



Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre
Institut I: Stratosphäre

CIO in der arktischen Stratosphäre

***Konsequenzen für das Verständnis von Wellen- und
Mischprozessen im arktischen Polarwirbel aus
einer Ballonmessung am 11. Februar 1997 in Kiruna***

Ulf Winkler

CIO in der arktischen Stratosphäre

***Konsequenzen für das Verständnis von Wellen- und
Mischprozessen im arktischen Polarwirbel aus
einer Ballonmessung am 11. Februar 1997 in Kiruna***

Ulf Winkler

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 4108
ISSN 0944-2952
Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre
Institut I: Stratosphäre Jül-4108
D 5 (Diss., Bonn, Univ., 2003)

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

ClO in der arktischen Stratosphäre:

Konsequenzen für das Verständnis von Wellen- und Mischungsprozessen im arktischen Polarwirbel aus einer Ballonmessung am 11. Februar 1997 in Kiruna

Zusammenfassung

Am 11. Februar 1997 startete der TRIPLE-Ballon in Kiruna/Nordschweden. Er stieg in die untere Stratosphäre auf, erreichte eine maximale Höhe von 24,1 km und landete nach einem 2,5-stündigen Flug in Nordfinnland. Dank günstiger meteorologischer Umstände durchquerte der Ballon den Randbereich des Polarwirbels. Die Daten des TRIPLE-Flugs zeigen zudem, dass an jenem Tag ein Wellenereignis stattfand. Der Randbereich des Polarwirbels erweckt das Interesse, da das Phänomen des Polarwirbels eng mit dem Frühjahrs-Ozonverlust, auch als Ozonloch bekannt, zusammenhängt. Die Luft im Innern des Polarwirbels wird unter Umständen gezwungen, monatelang unter Polarnacht-Bedingungen zu verbleiben. Aufgrund der tiefen Temperaturen kommt es zur Bildung reaktiver chlorhaltiger Verbindungen. Nach Rückkehr des Sonnenlichts im Frühjahr wirkt insbesondere das Radikal ClO als Katalysator einer massiven Ozonzerstörung. Die Stabilität des Polarwirbels und die Wirkung des Wirbelrands als Transportbarriere stellen damit entscheidende Faktoren für das Ausmaß des Ozonabbaus dar.

Auf der Gondel des TRIPLE-Ballons wurden Instrumente zur Messung diverser Moleküle mitgeführt, darunter das ClO/BrO-Instrument des Forschungszentrums Jülich, eine Ozonsonde der University of Wyoming und der Kryosammler BONBON der Johann-Wolfgang-von-Goethe-Universität Frankfurt/Main. Somit gelang die gleichzeitige Beobachtung des Wellenereignisses und dessen Konsequenz auf die Chemie in den betroffenen Luftmassen. Das gemessene ClO-Profil spielte dabei die Rolle eines Indikators für die tiefste Temperatur, welche durch das jeweilige Luftpaket während des Ereignisses erfahren wurde.

Als wahrscheinlichste simultane Erklärung für die beobachteten ClO-, Temperatur- und Druckprofile wird eine senkrecht zur Erdoberfläche stehende Welle vorgeschlagen. Chemie-Transport-Modellrechnungen mit Hilfe des Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) unterstützen diese Annahme. Eine theoretische Betrachtung zeigt, dass ein solches Ereignis horizontale Mischungsvorgänge bewirken kann. Tatsächlich lieferte das auf der TRIPLE-Gondel gemessene Ozonprofil Hinweise, dass es zum Eindringen von ozonreichen Luftmassen aus dem äußeren Randbereich des Polarwirbels oder sogar von außerhalb des Wirbels kam. Diese Vermutung konnte mittels der Tracer-Tracer-Methode, unter Verwendung des N₂O-Profils des Kryosammlers BONBON, belegt werden.

Neben den theoretischen Auswertungen und Betrachtungen besitzt diese Arbeit auch einen praktischen Teil. Das Arbeitsprinzip des ClO/BrO-Instruments, die Chemical Conversion and Resonance Fluorescence (CCRF) Methode, wird erläutert. Eingegangen wird auf die Kalibration des Instruments und auf Schwierigkeiten der Messung von BrO mittels der CCRF-Methode. Dargestellt werden zudem Arbeiten im Rahmen der Entwicklung des Flugzeuginstruments HALOX, einer modifizierten Variante des Balloninstruments, welches seit Ende des Jahres 2001 auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug „Geophysica“ zum Einsatz kommt.

ClO in the Arctic Stratosphere:

Consequences for the understanding of wave and mixing processes in the arctic polar vortex from a balloon measurement of 11th February, 1997 at Kiruna

Abstract

On 11th February, 1997, the TRIPLE balloon was launched in Kiruna, Northern Sweden. It ascended into the lower stratosphere, reached a maximum altitude of 24.1 km and landed in Northern Finland after a 2.5-hour flight. Thanks to advantageous meteorological conditions the balloon passed through the edge region of the polar vortex. Moreover, the data of the TRIPLE flight show that on that day a wave event occurred. The edge region of the polar vortex is of interest because the phenomenon of the polar vortex is closely related to the springtime ozone loss, also known as the ozone hole. Under certain circumstances, the air inside the vortex is forced to remain under polar night conditions for a period of months. Due to the low temperatures reactive chlorine compounds are formed. After the return of sunlight in springtime especially the ClO radical acts as a catalyst of massive ozone depletion. The stability of the polar vortex and the action of the vortex edge as a transport barrier are decisive factors for the extent of ozone depletion.

On the gondola of the TRIPLE balloon several instruments were mounted for the measurement of various molecules, among them the ClO/BrO instrument of Research Centre Jülich, an ozone sounding device from the University of Wyoming and the BONBON cryosampler from Johann Wolfgang von Goethe University, Frankfurt am Main. Consequently it was possible to simultaneously observe the wave event and its consequences for the chemistry in the air masses in question. The measured ClO profile thus acted as an indicator of the lowest temperature experienced by the respective air parcel during the event.

As the most probable simultaneous explanation for the observed ClO, temperature and pressure profiles a wave standing perpendicular to the earth's surface is suggested. Chemistry and transport calculations by means of the Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) support this assumption. A theoretical examination shows that such an event can cause horizontal mixing processes. Indeed, the ozone profile measured on the TRIPLE gondola provides indications of an intrusion of ozone-rich air masses originating from the outer vortex edge area or even from outside the polar vortex. This assumption was verified by the tracer-tracer method utilizing the N₂O profile of the BONBON cryosampler .

Besides these theoretical examinations and considerations, this work also contains a practical part. The working principle of the ClO/BrO instrument, the Chemical Conversion and Resonance Fluorescence (CCRF) method, is explained. The calibration of the instrument and difficulties in measuring BrO by the CCRF method are discussed. Moreover, studies are presented relating to the development of the HALOX aircraft instrument , a modified version of the balloon instrument which has been operated since the end of 2001 on board the Russian high-altitude research aircraft "Geophysica".

Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung.....	5
1.1.	Historischer Überblick und aktuelle Probleme	5
1.2.	Der TRIPLE-Ballonaufstieg vom 11. Februar 1997	9
1.3.	Übersicht über die folgenden Kapitel	10
2.	Wichtige Größen und Begriffe.....	11
2.1.	Potentielle Temperatur und Potentielle Vortizität	11
2.2.	Der Polarwirbel	12
2.3.	Die Definition der Tropopause	14
3.	Die Chemie der Ozonzerstörung.....	17
3.1.	Einbringen von Chlor in die Stratosphäre.....	17
3.2.	Chloraktivierung in den Polaren Stratosphärenwolken	19
3.3.	Ozonabbauzyklen.....	24
3.4.	Denitrifizierung.....	28
3.5.	Diskrepanzen zwischen gemessenem und erwartetem Ozonabbau	29
4.	Die Tracer-Tracer-Methode und ihre Anwendung	31
4.1.	Methoden zur Ermittlung chemischer Veränderungen in einer Luftmasse	31
4.2.	Die Tracer-Tracer-Methode	33
4.3.	Potentielle Vortizität als dynamischer Tracer und RDF-Methode	34
4.4.	Die N ₂ O-O ₃ -Korrelation	36
4.5.	Vergleich der N ₂ O-O ₃ -Korrelation mit den ILAS-Daten	41
5.	Das ClO/BrO-Instrument.....	43
5.1.	Prinzip	43
5.2.	Reaktionen im Messkanal	44
5.3.	Kalibration	46
5.4.	HALOX, die Version für den Flugzeugeinsatz.....	49
6.	Messwerte	57
6.1.	Der arktische Polarwirbel des Winters 1996/97	57
6.2.	Messergebnisse des TRIPLE-Ballons sowie aus seinem Umfeld.....	64
7.	CLaMS-Modellrechnungen und Vergleich mit den Messergebnissen	82
7.1.	Das CLaMS-Modell.....	82
7.2.	Erstellung der Rückwärtstrajektorien	84
7.3.	Ist die RDF-Methode anwendbar auf die TRIPLE-Messungen?	86
7.4.	Temperatur-Szenarien	87
7.5.	Die Ermittlung der Chemie-Initialisierung	89
7.6.	Ergebnisse der CLaMS-Modellierungen	95
8.	Atmosphärische Schwingungen am 11. Februar 1997	99
8.1.	Informationen aus den Beobachtungen.....	99
8.2.	Vorgehensweise bei der theoretischen Betrachtung	103
9.	Adiabatische Schwingungen der Atmosphäre	104
9.1.	Mittelwerte und Störungen	104
9.2.	Gleichungen	107

9.3.	Lösung des Gleichungssystems durch eine harmonische Schwingung	114
9.4.	Mögliche ursächliche Erklärungen der Ausbildung einer stehenden Welle	128
10.	Auswertung der Messwerte anhand der linearen Wellentheorie	135
10.1.	Zusammenfassung der notwendigen Größen	135
10.2.	Zerlegung der Messwerte in Mittelwert und Störungen	136
10.3.	Vergleich der Messwerte mit der Theorie	139
10.4.	Aus den Daten der Radiosonden ermittelte Parameter	141
11.	Zusammenfassung und Ausblick	145
11.1.	Übersicht	145
11.2.	Das ClO/BrO-Balloninstrument und die Flugzeug-Variante HALOX	145
11.3.	Messwerte vom 11. Februar 1997 und Chemie-Simulationsrechnungen	145
11.4.	Studien zur Dynamik	147
11.5.	Konsequenzen	149
12.	Anhang	151
12.1.	Ideales Gas und adiabatische Zustandsänderungen	151
12.2.	Die Potentielle Vortizität	152
12.3.	Druck und Dichte einer statischen isothermen Atmosphäre	154
12.4.	Schallwellen	155
12.5.	Schwereoszillationen und die Brunt-Väisälä-Frequenz	156
12.6.	Doppler-Effekt	160
12.7.	Herleitung des Scorer-Parameters	161
13.	Liste der in dieser Arbeit verwendeten Symbole	163
14.	Quellenverzeichnis	165

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1.1	Ozonsäulen-Monatsmittel über der Antarktisstation Halley Bay.	6
Abb. 1.2	Ozon und ClO am 16.9.87. Flug der ER-2 über die Grenze des Ozonlochs.	7
Abb. 2.1	PV des 450K-Niveaus am 11.2.97 12 Uhr GMT.	12
Abb. 2.2	Höhe des 450K-Niveaus am 11.2.97 12 Uhr GMT.	13
Abb. 2.3	Lage der Tropopause nach verschiedenen Definitionen.	16
Abb. 3.1	Chlorbudget, gemessen während der ATMOS/ATLAS-3-Kampagne.	19
Abb. 4.1	Die RDF-Methode.	35
Abb. 4.2	Verschiedene Korrelationen zwischen O ₃ und N ₂ O.	37
Abb. 4.3	Early-Vortex-Korrelation des Winters 1996/97 [Tilmes et al., 2003].	38
Abb. 4.4	O ₃ als Funktion von N ₂ O, gemessen von ILAS vom 28.1.-11.2.97.	40
Abb. 4.5	O ₃ , gemessen von ILAS vom 28.1.-11.2.97, als Funktion von PV.	40
Abb. 4.6	N ₂ O, gemessen von ILAS vom 28.1.-11.2.97, als Funktion von PV.	40
Abb. 4.7	O ₃ als Funktion von N ₂ O, gemessen auf Flügen der ER-2 in verschiedenen Nord-Wintern.	41
Abb. 5.1	Funktionsskizze des ClO/BrO-Instruments.	43
Abb. 5.2	Konversionseffizienz im Luftstrom des ClO/BrO-Instruments.	44
Abb. 5.3	Das ClO/BrO-Instrument auf der Kalibrationsbank.	46
Abb. 5.4	Brom-Kalibrationsfaktoren für ausgewählte Bromlampen.	47
Abb. 5.5	Geschwindigkeit und Fluss unmittelbar hinter einer Düse.	52
Abb. 5.6	Geophysica-Flug vom 26.1.03: Gemessene Signale der Chlorlampen und die sich daraus ergebenden ClO-Messwerte.	54
Abb. 5.7	Selber Flug: Erwartete und gemessene Werte für Ψ sowie die gemessene Druckuntersetzung im abgepumpten Kanal.	55
Abb. 5.8	Selber Flug: Erwartete und gemessene Werte für die Flussgeschwindigkeit und den Normfluss im abgepumpten Kanal.	55
Abb. 5.9	Selber Flug: Darstellung, um welchen Faktor sich die Signal-Rausch-Verhältnisse in beiden Kanälen voneinander unterscheiden sollten.	55
Abb. 5.10	Selber Flug: Abschätzung, um welchen Faktor der Einsatz eines anderen Düsendurchmessers das Bromsignals verbessert hätte.	55
Abb. 6.1	Temperaturen des 450K-Niveau am 11.2.97 12 Uhr GMT.	57
Abb. 6.2	PV vom 24.1.97 bis zum 3.2.97 auf dem 450K-Niveau.	58
Abb. 6.3	Anteil der Luft mesosphärischen Ursprungs im Polarwirbel verschiedener Winter.	59
Abb. 6.4	PV am 10., 11. und 14.2.97 auf dem 450K- und 550K-Niveau.	62
Abb. 6.5	Höhe des 350K- Niveaus am 3., 5., 7., 9., 11. und 13.2.97	63
Abb. 6.6	Chlorbudget am 11. bzw. 14.2.97 über Nordskandinavien.	65
Abb. 6.7	ClO und O ₃ , gemessen auf TRIPLE, als Funktion der Höhe.	67
Abb. 6.8	Wie Abb. 6.7, Darstellung als Funktion der Potentiellen Temperatur.	67
Abb. 6.9	ClO und Temperatur, gemessen auf TRIPLE.	67
Abb. 6.10	Temperaturen, gemessen auf TRIPLE und durch Radiosonden vom 8.-14.2.97.	68
Abb. 6.11	Temperaturen, gemessen auf TRIPLE und durch Radiosonden vom 10.-11.2.97.	69
Abb. 6.12	Wie Abb. 6.11, Darstellung der Westwind-Geschwindigkeit.	69

Abb. 6.13	Wie Abb. 6.11, Darstellung der Südwind-Geschwindigkeit.	69
Abb. 6.14	Verschiedene TRIPLE- und Radiosonden-Messwerte, sortiert nach Theta-Niveaus.	70
Abb. 6.15	Ozon, gemessen durch TRIPLE (11.2.97), CLD-1 und CLD-2 (10. bzw. 25.2.97), LPMA (14.2.97) und ILAS (11.2.97)	72
Abb. 6.16	Wasser, gemessen durch FISH (TRIPLE, 11.2.97), LPMA und ILAS.	73
Abb. 6.17	Messungen des Aerosolzählers auf TRIPLE.	74
Abb. 6.18	N ₂ O, CH ₄ , CFCl ₃ und CF ₂ Cl ₂ , gemessen durch BONBON (TRIPLE), ILAS und LPMA.	75
Abb. 6.19	N ₂ O, CH ₄ , Cl _y und SF ₆ , gemessen durch BONBON, dazu das Ozonprofil dieses Fluges.	77
Abb. 6.20	$\delta^{18}\text{O}$ und $\delta^{17}\text{O}$ für das mittels BONBON am 11.2.97 gesammelte CO ₂ .	78
Abb. 6.21	Ozon, N ₂ O, NO ₂ , CH ₄ , HCl, Wasser und HF, gemessen durch LPMA.	79
Abb. 7.1	Temperaturen entlang ausgewählter Rückwärtstrajektorien.	85
Abb. 7.2	Potentielle Vortizität für die selben Rückwärtstrajektorien.	85
Abb. 7.3	Geographische Breite und Länge der selben Rückwärtstrajektorien.	85
Abb. 7.4	RDF-PV-Profile, extrahiert aus den Rückwärtstrajektorien für diverse Zeitpunkte.	86
Abb. 7.5	Prinzip der Modifikation der Trajektorien-Temperaturen.	87
Abb. 7.6	Temperaturen am Endpunkt der Trajektorien für verschiedene Szenarien.	88
Abb. 7.7	NO _y , (CLD-1 und CLD-2, 10. bzw. 25.2.97), sowie HNO ₃ (ILAS, 11.2.97)	91
Abb. 7.8	NO _y und Ozon, gemessen durch CLD-1 und CLD-2, dazu das TRIPLE-Ozonprofil.	92
Abb. 7.9	NO _y als Funktion von Ozon für CLD-1 und CLD-2.	93
Abb. 7.10	Ergebnisse der CLaMS-Simulationen.	94
Abb. 7.11	CLaMS-Simulationen ausgewählterer Spezies auf dem 512-K-Niveau.	95
Abb. 7.12	Wie Abb. 7.10 für die CLaMS-Simulationen der Wellen-Szenarien.	96
Abb. 7.13	Wie Abb. 7.11 für die CLaMS-Simulationen der Wellen-Szenarien.	97
Abb. 8.1	Fluktuationen von Temperatur und Höhe, gemessen auf TRIPLE.	99
Abb. 8.2	Temperatur und Südwind, gemessen auf TRIPLE sowie durch eine Radiosonde am 11.2.97. Darstellung als Funktion der Potentiellen Temperatur.	102
Abb. 8.3	Wie Abb. 8.2, Darstellung als Funktion der Höhe.	102
Abb. 8.4	Wie Abb. 8.3, Darstellung von Temperatur und Westwind.	102
Abb. 9.1	Abhängigkeit der Temperatur, des Drucks und der Dichte, von der Höhe (TRIPLE-Daten).	106
Abb. 9.2	Ausschnitt aus Abb. 9.1 für den Bereich zwischen 16 und 24 km Höhe.	106
Abb. 9.3	Ausschnitt aus Abb. 9.1 für den Bereich zwischen 400 und 550 K potentieller Temperatur.	106
Abb. 9.4	Vertikale Schichtung der Atmosphäre in Swinging und Mixing Layer.	112
Abb. 9.5	Richardson-Zahlen, bestimmt aus den TRIPLE und der Radiosonden-Daten.	130
Abb. 9.6	Bestimmung des Scorer-Parameter am Beispiel der TRIPLE-Daten vom 11.2.97.	134
Abb. 10.1	Fluktuationen von Temperatur, Druck und Höhe als Funktion der mittleren Höhe.	137
Abb. 10.2	Wie Abb. 10.1, Darstellung als Funktion der Zeit.	137
Abb. 10.3	Fluktuation des Drucks und Anpassung als Funktion der Zeit bzw. des zurückgelegten Wegs.	138
Abb. 10.4	Exponenten, welche sich aus der Anpassung der Daten von TRIPLE sowie diverser Radiosonden an die Höhe ergeben.	142
Abb. 10.5	Scorer-Länge und Brunt-Väisälä-Zeit, ermittelt aus diesen Daten.	143

1. Einleitung

1.1. Historischer Überblick und aktuelle Probleme

"Geneigt zu glauben, das atmosphärische Ozon spiele im Haushalte der Erde eine wichtige Rolle, halte ich es für wünschenswert, dass möglichst zahlreiche, sowie große Zeiträume als bedeutende Länderstrecken umfassende, untereinander vergleichbare Beobachtungen über die Veränderungen des Ozongehaltes der Atmosphäre angestellt werden...". Christian Friedrich Schönbein am 5.9.1853 in einem Brief an Justus von Liebig [Kahlbaum, 1900, Hapke, 1991]

Als im Jahr 1839 der deutsche Chemiker Christian Friedrich Schönbein die Vermutung äußerte, dass der Geruch, welcher bei elektrischen Entladungen auftritt (wie man heute weiß, wird er von parallel zu Ozon entstehenden Stickoxiden erzeugt), durch eine eigenständige Substanz verursacht wird, welcher er den Namen Ozon gab (griechisch: das Riechende), konnte er nicht ahnen, dass das Wort „Ozonloch“ heute zum Wortschatz des Normalbürgers gehört und als Synonym für eine der drastischsten und gefährlichsten menschengemachten (anthropogenen) Umweltbeeinflussungen gilt. Ozon bestimmte allerdings das weitere wissenschaftliche Leben Schönbeins. Die Atmosphärenchemie verdankt seinem Eifer ihr ökonomisch bedeutsamstes Innovationsprodukt (Schießbaumwolle, welche Schönbein nach einer Explosion seines Laborkittels bei einem Ozon-bezogenen Experiment entwickelte) und die Existenz von Langzeit-Messreihen des bodennahen Ozons seit dem Jahr 1853 in Wien [Lauscher, 1984]. Als älteste für die Erforschung des Langzeittrends von bodennahem Ozon quantitativ gut verwertbare Serie gilt allerdings erst eine 1876 bei Paris durch Albert-Levy gestartete methodisch verbesserte Messreihe [Volz & Kley, 1988]. Die chemische Zusammensetzung des Ozons blieb Schönbein, welcher am 29.8.1868 starb, aber unbekannt. 1864 äußerte Soret die Vermutung, dass es sich beim Ozon um O_3 , ein Molekül bestehend aus drei Sauerstoffatomen, handelt. Die experimentelle Bestätigung des entsprechenden Molekulargewichts von 48 g/mol erfolgte erst 1898/99 durch Ladenburg.

Ebenfalls nicht mehr miterleben sollte Schönbein die Entdeckung des französischen Physikers Alfred Cornu im Jahr 1878, dass bei einer Wellenlänge von etwa 300 nm das UV-Spektrum des Sonnenlichts plötzlich endet. Bereits drei Jahre später konnte der britische Chemiker Sir Walter Noel Hartley diese Charakteristik des UV-Spektrums auf die Absorptionsbanden des Ozons zurückführen. Ozon musste damit aber in größeren Höhen in weitaus größeren Konzentrationen vorkommen als unmittelbar über dem Erdboden (gegenwärtig im Jahresmittel in Deutschland 25-35 ppbv, mit Maximalwerten während des sogenannten Ozonsmogs von etwa 200 ppbv). 1929 entdeckte der Schweizer F.W. Paul Götz den Umkehreffekt, welcher als Umkehr Effect auch in die englische Sprache einging und welcher gestattete, per Fernerkundung die genaue Höhenlage der Ozonschicht zu bestimmen. Bestätigt wurden diese Messungen mittels der am 31.7.1934 in Stuttgart durch Vater Erich und Sohn Victor Regener gestarteten ersten Ballon-Ozonsonde. Das Maximum der Ozonschicht befindet sich in den Tropen in etwa 26-27 km Höhe (bis zu 10 ppmv) und in polaren Breiten in etwa 20 km Höhe (etwa 3-4 ppmv) liegt. Die Ozonschicht sorgt dafür, dass sich zwischen 10 und 50 km Höhe eine Atmosphärenschicht mit eigenen Charakteristiken, die Stratosphäre, ausbildet (siehe Abschnitt. 2.3).

Ozon absorbiert das Licht in der Hartley-Bande zwischen 200 nm und 320 nm (und zudem im sichtbaren Bereich in der Chappuis-Bande zwischen 380 und 750 nm) und erweitert somit die Filterwirkung der Atmosphäre im UV-Bereich in Richtung energieärmerer Strahlung. In der Hartley-Bande, bei einer Wellenlänge von 265 nm, befindet sich das Absorptionsmaximum der DNS. Im Bereich der UVC-Strahlung, per Definition zwischen 100 und 280 nm, reagiert dieser Träger der Erbinformationen damit äußerst sensibel, im Bereich der UVB-Strahlung zwischen 280 nm und 320 nm, dem oberen Ende der Hartley-Bande, immer noch signifikant.

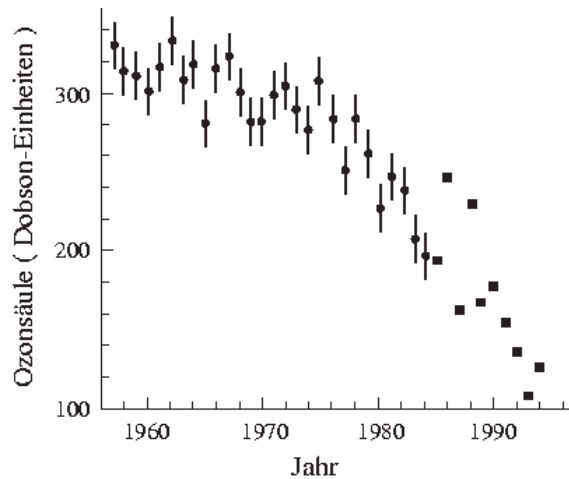


Abb. 1.1: Monatsmittel der Ozonsäulen-Messungen¹, gemessen an der britischen Antarktisstation Halley Bay (77°S). Punkte mit Fehlerbalken bezeichnen die Daten aus [Farman et al., 1985], Vierecke die neueren Daten aus [Jones & Shanklin, 1996].

Der Anteil der UVC-Strahlung am Gesamt-Sonnenspektrum ist allerdings verschwindend gering. Die biologischen Auswirkungen erhöhter UVB-Strahlung an der Erdoberfläche infolge einer drastischen Verminderung der stratosphärischen Ozonkonzentration werden noch kontrovers diskutiert [Madronich, 1997, Breitbart et al., 1998, Maxeiner & Miersch, 1998] und wurden selbst ein Jahrzehnt nach der Entdeckung des Ozonlochs noch als weniger gut erforscht als das Ozonloch selbst bezeichnet [Forster & Kestler, 1998].

Auch die UVA-Strahlung (>320 nm), welche durch die Ozonschicht nicht ausgefiltert wird, kann durchaus signifikante biologische Auswirkungen haben. Neben der biologischen Wirkungen kann eine Verringerung der Ozonschicht aber auch noch zu anderen Konsequenzen führen, siehe dazu Abschnitt 2.3

Eine Publikation von Molina und Rowland im Jahr 1974 löste Beunruhigung aus [Molina & Rowland, 1974]. Diese Autoren vermuteten, dass Chloratome katalytisch Ozon zerstören können. Im Moment der Veröffentlichung war der Chlorgehalt der Stratosphäre noch zu niedrig, um einen deutlichen Effekt zu erzielen, der fortdauernde Eintrag von Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen (FCKW) sollte die Situation laut Molina und Rowland jedoch in naher Zukunft ändern. Das Molina-Rowland-Paper „platzte wie eine Bombe in die Industrie“ [Sheridan, 2000] und führte dazu, dass die Entwicklung von Alternativen zu FCKW-Kühlmitteln gestartet und 1977-79 sowohl in den USA als auch der BRD erste Beschränkungsmaßnahmen zur Produktion und Anwendung von FCKW getroffen wurden [Sheridan, 2000], obwohl die Gemeinschaft der Stratosphärenforscher bisher keinen Ozonabbau feststellen konnte.

Im Jahr 1985 allerdings veröffentlichten J.C. Farman, B.G. Gardiner und J.D. Shanklin Ozon-Messdaten der britischen Antarktisstation Halley Bay in der renommierten Zeitschrift Nature [Farman et al., 1985], aus welchen hervorging, dass die Frühjahrs-Ozonkonzentration über der Antarktis in den vergangenen 10 Jahren stetig abgenommen hatte (Abb. 1.1. Dieser Abbau setzte damit etwa zeitgleich mit der Molina-Rowland-Veröffentlichung ein). Sie gelten damit als die Entdecker des Ozonlochs. Ballonmessungen, ausgeführt an der DDR-Antarktisstation „Georg Forster“ [Gernandt, 1987] und der US-amerikanischen Station McMurdo [Hofmann et

¹ Messung des gesamten Ozons oberhalb eines bestimmten Punktes auf der Erdoberfläche, wovon sich etwa 90% in der Stratosphäre befinden. Die Einheit ist Dobson Units (DU). 300 DU entsprechen einer reinen Ozonschicht auf der Erdoberfläche bei Normaldruck und -temperatur mit einer Dicke von 3 mm.

