, 17751–17792, 2000.
- Purser, R. J. und H.-L. Huang, Estimating Effective Data Density in a Satellite Retrieval or an Objective Analysis, *J. Appl. Met.*, 32, 1092–1107, 1993.
- Raspollini, P. und M. Ridolfi, Mapping of temperature and line-of-sight errors in constituent retrievals for MIPAS/ENVISAT measurements, *Atmos. Environment*, 34, 5329–5336, 2000.
- Ratier, G., G. Levrini, A. Popescu, T. Paulsen, C. Readings und J. Langen, GOMOS: Envisat's Contribution to Measuring Long-Term Trends in Ozone and Other Trace Gases, *ESA Bull.*, 97, 1999.
- Reber, C. A., C. E. Trevathan, R. J. McNeal und M. R. Luther, The Upper Atmosphere Research Satellite (UARS) Mission, *J. Geophys. Res.*, 98, 10643–10647, 1993.

- Remedios, J. J., Extreme Atmospheric Constituent Profiles for MIPAS, in *Proceedings of ESAMS '99 - European Symposium on Atmospheric Measurements from Space*, Seiten 779–782, 1999.
- Ridolfi, M., B. Carli, M. Carlotti, T. von Clarmann, B. M. Dinelli, A. Dudhia, J.-M. Flaud, M. Höpfner, P. E. Morris, P. Raspollini, G. Stiller und R. J. Wells, Optimized forward model and retrieval scheme for MIPAS near-real-time data processing, *Appl. Optics*, 39, 1323–1340, 2000.
- Ridolfi, M., L. Magnani, M. Carlotti und B. M. Dinelli, MIPAS-ENVISAT limb-sounding measurements: trade-off study for improvement of horizontal resolution, *Appl. Optics*, 43, 5814–5824, 2004.
- Riediger, O., C. M. Volk, M. Strunk und U. Schmidt, HAGAR - A new in situ tracer instrument for stratospheric balloons and high altitude aircraft, *Eur. Comm. Air Pollut. Res. Report*, 73, 727–730, 2000.
- Riese, M., *Das CRISTA-Meßsystem: Struktur und Anwendungen*, Dissertation, Universität Wuppertal, 1994.
- Riese, M., R. Spang, P. Preusse, M. Ern, M. Jarisch, D. Offermann und K. U. Grossmann, Cryogenic Infrared Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere (CRISTA) data processing and atmospheric temperature and trace gas retrieval, *J. Geophys. Res.*, 104, 16349–16367, 1999a.
- Riese, M., R. Spang, P. Preusse, C. Schiller, L. Hoffmann, F. Friedl-Vallon, H. Oelhaf, T. von Clarmann und M. Höpfner, GLObal limb Radiance Imager for the Atmosphere (GLORIA): scientific objectives, *Adv. Space Res.*, 36, 989–995, 2005.
- Riese, M., X. Tie, G. Brasseur und D. Offermann, Three-dimensional simulation of stratospheric trace gas distributions measured by CRISTA, *J. Geophys. Res.*, 104, 16419–16435, 1999b.

- Rind, D. und J. Lerner, Use of on-line tracers as a diagnostic tool in general circulation model development. 1. Horizontal and vertical transport in the troposphere, *J. Geophys. Res.*, 101, 12667–12683, 1996.
- Roche, A. E., J. B. Kumer, J. L. Mergenthaler, G. A. Ely, W. G. Uplinger, J. F. Potter, T. C. James und L. W. Sterritt, The Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer (CLAES) on UARS: Experiment Description and Performance, *J. Geophys. Res.*, 98, 10763–10775, 1993.
- Rodgers, C. D., Characterization and Error Analysis of Profiles Retrieved From Remote Sounding Measurements, *J. Geophys. Res.*, 95, 5587–5595, 1990.
- Rodgers, C. D., Information Content and Optimizaiton of High Spectral Resolution Remote Measurements, *Adv. Space Res.*, 21, 361–367, 1998.
- Rodgers, C. D., *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, Band 2 von *Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics*, World Scientific, 2000.
- Rothman, L. S., A. Barbe, D. C. Benner, L. R. Brown, C. Camy-Peyret, M. R. Carleer, K. Chance, C. Clerbaux, V. Dana, V. M. Devi, A. Fayt, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, A. Goldman, D. Jacquemart, K. W. Jucks, W. J. Lafferty, J.-Y. Mandin, S. T. Massie, V. Nemtchinov, D. A. Newnham, A. Perrin, C. P. Rinsland, J. Schroeder, K. M. Smith, M. A. H. Smith, K. Tang, R. A. Toth, J. V. Auwera, P. Varanasi und K. Yoshino, The HITRAN Molecular Spectroscopic Database: Edition of 2000 Including Updates through 2001, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 82, 5–44, 2003.
- Schwarz, G., S. Hilgers, H. Kemnitzer, T. Steck, T. von Clarmann, M. Höpfner und K. Ressel, Sequential and Joint Retrieval of Trace Gas Profiles, *Adv. Space Res.*, 29, 1649–1654, 2002.
- Shannon, C. E., A mathematical theory of communication, *Bell System Technical Journal*, 27, 379–423, 623–656, 1948, corrected reprint: <http://cm.bell-labs.com/cm/ms/what/shannonday/paper.html>.