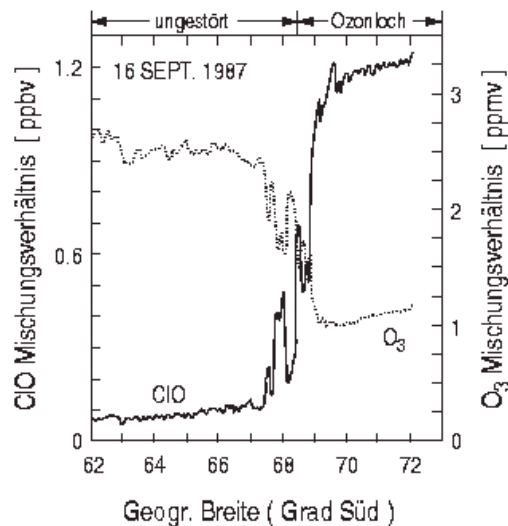


Abb. 1.2: Ozon- und ClO-Mischungsverhältnisse, gemessen am 16. September 1987 in 19 km Höhe während eines Flugs des US-amerikanischen Höhenforschungsflugzeugs ER-2 über die Grenze des antarktischen Polarwirbels bzw. des Ozonlochs [Anderson et al., 1991].

al., 1987] zeigten die Lokalisierung des Ozonverlusts im Bereich zwischen 12 und 22 km Höhe, d.h. zwischen der Tropopause und dem Temperatur-Umkehrpunkt (siehe Abschnitt 2.3). Bei Messflügen des US-amerikanischen Höhenforschungsflugzeugs ER-2 im Jahr 1987 wurde eine deutliche Antikorrelation zwischen Ozon und ClO im antarktischen Frühjahr festgestellt (Abb. 1.2, [Anderson et al., 1991]). Die Wirkung von Chlorradiakalen als Ozonerstörer wurde damit bewiesen, das einfache Bild des Molina-Rowland-Zyklus (14) musste jedoch revidiert werden (Abschnitt 3.3).

Noch 1985 wurde die Wiener Konvention zum Schutz der Ozonschicht unterzeichnet, 1987 folgte die Festlegung des Montrealer Protokolls zu Substanzen, welche die Ozonschicht zerstören (Montreal Protocol on Substances that Deplete the Ozone Layer), welches den Unterzeichnerstaaten Restriktionen betreffend der Produktion ozonerstörender Substanzen auferlegte.

Nachdem die Frühjahrs-Ozonkonzentration über der Antarktis bis 1990 stetig abnahm, stabilisierte sie sich auf etwa einem Drittel ihres Wertes vor 1975. Die Prozesse, welche zur Ausbildung eines Ozonlochs über der Antarktis im Frühjahr führen, gelten heute (2003), 18 Jahre nach der Entdeckung dieses Phänomens, weitestgehend als verstanden. Größere Unsicherheiten herrschen hingegen hinsichtlich der entsprechenden Prozesse auf der Nordhalbkugel. Wegen der im Vergleich zur Südhalbkugel unterschiedlichen Land-Meer-Verteilung spielen hier zeitlich und örtlich begrenzte (mesoskalige) dynamische Prozesse eine wesentlich größere Rolle. Diese Vorgänge verhindern das dauerhafte Erreichen der selben tiefen Wintertemperaturen wie über der Antarktis und begrenzen damit den Ozonverlust. Zugleich erschweren sie aber seine messtechnische Quantifizierung. Zur Physik und Chemie der Ozonerstörung über der Antarktis bestehen damit noch viele offene Fragen, vor allem hinsichtlich folgender Problempunkte

1. Trennung zwischen dynamischen Vorgängen und chemischem Ozonverlust, d.h. Unterscheidung, ob ein verringerter Ozongehalt einer ausgewählten Luftmasse auf Einmischung ozonarmer Luft oder chemischen Vorgängen beruht. In dieser Arbeit wird vor allem auf die Tracer-Tracer-Methode eingegangen, welche unter bestimmten Bedingungen die Quantifizierung des chemischen Ozonabbaus unabhängig von dynamischen Vorgängen erlaubt. Im Abschnitt 4.5 wird gezeigt, dass im Fall des Winters 1996/97 die Anwendung dieser Methode auf die Messdaten des Satellitengeräts ILAS

ermöglicht, eine Untergrenze des chemischen Ozonabbaus in einer bestimmten polaren Luftmasse anzugeben. Im Zusammenhang mit dieser Problematik steht auch die Frage, in welchem Maße die Grenze des Polarwirbels als Transportbarriere wirkt. Das Phänomen des Polarwirbels wird im Abschnitt 2.2 erläutert.

2. Genauer Mechanismus der Bildung von Polaren Stratosphärenwolken (Polar Stratospheric Clouds, PSC). Diese festen oder flüssigen Teilchen bieten eine Oberfläche für heterogene Reaktionen und ermöglichen damit die Entstehung der Ozon-zerstörenden Chlor-Radikale. Auch über den genauen Wert der Geschwindigkeitskonstanten, insbesondere an festen Partikeln, herrschen noch große Unsicherheiten. Im Gegensatz zur Antarktis werden die nötigen tiefen Temperaturen zur Bildung von Eiskristallen über der Arktis nur selten und kurzzeitig erreicht. Bedeutung besitzen hier vor allem Partikel, welche neben Wasser HNO_3 als Hauptbestandteil enthalten und auch bei Temperaturen unterhalb der sogenannten NAT-Temperatur (T_{NAT}), etwa 7 K über dem Eis-Gerfrierpunkt, sowohl in flüssiger als auch in fester Form, als sogenanntes NAT-Teilchen, existieren können. Der experimentelle Nachweis der NAT-Teilchen in der Stratosphäre gelang allerdings erst im Jahr 2000 [Voigt et al., 2000]. Ungeklärt ist weiterhin, unter welchen Bedingungen es zur Bildung dieser NAT-Teilchen kommt und in wie weit der Aggregatzustand der Wolkenteilchen die auf ihrer Oberfläche ablaufenden Reaktionen beeinflusst. Da selbst die NAT-Temperatur häufig nur kurzzeitig unterschritten wird, spielen zudem die Zeitdauern von Bildung und Existenz bestimmter Phasen der Wolkenteilchen eine Rolle.
3. Ablauf von Wellenereignissen. Niedrige Temperaturen, welche die Bildung flüssiger oder fester PSCs gestatten, werden über der Arktis im Allgemeinen nur dann erreicht, wenn die Luftmassen dem Einfluss von Wellen unterliegen. Diese Wellen können induziert werden, wenn die Luftmassen ein Gebirge überqueren (sogenannte orographische Leewellen), aber auch inner-atmosphärische Ursachen besitzen. Damit wird der Ozonverlust über der Arktis durch meteorologische Ereignisse bestimmt, welche Wellenlängen im Kilometer- und Frequenzen im Stundenbereich besitzen, und damit in den zeitlich und örtlich geringer aufgelösten synoptischen Temperaturdaten, welche wiederum als Basis für Chemie-Modellrechnungen dienen, nicht direkt repräsentiert sind.
4. Unter bestimmten Bedingungen wurde wiederholt über der Arktis, nicht aber über der Antarktis, ein um etwa den Faktor 2 höherer chemischer Ozonverlust gemessen als durch Modelle erwartet. Es ist ungeklärt, ob diese Diskrepanz auf einen methodischen Fehler (Problempunkt 1) zurückzuführen ist oder ob tatsächlich ein stärkerer chemischer Ozonverlust vorlag als erwartet und, wenn ja, ob dessen Unterschätzung mit den Problemen 2 oder 3 zusammenhängt. Abschnitt 3.5 geht auf diese Problematik detaillierter ein..

Für Untersuchungen zu obengenannten Problemen ist es in vielen Fällen vorteilhaft, Höhenforschungsflugzeuge anstatt Forschungsballons einzusetzen, da diese das gezielte Anfliegen von Wolken oder Wellengebieten, bzw. das wiederholte Durchqueren des Polarwirbelrands gestatten. Seit dem Ende des Kalten Krieges haben sich die Möglichkeiten, ursprünglich militärische Flugzeuge zu zivilen Forschungszwecken zu nutzen, beträchtlich erweitert. Deshalb wurde auch aus dem Ballongerät zur Messung von ClO und BrO des Forschungszentrums Jülich eine Flugzeug-Variante (HALOX) entwickelt und im Herbst 2001 erstmals auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 "Geophysica" eingesetzt. Kapitel 5 geht auf die Funktionen sowohl des Ballon- als auch des Flugzeuggeräts und auf mit der Umstellung verbundene Probleme ein, und es wird der Beitrag dieser Arbeit zur Entwicklung von HALOX dargestellt.

1.2. Der TRIPLE-Ballonaufstieg vom 11. Februar 1997

Der größte Teil dieser Arbeit befasst sich mit der Auswertung der Daten des TRIPLE-Ballons, welcher am 11. Februar 1997 in Esrange bei Kiruna, Nordschweden, startete und den Randbereich des Polarwirbels (Abschnitt 2.2) erkundete. Das auf dieser Ballongondel befindliche ClO/BrO-Ballongerät des Forschungszentrums Jülich maß ein interessantes örtlich hochaufgelöstes ClO-Profil in Form eines Doppelpeaks (Abb. 6.7 auf Seite 67). Das gleichzeitig gemessene Temperaturprofil zeigte einen zu diesem Doppelpeak passenden Verlauf in Form einer stehenden Welle (Abb. 6.9 auf Seite 67). Durch weitere auf der TRIPLE-Gondel befindliche Geräte wurden örtlich hochaufgelöste Profile von Wasser und Ozon sowie Kryosammler-Messungen chlorhaltiger und anderer Verbindungen geliefert. Die gemessenen Mischungsverhältnisse wurden zur Initialisierung von Chemie-Transport-Modellrechnungen mit Hilfe des Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS), welches am Forschungszentrum Jülich entwickelt wurde, benutzt. Aus einem Vergleich von Ozon- und Kryosammler-N₂O-Profil kann zudem unter Anwendung der Tracer-Tracer-Methode eine Aussage getroffen werden, ob bereits ein chemischer Ozonverlust eingetreten ist. Im konkreten Fall kann diese Frage, wie auf Grund der meteorologischen Situation erwartet, verneint werden (Abschnitt 6.2.4), womit allerdings auch keine Aussagen zum Problempunkt 4 (siehe Ende des vorigen Abschnitts) getroffen werden können.

Die CLaMS-Simulationsrechnungen zeigen, dass eine stehende Welle das beobachtete ClO-Profil tatsächlich und überraschend gut erklären kann (Abb. 7.12 auf Seite 96). Wie im Abschnitt 6.2.11 dargelegt wird, sind zwar auch andere Erklärungen denkbar, welche aufgrund fehlender Messdaten nicht definitiv ausgeschlossen werden können. Trotzdem kann die Vermutung geäußert werden, dass am 11. Februar 1997 durch Zufall die gleichzeitige Beobachtung eines Wellenereignisses und dessen Konsequenz auf die Chemie in den betroffenen Luftmassen gelang. Wie bereits im vorigen Abschnitt erwähnt, besteht eines der Motive zum vermehrten Umstieg auf Forschungsflugzeuge im Interesse an der routinemäßigen Durchführung derartiger simultaner Beobachtungen. Flugzeugmessungen unterliegen jedoch aufgrund der notwendigen hohen Fluggeschwindigkeit prinzipiell stärkeren systematischen und statistischen Fehlereinflüssen, so dass Ballonuntersuchungen derartiger Ereignisse von großem Interesse sind. Die Auswertung der komplexen TRIPLE-Daten ermöglicht, die üblichen Auswerteverfahren für Radio-Ballonsonden, welche im Gegensatz zu TRIPLE lediglich Daten während ihres Aufstiegs und zudem keine Daten chemischer Tracer liefern, zu überprüfen.

Im Kapitel 9 wird die Theorie einer stehenden adiabatischen Welle ausführlich behandelt. Es zeigt sich, dass die Theorie nur dann in Übereinstimmung mit den Beobachtungen gebracht werden kann, wenn eine wichtige Korrekturgröße, der Korrekturfluss (9.2.3 ab Seite 110), explizit in das üblicherweise zur Behandlung adiabatischer Wellenvorgänge verwendete Gleichungssystem eingefügt wird. Die sich daraus ergebenden Schlussfolgerungen besitzen weitreichende Auswirkungen auf die im vorigen Abschnitt unter Problempunkt 1 angeschnittene Frage, in welchem Ausmaß Wellenereignisse zu Mischungsprozessen zwischen verschiedenen Luftmassen im Allgemeinen und zu Mischungen über den Rand des Polarwirbels im Besonderen führen können. Der Aufbau einer Struktur aus alternierenden „Swinging“ und „Mixing Layers“ (Abb. 9.4 auf Seite 112) im Randbereich des Wirbels kann zur Abschwächung der Wirkung des Wirbelrands als Transportbarriere führen und dafür sorgen, dass, wie durch Proffitt et al. vermutet, der Polarwirbel eher den Charakter eines Durchflussreaktors als eines geschlossenen Reaktors besitzt ([Proffitt et al., 2003], Abschnitt 4.1.3). Zudem sollte, wie die CLaMS-Simulationen ebenfalls zeigen (Abb. 7.13 auf Seite 97) das Wellenereignis zur Ausbildung von Polaren Stratosphärenwolken (PSC) geführt haben,

nähere Untersuchungen zu diesem Thema und damit zu Problempunkt 3 konnten allerdings mangels geeigneter Messdaten nicht durchgeführt werden.

1.3. Übersicht über die folgenden Kapitel

Im Kapitel 2 werden Größen und Begriffe der Stratosphärenphysik behandelt, welche für das Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Im Kapitel 3 wird die Chemie der Ozonzerstörung in Kurzform dargelegt. Kapitel 4 behandelt Methoden zu Quantifizierung des Ozonverlusts, mit Schwerpunkt auf der Tracer-Tracer-Methode auf die Messwerte des Satelliten-gestützten Geräts ILAS angewendet wird. Kapitel 5 beschreibt das ClO/BrO-Balloninstrument, welches am 11. Februar 1997 eingesetzt wurde, sowie die ab Ende 2001 eingesetzte Flugzeug-Variante HALOX. Im Kapitel 6 werden sowohl das ClO-Profil des ClO/BrO-Balloninstruments vom 11. Februar 1997 sowie auch alle übrigen Messungen der verschiedensten chemischen und physikalischen Tracer dargestellt, welche durch andere auf der TRIPLE-Gondel bzw. bei anderen Ballonaufstiegen im Umfeld eingesetzte Geräte erhalten wurden und Relevanz für die Auswertung der ClO-Struktur besitzen. Zudem wird auf Besonderheiten des 1996/97er Polarwirbels im Vergleich zu anderen Wintern und auf die meteorologische Situation um den 11. Februar 1997 eingegangen. Kapitel 7 beschreibt das Chemie-Langrange-Modell der Stratosphäre (CLaMS) und seine Anwendung auf den 11. Februar 1997. Dynamische Vorgänge ergeben sich als wahrscheinlichste Ursache für die Ausbildung der beobachteten ClO-Struktur. Kapitel 8 zeigt, welche Informationen über diese Vorgänge aus den vorhandenen Messdaten gewonnen werden können und wie sich die Vorgehensweise bei der theoretischen Behandlung dieser Prozesse in dieser Arbeit vom Vorgehen anderer Autoren unterscheidet. Das Mathematik-Kapitel 9 widmet sich ausführlich der theoretischen Behandlung adiabatischer Schwingungen der Atmosphäre mit besonderem Augenmerk auf eine stehende Welle. Kapitel 10 widmet sich der Auswertung der Messdaten anhand der Theorie des Kapitels 9. In Kapitel 11 erfolgt die Zusammenfassung der Ergebnisse der Arbeit.

2. Wichtige Größen und Begriffe

2.1. Potentielle Temperatur und Potentielle Vortizität

Die Potentielle Temperatur Θ (Theta) ist anhand der im Anhang 12.1 vorgestellten Adiabatenbeziehung (225) definiert. Sie entspricht der Temperatur, welche ein Luftpaket annehmen würde, dessen Druck trockenadiabatisch auf den Standarddruck $P_{\text{Standard}} = 1013 \text{ hPa}$ verändert wird

$$\Theta = T \left(\frac{P}{P_{\text{Standard}}} \right)^{-\left(1 - \frac{1}{\kappa}\right)} \quad (1)$$

Bei κ handelt es sich um den Adiabatenkoeffizient (1,4 für trockene Luft). Der Begriff trockenadiabatisch besagt, dass die Druck- und Temperaturänderung unter Beibehaltung der Entropie des Luftpakets, d.h. adiabatisch erfolgt, und dass zudem während dieses Vorgangs keine Änderung des Aggregatzustandes eines wichtigen Bestandteils des Luftpakets, insbesondere Wasser, stattfindet. Falls es zum Beispiel während eines adiabatischen Prozesses zum Verdampfen von Eispartikeln kommt, wird dadurch der Gasphase Wärme entzogen, und es ergibt sich eine niedrigere Temperatur als nach Gleichung (1) erwartet. Für einen derartigen sogenannten feuchtadiabatischen Prozess stellt Θ somit keine Erhaltungsgröße dar und muss durch eine sogenannte äquivalente Potentielle Temperatur ersetzt werden.

Kurzzeitige atmosphärische Wellenprozesse in der trockenen stratosphärischen Luft, deren Amplituden zu klein sind, um ein Umschlagen von einer stabilen in eine labile Schichtung zu bewirken (siehe Anhang 12.5), können allerdings als trockenadiabatisch angesehen werden. Die Potentielle Temperatur Θ (Theta), welche mit wachsender Höhe in sehr guter Näherung exponentiell anwächst (siehe Details im Abschnitt 9.1), stellt somit im Gegensatz zur Höhe eine Erhaltungsgröße und für viele Anwendungen eine geeignetere Höhenkoordinate dar. Als solche wird sie auch in dieser Arbeit häufig verwendet, der Begriff Theta-Niveau bezeichnet somit ein Niveau gleicher innerer Energie (isentropes Niveau).

Die Potentielle Vortizität (**P**otential **V**orticity), oder Potentielle Wirbelstärke, im Folgenden auch kurz als PV bezeichnet, ergibt sich aus der Kombination von drei Erhaltungssätzen: die Erhaltung des Drehimpulses, der Masse und der Energie, angewandt auf atmosphärische Wirbel. Es ergibt sich die Größe (Anhang 12.2)

$$PV = \frac{\eta}{\rho} \frac{d\Theta}{dz} = \frac{\text{rot}_z \vec{v} + f}{\rho} \frac{d\Theta}{dz} = \frac{1}{\rho} \left(\left(\frac{\partial v_y}{\partial x} - \frac{\partial v_x}{\partial y} \right) \hat{e}_z + 2\Omega \sin \Phi \right) \frac{d\Theta}{dz} \quad (2)$$

mit ρ der Dichte, $d\Theta/dz$ dem Gradient der Potentiellen Temperatur entlang der z-Achse (senkrecht zur Erdoberfläche) und η der absoluten Wirbelstärke oder Vortizität, in welche die z-Komponente des Rotors (rot) des Geschwindigkeitsfeldes in der x-y-Ebene sowie der Coriolisparameter f mit Φ dem Breitengrad und Ω der Frequenz der Erddrehung eingehen. Als Einheit ergibt sich $\text{m}^2\text{K}/(\text{kg}\cdot\text{s})$, wobei $10^{-6} \text{m}^2\text{K}/(\text{kg}\cdot\text{s})$ gewöhnlich mit PVU (Potential Vorticity Unit) abgekürzt wird. Herleitung und Bedeutung der PV werden im Anhang 12.2 dargelegt. Auf die Frage, in wie weit die PV als Erhaltungsgröße für eine bestimmte Luftmasse betrachtet werden kann, und auf die Anwendung der PV im Rahmen der RDF-Methode wird im Abschnitt 4.3 eingegangen.

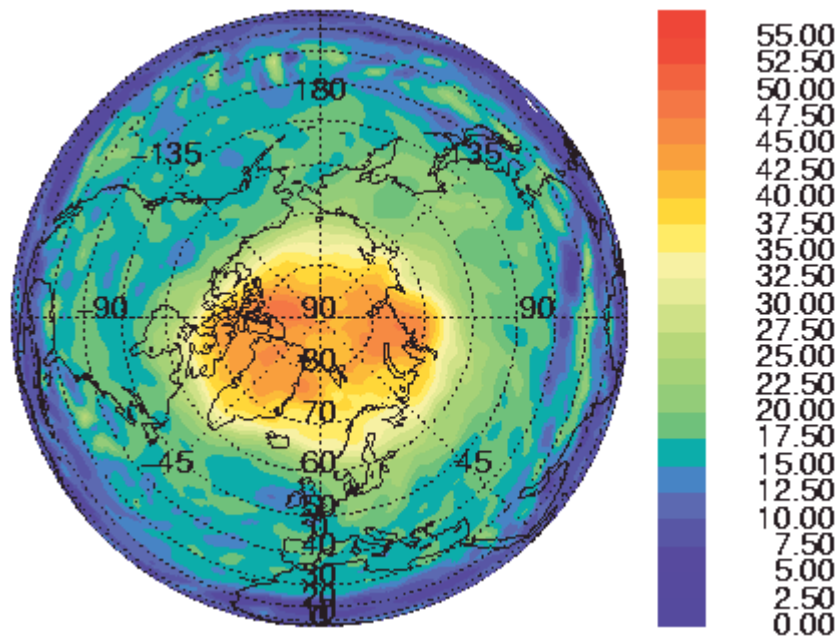


Abb. 2.1: PV (in PVU, siehe Anhang 12.2) vom 11. Februar 1997 12 Uhr GMT für das 450K-Theta-Niveau. Gezeigt sind ECMWF-Daten (siehe Abschnitt 6.2.1).

2.2. Der Polarwirbel

Bei einem Blick auf die PV-Werte auf der Nordhalbkugel der Erde am 11. Februar 1997 erkennt man deutlich einen um den Pol zentrierten Bereich hoher PV (Abb. 2.1). Dieses Gebiet wird als polarer Vortex, oder Polarwirbel bezeichnet. Auf die Charakteristiken dieses Wirbels im Vergleich zu anderen Wintern wird im Abschnitt 6.1 noch eingegangen. Dieser Wirbel bildet sich während der Polarnacht auf der jeweiligen Erdhalbkugel aus. Aufgrund der fehlenden Sonneneinstrahlung kühlen sich die polnahen Luftmassen stark ab, gleichzeitig entsteht auch ein Druckgefälle zwischen der polaren und der Mittlere-Breiten-Luft auf dem betreffenden Höhenniveau. Das entstandene Tiefdruckgebiet führt nun aufgrund der Erdumdrehung eine Rotation entgegen dem Uhrzeigersinn aus (auf der Nordhalbkugel. Siehe z. B. [Roedel, 1994] zur Erläuterung dieses Mechanismus). Diese Bewegung wird jedoch vor allem oberhalb von 30 km Höhe durch Wellenvorgänge gebremst und dabei nach Norden abgelenkt [Schoeberl & Hartmann, 1991]. Entsprechend kommt es nun innerhalb des Wirbels zum Abstieg der Luftmassen, gegebenenfalls von der Mesosphäre bis in die Troposphäre. Für den antarktischen Polarwirbel wird geschätzt, dass im Mittel fast drei Viertel der im Wirbel befindlichen Luft in die Troposphäre absteigt und nur etwa ein Viertel über die Vortexgrenze in die umgebende Stratosphäre (die Surf Zone) überwechselt [Li et al., 2002]. Der Anteil der Luft im Polarwirbel, welcher aus der Mesosphäre abgestiegen ist, unterscheidet sich von Jahr zu Jahr deutlich. Eine anschauliche Studie dazu findet sich in [Rosenfield & Schoeberl, 2001], siehe Abschnitt 6.1. Mit dem Abstieg ist zunächst eine adiabatische Druckzunahme, d.h. unter Erhalt der Potentiellen Temperatur (Theta), verbunden. Damit müsste sich ein bestimmtes Theta-Niveau am Pol auf einer niedrigeren Höhe befinden als am Äquator. Mit der Druckzunahme verbunden ist jedoch auch ein adiabatisches Anwachsen der Temperatur. Die nun gegenüber der Umgebung erhöhte Temperatur wird im Folgenden durch Infrarotstrahlung abgegeben, und der adiabatische Abstieg geht in einen diabatischen Abstieg über, d.h. der Wert der Potentiellen Temperatur des betreffenden Luftpakets verringert sich. Ein Luftpaket mit einer bestimmten Potentiellen Temperatur befindet sich damit nahe des Pols auf einer größeren Höhe als bei einem rein adiabatischem Abstieg zu erwarten.

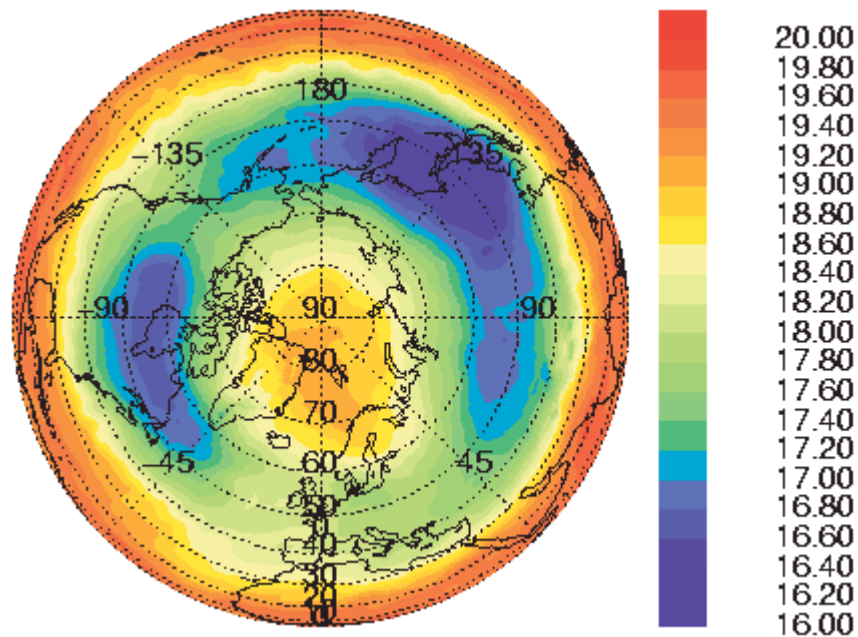


Abb. 2.2: Höhe (in km) des 450K-Theta-Niveaus am 11. Februar 1997 12 Uhr GMT. Gezeigt sind ECMWF-Daten (siehe Abschnitt 6.2.1).

In Abb. 2.2 ist die Höhenlage des 450-K-Theta-Niveaus dargestellt. Dieses Niveau erreicht seine niedrigste Höhenlage südlich von 60°N, während es im Polarwirbel (man vergleiche mit der PV-Karte, Abb. 2.1) sich fast auf der selben Höhe befindet wie in den Tropen.

Kompensiert wird der Abstieg der Luft in hohen Breiten im Polarwinter durch einen Aufstieg in den Tropen. Diese gigantische Umwälzung der Atmosphäre wird als Dobson-Brewer-Zirkulation [Brewer, 1949, Dobson, 1956] bezeichnet, die Umwälzzeit beträgt etwa 5 Jahre [Solomon, 1999]. Der Antriebsvorgang (Störung der Westwinde im Polarwirbel durch Wellen) wird als „extratropical pump“ [Holton et al., 1995] bezeichnet.

Der Bereich der höchsten Stabilität des Polarwirbels beginnt wenige Kilometer oberhalb der Tropopause, wo dynamische Störungen aufgrund troposphärischer Vorgänge bedeutungslos werden, und endet auf einer Höhe von etwa 30 Kilometer, wo der Bereich häufiger Brechung planetarer Wellen einsetzt [Schoeberl & Hartmann, 1991]. Die in diesem Bereich des Polarwirbels befindliche Luft tauscht sich kaum mit der Umgebungsluft aus und wird somit unter Umständen gezwungen, sich monatelang im Bereich absoluter Dunkelheit oder zumindest Dämmerung aufzuhalten. Ein möglichst stabiler, lange Zeit existierender und polzentrierter Polarwirbel stellt damit, wie im Kapitel 3.2 noch behandelt wird, auch eine maßgebliche Bedingung für die Entstehung eines intensiven Ozonlochs dar. Diese Bedingung war bisher über der Antarktis seit dem Beginn der großräumigen Datenerfassung per Satellit in jedem Winter erfüllt, bisher wurde nur einmal, im September 2002 [Allen et al., 2003, Sinnhuber et al., 2003], eine zeitweilige Spaltung des Südpolarwirbels und als Konsequenz ein Eindringen von Luft aus mittleren Breiten bis in Polnähe beobachtet. Aus diesem Grund bildete sich das Ozonloch über der Antarktis zuerst aus. Die Ozonkonzentration, welche im Frühjahr über der Antarktis beobachtet wird, nahm seit 1975 stetig ab. Sie stellt damit in erster Näherung eine Funktion des Gehalts an chlorhaltigen Verbindungen in der Stratosphäre dar. Da sich der Chlorgehalt Ende der 90er Jahre auf einen konstanten Wert eingepiegelt hat [Rinsland et al., 2003], sollte entsprechend auch der negative Ozontrend zum Stillstand gekommen sein, und nach dem Jahr 2015 wird eine Wiederzunahme erwartet [WMO, 1999]. Über der Arktis hingegen ist der Polarwirbel in Bezug auf Ausbildung und Stabilität

wesentlich variabler. Hier stellt der Ozonverlust in erster Näherung eine Funktion der meteorologischen Bedingungen dar, und es ist unmöglich, den Ozonverlust ohne Beachtung der Dynamik zu berechnen [WMO, 1999]. Der arktische Wirbel des Winters 1996/97 allerdings entsprach eher antarktischen Bedingungen, wie im Abschnitt 6.1 dargestellt wird.

Wie im Abschnitt 4.3 noch dargelegt wird, stellt die Potentielle Vortizität unter bestimmten Bedingungen, eine Erhaltungsgröße dar. Je mehr sich zwei Luftmassen in ihren PV-Werten unterscheiden, um so geringer ist ihre Tendenz, sich zu vermischen. Als Grenze zwischen dem Polarwirbel und der Umgebungsluft wird entsprechend die Linie des stärksten PV-Gradienten (als Funktion der Entfernung in der Horizontalebene) auf einem bestimmten Höhenniveau festgelegt [Nash et al., 1996]. Wie aus Abb. 2.1 auf Seite 12 zu erkennen, befand sich Nordskandinavien (nördlich von 65°N und östlich von 0°) und damit auch die Route des TRIPLE-Ballons am 11. Februar 1997 im Randbereich des Wirbels. Zudem wird die PV auch in der Vertikalen zur Definition der Tropopause als Trennlinie zwischen Troposphäre und Stratosphäre verwendet. Darauf wird im Abschnitt 2.3 eingegangen.

2.3. Die Definition der Tropopause

Es soll nun die Frage geklärt werden, ob der Höhenbereich, in welchem die Ballonmessung vom 11. Februar 1997 erfolgte, bereits zur Stratosphäre oder noch zur Troposphäre zu zählen ist. Dazu muss die Definition der Tropopause, der Trennlinie zwischen Troposphäre und Stratosphäre, betrachtet werden.

Im Jahr 1902 führten Leon Teisserenc de Bort und Richard Aßmann unabhängig voneinander Ballonsondenaufstiege durch und entdeckten dabei, dass ab einer Höhe von etwa 11 km die Temperatur der Atmosphäre mit wachsender Höhe wieder zunimmt [Teisserenc de Bort, 1902, Assmann, 1902]. Ursache der Umkehrung des Temperaturgradienten ist die Umwandlung der Energie der UVB-Strahlung der Sonne in Wärmeenergie infolge der Absorption in der bereits seit 1881 (siehe Abschnitt 1.1) bekannten Ozonschicht. Teisserenc de Bort erkannte auch den Zusammenhang zwischen Temperaturgradient und vertikaler Stabilität der Atmosphäre, auf welchen im Anhang 12.5 eingegangen wird, und gab entsprechend den Atmosphärenschichten Troposphäre (trope, griechisch: Wendung) und Stratosphäre (stratos, griechisch: geschichtet) sowie der zwischen beiden Bereichen liegenden Trennschicht Tropopause ihren Namen. Ozonschicht und Stratosphäre stehen somit in einem ursächlichen Zusammenhang. Eine Verringerung der Ozonschicht resultiert damit nicht nur in einer erhöhten UV-Bestrahlung der Erdoberfläche, sondern auch in einer Verminderung der Schichtungsstabilität der Stratosphäre, mit Konsequenzen für das Klima an der Erdoberfläche [Norton, 2003]. Festgestellte zeitliche Koinzidenzen von plötzlichen dramatischen Klimaänderungen in der Erdgeschichte und Abschwächungen des Erdmagnetfeldes [Mangini et al., 2001] könnten ihre Erklärung darin finden, dass eine Verminderung der Abschirmungswirkung des Magnetfeldes einen verstärkten Eintrag kosmischer Teilchen in die Stratosphäre gestattete, welche hier Ozon-zerstörende Prozesse (z. B. durch verstärkte Wolkenbildung) auslösten. Die Überprüfung derartiger Theorien ist jedoch schwierig, da bislang trotz diverser Ansätze (Flavonoid-Konzentration in antarktischen Moosen [Markham et al., 1990, Tevini, 1994]), kein eindeutiger Geo- oder Bioindikator für die UVB-Strahlenbelastung gefunden wurde, welcher eine Rekonstruktion der Dichte der Ozonschicht selbst in der jüngsten Vergangenheit erlauben würde.

Die thermische Definition der Tropopause wurde durch die WMO (World Meteorological Organization) wie folgt präzisiert: Als Tropopause wird die niedrigste Höhe festgelegt, oberhalb derer die Temperatur weniger als 2 K pro Kilometer abnimmt und diese maximale Abnahmerate zudem auf den nächsten zwei Kilometern oberhalb dieser Höhe nirgends wieder überschritten wird [WMO, 1986]. Die Tropopause ist somit als zweidimensionales Objekt

definiert. In mittleren und hohen Breiten ist die Tropopause häufig durch eine Temperaturinversion charakterisiert. Die Temperatur wächst unmittelbar über der Tropopause um bis zu 4 K an, womit sich hier ein Bereich hoher Schichtungsstabilität (siehe Anhang 12.5) mit einer Dicke von bis zu 2 km ausbildet. Diesen Verhalten konnte in 85% aller zwischen 1990 und 1999 bei täglichen Ballonsonden-Aufstiegen über Süddeutschland erhaltenen Temperaturprofilen beobachtet werden [Birner et al., 2002] und trat auch am 11. Februar 1997 auf (Abb. 6.10 und Abb. 6.11). Die Temperaturinversion entsteht, da die obere Troposphäre in größerem Maße dynamischen Vorgängen (Wirbel) unterliegt, welche eine abkühlende Wirkung haben. Die Luft der unteren Stratosphäre hingegen erwärmt sich während ihres diabatischen Abstiegs [Birner et al., 2002]. Eine Verstärkung der Inversion, wie z. B. unmittelbar vor dem TRIPLE-Aufstieg am 11. Februar 1997 wird häufig zu Beginn eines Wellenereignisses beobachtet [Kivi et al., 2001]. Oberhalb der Inversion fällt die Temperatur in einem Bereich mit einer Dicke von etwa 10 km nochmals geringfügig ab, bis schließlich der Umkehrpunkt des Temperaturgradienten erreicht wird.

Für die Atmosphärenchemie von primärem Interesse ist nicht unbedingt die kritische Änderung eines Temperaturgradienten, sondern vielmehr die Scheidefläche zwischen der Luft von typisch troposphärischer und stratosphärischer Zusammensetzung. Damit kann die Tropopause im Prinzip anhand eines ausgewählten Tracers wie Ozon [Bethan et al., 1996] oder FCKW [Bujok, 1998] definiert werden. Allerdings kann die Lage einer solchen „Chemopause“ nur punktuell mittels Ballonsonden genau bestimmt werden. Zum anderen würde diese Definition nicht gestatten, einen Transport dieses Tracers über die Tropopause hinweg zu quantifizieren. Da die Tropopause keine hermetische Trennschicht darstellt, liefern Messungen eines einzelnen Tracers im Allgemeinen keine scharfe Trennlinie. Besser geeignet zur Festlegung einer chemischen Tropopause ist die simultane Messung zweier Tracer, welche in der Troposphäre und der Stratosphäre deutlich unterschiedliche Tracer-Tracer-Beziehungen aufweisen (dieses Konzept wird im Kapitel 4.2 erläutert), wie z. B. Ozon und Kohlenmonoxid. Aber selbst mit dieser Methode erhält man keine scharfe Chemopause, sondern vielmehr einen Mischbereich (Mixing Layer) um die thermische Tropopause, welcher eine vertikale Ausdehnung von bis zu 7 km erreichen kann [Pan, 2003].

Der Aufbau einer Transportbarriere zwischen beiden Atmosphärenschichten ist ein Phänomen der Atmosphärendynamik, welches primär mit dem Temperaturgradienten im Zusammenhang steht (siehe Anhang 12.5), aber nicht ausschließlich durch diesen bestimmt ist. Damit bietet es sich an, eine sogenannte dynamische Tropopause zu definieren, welche anhand einer kritischen Potentiellen Vortizität (PV) festgelegt ist. Die Definition (2) der Potentiellen Vortizität (PV) kann mit Hilfe der noch einzuführenden Beziehungen (68), (276) und (278) umgeschrieben werden zu

$$PV = \frac{\eta}{\rho} \frac{d\Theta}{dz} = \frac{\eta}{\rho} \frac{\Gamma - \gamma}{T_0} \Theta \quad (3)$$

mit $\Gamma = 9,8 \text{ K/km}$ dem adiabatischen Temperaturgradient und γ dem wahren Temperaturgradient. Während die Änderung der Lage der Tropopause nach der thermischen Definition stets mit einer Änderung von γ als Funktion der Höhe verbunden ist, reagiert die Lage der dynamischen Tropopause auf Änderungen des Vertikalprofils sowohl der Temperatur als auch der kinetischen Energie, wofür die absolute Vortizität η ein Maß darstellt [Birner et al., 2002]. Die WMO empfiehlt als dynamische Tropopause die Fläche, auf welcher die PV gerade einen Wert von 1,6 PVU annimmt [WMO, 1986]. Diese Definition ist allerdings willkürlich und kann nur als Groborientierung dienen, da sich Filamente aus der Stratosphäre herauslösen können, welche in Einzelfällen ozonreiche Luft bis an die

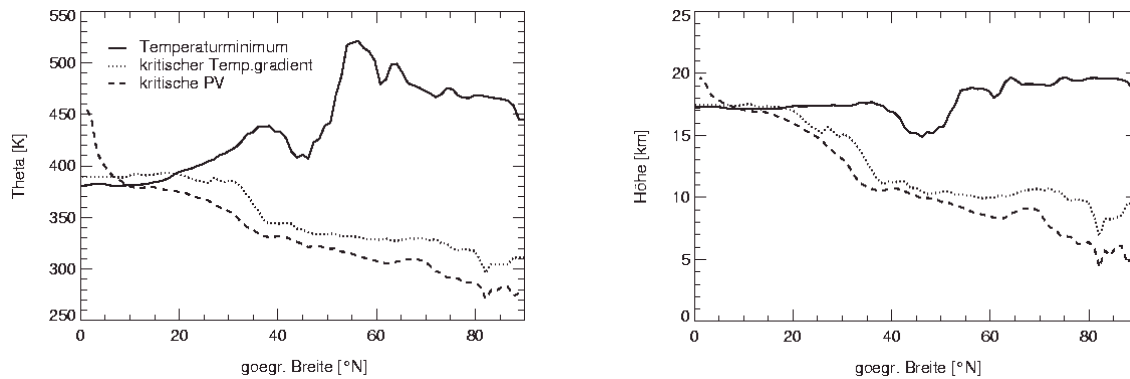


Abb. 2.3 a und b: Lage der Tropopause nach den ECMWF-Daten (s. Abschnitt 6.2.1) am 11.2.1997 12 Uhr GMT auf der Nordhalbkugel. Geplottet wurden die Lage des Temperaturminimums sowie die Tropopause nach der Temperaturgradient-Definition und der PV-Definition. Die kritischen Höhen bzw. Theta-Niveaus wurden für jeden Punkt im Länge-Breite-Gitter bestimmt und anschließend über alle geographischen Längen gemittelt.

Erdoberfläche transportieren können und welche ihre hohen stratosphärischen PV-Werte nur allmählich durch Vermischung an die troposphärische Umgebung anpassen [Stohl et al., 2000, Stohl et al., 2003].

Abb. 2.3 zeigt die Lage des Umkehrpunkts des Temperaturgradienten sowie die Verläufe der Tropopause als Funktion der geographischen Breite nach den beiden Definitionen (kritischer Temperaturgradient, kritische PV) am 11.2.1997 12 Uhr GMT auf der Nordhalbkugel. Die beiden Definitionen stimmen in ihrer Lage in der Stratosphäre fast miteinander überein, wobei die Abweichung zum Pol zunimmt, während der Umkehrpunkt des Temperaturgradienten vor allem in den polaren Breiten deutlich über der Tropopause liegt. In den untersten Schichten der Stratosphäre findet man deshalb noch einen leichten Temperaturabfall mit zunehmender Höhe. Über dem Äquator befindet sich die Tropopause im Allgemeinen in einer Höhe von 16 bis 18 km Höhe, in den gemäßigten und polaren Breiten hingegen nur in einer Höhe von 8 bis 12 km Höhe.

Die Tatsache, dass die Tropopause nicht entlang eines einheitlichen Theta-Niveaus verläuft, bedeutet zudem, dass in bestimmten Theta-Niveaus theoretisch Luftmassen von der Stratosphäre in die Troposphäre und umgekehrt gelangen können, ohne ihre Potentielle Temperatur und damit ohne ihre innere Energie zu verändern. Ändern müssen sie allerdings ihre PV und damit ihre kinetische Energie, der Vortexrand funktioniert deshalb auch in diesem Bereich als effektive Transportbarriere. Hoskins definierte diesen Bereich als Mittelwelt (middleworld), und die darüber bzw. darunter liegenden Bereiche von Stratosphäre bzw. Troposphäre als Ober- bzw. Unterwelt (overworld und underworld) [Hoskins, 1991]. Holton bearbeitete die Idee nochmals, nach ihm bezeichnet man den oberhalb der Tropopause liegenden Teil der Mittelwelt, welcher sich an den Polen von etwa 300 bis 380 K erstreckt, auch als unterste Stratosphäre (lowermost stratosphere) [Holton et al., 1995].

Die Ballonmessung vom 11. Februar 1997 erfolgte in einem Höhenabschnitt, welcher durch zwei kritische Punkte begrenzt wird, der Tropopause bei etwa 11 km Höhe oder 320 K Potentieller Temperatur, und dem Vorzeichenwechsel des Temperaturgradienten bei etwa 22 km Höhe oder 550 K Potentieller Temperatur (siehe Abb. 6.10 und Abb. 6.11). An beiden Punkten ändern sich die Exponenten, welche die Höhenabhängigkeit von Temperatur, Dichte und Druck beschreiben (Abb. 10.4) und alle sich daraus ergebenden Parameter abrupt. Diese Tatsache besitzt Bedeutung für die Dynamik dieses Bereichs. Signifikant von Null verschiedene CIO-Werte wurden oberhalb von 430 K gemessen, das CIO-Profil beginnt somit deutlich oberhalb der untersten Stratosphäre (lowermost stratosphere) und damit oberhalb des für isentrope Austauschprozesse zugänglichen Bereichs.

3. Die Chemie der Ozonzerstörung

3.1. Einbringen von Chlor in die Stratosphäre

Im nun folgenden Kapitel sollen die Prozesse beschrieben werden, welche für das Entstehen des polaren Ozonlochs verantwortlich gemacht werden. Die Konzentration soll dabei auf die Vorgänge erfolgen, an welchen chlorhaltige Substanzen beteiligt sind, da zum einen diese Prozesse den größten Teil des Ozonabbaus in der unteren Stratosphäre verursachen, zum anderen in dieser Arbeit die Auswertung einer Messung der Chloraktivierung diskutiert wird.

Chloratome, welche in die unterschiedlichsten Moleküle eingebunden sind, sind in der Stratosphäre etwa gleichmäßig verteilt. Während der ATMOS/ATLAS-3-Mission wurde im November 1994 im Höhenbereich zwischen 16,5 und 50 km Höhe ein globaler Mittelwert von $3,53 \pm 0,1$ ppbv ermittelt, wobei die Werte am oberen Ende der Stratosphäre nur um etwa 6% geringer sind als unmittelbar oberhalb der Tropopause [Zander et al., 1996]. Das Gesamt-Chlorbudget kann in mehrere Untergruppen aufgeteilt werden:

- Organisches Chlor. Darunter versteht man alle Chloratome, welche in die sogenannten Chlorkohlenwasserstoffe (CKW) oder Halocarbone eingebunden sind. Praktisch das gesamte heute in der Stratosphäre befindliche Chlor gelangte ursprünglich in Form von organischem Chlor aus der Troposphäre in die Stratosphäre. Vulkane trugen in den vergangenen Jahrzehnten nicht signifikant zum Chlorbudget der Stratosphäre bei [Russell et al., 1993, WMO, 1999]. Graedel und Crutzen schätzten 1994 den jährlichen CKW-Eintrag in die Stratosphäre auf 0,24 Tg (Terragramm) [Graedel & Crutzen, 1994]. In der Troposphäre erreichte der CKW-Gehalt bereits zwischen 1992 und 1994 sein Maximum und nahm danach aufgrund der Boykottmaßnahmen ab [Montzka et al., 1996, WMO, 1999]. Aufgrund des im Vergleich zur Troposphäre langsamen Vertikaltransports ist der stratosphärische Trend je nach geographischer Breite und Höhe über der Erdoberfläche um 3 bis 6,5 Jahre verzögert [Russell et al., 1996, WMO, 1999].
- Anorganisches oder verfügbares Chlor, auch als Cl_y bezeichnet. Dieses entsteht in der Stratosphäre durch die photochemische Zerlegung von CKW. Pro Jahr werden auf diese Weise etwa 0,16 Tg Cl_y -Atome erzeugt, während aus anderen natürlichen und anthropogenen Quellen nur 0,03 Tg Cl_y pro Jahr neu in die Stratosphäre gelangen. Umgekehrt werden 0,2 Tg Cl_y pro Jahr, also etwa die selbe Menge, aus der Stratosphäre entfernt [Graedel & Crutzen, 1994]. Nur Cl_y steht für die Beteiligung an chemischen Reaktionen zur Verfügung (daher der Name „verfügbares Chlor“), damit stellt eine ausreichende Konzentration an Cl_y die erste entscheidende Bedingung für die Ausbildung des Ozonlochs dar. Cl_y wird wiederum unterteilt in die Untergruppen
 - Chlorreservoirsubstanzen (HCl und ClONO_2)
 - Aktives Chlor, auch als Cl_x bezeichnet

1928 erhielt der Chemiker Thomas Midgley von General Motors den Auftrag, ein ungiftiges und unbrennbares Kältemittel zu entwickeln [Morley, 1999]. Die Lösung bestand im teilweisen oder vollständigen Austausch der Wasserstoffatome von Kohlenwasserstoffen durch Halogenatome (Fluor, Chlor, Brom oder Jod). Diese Verbindungen werden heute allgemein als halogenierte Kohlenwasserstoffe oder Halocarbone bezeichnet. Die Bezeichnung organisches Chlor beruht entsprechend auf der strukturellen Analogie zu Kohlenwasserstoffen. Bestimmte Halocarbone wurden zu Untergruppen zusammengefasst:

1. Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW, englisch CFC, oder auch Freon): Bestehen ausschließlich aus Kohlenstoff, Chlor und (mit einigen Ausnahmen) Fluor. Die erste unter Leitung von Midgley zur Industriereife entwickelte Verbindung war CCl_2F_2 . Außer als

Kühlmittel fanden FCKW Verwendung als Treibgase für Sprühflaschen und bei der Produktion von Kunststoffschäumen, als Mittel zur chemischen Reinigung von Bekleidung sowie als Reinigungs- und Fettlösemittel in der Industrie, insbesondere in Reinräumen [Jakobi, 1988].

2. Teilhalogenierte FCKW (HFCKW, engl.: HCFC): wie FCKW, enthalten aber in mindestens einer Position Wasserstoff. Zu dieser Gruppe zählt auch Methylchlorid (CH_3Cl). 94% der CH_3Cl -Emissionen sind natürlichen Ursprungs [Lee-Taylor et al., 2001], CH_3Cl trägt mit etwa 14% damit als einzige natürliche Substanz signifikant zum stratosphärischen Budget an organischem Chlor bei [Schauffler et al., 2003].
3. Fluorkohlenwasserstoffe (FKW, engl. HFC): Bestehen ausschließlich aus Kohlenstoff, Fluor und in der Regel Wasserstoff.
4. Halone: Enthalten mindestens ein Bromatom. Sie werden hauptsächlich als Feuerlöschmittel eingesetzt. Die Löschwirkung beruht dabei nicht, wie bei CO_2 , auf der Erstickung des Feuers, sondern auf einem anti-katalytischen Stoppen der Verbrennungsreaktionen durch die unter hohen Temperaturen freigesetzten Bromradikale. Eine 5-7%ige Halonkonzentration in der Luft ist deshalb im Allgemeinen ausreichend zum Löschen des Feuers (CO_2 30-40%) [Jakobi, 1988].

Der große Vorteil der Halocarbone, die aufgrund der äußerst stabilen C-F- und C-Cl-Bindungen chemische Inertheit in der Troposphäre unter Normalbedingungen, und damit ihre Unbrennbarkeit und Ungiftigkeit (abgesehen von einer narkotischen Wirkung [Jakobi, 1988]), birgt jedoch auch ihre größte Gefahr in sich: Da sie in der Troposphäre nicht vernichtet werden, können sie sich hier ungehindert ausbreiten (und dabei auch als Treibhausgase wirken) und weiter in die Stratosphäre aufsteigen. Hier kommt es nun unter der Wirkung der hier wesentlich stärkeren UV-Strahlung und unter Mitwirkung von Sauerstoff und OH-Radikalen zu folgendem Prozess, hier am Beispiel CFCl_3



HF ist auch unter stratosphärischen Bedingungen quasi inert. Damit spielen Fluoratome für die Chemie der Stratosphäre praktisch keine Rolle, und aus diesem Grund wurden FKW neben teilhalogenierten und jodierten Kohlenwasserstoffen (welche aufgrund der geringeren Stabilität von C-H- und C-I-Bindungen bereits in der Troposphäre nicht chemisch inert sind) als unschädlicher Ersatzstoff für Kühlmittel vorgeschlagen [WMO, 1995].

Die entstandenen Radikale Cl und ClO werden zunächst komplett in die beiden sogenannten Chlor-Reservoirsubstanzen HCl und ClONO_2 überführt (die Kennzeichnung der Radikale wird im Folgenden weggelassen).



Reaktion (5) verläuft dabei im Allgemeinen am schnellsten, HCl hingegen ist die stabilere Verbindung. zeigt den bei der ATMOS/ATLAS-3-Mission [Zander et al., 1996] Anfang November 1994 zwischen 35°N und 49°N gemessenen Gesamt-Chlorgehalt (Cl_{TOT} in Abb. 3.1) und die Mischungsverhältnisse von HCl, ClONO_2 und weiteren Chlorspezies. Bei 27 km Höhe erreicht das ClONO_2 -Mischungsverhältnis ein Maximum von etwa 0,8 ppbv. Unterhalb

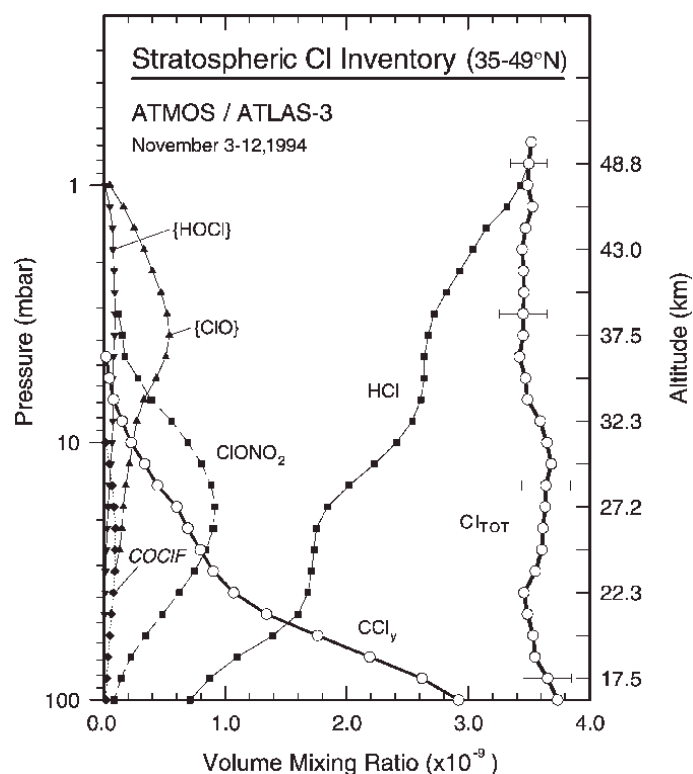


Abb. 3.1 Chlorbudget, gemessen während der ATMOS/ATLAS-3-Kampagne [Zander et al., 1996] vom 3.-12. November 1994 zwischen 35 und 49°N. Cl_{TOT} bezeichnet den Gesamt-Chlorgehalt, CCl_4 organisches Chlor (CKW). Abbildung ist entnommen aus [WMO, 1999].

dieser Höhe liegt das ClONO_2 -Mischungsverhältnisse etwa 1 ppbv unter dem von HCl. Diese Feststellung wird in den Abschnitten 6.2.2 und 7.5 noch verwendet.

Die Zerlegung Brom- und Jod-haltiger Halocarbone erfolgt nach demselben Muster. Allerdings sind die entsprechenden Reservoirspezies, die Wasserstoffverbindungen HBr und vor allem HI, von geringer Stabilität. Aufgrund photochemischer Modelle wird angenommen, dass deshalb Br_y (verfügbares Brom) auf allen geographischen Breiten und zu allen Jahreszeiten tagsüber zu etwa 30-70% in Form der aktiven Verbindung BrO vorliegt [Lary, 1996b, Pundt et al., 2002]. Die Annahmen zur Partitionierung der Br_y -Familie konnten allerdings bislang noch nicht überprüft werden, da ausschließlich BrO routinemäßig in der Stratosphäre gemessen werden kann. Für Jod wird erwartet, dass es tagsüber sogar fast zu 100% in Form von IO vorliegt [Solomon et al., 1994]. Die Tatsache, dass Brom und Jod im Gegensatz zu Fluor und Chlor eine geringe Tendenz zur Einbindung in eine leicht auswaschbare Wasserstoffverbindung (HCl, HBr etc.) zeigen, hat zudem folgende Konsequenz: Chlor kann fast ausschließlich in Form des reaktionsträgen organischen Chlors in die Stratosphäre eingetragen werden, da alle reaktiveren troposphärischen Chlorverbindungen noch in der Troposphäre in HCl umgewandelt und anschließend ausgewaschen werden. Im Fall von Brom hingegen können auch reaktivere troposphärische Bromverbindungen vulkanischer und anderer Herkunft die Stratosphäre erreichen und zum Brombudget signifikant beitragen [Bobrowski et al., 2003].

3.2. Chloraktivierung in den Polaren Stratosphärenwolken

Der folgende wichtige Reaktionsschritt ist die sogenannte Chloraktivierung, die Umwandlung der Chlorreservoirs HCl und ClONO_2 in aktives Chlor Cl_x . In der Gasphase laufen die Reaktionen, welche hierfür eine Rolle spielen, nur sehr langsam ab. Mit Gasphasen-Chemie allein lässt sich das Ozonloch deshalb nicht erklären. Vielmehr handelt es sich bei der

Chloraktivierung um einen heterogenen Prozess, d.h. die Reaktionen laufen an der Oberfläche von festen oder flüssigen Wolkenteilchen ab. Stratosphärenwolken bilden sich im kältesten Abschnitt der Stratosphäre und treten damit vor allem während der Polarnacht gehäuft auf. Hier werden sie als Polare Stratosphärenwolken oder PSC (Polar Stratospheric Clouds) oder auch als Perlmutterwolken bezeichnet, welche in den Abend- und Morgenstunden einen schönen Anblick bieten, da sie noch bzw. schon vom Sonnenlicht erreicht werden, wenn auf der Erde Dunkelheit herrscht, und dabei zudem von unten beleuchtet werden. Sie sind allerdings nicht zu verwechseln mit den sogenannten nachleuchtenden Wolken (noctilucent clouds NLC), welche in der Mesopausenregion entstehen. An der Oberfläche der festen oder flüssigen Wolkenteilchen werden die Chlor- oder auch Brom-Reservoirsubstanzen adsorbiert.

Die Hauptbestandteile dieser festen oder flüssigen Wolkenteilchen bilden Wasser, Salpetersäure (HNO_3) und Schwefelsäure (H_2SO_4). Der erste Schritt zu ihrer Bildung ist die sogenannte Nukleation. Dabei können sich nur eine einzige (homomolekulare Nukleation) oder auch mehrere gasförmige Substanzen (heteromolekulare Nukleation) gemeinsam aus der Gasphase zu einem Partikel umformen. Die Nukleation kann zudem heterogen verlaufen, d.h. Moleküle der Gasphase setzen sich auf einem festen oder flüssigen Kondensationskeim ab, aber auch die homogene Nukleation ist möglich, d.h. ohne Beteiligung eines solchen Keimes. Insgesamt ergeben sich damit theoretisch vier Kombinationsmöglichkeiten [Seinfeld & Pandis, 1998]. Heterogene und heteromolekulare Nukleationen können allerdings in vielen Fällen leichter ablaufen und stabilere Produkte bilden. Homogene Nukleationen dagegen treten nur im Fall extremer Übersättigung oder dem Fehlen von Kondensationskeimen auf, und eine homomolekulare Nukleation kann für bestimmte Gasphasen-Spezies sogar ausgeschlossen sein. Dies gilt typischerweise für saure Moleküle, welche hygroskopisch wirken und sich somit stets gemeinsam mit Wasser anlagern [Turco et al., 1982].