- Shapiro, M. A., Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere, *J. Atmos. Sci.*, 37, 994–1004, 1980.
- Smith, A. K., Numerical simulation of global variations of temperature, ozone, and trace species in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 100, 1253–1269, 1995.
- Spang, R., G. Eidmann, M. Riese, D. Offermann, P. Preusse, L. Pfister und P.-H. Wang, CRISTA observations of cirrus clouds around the tropopause, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000698, 2002.
- Spang, R., J. J. Remedios und M. P. Barkley, Colour indices for the detection and differentiation of cloud type in infra-red limb emission spectra, *Adv. Space Res.*, 33, 1041–1047, 2004.
- Stiller, G. P., The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA), Technischer Bericht FZKA-6487, Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- Stiller, G. P., T. von Clarmann, B. Funke, N. Glatthor, F. Hase, M. Höpfner und A. Linden, Sensitivity of trace gas abundances retrievals from infrared limb emission spectra to simplifying approximations in radiative transfer modelling, *Appl. Optics*, 41, 249–280, 2002.
- Stolarski, R. S. und R. J. Cicerone, Stratospheric Chlorine: A possible sink for ozone, *Can. J. Chem.*, 52, 1610–1615, 1974.
- Strow, L. L., Line mixing in infrared atmospheric spectra, in *Proceedings of SPIE*, Band 928, Seiten 194–212, 1988.
- Swinbank, R. und A. O'Neill, A Stratosphere–Troposphere Data Assimilation System, *Month. Weath. Rev.*, 122, 686–702, 1994.
- Thibault, F., V. Menoux, R. L. Doucen, L. Rosenmann, J.-M. Hartmann und C. Boulet, Infrared collision-induced absorption by O₂ near 6.4 μm for atmospheric applications: measurements and empirical modeling, *Appl. Optics*, 36, 563, 1997.

- Thomas, G. E. und K. Stamnes, *Radiative Transfer in the Atmosphere and Ocean*, Cambridge University Press, 1999.
- Twomey, S., *Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements*, Dover, 1977.
- von Clarmann, T., S. Ceccherini, A. Doicu, A. Dudhia, B. Funke, U. Grabowski, S. Hilgers, V. Jay, A. Linden, M. López-Puertas, F.-J. Martín-Torres, V. Payne, J. Reburn, M. Ridolfi, F. Schreier, G. Schwarz, R. Siddans und T. Steck, A blind test retrieval experiment for infrared limb emission spectrometry, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2003JD003835, 2003a.
- von Clarmann, T., H. Fischer, F. Friedl-Vallon, A. Linden, H. Oelhaf, C. Piesch, M. Seefeldner und W. Völker, Retrieval of stratospheric O₃, HNO₃ and ClONO₂ profiles from 1992 MIPAS-B limb emission spectra: methods, results, and error analysis, *J. Geophys. Res.*, 98, 20495–20506, 1993.
- von Clarmann, T., N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. M. Tsidu, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, D. Y. Wang und H. Fischer, Retrieval of temperature and tangent altitude pointing from limb emission spectra recorded from space by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2003JD003602, 2003b.
- von Clarmann, T., U. Grabowski und M. Kiefer, On the role of non-random errors in inverse problems in radiative transfer and other applications, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 71, 39–46, 2001.
- von Clarmann, T., M. Höpfner, B. Funke, M. López-Puertas, A. Dudhia, V. Jay, F. Schreier, M. Ridolfi, S. Ceccherini, B. Kerridge, J. Reburn und R. Siddans, Modelling of atmospheric mid-infrared radiative transfer: the AMIL2DA algorithm intercomparison experiment, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 78, 381–407, 2003c.

- Wang, P.-H., P. Minnis, M. P. McCormick, G. S. Kent und K. M. Skeens, A 6-year climatology of cloud occurrence frequency from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II observations (1985-1990), *J. Geophys. Res.*, 101, 29407–29430, 1996.
- Waugh, D. W. und T. M. Hall, Age of Stratospheric Air: Theory, Observations, and Models, *Rev. Geophys.*, 40, doi:10.1029/2000RG000101, 2002.
- Weinreb, M. P. und A. C. Neuendorffer, Method to Apply Homogeneous-path Transmittance Models to Inhomogenous Atmospheres, *J. Atmos. Sci.*, 30, 662–666, 1973.
- Wetzel, G., T. von Clarmann, H. Oelhaf und H. Fischer, Vertical profiles of N_2O_5 along with CH_4 , N_2O and H_2O in the late Arctic winter retrieved from MIPAS-B infrared limb emission measurements, *J. Geophys. Res.*, 100, 23173–23181, 1995.
- WMO, Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002, Global Ozone Research and Monitoring Project - Report No. 47, 2003, <http://www.wmo.ch/web/arep/ozone.html>.
- Yokota, T., H. Nakajima, T. Sugita, H. Tsubaki, Y. Itou, M. Kaji, M. Suzuki, H. Kanazawa, J. H. Park und Y. Sasano, Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) data retrieval algorithm for Version 5.20 gas profile products, *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/2001JD000628, 2002.
- Zander, R., M. R. Gunson, C. B. Farmer, C. P. Rinsland, F. W. Irion und E. Mahieu, The 1985 Chlorine and Fluorine Inventories in the Stratosphere Based on ATMOS Observations at 30° North Latitude, *J. Atmos. Chem.*, 15, 171–186, 1992.
- Zander, R., E. Mahieu, M. R. Gunson, M. C. Abrams, A. Y. Chang, M. Abbas, C. Aellig, A. Engel, A. Goldman, F. W. Irion, N. Kämpfer, H. A. Michelsen, M. J. Newchurch, C. P. Rinsland, R. J. Salawitch, G. P. Stiller und G. C. Toon, The 1994 northern midlatitude budget of stratospheric chlorine derived from ATMOS/ATLAS-3 observations, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2357–2360, 1996.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Jül-4207
Februar 2006
ISSN 0944-2952