Das wichtigste Basismaterial für stratosphärische Aerosole stellt das binäre System aus H_2SO_4 (Schwefelsäure) und H_2O dar. Dieses kann sowohl in flüssiger als auch in fester Form vorliegen, wobei die stabilste feste Verbindung Schwefelsäure-Tetrahydrat darstellt (Sulfuric Acid Tetrahydrate, $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$). So bestehen in der sogenannten Junge-Schicht [Junge et al., 1961], einem Bereich erhöhter Aerosol-Konzentration in einer Höhe von 15 bis 30 km und einer Dicke von 3 bis 9 km [Whitten et al., 1980], mehr als 80% der Partikel aus einer Kombination von 75% H_2O und 25% H_2SO_4 [Hamill et al., 1997, Khosrawy, 2001]. Diese Aerosole können nun unter den Bedingungen der winterlichen polaren Stratosphäre große Mengen an H_2O und HNO_3 aufnehmen und damit anwachsen und dabei gegebenenfalls gefrieren und/oder aufgrund ihres Eigengewichts aus der Stratosphäre ausfallen. Falls die entstandenen Wolkenteilchen in größerer Menge auftreten, spricht man von den oben bereits erwähnten Polaren Stratosphärenwolken (PSC). Die Klassifizierung dieser Wolken erfolgt üblicherweise anhand von Partikel-Depolarisationsverhältnis und Rückstreuverhältnis, welche bei einer Vermessung dieser Wolken mittels eines LIDAR-Instruments simultan ermittelt werden. Zunächst werden die PSC unterteilt in PSC II (bilden sich bei Temperaturen unterhalb des Eis-Frostpunkts und weisen sowohl ein hohes Partikel-Depolarisationsverhältnis als auch ein hohes Rückstreuverhältnis auf) und PSC I (bilden sich bei Temperaturen knapp oberhalb des Eis-Frostpunkts). PSC I bestehen überwiegend aus Salpetersäure (HNO_3). Unter Vernachlässigung einiger seltener Sonderfälle [Tsias et al., 1999] werden sie nochmals unterteilt in PSC Ia und PSC Ib. Im Fall von PSC Ib wird aufgrund des niedrigen Partikel-Depolarisationsverhältnisses bei hohem Rückstreuverhältnis auf ein Dominieren von flüssigen $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}/\text{HNO}_3$ -Aerosolen (sogenannte supercooled ternary solutions, STS) geschlossen. Im Fall von PSC Ia herrscht das umgekehrte Verhältnis zwischen beiden Messgrößen, was auf einen hohen Anteil fester Salpetersäure-Hydrat-Teilchen hindeutet [Peter, 1997, Reichardt et al., 1999]. Von den möglichen festen Teilchen

sind dabei unter stratosphärischen Bedingungen die sogenannten NAT-Teilchen thermodynamisch am stabilsten [Hanson & Mauersberger, 1988]. NAT steht für Salpetersäure-Trihydrat (Nitric Acid Trihydrate, $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$). Andere Hydrate wie NAD (Nitric Acid Dihydrate, $\text{HNO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) oder NAM (Nitric Acid Monohydrate, $\text{HNO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) weisen jedoch geringere Nukleationsbarrieren auf und können, wie durch Laborversuche nachgewiesen wurde [Saathoff et al., 2001], als metastabile Zustände existieren.

Prinzipiell können PSC auch auf Basis ihres Absorptionsspektrums, welches aus den Daten des ILAS-Satellitengeräts (siehe Abschnitt 6.2.1) analysiert werden kann, klassifiziert werden. Eine entsprechende Studie wurde durch Lee et al. vorgelegt [Lee et al., 2003]. Ein direkter Vergleich zwischen terrestrischen LIDAR-Messungen und ILAS-Beobachtungen ist allerdings aufgrund der geringen Anzahl örtlich und zeitlich übereinstimmenden Messpunkte schwierig.

Die Bildungstemperatur für NAT-Teilchen liegt in der unteren Stratosphäre, abhängig von den Partialdrücken von H_2O und HNO_3 , etwa 5-10 K über dem Eis-Frostpunkt (zur Berechnung beider Schwelltemperaturen siehe Abschnitt 6.2.3.). So hatten die Luftmassen, welche am 11. Februar 1997 durch den TRIPLE-Ballon untersucht wurden, zu keinem Zeitpunkt den Eis-Frostpunkt, sehr wohl aber die NAT-Schwelltemperatur unterschritten. Damit konnten entlang der Ballonroute, wenn überhaupt, ausschließlich PSC I auftreten. Ob sich allerdings tatsächlich PSC ausgebildet haben, und wenn ja von welchem Typ, lässt sich nicht feststellen, da keine entsprechenden Messungen existieren.

Auch im Allgemeinen bestehen über die genaue Zusammensetzung der Wolkenteilchen, ihren Aggregatzustand, die zu ihrer Bildung führenden Mechanismen, ihre Oberflächenbeschaffenheit (im Fall fester Körper) und die Geschwindigkeitskonstanten der Adsorption und der Reaktionen an ihrer Oberfläche trotz zahlreicher theoretischer und Laborstudien und In-Situ-Messungen noch große Unklarheiten [Koop et al., 1995, Peter, 1997]. Die Laborsimulation gestaltet sich äußerst schwierig, da stratosphärische Bedingungen (Temperatur und Druck) nur in kleinen Räumen hergestellt werden können und Wandkontakte somit das Ergebnis beeinflussen. Die Partikelbildung und die an den Oberflächen dieser Partikel stattfindenden heterogenen Reaktionen, welche zur Bildung des Ozonlochs beitragen, gehören auch zu den Prozessen, über welche die größten Unsicherheiten bestehen. So kam der 1999 erschienene Report der World Meteorological Organization [WMO, 1999] im Kap. 7 u.a. zu folgenden Schlussfolgerungen:

- Der einzige Festkörper, welcher nachweislich in der Stratosphäre entsteht, ist Wassereis.
Erst seit der SOLVE/THESEO-Kampagne im Winter 1999/2000 in Kiruna/Nordschweden kann diese Feststellung revidiert werden. Bei einem Ballonaufstieg am 25. Januar 2000 gelang erstmals die zweifelsfreie Detektion der theoretisch schon lange erwarteten festen NAT-Partikel [Voigt et al., 2000]. Zudem anderen wurden HNO_3 -haltige Partikel entdeckt, bei welchen es sich aufgrund ihrer Größe (Radius bis zu $10\text{ }\mu\text{m}$) und der herrschenden Temperaturen (teilweise über dem Eis-Frostpunkt) ebenfalls um Wassereis-freie Festkörper handeln musste [Fahey et al., 2001]. Wegen ihrer extremen Größe wurden diese Teilchen NAT Rocks (NAT-Felsen) genannt [Fueglistaler et al., 2002a].
- Während für unterkühlte flüssige PSC ein Bildungsmechanismus identifiziert ist [Carslaw et al., 1994, Tabazadeh et al., 1994], bleibt unklar, unter welchen Umstände feste PSC, welche über dem Eis-Frostpunkt existieren, geformt werden.

Diese Feststellung ist nach wie vor gültig [Tolbert & Toon, 2001] und bezieht sich auf die erstmalige Bildung fester Teilchen. So ist die Frage nicht abschließend gelöst, ob zumindest der Initialschritt zwingend ein zeitweiliges Unterschreiten des Eis-

Gefrierpunktes erfordert. Im Fall der ersten NAT-Messung vom 25. Januar 2000 war diese Bedingung erfüllt [Larsen et al., 2002]. Bogdan et al. zeigten, dass an der Oberfläche von Silikataerosolen, welche z. B. durch Meteoriten in die Stratosphäre eingetragen werden, $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Gemische auch schon bei Temperaturen rund 7 K über dem Eis-Gefrierpunkt, und damit im Bereich der NAT-Temperatur, gefrieren können [Bogdan et al., 2003]. Einmal gebildet, können feste Teilchen hingegen schnell anwachsen. Falls die festen Partikel dabei wenig Wachstumskonkurrenten vorfinden, z. Bsp. weil sie durch Diffusion oder Sedimentation aus dem Gebiet ihrer Entstehung (der „Mother Cloud“) in eine Kondensationskeim-freie übersättigte Umgebung gelangen, kann es zur Ausbildung von Sandwich-Wolken kommen ([Shibata et al., 1999a, Shibata et al., 1999b], siehe auch Abschnitt 6.2.11). Im Extremfall wachsen NAT-Partikel zu „NAT Rocks“ an und fallen schließlich aufgrund ihres Eigengewichts aus der betreffenden Luftschicht aus [Dhaniyala et al., 2002, Fueglistaler et al., 2002a, Fueglistaler et al., 2002b].

- Die Geschwindigkeitskonstanten der wichtigsten Reaktionen, welche an der Oberfläche flüssiger Partikel ablaufen, sind bis auf etwa einen Faktor 2 genau bekannt, die Geschwindigkeitskonstanten von Reaktionen an Festkörperoberflächen dagegen äußerst unsicher. Da die Bildung fester Partikel um so wahrscheinlicher ist, je tiefer die Temperaturen sind, sollten die Diskrepanzen zwischen erwarteter und gemessener Ozonzerstörung mit sinkender Temperatur zunehmen.
- Die Chloraktivierung ist trotz dieser Unsicherheiten in erster Näherung eine Funktion der Temperatur. Es ist somit in erster Näherung gleichgültig, ob sich flüssige oder feste Partikel ausbilden. Allerdings können nur feste Teilchen zu einer Größe anwachsen, welche ausreichend ist, um aufgrund ihrer Masse aus der Atmosphärensicht, in welche sie entstanden sind, irreversibel auszufallen.

Die Phase der PSC-Teilchen (flüssig oder fest) sollte insbesondere in der Arktis eine Rolle spielen. Während in der Antarktis feste PSC II während der Polarnacht dauerhaft existieren und somit stets eine praktisch 100%ige Chloraktivierung erreicht wird, bestehen in der Arktis PSC wegen der häufigeren Temperaturschwankungen im Allgemeinen nur kurzzeitig und die Kontaktzeit ist somit von Bedeutung [van den Broek et al., 2000]. Allerdings konnten auch Arktis-Studien belegen [Schulz, 2001], dass die sogenannte NAT-Temperatur, welche den theoretischen Gefrierpunkt für NAT-Teilchen bildet, hier unabhängig davon, welcher PSC-Typ auftrat, in erster Näherung als Schwelltemperatur für die Chloraktivierung angenommen werden kann.

An den Oberflächen der Wolkenteilchen können nun eine Reihe von Reaktionen stattfinden, welche in der Gasphase kaum ablaufen [Webster et al., 1993]. Die beiden Chlorreservoirsubstanzen HCl und ClONO_2 reagieren dabei entweder direkt



oder indirekt über das Zwischenprodukt HOCl



miteinander. Das Chlormolekül Cl_2 , welches nur nachts stabil ist (siehe Abb. 7.11 und Abb. 7.13), wird unter Sonneneinstrahlung photolytisch in einzelne Chloratome zerlegt, welche die im nächsten Abschnitt einzuführenden Ozonabbauzyklen antreiben und wobei auch die in dieser Arbeit interessierende Verbindung ClO entsteht. Eine geringere Rolle spielt zudem die Reaktion



sowie diverse Reaktionen der Chlor-Reservoirs mit bromhaltigen Molekülen. Aufgrund ihrer hohen Reaktivität werden die chlorhaltigen Produkte dieser Reaktionen (sowie alle noch reaktiveren Spezies, welche unter Sonneneinstrahlung aus diesen Produkten entstehen können) als Familie unter dem Namen aktives Chlor oder Cl_x zusammengefasst. Die Cl_x -Spezies bilden damit gemeinsam mit den Chlorreservoirsubstanzen die größere Familie Cl_y des verfügbaren Chlors.

Wegen seiner geringeren Konzentration zum Zeitpunkt der Erst-Chloraktivierung während der Polarnacht wird ClONO_2 zuerst verbraucht. Damit kann die Aktivierung von HCl nur noch langsam fortgesetzt werden, sofern es nicht zu einer Neuproduktion von ClONO_2 kommt. Darauf wird im Abschnitt 3.4 eingegangen. Wenn die ursprüngliche Differenz zwischen den HCl- und ClONO_2 –Mischungsverhältnissen etwa 1 ppbv betrug (siehe Abschnitt 3.1), sollte die Chloraktivierung somit bei einem HCl-Endwert von 1 ppbv stagnieren. Dieser Wert wurde am 14. Februar 1997 in der Tat als Minimalwert auf Theta-Niveaus zwischen 450 und 500 K gemessen (Abb. 6.6). ClO erreichte auf diesen Höhenniveaus am 11. Februar 1997 Maximalwerte von 1,7 ppbv, was sich mit 1 ppbv HCl und einem erschöpften ClONO_2 –Reservoir zu den hier am 11. Februar 1997 ebenfalls gemessenen Cl_y –Mischungsverhältnissen von 2,8 ppbv etwa ergänzt.

Während die Reaktion (11) bei Temperaturen um 192 K an flüssigen Aerosolen bis zu 8mal schneller abläuft als an festen Oberflächen, werden die übrigen Reaktionen durch das Vorhandensein einer durch feste Teilchen bereitgestellten großen Aerosoloberfläche begünstigt. Reaktion (12) findet sogar ausschließlich an festen Partikeln statt. Modellstudien [van den Broek et al., 2000] ergeben entsprechend, dass ein Gemisch aus festen und flüssigen Aerosolteilchen eine höhere Chloraktivierung und als Konsequenz einen höheren Ozonabbau als rein feste oder rein flüssige PSCs bewirkt. Es ist allerdings nicht möglich, nur aus der Chloraktivierung einen Rückschluss auf die Zusammensetzung der PSCs zu treffen, da die Aktivierung in jedem Fall empfindlich von der Temperatur abhängt [van den Broek et al., 2000].

Auch für die Erzeugung aktiver Bromsubstanzen wie BrO spielen heterogene Reaktionen eine Rolle [Lary et al., 1996], allerdings sind sie, wie bereits im vorigen Abschnitt erläutert wurde, wegen der geringen Stabilität der Brom-Reservoirsubstanzen von geringerer Bedeutung. Es konnte durch Messungen bestätigt werden, dass die BrO-Mischungsverhältnisse im Bereich des Polarwirbels kaum mit der Häufigkeit und Struktur der PSC zusammenhängen [Pundt et al., 2002]. Brom- (und auch Jod-) katalysierter Ozonabbau bedarf somit nicht der Polarnacht zur Initialisierung und ist, sofern eine ausreichende Menge an Brom bzw. Jod verfügbar ist, auf allen geographischen Breiten und zu allen Jahreszeiten (mit Ausnahme der Polarnacht) zu berücksichtigen.

Für eine tiefgreifende Chloraktivierung müssen somit insgesamt folgende Bedingungen erfüllt sein:

- Eine kritische Bildungstemperatur für die Wolkenteilchen muss während einer ausreichenden Zeitspanne unterschritten werden. Damit einhergehend ist die Bedingung, dass die Luftmassen über längere Zeit hinweg möglichst wenig Sonnenlicht erfahren dürfen. Diese Bedingung ist im Bereich des Polarwirbels (Abschnitt 2.2) erfüllt. Während der Polarwirbel sich über der winterlichen Antarktis sehr regelmäßig und polzentriert ausbildet, stellt der entsprechende Wirbel über der winterlichen Arktis ein wesentlich unregelmäßigeres Phänomen dar. Damit wird verständlich, warum das Ozonloch zuerst

über der Antarktis auftrat und dort auch regelmäßiger und intensiver ist als in der Nordhemisphäre.

- Die Materialien zur PSC-Bildung (d.h. H_2O , HNO_3 und H_2SO_4) müssen in ausreichendem Maße vorhanden sein. So wurde zum Beispiel nach starken vulkanischen Eruptionen, insbesondere nach dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo am 15. Juni 1991 auf den Philippinen, ein verstärkter Ozonabbau festgestellt, welcher praktisch ausschließlich auf die erhöhte Aerosol-Oberfläche (bis zum Faktor 40) zurückzuführen war (die durch den Vulkan ausgestoßenen chlorhaltigen Verbindungen werden überwiegend noch in der Troposphäre ausgewaschen und tragen kaum zum Ozonabbau bei). Fünf Jahre nach dem Ausbruch waren die vulkanischen Aerosole weitestgehend aus der Stratosphäre ausgewaschen [WMO, 1999]. Mit Besorgnis beobachtet wurde dagegen in den letzten Jahren vor allem der Anstieg des Wassergehalts der Stratosphäre, da die für die Ozonschicht positive Wirkung der Verminderung des stratosphärischen Chlorgehalts infolge der Restriktionen des Montrealer Protokolls durch eine steigende Wahrscheinlichkeit der Bildung von PSCs kompensiert werden könnte.
- Die Wolkenteilchen dürfen nicht zu groß werden, um nicht aus der Stratosphäre auszufallen. Ob sich ein derartiger Ausfall bremsend oder beschleunigend auf den Ozonabbau auswirkt, hängt von mehreren Faktoren ab, auf welche im Abschnitt 3.4 eingegangen wird.

3.3. Ozonabbauzyklen

Während die Chloraktivierung noch bevorzugt im Dunkeln (wegen der niedrigeren Temperaturen) abläuft, benötigt der Ozonabbau selbst die Rückkehr des Sonnenlichts. Er erfolgt im Rahmen von katalytischen Zyklen, d.h. während die Ozonkonzentration netto verringert wird, bleiben die ozonzerstörenden Substanzen erhalten. Damit können auch geringe Konzentrationen dieser Spezies katastrophale Auswirkungen auf die Ozonschicht besitzen. Die einfachsten Zyklen folgen diesem Muster



oder:



wobei es sich bei X und XO, wie durch die Punkte angedeutet, um Radikale, d.h. Spezies, welche über ein freies Elektron verfügen, handelt. Im Allgemeinen ist die Photodissoziation (13b) unabdingbar für das Funktionieren dieser Zyklen. Deshalb können diese Zyklen nur in der Stratosphäre oder darüber stattfinden, da nur hier die Intensität der UV-Strahlung ausreichend ist. Die Variante (13d) tritt nur auf, wenn es sich bei XO um zum Beispiel HO_2 oder NO_3 handelt, was nicht mehr nach Gleichung (13a) um ein weiteres Sauerstoffatom erweitert werden kann. Wegen der im Allgemeinen wesentlich größeren Häufigkeit von O_3 im Vergleich zu einzelnen Sauerstoffatomen in der unteren Stratosphäre werden die Radikale X vergleichsweise schnell entsprechend Gleichung (13a) in XO umgewandelt, während die Rückreaktion langsamer verläuft. Das Gleichgewicht zwischen X und XO liegt somit auf der

Seite von XO, welches als Indikator für das Ablaufen dieses Zyklus detektiert werden kann [Molina & Rowland, 1974].

Als erster derartiger Zyklus wurde der HO_x-Zyklus vorgeschlagen [Bates & Nicolet, 1950], bei welchem X durch die Radikale H oder OH und XO entsprechend durch OH bzw. HO₂ zu ersetzen sind. Die Radikale H, OH und HO₂, welche ihren Ursprung in der Photodissoziation von Wasser haben, werden dabei als Familie unter dem Namen HO_x zusammengefasst. Ein weiterer Zyklus, der NO_x-Zyklus, wurde 1970/71 durch Crutzen, Johnston und Nicolet vorgestellt [Crutzen, 1970]. Unter NO_x werden dabei NO, NO₂ und NO₃ zusammengefasst, und X ist nun im Zyklus (13) durch NO bzw. NO₂ zu ersetzen.

1974, 11 Jahre vor der Entdeckung des Ozonlochs, schlugen zunächst Richard Stolarski und Ralph Cicerone [Stolarski & Cicerone, 1974], und einige Monate später unabhängig davon auch Mario Molina und F. Sherwood Rowland (welchen dieser Zyklus meistens zugeschrieben wird, da sie ihn in der bedeutenderen Zeitschrift veröffentlichten [Molina & Rowland, 1974]) einen gleichartigen Zyklus vor, in welchem X durch Cl zu ersetzen ist. Er lautet damit (die Punkte, welche wie im Zyklus (13) den Radikalcharakter andeuten, werden ab sofort weggelassen)



Reaktion (14c) ist auch hier geschwindigkeitsbestimmend, d.h. das Gleichgewicht zwischen Cl und ClO liegt auf der Seite von ClO, und läuft etwa 6mal schneller ab als die entsprechende Reaktion zwischen NO₂ und O [Molina & Rowland, 1974].

Nach der Entdeckung des Ozonlochs stellte sich allerdings heraus, dass dieser Zyklus nicht allein für den beobachteten massiven Ozonabbau verantwortlich sein kann. Seine Beteiligung am Entstehen des Ozonlochs (d.h. an den massiven Frühjahrs-Ozonabbauprozessen in der unteren polaren Stratosphäre, in anderen Bereichen der Stratosphäre oder zu anderen Zeitpunkten gelten andere Prozentzahlen), wird lediglich auf etwa 5-15% geschätzt, wobei seine Bedeutung mit wachsender Cl_y-Konzentration abnimmt [Chipperfield & Pyle, 1998]. Mario Molina selbst schlug 1987 gemeinsam mit seiner Ehefrau Luisa den ClO-Dimer-Zyklus vor [Molina & Molina, 1987]



Bei M handelt es sich dabei um einen Stoßpartner (zumeist Stickstoff oder Sauerstoff) und bei ClOOC um den ClO-Dimer, zu welchem sich zwei ClO-Radikale zusammenschließen. Laut Modellen ist dieser Zyklus dominierend bei der Bildung des antarktischen Ozonlochs, zum arktischen Frühjahrs-Ozonabbau trägt er zu 20-40% bei. Seine Bedeutung nimmt mit

wachsender Cl_y -Konzentration zu [Chipperfield & Pyle, 1998]. Auf die Problematik der Messung von ClOOCl , mittels welcher diese Theorien überprüft werden können, wird im Abschnitt 5.4.3 eingegangen. Auch die Kinetik der Reaktionen dieses Zyklus ist nach wie vor Objekt von Laboruntersuchungen [Bloss et al., 2001].

1986 wurden noch zwei weitere Zyklen vorgeschlagen, der Cl-OH- (oder HOCl-) Zyklus [Solomon et al., 1986b]



dessen Bedeutung für die Ozonloch-Chemie allerdings gering ist, und der ClO-BrO- (oder BrCl-) Zyklus [McElroy et al., 1986]



oder:



Analog ist auch ein ClO-IO- Zyklus möglich [Solomon et al., 1994]. In diesen Zyklen wirkt somit ClO in Kombination mit weiteren Radikalen (OH , BrO oder IO), welche, wie oben für OH bereits beschrieben, genau wie ClO auch eigenständige Zyklen nach dem Muster (13) betreiben können. Da die Wirkung eines Halogens als Reduktionsmittel mit steigender Ordnungszahl zunimmt, laufen Zyklen unter Beteiligung von Brom und erst recht von Jod äußerst effektiv ab. Entsprechend wird angenommen, dass der ClO-BrO- Zyklus mit 40-70% den Hauptanteil am arktischen Frühjahrs-Ozonabbau hat. Mit wachsender Br_y -Konzentration bei gleichbleibender Cl_y -Konzentration nimmt seine Bedeutung rapide zu, mit wachsender Cl_y -Konzentration bei gleichbleibender Br_y -Konzentration hingegen verliert dieser Zyklus etwas an Bedeutung, übersteigt aber bei den gegenwärtig herrschenden Konzentrationen stets die Bedeutung des ClOOCl -Zyklus in der Arktis. In der Antarktis hingegen sind die Verhältnisse wegen der niedrigeren Temperaturen und der entsprechend höheren Chloraktivierung umgekehrt [Chipperfield & Pyle, 1998].

Das in den Spezies Cl , ClO und ClOOCl enthaltene Chlor, wird im CLaMS-Modell und auch in dieser Arbeit (siehe Abb. 7.11 und Abb. 7.13 auf Seite 95ff) unter dem Namen ClO_x zusammengefasst. Als ClO_x wurden hier somit die Hautspezies der Ozonabbauzyklen definiert, und ClO_x bildet eine Unterfamilie des aktiven Chlors Cl_x , welches seinerseits eine Unterfamilie des verfügbaren oder anorganischen Chlors Cl_y darstellt. Die Definition von

ClO_x ist jedoch nicht allgemein festgelegt, in anderen Veröffentlichungen kann dieses Ausdruck eine andere Bedeutung besitzen. Aufgrund der Lage der Reaktionsgleichgewichte tritt der überwiegende Anteil von ClO_x tagsüber in Form von ClO auf. Nach Sonnenuntergang bleibt ein geringer Teil in Form von ClO und ClOOCl erhalten, die übrigen ClO_x -Spezies werden z. B. über die Reaktion [Thornton et al., 2003]



in verschiedene weniger reaktive Cl_x -Nachtreservoirare umgewandelt.

Das Verhältnis der Effektivität von Brom und Chlor zur Ozonzerstörung, gewöhnlich mit dem Symbol α bezeichnet, hängt von der geographischen Breite (zu den Polen zunehmend), der Höhe über der Erde (mit wachsender Höhe abnehmend) sowie der Jahreszeit ab [Daniel et al., 1999]. Es wird geschätzt, dass im Bereich der maximalen Ozonzerstörung in der polaren Stratosphäre um 20 km Höhe ein Bromatom bis zu 100mal effektiver ist als ein Chloratom [WMO, 1995]. Als globales Mittel empfahl der 1995 erschienene WMO-Report einen Wert $\alpha=60$ [WMO, 1995], Daniel et al. gehen von einem niedrigeren Wert $\alpha=45$ aus [Daniel et al., 1999]. Mit Hilfe des Faktors α wird das sogenannte äquivalente Chlor ($\text{ECl}=\text{Cl}_y+\alpha\text{Br}_y$) definiert. Der höheren Effektivität gegenüber steht allerdings die geringere Häufigkeit von verfügbarem Brom und besonders von Jod in der Stratosphäre. Für das globale Gesamtbudget von Brom (einschließlich des nicht-verfügbaren, in Halone eingebundenen Broms) wird ein Wert um 20 pptv angenommen ([WMO, 1999], Chlor 3,5 ppbv, siehe Abschnitt 3.1). BrO kann ebenso wie ClO mit dem im Abschnitt 5.1 beschriebenen ClO/BrO -Gerät hochaufgelöst in situ gemessen werden, allerdings treten im Fall von BrO nicht nur aufgrund der geringeren Konzentration Schwierigkeiten auf. Deshalb herrschen über die genaue Bedeutung der Brom- und Jodzyklen noch große Unsicherheiten. Die Aggressivität von Brom gegenüber Ozon wirkt sich nach dem gegenwärtigen Kenntnisstand überwiegend im Zusammenspiel mit ClO aus, der Beitrag chlorfreier Bromzyklen zum Ozonloch liegt unter 1% [Chipperfield & Pyle, 1998]. Der Bromgehalt der Stratosphäre beeinflusst damit in erster Linie den Anteil der einzelnen Chlor-Zyklen am Ozonabbau, eine Erhöhung des gegenwärtigen Bromgehalts der unteren Stratosphäre um einen Faktor 1,5 bei unverändertem Chlorgehalt hätte entsprechend eine wesentlich geringere Wirkung auf den Ozonabbau als eine Erhöhung des Chlorgehalts um den gleichen Faktor bei gleichbleibendem Bromgehalt [Chipperfield & Pyle, 1998].

Noch größere Unsicherheiten herrschen über die Bedeutung von Jod. Eine IO-Messung nach dem Prinzip des ClO/BrO -Geräts wurde bislang nicht unternommen. Solomon et al. schätzten den Gehalt an Jod in der unteren Stratosphäre auf bis zu 1 pptv und erwarteten eine 2000mal stärkerer Wirkung eines Jodatoms als Ozonzerstörer im Vergleich zu einem Chloratom [Solomon et al., 1994]. Der 1999 erschienene Report der World Meteorological Organization [WMO, 1999] kam hingegen zur Schlussfolgerung, dass der Beitrag von Jod zur Ozonzerstörung vernachlässigbar ist, da der ClO -IO-Zyklus etwa 5mal langsamer abläuft als erwartet [Turnipseed et al., 1997] und zudem die Obergrenze für die Jod-Belastung der Stratosphäre nur 0,2 pptv beträgt [Wennberg et al., 1997]. Neuere LIDAR-Messungen wiederum ergaben bis zu 0,8 pptv IO über Spitzbergen [Wittrock et al., 2000], so dass die Frage offen bleibt.

3.4. Denitrifizierung

In den 70er Jahren galt der NO_x -Zyklus als Hauptgefahr für die Ozonschicht, unter anderem (aber nicht ausschließlich) deshalb wurde auf den Aufbau einer Flotte von hochfliegenden Überschall-Passagierflugzeugen verzichtet. Nach heutigem Kenntnisstand ist der Beitrag der NO_x -Zyklen zum massiven Ozonabbau in der Arktis zwischen Januar und März vernachlässigbar (nicht aber im April/Mai [Hansen & Chipperfield, 1999]. In der Antarktis gilt die Aussage für die entsprechenden Monate). Nichtsdestotrotz besitzen NO_y -Spezies (verfügbare NO-Verbindungen) und die aus ihnen entstehenden NO_x -Spezies (aktive NO-Verbindungen) eine enorme Bedeutung für die Ozonloch-Chemie.

Eine wichtige Bedingung für die Ausbildung des Ozonlochs besteht darin, dass die ozonzerstörenden Substanzen nicht auf irgendeine Art und Weise in unschädliche Substanzen umgewandelt oder gar irreversibel aus der Stratosphäre entfernt werden. So wird bei der Gasphasenreaktion zwischen ClO und der NO_x -Spezies NO_2



ein Cl-Atom aus der Familie Cl_x (aktives Chlor) entfernt und in ein ClONO_2 -Molekül eingebaut. Sofern in der Stratosphäre noch eine ausreichende Konzentration an HCl sowie an Oberflächen für eine heterogenen Reaktion vorhanden sind, kann das entstandene ClONO_2 jedoch mit HCl nach Gleichung (9) reagieren, womit nun zwei Cl-Atome der Familie Cl_x zugeführt werden. Wenn das ursprüngliche ClONO_2 -Reservoir bereits erschöpft ist, gestatten die Anwesenheit von NO_2 und von PSC somit die Fortführung der Chloraktivierung, welche andernfalls zum Stillstand kommen würde. Drdla et al. schätzen, dass diese Chlor-Reaktivierung den Ozonverlust des Winters 1999/2000 um 20-30% erhöht hat [Drdla & Schoeberl, 2002]. Erst wenn auch die HCl-Konzentration so niedrig ist, dass aufgrund Reaktion (19) ein ClONO_2 -Überschuss relativ zu HCl entsteht, führt diese Reaktion effektiv zur gegenseitigen Deaktivierung der beiden ozonzerstörenden Katalysatoren ClO und NO_2 . Diese Umkehr des Verhältnisses der beiden Reservoirsubstanzen ClONO_2 und HCl besitzt einen interessanten Aspekt. Eine Messung dieses Verhältnisses (als simultane Messung mit Hilfe des LPMA-Gerätes möglich [Payan et al., 1998], im Februar 1997 aber nicht durchgeführt) oder aber des Verhältnisses von Cl_y zu HCl oder ClONO_2 liefert eine Aussage, ob eine bestimmte Luftmasse in den vorangegangenen Tagen oder Wochen eventuell stärker aktiviert war als zum Messzeitpunkt oder ob noch die erste, vor der erstmaligen Rückkehr des Sonnenlichts ausgebildete Aktivierung vorliegt.

Abhängig von den herrschenden meteorologischen Bedingungen kommt es im Polarwinter und –frühling zu einem teils beträchtlichen Verlust der NO-Reservoirsubstanz HNO_3 . Wie im Abschnitt 3.2 bereits erläutert, kann HNO_3 leicht in flüssige und feste Aerosolteilchen eingebaut werden. Feste Teilchen (Eispartikel, an welchen sich HNO_3 anlagert, oder reine NAT-Teilchen) können dabei auf eine Größe anwachsen, welche ausreichend ist, damit diese Teilchen aufgrund ihres Eigengewichts nach unten fallen und das in ihnen enthaltene Material irreversibel aus dem Entstehungsniveau entfernt wird. Man spricht hierbei, je nach der Art des ausgefallenen Materials, von einer Denitrifizierung oder Dehydrierung.

Die Denitrifizierung besitzt damit die selbe Schwelltemperatur wie die Chloraktivierung (T_{NAT} , wobei noch ungeklärt ist, ob zumindest zur Initialisierung gebietsweise auch die Eistemperatur unterschritten werden muss [Koop et al., 1995, Bogdan et al., 2003]), ihr Ausmaß hängt jedoch von weiteren Faktoren ab. Wenn die Bedingungen zur Bildung fester Teilchen großräumig erfüllt sind, oder ausschließlich flüssige Partikel entstehen können, formen sich viele kleine Partikel, welche nicht aus der Atmosphäre ausfallen, dafür aber eine ideale Reaktionsoberfläche für die Chloraktivierung bilden, der Reaktivierungsmechanismus

käme dabei ebenfalls zum Wirken. Wenn hingegen nur gebietsweise feste Wolkenteilchen gebildet werden, etwa aufgrund von Wellen, aber T_{NAT} trotzdem großräumig unterschritten wird, kann ein Salzstreuer-Mechanismus [Dhaniyala et al., 2002] in Gang gesetzt werden. Die entstandenen kleinen Partikel fallen in die darunterliegenden Partikel-freien Luftmassen. Hier wachsen sie ungehindert bis zu, im Extremfall, NAT-Rocks an [Fueglistaler et al., 2002a]. Diese fallen schließlich aus den betreffenden Luftschichten aus. Damit ergibt sich eine großräumige Denitrifizierung (siehe auch Abschnitt 3.2). Ob dieser Prozess, bzw. sein Ausbleiben, den Ozonabbau eher befördert oder behindert, hängt vom Zeitpunkt seines Eintretens ab. Ein maximaler Ozonabbau sollte dann eintreten, wenn die Denitrifizierung erst nach praktischem Aufbrauchen des HCl-Reservoirs startet, dann aber extreme Ausmaße annimmt. Da der Salzstreuer- bzw. NAT-Rock-Mechanismus erst vor kurzem entdeckt wurde, liegen bislang wenig Modellstudien vor, welche ihn berücksichtigen. Laut Mann et al. wiesen vor allem die Winter 1996/97 und 1999/2000 Idealbedingungen zur Ausbildung von NAT-Rocks auf [Mann et al., 2002]. Aufgrund der polzentrierten Lage des Polarwirbels, und damit einer Identität von Rotations- und Kältezentrum, wurde T_{NAT} im Wirbel unterhalb eines Theta-Niveaus von 600 K großräumig und dauerhaft unterschritten. Im Winter 1996/97 traten diese Idealbedingungen erst vergleichsweise spät ein (Mitte Februar 1997).

Abschließend sei darauf hingewiesen, dass die in diesem Abschnitt besprochenen Prozesse nur für den arktischen Wirbel (außer im Fall eines extremen Ozonverlusts) und für die Randgebiete der Wirbel beider Hemisphären von Bedeutung sind. Im antarktischen Vortex wird im Frühjahr die Ozonkonzentration teilweise bis unter die Nachweisgrenze reduziert. Damit läuft allerdings die Reaktion



welche in den Zyklen (14-17) enthalten ist, kaum noch ab und das Gleichgewicht zwischen Cl und ClO ist zu Gunsten von Cl verschoben. Anstelle der Reaktion (19) wird nun der Weg



für die Chlor-Deaktivierung bevorzugt. Die Grenze zwischen den Dominanzbereichen beider Mechanismen wird durch einen HCl-Ring um den antarktischen Polarwirbel, welcher wiederum von einem ClONO₂-Ring umgeben ist, markiert [Douglass et al., 1995].

3.5. Diskrepanzen zwischen gemessenem und erwartetem Ozonabbau

Bei vielen in der Vergangenheit durchgeführten Messungen auf der Nordhalbkugel lagen die ermittelten Ozonabbauraten zum Teil erheblich über den erwarteten Raten. Diskrepanzen von einem Faktor 2 und mehr traten gegen Ende Januar und Anfang Februar auf, und zwar auf den Höhenniveaus, auf welchen die Temperatur am kältesten und der Ozonabbau am höchsten ist. Wenn man die Ozonabbauraten als Funktion der Höhe oder der Temperatur betrachtet, verläuft der Wechsel von erwarteten zu unerwarteten Werten dabei äußerst abrupt bei einem kritischen Schwellwert. Im nächsten Kapitel werden, gemeinsam mit der Erläuterung der jeweiligen Messmethode, die diesbezüglichen Match-Studien für die Winter 1991/92 und 1994/95 [Becker et al., 1998, Becker, 1999] und Tracer-Tracer-Studien des Winters 1994/95 [Woyke, 1998] näher vorgestellt. Auch weitere Studien bestätigen dieses Verhalten für die verschiedenen Winter [Hansen et al., 1997, Deniel et al., 1998, Rex et al., 2003].

Dynamische Prozesse, welche einen höheren Ozonabbau vortäuschen, konnten als Ursache für die beobachteten Diskrepanzen dabei weitestgehend ausgeschlossen werden. Auch eine Ungenauigkeit der Kenntnis der Chlor-Konzentrationen ist offensichtlich nicht dafür verantwortlich. Entsprechende Sensitivitätsstudien zeigen, dass zur Erklärung der beobachteten Ozonabbauraten das Cl_y-Mischungsverhältnis in jedem der untersuchten Winter

mindestens 5 ppbv überschreiten müsste [Rex et al., 2003], im Winter 1991/92 wäre sogar ein Cl_y -Mischungsverhältnis von 8 ppbv oder aber ein Br_y -Mischungsverhältnis von 100 pptv erforderlich gewesen [Becker, 1999]. Gegenwärtig beträgt der Gesamt-Chlorgehalt höhenunabhängig nur etwa 3,7 ppbv [WMO, 1999], Ungenauigkeiten in den Temperaturmessungen scheiden aus, da die Temperatur lediglich das Verhältnis von Cl_x (aktivem Chlor) zu Cl_y (verfügbarem Chlor) beeinflusst und selbst eine 100%ige Aktivierung, wie sie auf den untersuchten Niveaus teilweise tatsächlich vorlag, nicht ausgereicht hätte zur Erklärung des beobachteten Ozonverlusts. Als Erklärung verbleiben damit lediglich unbekannte chemische Reaktionen oder aber eine fehlerhafte Kenntnis der Reaktionskonstanten bekannter Reaktionen. Vorgeschlagen wurden unter anderem:

- Photolyse von ClOOCl im Infrarotbereich, welche auch bei Dämmerung noch stattfinden könnte und die Reaktion (15b) des ClO -Dimer-Zyklus beschleunigen würde [Rex et al., 2003]. Entsprechende Messungen in der Stratosphäre bestätigten das Auftreten dieser Photolyse jedoch bislang nicht [Vömel et al., 2001].
- Ozonabbau durch direkte Reaktion zwischen Ozon und der Oberfläche von PSC [Rex et al., 2003]. Es bestehen Hinweise auf einen ohne Beteiligung von Chlor ablaufenden Ozonverlust an der Oberfläche von tropischen Zirruswolken in 9-12 km Höhe [Roubeau et al., 2000]. In der polaren Stratosphäre konnte ein derartiger Prozess bislang weder bestätigt noch ausgeschlossen werden. Allerdings muss es sich zumindest bei einer zeitbestimmenden Teilreaktion dieses Prozesses um eine photochemische Reaktion handeln, da signifikanter Ozonabbau nur unter Sonneneinstrahlung stattfindet [Rex et al., 1999, Schulz, 2001].
- Andere Reaktionen bei hohen SZA (Solaren Zenitwinkeln), d.h. bei Dämmerung (bei einem SZA von 0° steht die Sonne im Zenit, bei einem SZA von 90° am Horizont). Zum einen kann die Intensität der Sonneneinstrahlung bei hohen SZA in den Chemiemodellen fehlerhaft repräsentiert sein. Entsprechende Messungen des aktinischen Fluxes im UV- und sichtbaren Bereich bei Sonnenaufgang und -untergang bestätigten jedoch die Modelle [Rex et al., 2003]. Zum anderen sind zahlreiche chemische Vorgänge bei Dämmerung auch wegen der geringeren Anzahl Messungen bislang ungenügend verstanden. So wurde durch Avallone und Toohey festgestellt, dass im Gegensatz zu ClO die BrO -Konzentration bei Sonnenuntergang nicht wie erwartet schlagartig abnimmt. Dieser Befund ist eventuell durch die Existenz eines BrOOCl -Zyklus analog zum ClOOCl -Zyklus (15) erklärbar, welcher dann entsprechend auch zum Ozonabbau beitragen würde [Avallone et al., 2001].
- Ein stärkerer Beitrag der Brom- oder Jodchemie als bisher erwartet. Wie im Abschnitt 3.3 erläutert, sprechen die gegenwärtig bekannten Fakten eher dagegen.

Die Frage stellt sich nun, ob die beschriebenen Diskrepanzen auch in der Antarktis auftreten. Nach einer Vergleichsstudie von Wu und Dessler muss zum gegenwärtigen Zeitpunkt davon ausgegangen werden, dass die Unterschätzung des Ozonabbaus um einen Faktor 2 ausschließlich ein arktisches Phänomen darstellt, während in der Antarktis eine gute Übereinstimmung zwischen Beobachtungen und Modellergebnissen besteht [Wu & Dessler, 2001]. Allerdings ist der Vergleich von Messdaten aus beiden Hemisphären schwierig, da aufgrund der unterschiedlichen meteorologischen Situation und logistischen Voraussetzungen in der Arktis und der Antarktis zur Ermittlung des Ozonabbaus unterschiedlich vorgegangen wird. Details werden im nächsten Kapitel erläutert. Insofern kann auch ein bislang nicht aufgedeckter methodischer Fehler zu diesem unterschiedlichen Befund auf beiden Halbkugeln führen. Mit Spannung erwartet werden deshalb die Ergebnisse der ersten Match-Kampagne auf beiden Hemisphären (QUOBI), welche eine Arktiskampagne von Dezember 2002 bis März 2003 und eine Antarktiskampagne von Juli bis Oktober 2003 umfasst [NILU, 2002].

4. Die Tracer-Tracer-Methode und ihre Anwendung

4.1. Methoden zur Ermittlung chemischer Veränderungen in einer Luftmasse

4.1.1. Grundproblem

Eine prinzipielle Schwierigkeit bei der Bestimmung der Konzentration einer ausgewählten Substanz in der Atmosphäre besteht in der Trennung zwischen chemischen und Transport-Prozessen. Während im Fall des Ozons die Bildungs- und Abbauprozesse in der oberen Stratosphäre (außerhalb der Polarnacht) sehr schnell ablaufen und sich ein Ozongleichgewicht wesentlich schneller einstellt als der Transport der Luftmassen von einer Region zur anderen erfolgt, ist das in der unteren Stratosphäre nicht mehr der Fall. Hier sind die Zeitdauern der chemischen Reaktionen und von Transport und Mischung etwa von gleicher Größenordnung. So kann ein Einmischen ozonarmer in ozonreiche Luft einen chemischen Ozonabbau vortäuschen. Im Prinzip bestehen vier Möglichkeiten um zwischen chemischen und dynamischen Vorgängen zu trennen und somit z. B. die chemische Abbaurate von Ozon dennoch zu messen.

4.1.2. Langzeit-Ballonflüge

Man könnte eine Ballonsonde über mehrere Tage, Wochen oder Monate mit einer Luftmasse mittreiben lassen. Diese Methode würde, solange die Ballonsonde aufgrund Gasabsonderungen etc. keinen verfälschenden Einfluss auf die Umgebungsluft hat, eine sichere Methode zur Verfolgung von Chemie und Mischungsvorgängen in diesem ausgewählten Luftpaket darstellen. Allerdings stößt sie gegenwärtig noch auf technische und ggf. auch politische Schwierigkeiten (Überflugrechte). Bislang wurden deshalb nur vereinzelte Versuche in diese Richtung unternommen. Pommereau et al. führten Flüge mittels passiven Heißluftballons durch. Diese Ballons führen selbst keine Wärmequelle mit. Zum erstmaligen Aufstieg ist ein zusätzlicher Heliumballon notwendig. Während der Drift erfolgt die Aufheizung der Tragluft tagsüber durch die Sonne und nachts durch die Absorption der von der Erde abgestrahlten Infrarotstrahlung. Nach Sonnenuntergang steigen diese Ballons damit ab und nach Sonnenaufgang wieder auf, d.h. sie verbleiben nicht in der selben Luftmasse. Während eines Zeitraums von maximal 22 Tagen drifteten diese Ballons in einer Höhe von 18 (Nacht) bis 27 (Tag) Kilometern [Pommereau et al., 2002]. Der Zweck dieser Sonden bestand ausschließlich in der Validierung der Temperaturdaten, welche durch verschiedene meteorologische Dienste geliefert werden, darunter auch ECMWF, siehe Abschnitt 6.2.1. Diese Daten zeigten im Winter 1996/97 keine auffallenden systematischen Fehler und statistische Fehler von ± 2 K [Knudsen et al., 2002]). Aus technischen Gründen konnten allerdings nur Nacht-Temperaturmessungen validiert werden.

Der NASA gelang vom 20. Dezember 2001 bis zum 21. Januar 2002 ein Rekord-Ballonflug von 31 Tagen in rund 35 km Höhe über der Antarktis, welcher kosmologischen Experimenten diente (Long Duration Balloon TIGER, [NASA, 2002]).

4.1.3. Die Vortex Average Methode

Die Vortex Average Methode stellt eine gebräuchliche Methode zur Bestimmung der mittleren Ozonabbaurate im polaren Vortex auf der Basis von großräumigen Ballonsonden- oder Satellitendaten dar [Proffitt et al., 1993, Manney et al., 1994, Müller et al., 1996]. Dabei wird für ausgewählte Zeitpunkte der Mittelwert der Ozonkonzentrationen im Polarwirbel ermittelt. Die sich ergebende Zeitabhängigkeit kann dann als identisch mit dem chemischen Ozonverlust im Polarwirbel betrachtet werden, wenn der Polarwirbel als quasi geschlossen angesehen werden kann, d. h. es fand kein signifikanter Luftaustausch über den Wirbelrand statt. Aufgrund vieler Studien sowohl zur Antarktis [Juckes & McIntyre, 1987, Hartmann et al., 1989] als auch zur Arktis [Schoeberl & Hartmann, 1991, Schoeberl et al., 1992] kann der

Polarwirbel als nahezu geschlossener Reaktor betrachtet werden, womit die Methode für den Polarwirbel anwendbar ist. Demgegenüber stehen allerdings Studien, nach welchen der Polarwirbel eher den Charakter eines Durchflussreaktors besitzt [Proffitt et al., 1989b, Tuck et al., 1995] und eine Einmischung von Extra-Vortex-Luft über den Wirbelrand somit doch nicht vernachlässigbar ist. Wegen der Regelmäßigkeit, Abgeschlossenheit und Homogenität des antarktischen Polarwirbels spielt dieser Störeinfluss in der Antarktis im allgemeinen eine geringere Rolle als in der Arktis. Für die Antarktis stellt die Vortex Average Methode deshalb, aber auch aufgrund der mit der Anwendung anderer Methoden verbundenen logistischen Schwierigkeiten, bisher die wichtigste Methode zur Quantifizierung des Ozonverlusts dar [Wu & Dessler, 2001]. Entsprechende Studien in der Arktis waren im Jahr 1997 erst ab dem 20. Februar 1997 möglich, da vorher keine geeigneten Satellitendaten zur Verfügung standen [McKenna et al., 2002b].

4.1.4. Die Match-Methode

Eine weitere wichtige Methode für die Ermittlung des Ozonabbaus stellt die Match-Methode dar [von der Gathen et al., 1995, Rex et al., 1998, Rex et al., 1999]. Im gesamten arktischen Raum sowie den mittleren Breiten der Nordhemisphäre werden während einer Match-Kampagne Ballon-Startbasen in Bereitschaft versetzt. An ausgewählten Standorten werden Ballonaufstiege durchgeführt. Anschließend wird auf der Basis meteorologischer Daten berechnet, welchen Weg die von der Ballonsonde durchquerten Luftmassen im weiteren Verlauf zurücklegen. Sobald sich eine dieser Luftmassen erneut einer Ballon-Startbasis nähert, wird diese alarmiert und startet eine zweite Sonde, welche im Idealfall dieselbe Luftmasse durchquert.

Auf der Südhalbkugel ist die Durchführung einer derartigen Kampagne aus logistischen Gründen schwierig. Die erste Match-Kampagne auf beiden Hemisphären stellt die am 1. Januar 2002 gestartete Kampagne QUOBI dar ([NILU, 2002], siehe Abschnitt 3.5).

Während die Anwendung der Match-Methode in mittleren Breiten problematisch ist [Schulz, 2001], erlaubt sie innerhalb des Polarwirbels im Allgemeinen durchaus eine sichere Quantifizierung des Ozonverlusts. Die Qualität hängt entscheidend ab zum einen von der Genauigkeit, mit welcher der Weg der ausgewählten Luftmassen berechnet werden kann, zum anderen davon, in welcher Entfernung von der durch die erste Sonde durchquerten Luftmasse die zweite Sonde auftrifft. Die Differenz muss kleiner als der sogenannte Match-Radius, die größte zulässige Toleranz, sein. Die Untersuchung kann im Allgemeinen nur auf einem Höhenniveau erfolgen, da die Luftmassen auf den verschiedenen Niveaus auseinanderdriften und somit nur auf einem Niveau durch die zweite Sonde eine Luftmasse erneut getroffen werden kann. Des weiteren muss sich die Nutzlast der eingesetzten Sonden auf einfach handhabbare und standardisierte Geräte beschränken, d.h. im Allgemeinen liefern die Match-Sonden nur Angaben über meteorologische Daten und die Ozonkonzentration. Um den Zusammenhang zwischen dem Verlauf der Ozonkonzentration und der Konzentration ausgewählter Spezies zu untersuchen, muss deshalb im Allgemeinen auf räumlich geringer aufgelöste und in hohen Breiten gerade im Polarwinter häufig nicht vorliegende Satellitendaten zurückgegriffen werden. Eine Match-Studie zum Zusammenspiel von Ozon und CIO konnte deshalb mit der Match-Methode bislang nur für Ende Februar und Anfang März 1996 durchgeführt werden, da nur in diesem Zeitraum eine ausreichende CIO-Datendichte des MLS-Satellitengerätes in einem Match-Untersuchungsgebiet vorlag. Die Studie erbrachte eine exzellente Übereinstimmung zwischen dem erwarteten und dem gemessenen Ozonverlust [Rex et al., 2003].

Ein wichtiger Vorteil der Match-Methode besteht allerdings in der Fähigkeit zur zeitaufgelösten Studie (gemessen wird die Veränderung der Ozonkonzentration als Funktion

des zeitlichen Abstands zwischen den Aufstiegen der ersten und der zweiten Sonde des Match-Paares). Aufgrund von Match-Studien konnte gezeigt werden, dass in absoluter Dunkelheit kein signifikanter Ozonverlust stattfindet [Rex et al., 1999, Schulz, 2001]. Die Match-Kampagnen der Winter 1991/92 und 1994/95 [Becker et al., 1998, Becker, 1999] lieferten von Ende Januar bis Anfang März auf dem Match-Untersuchungsniveau 475 K etwa doppelt so hohe Ozonabbauraten wie durch Modelle erwartet. Im Winter 1994/95 wurden diese Befunde durch Tracer-Tracer-Studien bestätigt ([Woyke, 1998], siehe Abschnitt 4.2). Damit konnte weitestgehend ausgeschlossen werden, dass die beobachteten Diskrepanzen auf einen Match-spezifischen methodischen Fehler, wie zum Beispiel ein ungenaues Berechnen der Luftmassen-Trajektorie oder durch die Akzeptanz eines zu großen Match-Radius verursacht sein kann. Diese Befunde gaben damit Anlass zu zahlreichen Nachfolgestudien und Neuüberlegungen zur Genauigkeit der Methode sowie zu Besonderheiten der Chemie des Ozonabbaus in der Arktis im Vergleich zur Antarktis (siehe Abschnitt 3.5). Die Match-Ergebnisse des Winters 1996/97 sowie Vergleiche zu anderen Messungen und Studien sind im Abschnitt 6.1.1 dargestellt.

4.2. Die Tracer-Tracer-Methode

Die vierte Methode stellt die Tracer-Tracer-Methode [Plumb & Ko, 1992] dar. Sie soll nun ausführlicher behandelt werden. Die Idee besteht darin, dass sich das Verhältnis der Konzentrationen zweier Substanzen, oder Tracer, wie sie im Folgenden bezeichnet werden, nicht ändert, solange die Konzentrationen der einzelnen Tracer nicht durch chemische oder physikalische Prozesse, welche auf die einzelnen Tracer unterschiedlich wirken, verändert werden und solange keine Vermischung mit Luftmassen, in welchen das Konzentrationsverhältnis ein anderes ist, erfolgt. Wie man anhand Abb. 4.3 leicht erklären kann, würde sich in dem speziellen Fall, dass die Konzentration des einen Tracers linear von der des anderen Tracers abhängt (ein Beispiel ist die Korrelation zwischen CH_4 und N_2O (53), siehe Abschnitt 6.2.7), selbst bei Eintreten einer Vermischung von zwei Luftpaketen, in welchen die Korrelation galt, das Tracer-Tracer-Verhältnis nicht ändern.

Die Konzentration von Ozon in der Stratosphäre wird praktisch ausschließlich durch photochemische Prozesse verändert. Im Dunkeln ablaufende Ozonabbaureaktionen können vernachlässigt werden. In Luftmassen, welche sich dauerhaft im polaren Vortex aufhalten und damit relativ wenig bis kein Licht empfangen, beträgt die mittlere Lebensdauer eines Ozonmoleküls rund 100 Tage [Proffitt et al., 1992, WMO, 1990]. Das ist lange genug, um im Zeitraum zwischen der Ausbildung des Polarwirbels und der Rückkehr des Sonnenlichts Ozon als inert anzusehen. Ozon verhält sich damit ähnlich zu langlebigen Tracern wie Methan, HF oder N_2O . Parallele Messungen von Ozon und diesen Tracern im Zeitraum von November bis Januar in der Nordpolarregion, oder im entsprechenden Zeitraum über der Antarktis, liefern damit im Allgemeinen praktisch identische Beziehungen der Substanzen untereinander. Die so ermittelte Gleichung zur Ermittlung der Ozonkonzentration aus der Konzentration einer anderen Spezies wird als frühe Vortexkorrelation (Early Vortex Correlation) bezeichnet, da sie den ungestörten Polarwirbel (Vortex) repräsentiert.

Die erwähnten Tracer Methan, HF oder N_2O verhalten sich auch nach der Rückkehr des Sonnenlichts äußerst reaktionsträge. Die Korrelationen dieser Tracer untereinander bleiben somit erhalten. Für Ozon hingegen kann jetzt ein unter Umständen massiver Abbau eintreten, und die Ozonwerte stimmen nicht mehr mit den aus der frühen Vortexkorrelation berechneten Erwartungswerten überein. Aus der Differenz zwischen Erwartungswert und Messwert ergibt sich der chemische Ozonverlust.

Im Vergleich zur Match-Methode besitzt die Tracer-Tracer-Methode zwei Nachteile. Sofern die betreffende Luftmasse nicht zuvor anderweitig beprobt wurde, kann nur der Ozonabbau in

dieser Luftmasse seit Rückkehr des Sonnenlichts oder gegebenenfalls seit dem erstmaligen Unter- oder Überschreiten einer kritischen Temperatur bestimmt werden. Die Fähigkeiten zur zeitaufgelösten Studie sind damit limitiert. Zudem muss die Ausstattung der Ballonsonde mit Messgeräten für die Tracer-Tracer-Methode sehr umfangreich sein. Messflüge können entsprechend seltener stattfinden. Allerdings gestattet die Vielfalt der Messergebnisse eines einzigen Ballonaufstiegs, den Ozonverlust nicht nur quantitativ zu erfassen, sondern auch seine Ursachen sowie auch andere interessante atmosphärische Prozesse zu erforschen. Im Fall der Match-Methode muss dafür im Allgemeinen auf räumlich geringer aufgelöste Satellitendaten zurückgegriffen werden. Die Tracer-Tracer-Methode erlaubt, bereits aus einem einzigen Ballonaufstieg eine Aussage über den Ozonverlust zu treffen, und zudem nicht nur auf einem, sondern im Idealfall auf allen durch die Ballonsonde durchquerten Höhenniveaus. Es entfällt die Notwendigkeit, eine ausgewählte Luftmasse zweimal treffen zu müssen, und damit der Hauptunsicherheitsfaktor der Match-Methode. Die Genauigkeit der Tracer-Tracer-Methode wird vielmehr im Allgemeinen nur durch die Messgenauigkeiten der Bestimmung der Konzentrationen des Ozons und des Tracers sowie der Ungenauigkeit der frühen Vortexkorrelation bestimmt.

Allerdings existiert auch für die Tracer-Tracer-Methode eine einschränkende Bedingung: es muss sichergestellt sein, dass für die durchquerten Luftmassen die frühe Vortexkorrelation in der Tat zutreffend ist. So gilt zum Beispiel die frühe Vortexkorrelation im Allgemeinen nicht für Luftmassen, welche erst gegen Ende des Winters oder im Frühjahr in den Polarwirbel gelangten. Wie anhand Abb. 4.3 deutlich wird, kann aber auch die Vermischung von zwei Luftpaketen, in welchen ursprünglich diese Korrelation galt, zu einer geringfügigen Verschiebung des Verhältnisses zwischen den beiden betrachteten Tracern führen und damit gegebenenfalls einen Ozonabbau vortäuschen.

Tracer-Tracer-Studien auf der Basis von Daten eines Ballonaufstiegs am 3. Februar 1995 in Kiruna/Nordschweden [Woyke, 1998] bestätigten die Befunde der Match-Kampagne des selben Winters hinsichtlich der Unterschätzung des Ozonabbaus um einen Faktor 2 ([Becker et al., 1998, Becker, 1999], siehe auch die Abschnitte 3.5 und 4.1.4). Bei diesem Flug kam das ClO/BrO-Instrument des Forschungszentrums Jülich (während dieser Kampagne auch als BROCOLI bezeichnet) erstmals zum Einsatz.

4.3. Potentielle Vortizität als dynamischer Tracer und RDF-Methode

Die Tracer-Tracer-Methode muss sich nicht auf chemische Tracer beschränken. Unter bestimmten Umständen ist es auch möglich, aus der Potentiellen Vortizität (PV), welche im Anhang 12.2 hergeleitet wird, auf die Konzentration einer bestimmten chemischen Spezies zu schließen, womit die PV als dynamischer Tracer analog zu chemischen Tracern verwendet werden kann [Danielsen, 1968]. Zunächst stellt sich generell die Frage, in wieweit die PV als Erhaltungsgröße für eine bestimmte Luftmasse betrachtet werden kann. In die Definition der PV gingen drei Erhaltungssätze ein (Anhang 12.2), die Erhaltung des Drehimpulses, der Masse und der Energie. Ein Luftpaket sei als abgeschlossen betrachtet, d.h. die sich in ihm befindliche Luft driftet nicht auseinander und vermischt sich nicht mit den umgebenden Luftmassen. Während die Masse nun zweifellos für ein derartiges Paket eine Erhaltungsgröße darstellt, muss dies für den Drehimpuls nicht zwingend der Fall sein. Als Vergleich kann eine Billardkugel herangezogen werden. Unter Vernachlässigung der Reibung mit dem Billardtisch bleibt der Drehimpuls dieser Kugel erhalten, solange sie nicht mit einer anderen Kugel zusammenstößt. In diesem Moment stellt lediglich der Gesamt-Drehimpuls aller an diesem Stoß beteiligten Kugeln eine Erhaltungsgröße dar, d.h. der Drehimpuls ist eine Prozesserhaltungsgröße. Entsprechend stellt die PV nur eine Erhaltungsgröße dar, solange die Luftpakete keine substantielle Vermischung mit anderen Paketen erfahren oder anderweitig

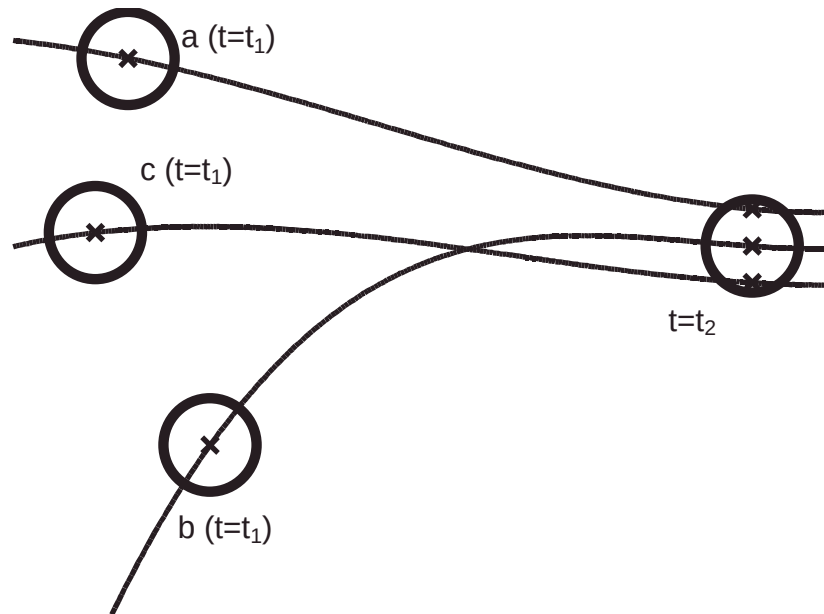


Abb. 4.1: Die RDF-Methode. Zur Erläuterung siehe Text.

ihren Impuls auf benachbarte Luftpakete übertragen. Zudem ändert sich der Drehimpuls der Billardkugel, sobald ein (bezogen auf das Gesamtsystem aller Billardkugeln) diabatischer Prozess auf sie einwirkt, d.h. Energiezufuhr oder Energieentzug z. B. durch Anstoßen mit dem Billardstock oder Abbremsen mit der Hand. Die PV eines ausgewählten Luftpakets kann somit unter Umständen plötzliche Veränderungen erfahren und weist zudem einen gewissen Trend aufgrund der Reibung des Luftpakets mit der Umgebungsluft oder aufgrund diabatischer Erwärmung oder Abkühlung des Luftpakets auf.

Die Bestimmung der PV erfordert eine großflächige Betrachtung, wie aus ihrer Definitionsgleichung (241) im Anhang 12.2 deutlich wird. Sie geschieht deshalb auf der Basis von Fernerkundungsdaten. Daraus ergibt sich gegenüber chemischen Tracern der Vorteil der weltumspannenden und ganzjährigen Verfügbarkeit von Tracerdaten und der Nachteil der geringen Ortsauflösung. Als minimale Abmessungen eines Luftpakets, welchem ein sinnvoller PV-Wert zugeordnet werden kann, werden dabei 1 Grad bei Bestimmung als Funktion der geographischen Breite und 1 km als Funktion der Höhe angenommen [Proffitt et al., 2003]. Selbst diese Auflösung ist deutlich schlechter als die Auflösung, mittels welcher zahlreiche chemische Tracer bei einer Ballonsonden-Messung detektiert werden können. Im Allgemeinen ist die räumliche Auflösung von meteorologischen Fernerkundungsdaten zudem geringer (Abschnitt 6.2.1).

Um den Nachteil der geringen Ortsauflösung der PV-Bestimmung auszugleichen, wurde die Methode des Reverse Domain Filling (RDF) entwickelt [Sutton et al., 1994]. Diese Methode wird durch Abb. 4.1 verdeutlicht. Angenommen, die Ortsauflösung zur Bestimmung der PV ist derart, dass allen Luftmassen, welche sich innerhalb eines der dargestellten Kreise befinden, eine einheitliche PV zugeordnet wird. Zum Zeitpunkt t_1 sollen sich die Luftmasse a, b und c weit entfernt voneinander befinden, und für jede dieser Luftmassen wird damit ein eigener PV-Wert ermittelt. Wenn die PV nun (unter Vernachlässigung eines gewissen Trends aufgrund Reibung oder diabatischer Abkühlung) eine Erhaltungsgröße für diese Luftmassen darstellt, sollten die PV-Werte zum Zeitpunkt t_2 identisch mit den PV-Werten zum Zeitpunkt t_1 sein. Allerdings liegen die drei Luftmassen zum Zeitpunkt t_2 eng beieinander, d.h. zu diesem Zeitpunkt wird allen drei Luftmassen derselbe PV-Wert zugeordnet. Die RDF-

Methode besteht nun darin, auf der Basis meteorologischer Daten mit Hilfe eines geeigneten Computerprogramms den Weg der Luftmassen ausgehend z. B. von einer Ballonflugroute zeitlich rückwärts (d.h. von t_2 zu t_1) zu verfolgen und dann die PV-Werte eines ausgewählten Zeitpunktes t_1 auf die Ballonroute, d.h. auf Zeitpunkt t_2 , zu projizieren. Ein derartiges Programm ist als dynamisches Werkzeug in das Jülicher Modell CLaMS (Abschnitt 7.1) integriert. Selbst wenn die PV auf dem Weg von t_1 zu t_2 nicht erhalten blieb, muss das nichts an der Nützlichkeit der RDF-Methode ändern, da die PV hier nur als dynamischer Tracer interessiert, d.h. die Bestimmung der PV ist nur Mittel zum Zweck des Gewinnens von Informationen über eine chemische Spezies. Die Mischungsverhältnisse dieses chemischen Tracers wiederum bleiben erhalten, solange die Luftmassen nur Impuls austauschen (und damit ihre PV verändern) aber sich nicht vermischen. Häufig, aber nicht immer, stimmt die RDF-PV eines bestimmten Zeitpunktes t_1 deshalb stärker mit dem Profil eines zum Zeitpunktes t_2 gemessenen chemischen Tracers dar als die sogenannte analysierte PV, welche für den Zeitpunkt t_2 ermittelt wurde.

Das Aussehen des RDF-Profiles hängt von der Länge der Rückwärtstrajektorien ab. Das dabei erhaltene PV-Profil wird dabei um so strukturierter, je weiter man die Trajektorien der Luftmassen zeitlich zurückverfolgt. Allerdings sinkt mit wachsender zeitlicher Länge der Rückwärtstrajektorien die Genauigkeit der Berechnung dieser Trajektorien, und es steigt die Wahrscheinlichkeit, dass die PV der betreffende Luftmasse eine Änderung erfuhr. Die RDF-Methode wurde und wird deshalb kontrovers diskutiert [Fairlie et al., 1997]. Der Zeitraum, in welchem die PV als erhalten angesehen werden kann, schwankt demnach in der unteren Stratosphäre zwischen einigen Tagen und einigen Wochen [Danielsen, 1990, Newman et al., 1996]. Ein allgemeingültiges Kriterium, ob überhaupt und für welche Trajektorienlänge die RDF-Methode anwendbar ist, lässt sich letztlich nicht angeben, es muss stets der Einzelfall betrachtet werden. Für die Auswertung des TRIPLE-Ballonaufstiegs musste die Methode verworfen werden, wie im Abschnitt 7.3 dargestellt wird.

4.4. Die N_2O - O_3 -Korrelation

Die Tracer-Tracer-Methode wurde für den Winter 1996/97 auf die Daten des Satellitengestützten Gerätes ILAS (siehe Abschnitt 6.2.1) angewandt. ILAS lieferte mit Methan und N_2O die Daten von zwei Tracern, welche in relativ hoher Konzentration in der Stratosphäre (Abb. 6.19) vorhanden sind. Im Fall von Methan wurden jedoch starke Diskrepanzen zwischen den ILAS-Messwerten (Retrieval-Version 5.20, [Yokota et al., 2002]) und den bei Validierungskampagnen gemessenen Vergleichsdaten festgestellt [Kanzawa et al., 2002]. Deshalb wurden beim Erstellen der frühen Vortexkorrelation durch Tilmes et al. [Tilmes et al., 2003], auf welche im weiteren Verlauf dieser Arbeit Bezug genommen wird, nur die N_2O -Daten verwendet. N_2O entsteht in der Troposphäre (diskutiert wird jedoch auch eine zusätzliche stratosphärische Quelle [Zellner et al., 1992, Olsen et al., 2001]) und ist unterhalb von ca. 30 km oder 875 K photochemisch stabil [Brasseur & Solomon, 1984, Solomon et al., 1986a]. Es wurden stratosphärische Lebensdauern zwischen 101 [Bujok, 1998] und 120 Jahren [WMO, 1995] bestimmt. Da der Netto-Transport von N_2O (von der Quelle zur Senke) nach oben verlaufen muss, nimmt entsprechend das Mischungsverhältnis dieser Substanz mit wachsender Höhe ab und verläuft somit in der unteren Stratosphäre im Allgemeinen entgegengesetzt zur Konzentration von Ozon, dessen stärkste Quelle sich auf etwa 40 km Höhe befindet. Korrelationen zwischen O_3 und N_2O für verschiedene Zeitpunkte und Messorte sind in Abb. 4.2 dargestellt.

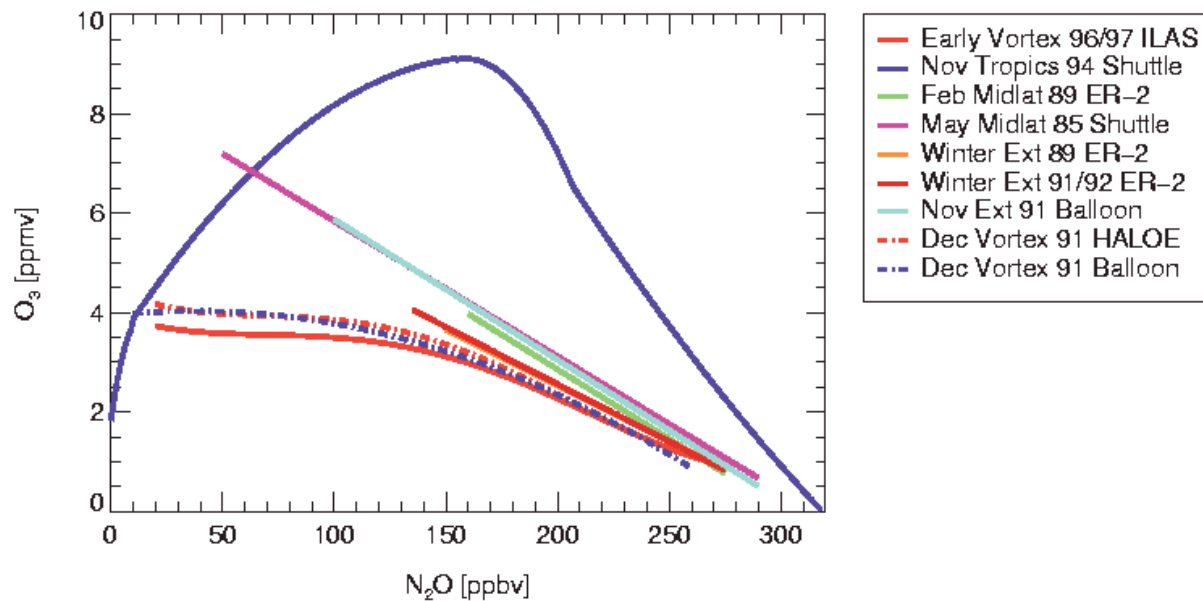


Abb. 4.2 Verschiedene Korrelationen zwischen O_3 und N_2O . Die Early-Vortex-Korrelation des Winters 1996/97 wurde aus [Tilmes et al., 2003], die übrigen Korrelationen aus [Proffitt et al., 2003] entnommen. Die Abkürzungen in der Legende bedeuten: Vortex: Messung im Polarwirbel. Midlat: Messung in mittleren Breiten. Winter Ext: Messung im Winter außerhalb des Polarwirbels. ILAS, HALOE, Shuttle: weltraumgestützte Messungen mittels der Satelliten-Instrumenten ILAS und HALOE bzw. von einem Space Shuttle der NASA (mittels des ATMOS-Instrumentes). ER-2: Messung mittels des US-amerikanischen Höhenforschungsflugzeugs ER-2.

In den Tropen findet man für N_2O -Mischungsverhältnisse größer als 175 ppbv, welche etwa an der photochemischen Stabilitätsgrenze von N_2O erreicht werden, einen negativen linearen Zusammenhang. Für N_2O -Mischungsverhältnisse unterhalb von 150 ppbv hingegen, welche oberhalb des stratosphärischen Ozonmaximums erreicht werden, ist die Korrelation zwischen Ozon und N_2O positiv [Michelsen et al., 1998]. In mittleren Breiten sowie in hohen Breiten vor Ausbildung des Polarwirbels besteht ebenfalls eine lineare negative Korrelation, welche sowohl auf der Südhemisphäre [Proffitt et al., 1989a] als auch der Nordhemisphäre [Proffitt et al., 1993] bereits wenige Jahre nach der Entdeckung des Ozonlochs zur Quantifizierung des Ozonabbaus sowohl in- als auch außerhalb des Polarwirbels genutzt wurde. Allerdings ist der Anstieg des Ozons relativ zur Abnahme von N_2O hier geringer als in den Tropen. Somit kann die Tracer-Tracer-Methode auch zur Identifizierung der Einmischung tropischer Luftmassen in mittleren Breiten dienen [Randel et al., 1993]. Innerhalb des Polarwirbels weichen die Ozonwerte mit wachsender Höhe und damit abnehmenden N_2O -Mischungsverhältnissen immer mehr von der linearen Korrelation der mittleren Breiten ab. Ursachen sind die Isolation dieser Luftmassen gegenüber Mischungsprozessen mit tropischer ozonreicher Luft sowie, ab dem Frühjahr, der chemische Ozonverlust in den Polarregionen [Proffitt et al., 2003].

Zur Bestimmung der frühen Vortexkorrelation, welche die Verhältnisse im chemisch ungestörten Polarwirbel des Winters 1996/97 widerspiegelt, wurden durch Tilmes et al. Daten aus Luftmassen selektiert, welche sich sicher innerhalb des polaren Vortex befanden [Tilmes et al., 2003]. Zu diesem Zweck wurde das Konzept der äquivalenten Breite angewendet [Lary et al., 1995]. Es werden dabei für den betreffenden Tag und für jedes Höhenniveau die Linien gleicher Potentieller Vortizität bestimmt. Diese Linien umspannen eine Fläche, auf welcher die PV höher ist als auf dieser Linie. Es wird nun mathematisch der Fall konstruiert, dass diese Flächen ihren Flächeninhalt beibehalten, die Begrenzungslinien aber kreisrund um den Pol und damit entlang eines Breitengrades verlaufen. Dieser Breitengrad wird als äquivalente Breite bezeichnet. Für den Winter 1996/97 ließ sich frühestens ab Ende Dezember eine stabile

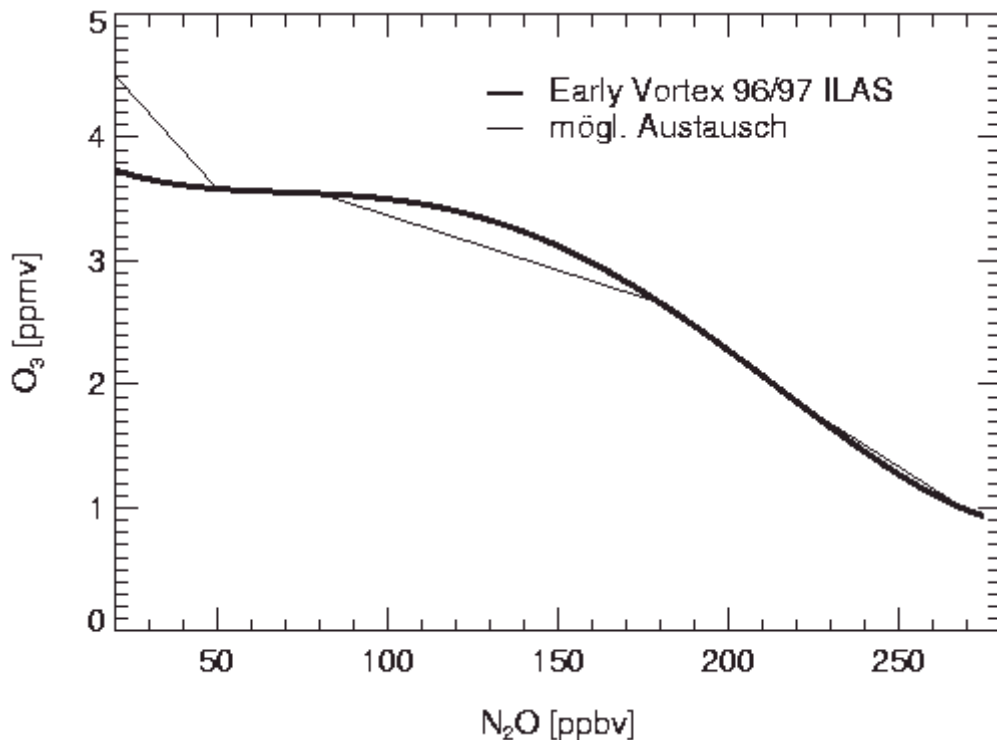


Abb. 4.3 Early-Vortex-Korrelation des Winters 1996/97, entnommen aus [Tilmes et al., 2003]. Die zusätzlich angegebenen Mischungsgeraden sind akademische Beispiele, siehe Text.

frühe Vortexkorrelation bestimmen. In diese Korrelation konnten Luftmassen einbezogen werden, denen sich eine äquivalente Breite von mehr als 70°N zuordnen ließ. Diese äquivalente Breite entsprach einer Potentiellen Vortizität von 30, 90 und 200 PVU auf einem Theta-Niveau von 475, 500 und 675 K. Luftmassen, welche dieses Kriterium erfüllen, befanden sich innerhalb des Polarwirbels (nach der Definition von Nash, welche die Grenze des Wirbels an der Linie des stärksten PV-Gradienten festlegt [Nash et al., 1996]). Als Korrelationskurve zwischen Ozon (in ppmv) und N₂O (in ppbv) wurde erhalten

$$O_3 = 3,136 \cdot 10^{-9} (N_2O)^4 - 1,789 \cdot 10^{-6} (N_2O)^3 + 2,811 \cdot 10^{-4} (N_2O)^2 - 0,0184 \cdot N_2O + 4,004 \quad (22)$$

mit einer Unsicherheit der Ozonkonzentrationen von $\pm 0,25$ ppmv. Diese Korrelation ist gültig für N₂O-Werte zwischen 275 ppbv und 20 ppbv und entsprechend Ozonwerten zwischen 0,9 ppmv und 3,7 ppmv. Derartige Werte wurden z. Bsp. entlang der Route der TRIPLE-Ballongondel auf Theta-Niveaus zwischen 370 und 570 K erreicht. Oberhalb davon bleibt das N₂O-Mischungsverhältnis etwa konstant auf einem Wert von rund 20 ppbv, während das Ozonmischungsverhältnis mit zunehmender Höhe bis zum stratosphärischen Ozonmaximum weiter ansteigt. Die Korrelation zwischen Ozon und N₂O blieb bis Anfang Februar stabil, danach zeigte sich in den ILAS-Daten wie erwartet ein deutlicher Ozonverlust, wobei die stärksten Veränderungen zwischen dem 22. Februar und dem 20. März beobachtet wurden [Tilmes et al., 2003]. Dargestellt ist die Korrelation in Abb. 4.3. Die in diese Abbildung zusätzlich angegebenen Mischungsgeraden sind akademische Beispiele für einen Austausch zwischen zwei Luftpaketen, für welche die Korrelation gültig ist, bzw. für eine Mischung mit einem Luftpaket mit Ozonwerten über 3,7 ppmv, welche sich oberhalb des Geltungsbereichs der Korrelationskurve befindet. Für N₂O-Werte zwischen 215 ppbv und 70 ppbv (entlang der TRIPLE-Route zwischen etwa 410 und 530 K bzw. 17 und 22 km Höhe) würde eine Mischung entlang einer Gerade unterhalb der Kurve verlaufen und zu niedrigeren Ozonwerten als aufgrund der N₂O-Gehalts erwartet resultieren. Eine derartige Vermischung würde somit

einen Ozonabbau vortäuschen. In den übrigen Bereichen hingegen würde eine Vermischung zu höheren Ozonwerten als erwartet führen. Lediglich ein Austausch mit Luft mit Herkunft oberhalb des stratosphärischen Ozonmaximums würde ebenfalls den Ozongehalt in der betreffenden Luftmasse der unteren Stratosphäre verringern, allerdings müssten beträchtliche Luftvolumina (Volumen gemessen am Ursprungsort unter dem dort herrschenden niedrigeren Druck) absteigen, um einen messbaren Effekt zu erzielen. Diese Erklärung für eine Überschätzung des chemischen Ozonabbaus in der unteren Stratosphäre kann damit ausgeschlossen werden [Proffitt et al., 2003].

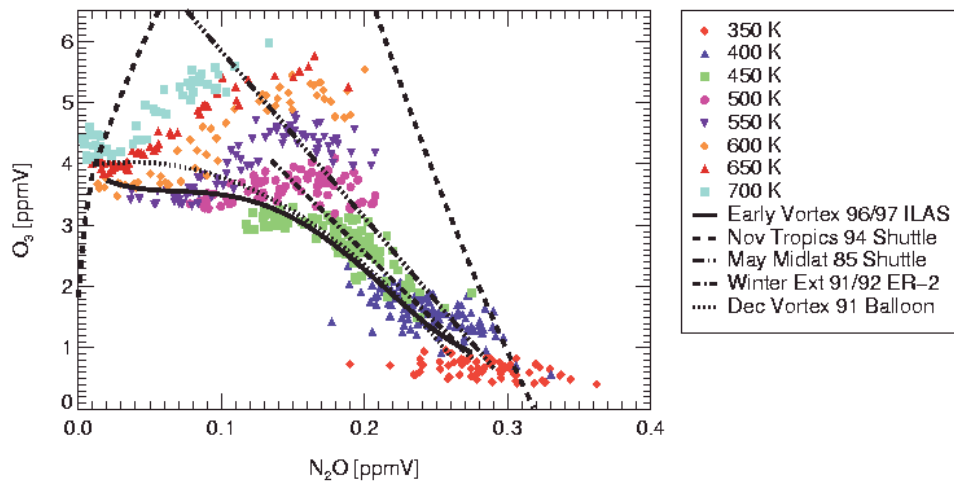


Abb. 4.4 O₃ und N₂O, gemessen vom ILAS-Instrument vom 28. Januar bis zum 11. Februar 1997 (die letzten zwei Wochen vor dem TRIPLE-Aufstieg) bei 68°N auf den angegebenen Theta-Niveaus (±5 K). Zusätzlich gezeigt sind die Early-Vortex-Korrelation des Winters 1996/97 [Tilmes et al., 2003] und weitere ausgewählte Korrelationen (Abb. 4.2).

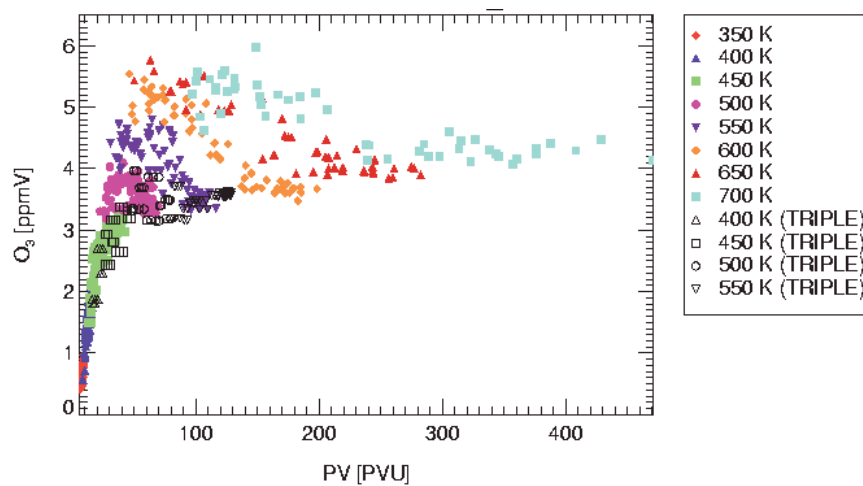


Abb. 4.5 Wie Abb. 4.4 für O₃ und die Potentielle Vortizität (PV). Zusätzlich Darstellung der Messwerte des TRIPLE-Ballonaufstiegs vom 11. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.4).

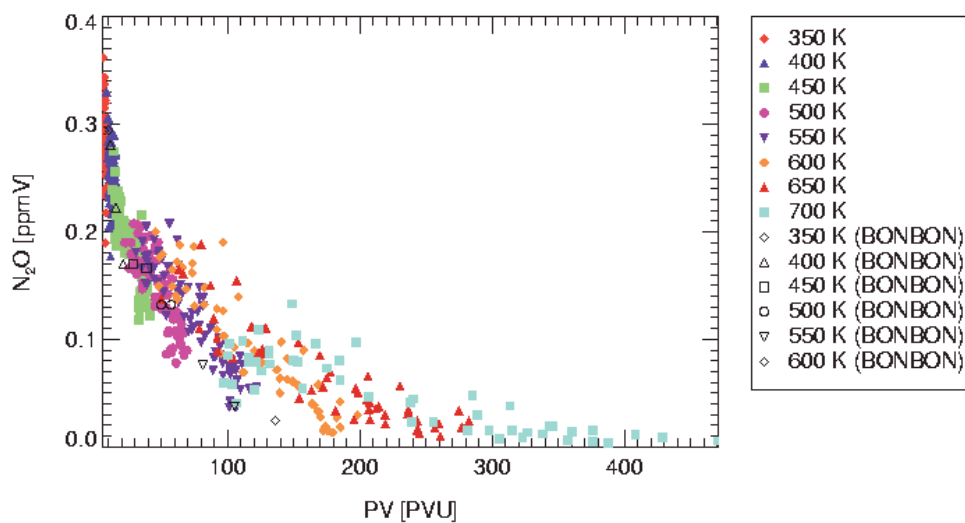


Abb. 4.6 Wie Abb. 4.4 für N₂O und die Potentielle Vortizität (PV). Zusätzlich Darstellung der Messwerte des am TRIPLE-Ballonaufstieg beteiligten BOMBON-Kryosammlers vom 11. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.7).

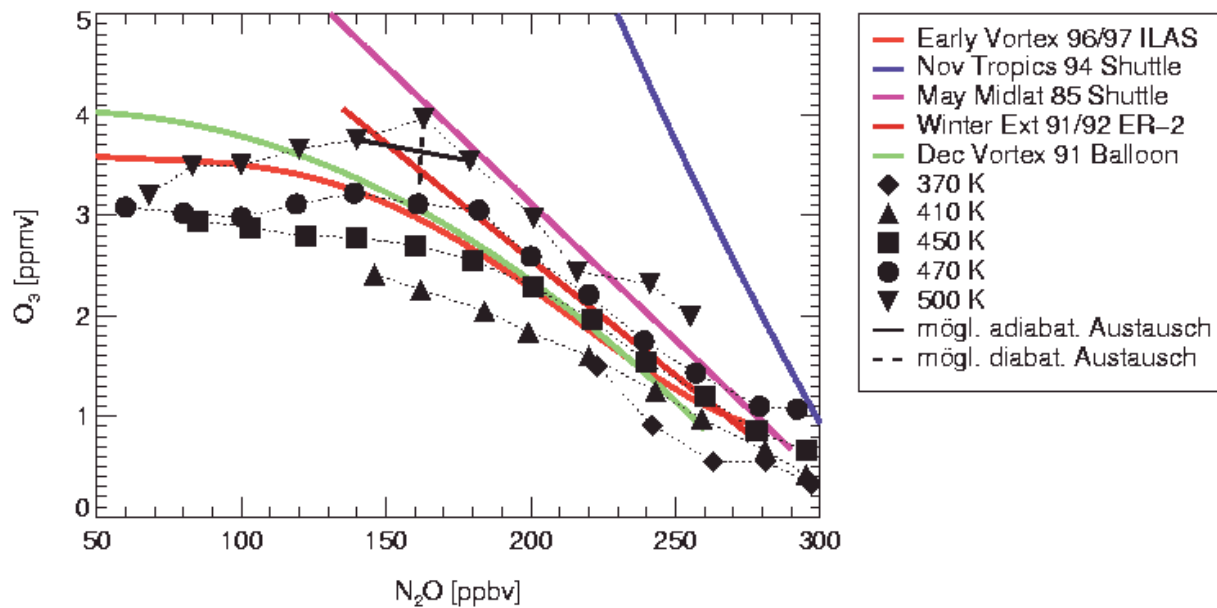


Abb. 4.7: Ozonmischungsverhältnisse, welche vom US-Forschungsflugzeug ER-2 zwischen 1989 und 1997 jeweils in den Monaten Dezember bis Februar auf der gesamten Nordhemisphäre im Mittel gemeinsam mit den angegebenen N_2O -Mischungsverhältnissen auf den jeweiligen Theta-Niveaus (± 10 K) gemessen wurden [Proffitt et al., 2003], dazu ausgewählte Korrelationen (siehe Abb. 4.2). Der dargestellte mögliche adiabatische Austausch über den Vortexrand auf dem 500-K-Niveau würde zu einer Abschwächung des Knicks im Verlauf der Messwerte führen. Ein diabatisches Absinken von Luft aus dem 500-K-Niveau hingegen würde auch auf niedrigeren Theta-Niveaus zur Ausbildung eines Knicks führen.

4.5. Vergleich der N_2O - O_3 -Korrelation mit den ILAS-Daten

In diesem Abschnitt soll die Early-Vortex-Korrelation (Abb. 4.3) mit sämtlichen bei 68° nördlicher Breite aufgenommenen ILAS-Messwerten des Zeitraumes vom 28. Januar-11. Februar 1997 (d.h. die letzten zwei Wochen vor dem Aufstieg der TRIPLE-Gondel) verglichen werden. In Abb. 4.4 sind die Ozon-Messwerte als Funktion der N_2O -Messwerte, in Abb. 4.5 als Funktion der Potentiellen Vortizität (PV) dargestellt, Abb. 4.6 zeigt den Zusammenhang zwischen N_2O und PV. Da N_2O und PV deutlich antikorreliert sind, wirkt Abb. 4.5 wie ein Spiegelbild von Abb. 4.4. Für niedrige Potentielle Temperaturen (Theta) stellt die Early-Vortex-Korrelation (Abb. 4.3) des Winters 1996/97 noch einen akzeptablen Mittelwert der tatsächlich auftretenden Ozonwerte dar. Oberhalb von etwa 450 K hingegen kann die Korrelation nur für die Luftpakete mit den höchsten PV des jeweiligen Theta-Niveaus bestätigt werden. Dies steht aber nicht im Widerspruch zu Tilmes et al., da diese ausschließlich Luftmassen mit hoher PV in die Betrachtung einbezogen [Tilmes et al., 2003].

Die ILAS-Daten können verglichen werden mit Messungen des amerikanischen Höhenforschungsflugzeugs ER-2 von Ozon und N_2O , welche zwischen 1989 und 1997 jeweils in den Monaten Dezember bis Februar auf der gesamten Nordhemisphäre erhalten wurden (Abb. 4.7, [Proffitt et al., 2003]). Es wurden dabei Luftmassen ausgewählt, in welchen bislang kein signifikanter chemischer Ozonverlust auftrat. Im Polarwirbel (hohe PV und damit niedrige N_2O -Werte) ist die Korrelation zwischen Ozon und N_2O für die bei 470 K und noch deutlicher für die bei 500 K aufgenommenen Werte positiv. Die Ozonwerte liegen dabei unterhalb der Early-Vortex-Korrelationen der Winter 1991/92 (Dec Vortex 91 Balloon) und 1996/97. In diesen beiden Wintern lag ein relativ hoher Ausgangs-Ozongehalt vor (siehe dazu auch Abschnitt 6.1.1). Außerhalb des Wirbels (niedrige PV und damit hohe N_2O -Werte) ist die Korrelation hingegen auf allen dargestellten Theta-Niveaus negativ. Die Trendumkehr erfolgt bei N_2O -Mischungsverhältnissen um etwa 160 ppbv, hier bildet sich ein deutlicher

Knick im Verlauf der Messwerte aus. Wie in Abb. 4.7 illustriert, müsste ein adiabatischer Austausch über den Rand des Polarwirbels zu einer Abschwächung dieses Knicks führen, ein diabatischer Austausch hingegen zu seiner Verstärkung. Aus dem Vorhandensein des Knicks kann somit geschlossen werden, dass der Rand des Polarwirbels eine effektive Barriere gegen adiabatischen Transport darstellt. Ein Transport über diese Grenze ist, sofern er überhaupt stattfindet, damit praktisch stets mit einem irreversiblen Verlust an Entropie und innerer Energie und damit auch an Potentieller Temperatur (Theta) verbunden. Dieses Phänomen der Trendumkehr findet sich auch in den mittleren Breiten und wird hier durch diabatischen Austausch zwischen tropischer und außertropischer Luft bewirkt [Proffitt et al., 2003].

Auch bei den auf einer geographischen Breite von 68°N im Januar und Februar aufgenommenen ILAS-Messwerten (Abb. 4.3) zeichnet sich vor allem auf dem 550- und 600-K-Niveau eine Trendumkehr am Vortexrand ab. Leider lässt sich die Fortsetzung in Form einer negativen Korrelation in Richtung mittlere Breiten nicht so deutlich zeigen, da wegen der Polzentriertheit des 1996/97er Wirbels ILAS keine Daten aus diesem Bereich liefern konnte. Im dargestellten Bereich verlaufen die Theta-Niveaus etwa auf einer konstanten Höhe, so dass ein diabatischer Austausch stets auch mit einer Vertikalbewegung verbunden sein muss.

Da auf jedem Theta-Niveau im Gültigkeitsbereich der Early-Vortex-Korrelation gerade die Luftmassen, welche die niedrigsten Ozonkonzentrationen dieses Theta-Niveaus aufweisen, die Korrelation erfüllen, hat bis zu diesem Zeitpunkt offenbar noch kein nennenswerter chemischer Ozonabbau stattgefunden. Dies stimmt überein mit praktisch allen Befunden zum Ozonabbau im Winter 1996/97. Eine Anwendung der Early-Vortex-Korrelation (Abb. 4.3) würde für die Mehrzahl der durch ILAS beprobten Luftmassen zu niedrige Ozon-Erwartungswerte und damit eine zu niedrige (im gegebenen Fall, vor dem Eintreten des chemischen Ozonabbaus, sogar negative) Differenz zwischen den erwarteten und gemessenen Werten ergeben. Da das Prinzip der Tracer-Tracer-Methode darin besteht, diese Differenz (sofern sie positiv ist) mit dem chemischen Ozonverlust zu assoziieren, kann mittels dieser Methode somit eine zuverlässige Untergrenze für den chemischen Ozonabbau angegeben werden. Methodische Fehler dieser Methode sind offenbar nicht verantwortlich für das Messen eines um den Faktor 2 höheren chemischen Ozonverlusts als erwartet (siehe Abschnitt 3.5). Abb. 4.4 legt nahe, die Genauigkeit der Tracer-Tracer-Methode zu erhöhen, indem anstelle der Early-Vortex-Korrelation des Winters 1996/97 für jedes Theta-Niveau eine eigene positive und lineare N_2O - O_3 -Korrelation erstellt wird. Allerdings ist zu beachten, dass die Potentielle Temperatur langfristig keine Erhaltungsgröße darstellt. Sofern kein chemischer Ozonverlust und keine Mischungsvorgänge stattfinden, wird die auf einem bestimmten Theta-Niveau erstellte Korrelation durch die diabatisch absinkenden Luftmassen auf ein niedrigeres Theta-Niveau mitgenommen. Eine fehlerhafte Kenntnis der Absinkraten kann damit das Ergebnis beeinflussen. Die Problematik verdient weitere Untersuchungen.

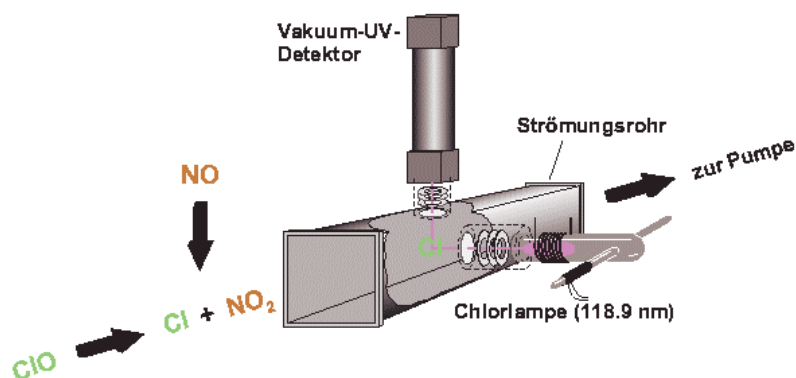


Abb. 5.1: Funktionsskizze eines Messplatzes des CIO/BrO-Balloninstruments.

5. Das CIO/BrO-Instrument

5.1. Prinzip

Das CIO/BrO-Balloninstrument, wie auch seine ab 2001 verwendete Flugzeug-Variante HALOX, dient primär zur Detektierung von CIO und BrO. HALOX ist zudem auch in der Lage, ClONO₂ und ClOOCl zu messen. Bei CIO und BrO handelt es sich um Radikale und damit um reaktionsfreudige Substanzen. Eine Sammlung mittels z. B. Kryosammler ist damit ausgeschlossen, da Wandkontakte mit hoher Wahrscheinlichkeit zur Vernichtung dieser Moleküle führen. Sowohl für CIO [Solomon et al., 2000] als auch für BrO [Carrol et al., 1989, Pundt et al., 2002] stehen verschiedene Fernerkundungsmethoden sowohl im IR- als auch im UV-VIS-Bereich zur Verfügung, mit diesen Methoden lassen sich allerdings nur Ortsauflösungen im Kilometerbereich erzielen.

Die Funktion des CIO/BrO-Balloninstruments ist in Abb. 5.1 skizziert. Es ermöglicht hochaufgelöste In-Situ-Messungen von CIO und BrO mittels der CCRF- (Chemical Conversion and Resonance Fluorescence) Methode. Das Gerät besteht aus einem etwa 1 m langen Messkanal mit einem quadratischen Querschnitt von 5×5 cm. An dessen Ende befindet sich eine Pumpe, welche die Außenluft mit der gewünschten Geschwindigkeit in den Kanal saugt. Nach dem Eintritt der Außenluft in das Gerät wird periodisch NO in den Luftstrom injiziert. Durch chemische Reaktion mit NO werden CIO und BrO zu Cl bzw. Br reduziert. Im weiteren Verlauf passiert der Luftstrom insgesamt drei Messplätze (Abb. 5.3). An diesen befindet sich jeweils eine Lampe, welche Licht im Vakuum-UV-Bereich (VUV, per Definition zwischen 30 und 150 nm) mit einer Wellenlänge von entweder 118,9 nm (Chlorlampe) oder 131,7 nm (Bromlampe) aussendet. Das von den Lampen ausgesandte Licht regt, je nach der Wellenlänge, Resonanzfluoreszenz in den Chlor- bzw. Bromatomen an. Diese senden nun Licht in alle Raumrichtungen aus. Beim Lichtsignal senkrecht zur Einfallsrichtung des anregenden Primärlichts muss es sich damit, von einem durch Rayleigh- und Kammerstreuung verursachten Hintergrundsignal abgesehen, um das Signal der Cl- bzw. Br-Atome handeln. Entsprechend ist senkrecht zum Primär-Lichtstrahl jeder Lampe ein Photomultiplier angebracht, welcher das Fluoreszenzlicht detektiert. Dieser unterscheidet nicht zwischen den Lichtwellenlängen, so dass Chlor- und Brommessung in getrennten Messplätzen erfolgen müssen. Die NO-Zugabe erfolgt in Intervallen, so dass abwechselnd das reine Hintergrundsignal und das Cl- bzw. Br-Signal zusätzlich zum Hintergrund gemessen wird.

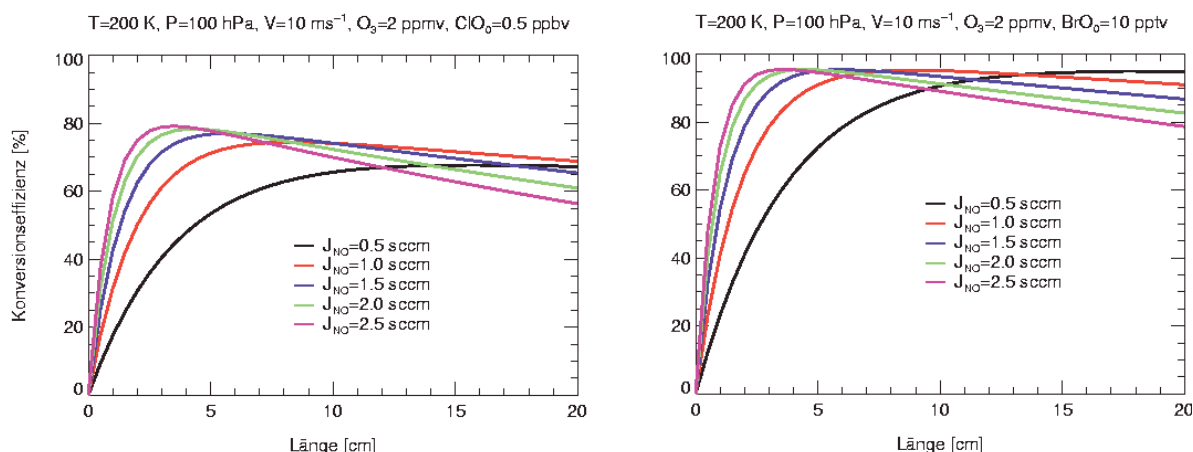


Abb. 5.2: Effizienz (in Prozent) der Konversion von ClO zu Cl (links) bzw. von BrO zu Br (rechts) im Luftstrom des ClO/BrO-Instruments in Abhängigkeit von der Entfernung vom NO-Injektor für verschiedene NO-Flüsse J_{NO} (in sccm). Die Modellierung erfolgte für einen Druck P von 100 hPa, eine Temperatur T von 200 K, einer Flussgeschwindigkeit V von 10 m/s, einem Ozonmischungsverhältnis von 2 ppmv und Ausgangsmischungsverhältnissen für ClO (links), BrO (rechts) und NO_2 (beide) von 500 pptv, 10 pptv und 100 pptv. OClO wurde vernachlässigt. Die Reaktionskonstanten wurden aus [JPL, 2003] entnommen.

Mit einem nach dem Prinzip des ClO/BrO-Gerätes arbeitenden Instrument gelang erstmals im Jahr 1984 durch Brune et al., Harvard University, eine hochaufgelöste ClO-Messung mit akzeptabler Genauigkeit, damals noch mit Hilfe eines Ballons, von welchem aus das Instrument an einem 10 km langen Seil abwechselnd abgelassen und wieder heraufgezogen wurde [Brune et al., 1985]. Später wurde auf der Basis dieses Geräts ein Flugzeuginstrument entwickelt. Dieses Gerät wurde u.a. auf dem historischen Flug des amerikanischen Höhenforschungsflugzeugs ER-2 am 16.9.1987 eingesetzt (Abb. 1.2, [Anderson et al., 1991]). Als Flugzeuginstrument wird heute neben dem HALOX-Instrument (Abschnitt 5.4) ein Gerät durch die Harvard University, Cambridge, Massachusetts [Stimpfle et al., 1999] betrieben. Die Weiterentwicklung von Ballongeräten erfolgte zum einen an der University of California, Irvine (UCI) und später der University of Colorado, Boulder, zum anderen am Forschungszentrum Jülich. Hier wurde in Zusammenarbeit mit der UCI eine modifizierte Version dieses Gerätes für den Einsatz auf Ballongondeln entwickelt. Mit ihm gelang am 3. Februar 1995 in Kiruna die erste ballongestützte arktische Messung von Halogenradikalen oberhalb der Gipfelhöhe der ER-2. ClO-Messungen werden sowohl durch das Jülicher als auch durch das US-amerikanische Gerät routinemäßig mit guter Genauigkeit geliefert, während Brommessungen nach wie vor mit Schwierigkeiten verbunden sind. Das BrO-Mischungsverhältnis ist im Frühjahrs-Polarwirbel bei vollständiger Chloraktivierung etwa um zwei Größenordnungen geringer als das von ClO (typischerweise 10 pptv BrO und 1000 pptv ClO). Dazu kommt jedoch das Problem der VUV-Absorption durch Sauerstoff. Die 118,9 nm-Emissionslinie von ClO befindet sich zufällig gerade in einem Absorptionsminimum des Sauerstoffs. Der Absorptionsquerschnitt des Sauerstoffs beträgt hier etwa $2 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2/\text{Atom}$, beim Emissions-Dublett 131,7/131,8 nm von BrO hingegen etwa $5 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2/\text{Atom}$.

5.2. Reaktionen im Messkanal

Um aus dem Cl- bzw. Br-Signal auf die ClO- bzw. BrO-Konzentrationen schließen zu können, ist eine Kenntnis der Konversionseffizienz notwendig. Diese Größe gibt an, wieviel Prozent der ursprünglich in XO eingebundenen X-Atome ($X=\text{Cl}, \text{Br}$) im Moment der Passage des Messplatzes in Form freier X-Atome vorliegen und somit zum Fluoreszenzsignal beitragen. Es muss deshalb betrachtet werden, welche chemischen Reaktionen im Messkanal nach der NO-Zugabe stattfinden. Diese Reaktionen sind in Tab. 10.1 aufgeführt ($X=\text{Cl}, \text{Br}$).

Zu jeder Reaktion wurden die Raten für die Änderung der Konzentration der jeweiligen X-Spezies (bzw. für NO oder Ozon im Fall von Reaktion (28)) angegeben, welche sich aus den Angaben in [JPL, 2003] für eine Temperatur von 200 K, einen Druck von 100 hPa, einer NO- und Ozonkonzentration von jeweils 2 ppmv und einer NO₂-Konzentration von 1 ppbv berechnet wurden. Während NO und Ozon im Überschuss vorhanden sind und sich ihre Konzentrationen somit kaum verändern, wächst die NO₂-Konzentration kontinuierlich an und erreicht Werte um 1 ppbv bei Passage des Messplatzes.

Reaktion	K _{X=Cl} [1/s]	K _{X=Br} [1/s]	
$XO + NO \rightarrow X + NO_2$	198	234	(23)
$X + NO + M \rightarrow XNO + M$	4,5	2,2	(24)
$X + NO_2 + M \rightarrow XNO_2 + M$	$5,3 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-2}$	(25)
$X + O_3 \rightarrow XO + O_2$	61,3	2,3	(26)
$X + O_2 + M \rightarrow XO_2 + M$	$1,4 \cdot 10^4$	$7,6 \cdot 10^3$	(27a)
$XO_2 + M \rightarrow X + O_2 + M$	$1,2 \cdot 10^5$	$2,1 \cdot 10^7$	(27b)
$NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	(28)
$X + NO_2 + M \rightarrow XONO + M$	$3,8 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	(29)
$OCIO + NO \rightarrow ClO + NO_2$	0,9		(30)

Tab. 5.1: Reaktionen, welche im Messkanal des ClO/BrO-Instruments nach der NO-Zugabe eine Rolle spielen. Zu den Reaktionskonstanten siehe den Text.

Während Reaktion (23) für die gewünschte Konversion von ClO zu Cl, bzw. BrO zu Br sorgt, wirken die Reaktionen (24-29) mit Ausnahme der Rückreaktion (27b) der Umsetzung entgegen und sorgen dafür, dass die Konversionseffizienz unter 100% bleibt. Reaktion (30) ist bei Nachtflügen von Bedeutung und kann dafür sorgen, dass auch das durch Reaktion (18) gebildete Cl_x-Nachtreservoir OCIO zum Cl-Signal beiträgt [Thornton et al., 2003]. Da sie im Vergleich zu Reaktion (23) aber sehr langsam abläuft, spielt sie auch nachts nur eine Rolle bei Messungen mit sehr niedrigen Flussgeschwindigkeiten im Messkanal.

Dieses System lässt sich nun mit Hilfe des Programms FACSIMILE [Curtis & Sweetenham, 1987] modellieren, und die Konversionseffizienz kann in Abhängigkeit von Temperatur und Druck (welche die Reaktionskonstanten beeinflussen), dem Ozon-Mischungsverhältnis und der Stärke der NO-Zugabe als Funktion der Zeit und damit (abhängig von der Flussgeschwindigkeit) als Funktion der Entfernung vom NO-Einlass berechnet werden. Ein typischer Verlauf ist in Abb. 5.2 dargestellt. Im Fall der BrO-Konversion haben die Rückreaktionen einen geringeren Einfluss, weshalb hier eine höhere und (bei geeignetem NO-Fluss) in einem größeren Bereich ortsunabhängige Konversionseffizienz erzielt werden kann. Im Fall von Chlor hingegen sorgt vor allem die Reaktion (26) für eine deutliche Reduzierung der Konversionseffizienz. Mittels dieser Modellrechnungen wird im Vorfeld der Messkampagnen nach idealen NO-Flüssen und Flussgeschwindigkeiten gesucht, mittels welchen an den Messplätzen möglichst hohe Konversionseffizienzen erzielt werden können. Umgekehrt kann bei der Auswertung einer Kampagne aus den Messwerten für Druck, Temperatur, Flussgeschwindigkeit, NO-Fluss und Ozon die Konversionseffizienz für jeden Moment des Messfluges berechnet werden.

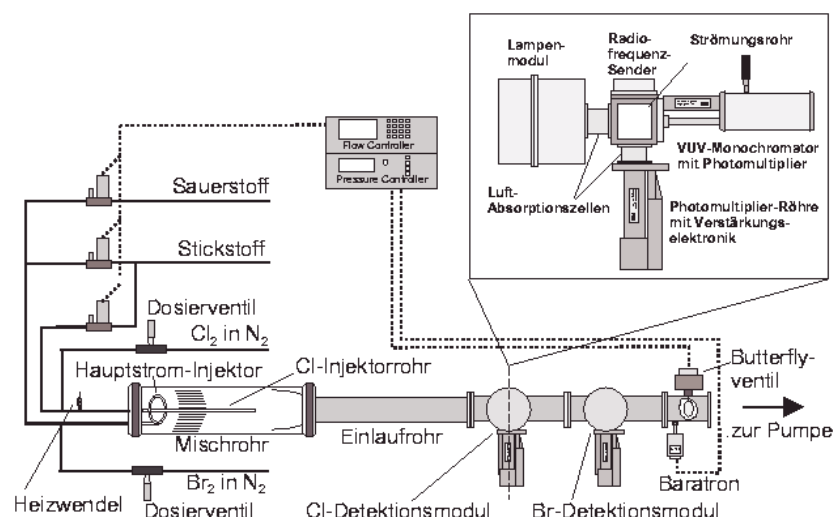


Abb. 5.3: Das ClO/BrO-Balloninstrument auf der Kalibrationsbank.

5.3. Kalibration

Als Kalibrationsfaktor bezeichnet man das Verhältnis des Resonanzfluoreszenzsignals zur Konzentration der Chlor- bzw. Bromatome im Messkanal, welche wiederum (sofern außer ClO bzw. BrO keine anderen Quellen zum Chlor- bzw. Bromsignal beitragen) der Konzentration von ClO bzw. BrO, multipliziert mit der Konversionseffizienz, entspricht. Der Kalibrationsfaktor ist aufgrund von Veränderungen der Lampeneigenschaften (insbesondere des MgF_2 -Fensters, durch welches der Lichtstrahl die Lampe verlässt) oder der Hintergrundzählrate (als Folge von Veränderungen in der inneren Oberfläche des Messkanals) langfristig nicht konstant und wird deshalb vor und nach jeder Messkampagne neu bestimmt. Prinzipiell ist es möglich, auch im Labor eine Gasmischung mit bekanntem ClO- bzw. BrO-Mischungsverhältnis in das Messgerät einzubringen, für die routinemäßige Kalibration wird jedoch eine andere Vorgehensweise gewählt. Der Aufbau der Kalibrationsbank ist in Abb. 5.3 gezeigt.

Für die Chlormessung spielt die Sauerstoffabsorption nur eine geringe Rolle. Deshalb genügt es für die Chlorkalibration, den Messkanal im Labor mit kostengünstigerem Stickstoff anstelle von Luft zu durchspülen. Dem einlaufenden N_2 -Strom wird Cl_2 hinzugefügt. An einer Wolframwendel wird die Luft erhitzt und Cl_2 in Cl-Atome zerlegt. Das Cl-Mischungsverhältnis wird nun mittels zwei unabhängiger Methoden bestimmt, mittels UV-Fluoreszenz (selbe Methode wie im Flug) und mittels UV-Absorption. Letztere Methode ist im Flug wegen der im Vergleich zum Labor geringeren Cl- oder auch Br-Mischungsverhältnisse nicht anwendbar. Damit erhält man zunächst einen für die konkreten Bedingungen gültigen Kalibrationsfaktor. Dieser wird nun unter Verwendung der ebenfalls experimentell bestimmten Größen $(\partial S/\partial P)$ und L in einen normierten Stickstoff-Kalibrationsfaktor $C_{\text{Cl},\text{N}_2,\text{norm}}$ umgerechnet (siehe [Woyke, 1998]). Bei $(\partial S/\partial P)$ handelt es sich um die Abhängigkeit der Hintergrundzählrate vom Druck, bei L um den relativen Anteil der Intensität der Lyman- α -Linie des atomaren Wasserstoffs bei 121,6 nm an der Gesamtintensität der Lampe (= der Summe der Intensitäten der Chlorlinie bei 118,9 nm und der Lyman- α -Linie). L muss berücksichtigt werden, da Feuchtigkeit, welche bei der Herstellung der Chlorlampe nicht entfernt werden konnte oder später in die Lampe eindrang, ein Lyman- α -Signal erzeugt, welches zum Hintergrundsignal beiträgt. Der so bestimmte normierte Kalibrationsfaktor $C_{\text{Cl},\text{N}_2,\text{norm}}$ dient der Qualitätskontrolle der Lampe. Er sollte nach der Referenzkurve

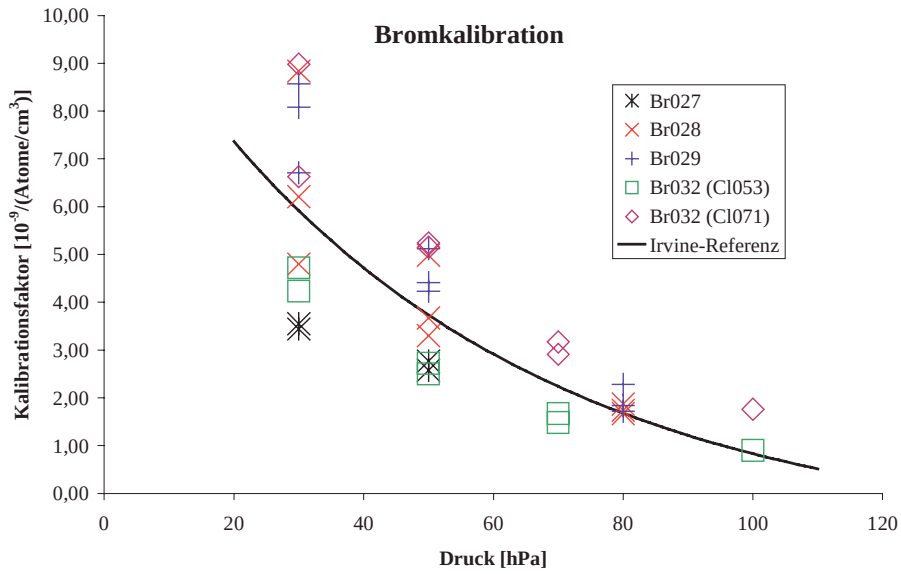


Abb. 5.4: Brom-Kalibrationsfaktoren für die Bromlampen Br027, Br028, Br029 und Br032 (wobei für diese die Kalibration mittels zwei verschiedenen Chlorklampen durchgeführt wurde). Sofern bei einem Druck mehrere Datenpunkte für die selbe Lampe eingetragen sind, wurden diese für verschiedene Flüsse im Kanal oder verschiedene Lampentemperaturen ermittelt. Zusätzlich dargestellt ist eine 1996 an der University of California at Irvine gewonnene Referenzkurve (siehe [Vogel, 1998]).

$$\frac{1}{C_{\text{Cl},\text{N}_2,\text{norm}}} \left(\frac{10^5 \text{ Atome}}{\text{hPa} \cdot \text{cm}^3} \right)^{-1} = 9,3 + 0,139 \frac{P}{\text{hPa}} \quad (31)$$

eine Funktion des Drucks darstellen [Avallone, 1993, Woyke, 1998]. Veränderungen des optischen Zustands der Lampe, z. B. eine Verschlechterung der Transmission des MgF_2 -Fensters, können zu einer Abweichung von der Referenz führen. Sofern der ermittelte normierte Stickstoff-Kalibrationsfaktor aber als auf der Referenz liegend angenommen werden kann, kann der Kalibrationsfaktor $C_{\text{Cl},\text{Luft}}$ für einen beliebigen Moment während der Messung im Flug (welche in Luft erfolgt) nach der Formel

$$C_{\text{Cl},\text{Luft}} = S_{\text{Flug}} (1 - L) (\partial S / \partial P) f(\rho, \partial S / \partial P, L) \quad (32)$$

berechnet werden. S_{Flug} bezeichnet dabei die Hintergrundzählrate im Flug und ρ die Dichte der Luft. $(\partial S / \partial P)$ und L werden vor und nach dem Messflug bestimmt und als konstant angenommen. Für eine exakte Herleitung und Darstellung der zur Chlorkalibration notwendigen Gleichungen und weitere wichtige Details sei auf [Woyke, 1998] verwiesen.

Die Bromkalibration muss in Luft durchgeführt werden. Da der Absorptionsquerschnitt von Brom nur ungenau bekannt ist, erfolgt sie indirekt mit Hilfe der Chlorkalibration. Im Messkanal müssen während der Kalibration somit mindestens zwei Messplätze untergebracht sein, von welchen einer eine Chlor- und einer eine Bromlampe enthält. Der Monochromator wird zur Messung von L gegenüber der Chlorklampe angebracht.

Nachdem der Cl_2 -angereicherte N_2 -Strom die Wolframwendel passiert hat und somit Cl-Atome vorliegen und nachdem er mit einem zusätzlichen N_2 - und einem O_2 -Strom zu Luft vermischt wurde (Abb. 5.3), wird nun zusätzlich noch Br_2 injiziert. Nun findet die Reaktion



statt. Sofern Br_2 im Überschuss zugegeben wird, werden sämtliche Chloratome umgewandelt, und das Chlor-Resonanzfluoreszenzsignal verschwindet bis auf ein verbleibendes Streulicht-Hintergrundsignal. Gleichzeitig werden genauso viel Bromatome in das System eingebracht, wie Chloratome in BrCl eingebunden werden. Damit muss nun gelten

$$\Delta I_{\text{Cl}} C_{\text{Cl,Luft}} = \Delta I_{\text{Br}} C_{\text{Br,Luft}} = \Delta I_{\text{Br}} C_{\text{Br,Luft,norm}} S_{\text{Br-Lampe}} \quad (34)$$

mit ΔI_{Cl} und ΔI_{Br} dem Chlor- und Bromsignal (jeweils abzüglich der Hintergrundzählrate). Der Chlor-Kalibrationsfaktor $C_{\text{Cl,Luft}}$ wird nach Gleichung (32) aus Messungen von $(\partial S/\partial P)$ und L an der Chlorlampe bestimmt. Die Normierung des Brom-Kalibrationsfaktors erfolgt, wie aus Gleichung (34) ersichtlich, direkt anhand der Hintergrundzählrate $S_{\text{Br-Lampe}}$ der Bromlampe. In Abb. 5.4 sind die normierten Brom-Kalibrationsfaktoren ausgewählter Bromlampen dargestellt. Ähnlich zur Chlorkalibration wird auch hier erwartet, dass die ermittelten Faktoren einer Referenzkurve entsprechen. Aufgrund vielfältiger Fehlereinflüsse kann diese Forderung jedoch nur annähernd erfüllt werden, entsprechend müssen Ungenauigkeiten in der BrO-Messung im Flug von bis zu 35% akzeptiert werden. Aufgrund des geringen Brom-Hintergrundsignals $S_{\text{Br-Lampe}}$ wirken sich Ungenauigkeiten in der Bestimmung dieser Größe gravierend auf das Ergebnis von Gleichung (34) aus. Zudem kann nicht nur der optische Zustand der Bromlampe, sondern auch der Zustand der Referenz-Chlorlampe zu einem abseits der Referenz liegenden Kalibrationsfaktor führen, wie ein Vergleich der Kalibrationsfaktoren für die Lampe Br032, erzielt mit unterschiedlichen Chlorlampen, zeigt. Schließlich haben auch die Flüsse im Kanal und die Lampentemperaturen einen Einfluss auf die Lage der ermittelten Werte.

Die Umrechnung der Größe $C_{\text{Br,Luft,norm}}$ auf den Kalibrationsfaktor zu einem bestimmten Moment während des Messfluges erfolgt nach

$$C_{\text{Br,Flug}} = S_{\text{Br-Lampe,Flug}} C_{\text{Br,Luft,norm}} \frac{T_{\text{Lab}}}{T_{\text{Flug}}} \sqrt{\frac{T_{\text{Br-Lampe,Lab}} + T_{\text{Lab}}}{T_{\text{Br-Lampe,Flug}} + T_{\text{Flug}}}} \quad (35)$$

mit T_{Lab} und T_{Flug} den Temperaturen im Kalibrationslabor (298 K) und im Flug und $T_{\text{Br-Lampe,Lab}}$ und $T_{\text{Br-Lampe,Flug}}$ den entsprechenden Temperaturen der Bromlampe. Für eine detaillierte Darstellung der Bromkalibration sei auf [Vogel, 1998] verwiesen.

5.4. HALOX, die Version für den Flugzeugeinsatz

5.4.1. Besonderheiten in Konstruktion und Arbeitsprinzip

Nach dem Erfolg mit dem Ballon-Messgerät wurde ebenfalls am Forschungszentrum Jülich ein nach dem gleichen Prinzip funktionierendes Gerät namens HALOX zum Einsatz auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug M55-„Geophysica“ entwickelt. Im September 2001 wurde es im Rahmen einer Testkampagne erstmals im Einsatz an Bord dieses Flugzeuges in Höhen bis zu 19 km getestet, seitdem absolvierte es mehrere erfolgreiche Kampagnen. Im Vergleich zum Balloninstrument wurden dabei folgende Änderungen vorgenommen:

- HALOX wurde mit zwei parallel verlaufenden Messkanälen ausgeführt, an welchen jeweils zwei Messplätze untergebracht werden können. Neben Platzgründen bestand die ursprüngliche Motivation dieser Konstruktionsweise darin, die Empfindlichkeit der Brommessung zu erhöhen. Wie im Abschnitt 5.1 ausgeführt, besteht bei dieser Messung das grundlegende Problem, dass Licht mit einer Wellenlänge von 131,7 nm, der Bromlinie, durch Sauerstoff vergleichsweise stark absorbiert wird. Ein Lösungsansatz besteht darin, den Druck im Messkanal unter den Umgebungsdruck zu verringern. Zu diesem Zweck wird am Eingang eines der beiden Kanäle (im Folgenden als Kanal B bezeichnet) eine Düse mit (gegenwärtig) 8 mm Durchmesser platziert. Am Ende des Kanals B befindet sich eine Pumpe. Wie im nächsten Abschnitt dargestellt, brachte diese Konstruktion nur geringen Erfolg für die Brommessung. Statt dessen kann der abgepumpte Kanal aber zur Messung von Chlornitrat (ClONO_2), einer der beiden Chlor-Reservoirsubstanzen, sowie des ClO-Dimers ClOOC eingesetzt werden.
- Wegen der hohen Fluggeschwindigkeit der „Geophysica“ ist es nur noch im Kanal B erforderlich, die Umgebungsluft mittels einer Pumpe anzusaugen. Für die Messungen im anderen frei durchströmten Kanal, im Folgenden als Kanal A bezeichnet, mussten vielmehr Vorkehrungen getroffen werden, dass sich die Luft nicht zu schnell durch den Kanal des Messgeräts bewegt und sich in diesem Kanal keine Turbulenzen ausbilden. In diesem Fall würde es zu übermäßigen Wandkontakten der einströmenden Luft und damit zu ClO- bzw. BrO-Verlusten an der Wand des Kanals kommen. Es wurde deshalb folgende Konstruktion gewählt: Zunächst strömt die Außenluft in den Primäreinlass. In diesem erfährt der Luftstrom eine Bremsung. Der größte Teil des Stroms verlässt diesen Bereich durch den Primärauslass, ohne die Messkanäle zu passieren. Der zentrale Teil des Primärstroms, welcher bisher keine Wandkontakte erfuhr, wird jedoch abgezweigt und gelangt durch den jeweiligen Sekundäreinlass in die beiden Messkanäle. Während die Strömungsgeschwindigkeit im Kanal B durch Pumpleistung und Düsendurchmesser kontrolliert wird, befindet sich am Ende des Kanals A ein Butterfly-Ventil. Dieses reagiert auf das Signal eines Thermoanemometers (dieses misst den Fluss im Kanal) und verändert seine Öffnung, um die gewünschte Flussgeschwindigkeit zu erreichen.

Im Folgenden werden die Beiträge dieser Arbeit zur HALOX-Entwicklung dargestellt.

5.4.2. Wirksamkeit des abgepumpten Kanals

Das Anbringen einer Düse am Eingang und das Abpumpen des Kanals bewirken zwei hinsichtlich der Signalintensität entgegengesetzte Effekte. Der gewünschte Effekte besteht in der Verminderung des Drucks im Kanal und damit der Verminderung der Absorption des UV-Lichts durch den Sauerstoff der Luft. Demgegenüber herrscht aber im abgepumpten Kanal eine geringere Dichte. Unter der Annahme, dass Wandeffekte trotz der Enge der Düse die selbe Rolle im abgepumpten und im nicht-abgepumpten Kanal (bzw. im Idealfall keine Rolle) spielen, kann folgende Abschätzung zum Vergleich der erwarteten Signal-Rausch-Verhältnisse in beiden Kanälen getroffen werden:

- Die Teilchenzahl der zu untersuchenden Spezies ist proportional zur Dichte ρ im jeweiligen Kanal. Die Querschnitte beider Kanäle sind identisch. Das zu erwartende Signal sollte sich somit proportional zur Dichte verhalten. Da der Rausch sich jedoch stets proportional zur Wurzel des Signals verhält, ist das Signal-Rausch-Verhältnis ebenfalls nur zur Wurzel der Dichte proportional. Als Dichte-Faktor zwischen dem abgepumpten Kanal B und dem nicht-abgepumpten Kanal A ergibt sich somit

$$F_{\text{Dichte}} = \sqrt{\frac{\rho_B}{\rho_A}} = \sqrt{\frac{P_B T_A}{P_A T_B}} \quad (36)$$

mit ρ , T , P und v der Dichte, der Temperatur, dem Druck und der Geschwindigkeit im jeweiligen Kanal.

- Die Transmission des UV-Lichts hängt exponentiell von der Sauerstoff-Teilchenzahl pro Volumen und damit von Druck und Temperatur ab. Die Weglängen x , welche das Licht von der Lampe bis zum Detektor zurücklegt, sind in beiden Kanälen identisch (7 cm). Als Transmissions-Faktor ergibt sich

$$F_{\text{Trans}} = \sqrt{\frac{\exp\left(-x g_{\text{O}_2} q_{\text{O}_2} N_A \frac{n_B}{V}\right)}{\exp\left(-x g_{\text{O}_2} q_{\text{O}_2} N_A \frac{n_A}{V}\right)}} = \sqrt{\frac{\exp\left(-\frac{1}{k} x g_{\text{O}_2} q_{\text{O}_2} \frac{P_B}{T_B}\right)}{\exp\left(-\frac{1}{k} x g_{\text{O}_2} q_{\text{O}_2} \frac{P_A}{T_A}\right)}} \quad (37)$$

mit g_{O_2} dem Absorptionsquerschnitt des Sauerstoffs auf der jeweiligen Spektrallinie ($2 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$ für die Chlorlinie 118,9 nm, $5 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$ für die Bromlinie 131,7 nm), $q_{\text{O}_2}=0,24$ dem Sauerstoff-Masseanteil in Luft, N_A der Avogadro-Zahl und k der Boltzmann-Konstante.

- Das resultierende Verhältnis der Signal-Rausch-Verhältnisse in beiden Kanälen ergibt sich damit zu

$$F = F_{\text{Dichte}} F_{\text{Trans}} \frac{C_B}{C_A} \frac{C_{\text{eff},B}}{C_{\text{eff},A}} \quad (38)$$

mit C dem jeweiligen Kalibrationsfaktor und C_{eff} der Konversionseffizienz

In Abb. 5.9 auf Seite 55 ist eine derartige Abschätzung für den Geophysica-Flug vom 26. Januar 2003 dargestellt, unter Annahme identischer Kalibrationsfaktoren und Konversionseffizienzen in beiden Kanälen. Dieser Flug fand im Rahmen der EUPLEX-Kampagne in Kiruna statt. Bei diesem Flug wurde ein Düsendurchmesser von 8 mm gewählt. Auf der „Reiseflughöhe“ war der Druck im Kanal B um den Faktor 0,4 gegenüber dem Druck im Kanal A verringert. Die damit verringerte Sauerstoffabsorption sollte das Signal-Rausch-Verhältnis der Brommessung im Kanal B im Vergleich zum Kanal A um den Faktor 1,6 verbessern (Transmission B/A Br in Abb. 5.9). Für die Chlorlinie erfolgt eine Verbesserung um den Faktor 1,2. Während des Steig- und Sinkfluges ergeben sich noch größere Unterschiede in den Drücken und damit im Transmissionsverhältnis. Da gleichzeitig aber die Dichte im Kanal A um den Faktor 2 größer ist, sollte die entsprechend höhere Konzentration an ClO und BrO zu einem um etwa den Faktor 1,5 besseren Signal-Rausch-Verhältnis im Kanal A im Vergleich zu Kanal B führen (Dichte A/B in Abb. 5.9). Die Kombination beider Effekte resultiert für Brom in einer geringfügigen Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses um den Faktor 1,2 (Gesamt B/A Br in Abb. 5.9). Im Steig- und Sinkflug

ergeben sich deutlichere Verbesserungen. im Fall von Chlor sollte das Signal-Rausch-Verhältnis im Kanal B geringfügig gegenüber Kanal A verschlechtert sein.

Abb. 5.6 auf Seite 54 zeigt die am 26. Januar 2003 gemessenen Signale der Chlorlampen (die Differenz zwischen dem Signal bei angeschalteter und abgeschalteter NO-Zugabe) und die sich daraus ergebenden ClO-Messwerte. Eine BrO-Messung wurde auf diesem Flug nicht durchgeführt. Da neben den oben aufgeführten Faktoren auch noch Unterschiede in den Kalibrationsfaktoren der jeweiligen Lampe sowie in den Konversionseffizienzen unter den Bedingungen im jeweiligen Kanal das Verhältnis der Signalintensitäten in den Kanälen A und B zueinander beeinflussen, stimmt der Unterschied zwischen den resultierenden Signalen in beiden Kanälen nicht mit dem nach Abb. 5.9 (Seite 55) erwarteten Unterschied überein. Die aus den Signalverläufen des jeweiligen Kanals ermittelten ClO-Messwerte sind jedoch fast identisch, so dass Wandeffekte bei der Passage des Luftstroms durch die Düse die Messung offenbar nicht signifikant beeinflussten.

Es soll nun betrachtet werden, in wieweit das Verhältnis von Innen- und Außendruck sowie die Strömungsgeschwindigkeit im abgepumpten Kanal vom gewählten Düsendurchmesser abhängen. Dazu soll angenommen werden, dass die Energie eines Luftpakets, welches die Düse durchquert, erhalten bleibt. Die Luft dehnt sich hinter der Düse adiabatisch aus. Die dabei geleistete Arbeit wird beschrieben durch die Gleichung [Zoebl & Kruschik, 1982]

$$W = \int_{P_0}^{P_1} V dP = \text{const} \int_{P_0}^{P_1} P^{-\frac{1}{\kappa}} dP = \frac{\kappa}{\kappa-1} P_0 V_0 \left(\left(\frac{P_1}{P_0} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} - 1 \right) \quad (39)$$

Hierbei bezeichnen P_0 und V_0 den Druck und das Volumen des Luftpakets auf der Außenseite der Düse, κ den Adiabatenkoeffizient (1,4 für trockene Luft) und P_1 den Druck unmittelbar hinter der Düse auf der Innenseite. Zur Herleitung dieser Gleichung werden die im Anhang 12.1 dargestellten Adiabatenbeziehungen (223-225) und die ideale Gasgleichung (222) benötigt.

Es sei angenommen, dass die Volumenarbeit komplett in die kinetische Energie der Vorwärtsbewegung durch die Düse umgewandelt wird [Zoebl & Kruschik, 1982]. Es ergibt sich für die Geschwindigkeit v_D in der Düse

$$v_D^2 = -\frac{2W}{m} = \frac{2\kappa}{\kappa-1} \frac{P_0}{\rho_0} \left(1 - \left(\frac{P_1}{P_0} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \right) = \frac{2P_0}{\rho_0} \left(\frac{P_1}{P_0} \right)^{-\frac{2}{\kappa}} \Psi^2 = \frac{2P_0 \rho_0 \Psi^2}{\rho_1^2} \quad (40)$$

mit

$$\Psi^2 = \frac{\kappa}{\kappa-1} \left(\left(\frac{P_1}{P_0} \right)^{\frac{2}{\kappa}} - \left(\frac{P_1}{P_0} \right)^{\frac{\kappa+1}{\kappa}} \right) \quad (41)$$

Gleichung (40) kann auch umgeschrieben werden zu

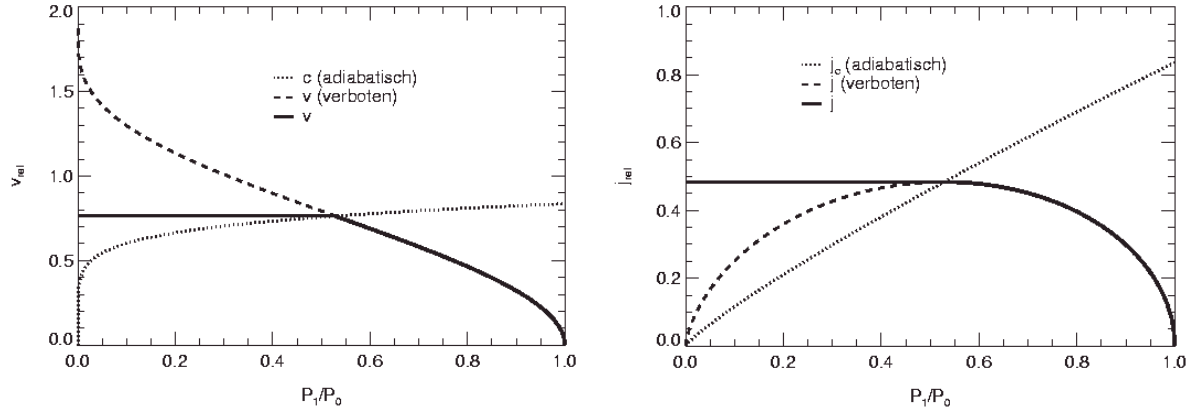


Abb. 5.5: Geschwindigkeit des Luftstroms (links) und Fluss (rechts) unmittelbar hinter der Düse in Abhängigkeit von der Druckuntersetzung. Dargestellt sind die dimensionslosen theoretischen Werte nach den Gleichungen (41, j_{rel} entspricht Ψ) und (42) sowie der tatsächliche Verlauf der Geschwindigkeit des Luftstroms. Unterhalb der kritischen Druckuntersetzung liefern die Gleichungen (41) und (42) verbotene Werte und Geschwindigkeit und Schallgeschwindigkeit nehmen einen konstanten Wert an. Ebenfalls dargestellt sind die Schallgeschwindigkeit c bzw. der Schallfluss $\rho_1 c$, (relativ zu v_{limit} bzw. $\rho_0 v_{\text{limit}}$), welche sich bei der jeweiligen Druckuntersetzung aus den Adiabatenbeziehungen und der Beziehung (259) zwischen Temperatur und Schallgeschwindigkeit ergeben würden. Unterhalb der kritischen Druckuntersetzung sind diese Werte ebenfalls verboten.

$$v_{\text{rel}} = v_D \sqrt{\frac{\rho_0}{2P_0}} = \sqrt{\frac{\kappa}{\kappa-1} \left(1 - \left(\frac{P_1}{P_0} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \right)} \quad (42)$$

mit v_{rel} einer nur von der Druckuntersetzung abhängigen dimensionslosen Größe (v_D wurde dabei durch die hypothetische Geschwindigkeit v_{limit} dividiert, welche dann auftritt, wenn der äußere Druck P_0 nur durch den Staudruck $\frac{1}{2}(\rho_0 v_{\text{limit}}^2)$ kompensiert wird, d.h. an der Front eines frei in ein Vakuum einströmenden Luftstroms). Eine Multiplikation von v_D (40) mit der Innendichte ρ_1 liefert den tatsächlichen Fluss durch die Düse bei einem bestimmten Düsendurchmesser.

$$j = \rho_1 v_D = \sqrt{2P_0 \rho_0} \Psi = \sqrt{2P_0 \rho_0} j_{\text{rel}} \quad (43)$$

Dieser hängt damit bei Festhalten aller äußeren Zustandsgrößen nur von der Funktion Ψ ab, welche dem relativen Fluss j_{rel} (der Fluss j dividiert durch $\rho_0 v_{\text{limit}} = (2P_0 \rho_0)^{0.5}$) entspricht und laut Gleichung (41) nur von der Druckuntersetzung, das heißt vom Verhältnisses von P_1 zu P_0 , abhängt. Die Verläufe v_{rel} und $j_{\text{rel}} = \Psi$ in Abhängigkeit von der Druckuntersetzung sind in Abb. 5.5 dargestellt. Ψ durchläuft bei der kritischen Druckuntersetzung

$$\frac{P_{1,\text{min}}}{P_0} = \left(\frac{2}{\kappa+1} \right)^{\frac{\kappa}{\kappa-1}} = \left(\frac{T_{1,\text{min}}}{T_0} \right)^{\frac{\kappa}{\kappa-1}} = \left(\frac{\rho_{1,\text{min}}}{\rho_0} \right)^{\kappa} = 0,52 \quad (44)$$

ein Maximum von

$$\Psi_{\text{krit}} = \left(\frac{2}{\kappa+1} \right)^{\frac{1}{\kappa-1}} \sqrt{\frac{\kappa}{\kappa+1}} = \frac{\rho_{1,\text{min}}}{\rho_0} \sqrt{\frac{\kappa}{2} \frac{T_{1,\text{min}}}{T_0}} = 0,484 \quad (45)$$

[Zoebl & Kruschik, 1982]. Die Geschwindigkeit v_D an diesem Punkt ergibt sich zu

$$v_D = \Psi_{\text{krit}} \frac{\sqrt{2P_0\rho_0}}{\rho_{1,\min}} = \frac{1}{\rho_0} \sqrt{\kappa \frac{T_{1,\min}}{T_0} \frac{P_0}{\rho_0}} = \sqrt{\kappa \frac{R}{M} T_{1,\min}} \quad , \quad (46)$$

was der Beziehung (258) zwischen Temperatur und Schallgeschwindigkeit entspricht. Wie aus Abb. 5.5 zu erkennen ist, würden mathematisch bei weiterem Abnehmen der Druckuntersetzung die Schallgeschwindigkeit überschritten werden, der Fluss durch die Düse jedoch abnehmen, da die Behinderung der nachströmenden Luft durch die Ausdehnung des Luftstroms hinter der Düse schneller anwächst als der Vortrieb aufgrund des wachsenden Druckgefälles. Bei einem verschwindend kleinen Innendruck wäre kein Fluss durch die Düse möglich, die Geschwindigkeit wäre damit vollständig von der Düse ausgehend in den Außenraum gerichtet. Physikalisch allerdings kann die Strömungsgeschwindigkeit nicht die Schallgeschwindigkeit überschreiten. Unmittelbar hinter der Düse kann der Druck damit keine geringeren Werte annehmen als den durch Gleichung (44) vorgegeben Grenzwert. Für die Dichte, die Temperatur und die Schallgeschwindigkeit unmittelbar hinter der Düse ergeben sich entsprechend ebenfalls Grenzwerte. Der Druck der in den Innenraum einströmenden Luft kann sich somit erst nach Zurücklegen einer gewissen Strecke an den Innendruck anpassen. Der sich ergebende tatsächliche Verlauf von Geschwindigkeit und Fluss ist in Abb. 5.5 dargestellt.

Der Fluss durch die Düse muss stets identisch sein mit dem Fluss im abgepumpten Messkanal und auch dem Fluss der Pumpe. Der Druck im abgepumpten Kanal sinkt somit nach Einschalten der Pumpe so lange, bis der Pumpenfluss, welcher ebenfalls mit sinkendem Innendruck (bei gleichbleibendem Außendruck) abnimmt, identisch mit dem Düsenfluss ist. In dem Moment gilt

$$2P_0\rho_0\Psi^2 A_D^2 = v_{\text{Kanal}}^2 \rho_{\text{Kanal}}^2 A_{\text{Kanal}}^2 \quad (47)$$

und

$$2 \frac{P_0^2}{T_0} \Psi^2 A_D^2 = v_{\text{Kanal}}^2 \frac{P_{\text{Kanal}}^2}{T_{\text{Kanal}}^2} \frac{M}{R} A_{\text{Kanal}}^2 \quad (48)$$

mit A_D und A_{Kanal} der Flächen von Düse und Kanal. Damit kann nun wahlweise entweder die unter bestimmten Bedingungen zu erwartende Flussgeschwindigkeit v_{Kanal} im Kanal abgeschätzt oder aber aus den gemessenen Werten für v_{Kanal} und die Drücke und Temperaturen im Kanal und im Außenraum die Funktion Ψ bestimmt werden. In Abb. 5.7 sind für den Geophysica-Flug vom 26. Januar 2003 die auf Basis der Gleichung (48) ermittelten Ψ -Werte („psi (gemessen)“) sowie die sich nach Abb. 5.5 aus der Druckuntersetzung ergebenden Ψ -Werte („psi (erwartet)“) dargestellt. Abb. 5.8 zeigt die gemessenen und die sich aus Gleichung (48) unter Einsetzen des erwarteten Ψ -Wertes ergebenden Geschwindigkeiten v und Flüsse j im Kanal B. Die Druckuntersetzung unterschritt zu keinem Zeitpunkt die kritische Marke von 0,52. Entsprechend wurden auch Ψ -Werte sowohl erwartet als auch gemessen, welche unter dem maximal möglichen Wert von 0,484 liegen. Auf der „Reiseflughöhe“ stimmen die gemessenen und erwarteten Werte für Ψ , v und j etwa überein. Im Steig- und Sinkflug hingegen steigt der Fluss durch die Düse nicht wie aufgrund der geringeren Druckuntersetzung erwartet an, entsprechend wurden deutlich niedrigere Ψ -Werte und Flussgeschwindigkeiten gemessen. Die dem hier verwendeten einfachen Gleichungssystem zugrundeliegenden Annahmen (Vernachlässigung der Länge der Düse sowie von Reibungsvorgängen) sind im Steig- und Sinkflug somit nicht gültig.

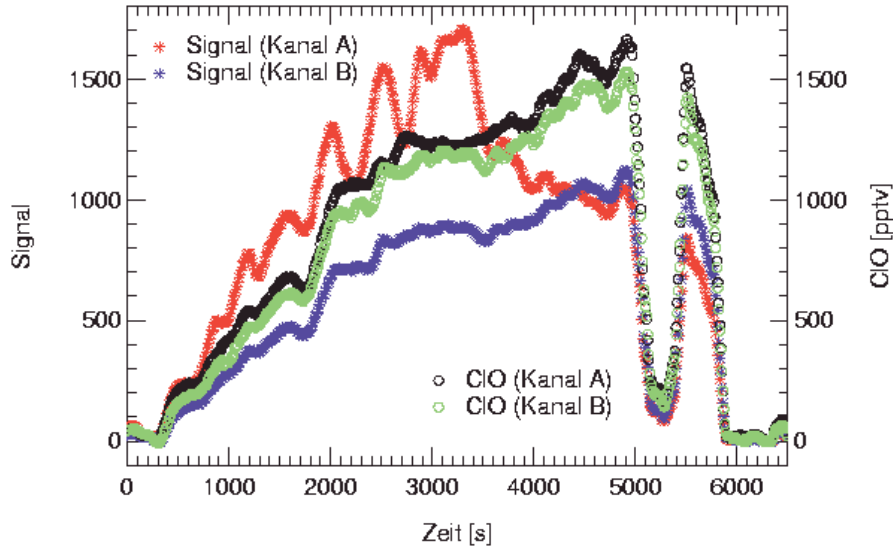


Abb. 5.6: Geophysica-Flug vom 26. Januar 2003. Gemessene Signale der Chlorlampen im Kanal A und B und die sich daraus durch Umrechnung anhand Kalibrationsfaktor und Konversionseffizienz ergebenden ClO-Messwerte.

Es kann nun schließlich eine Abschätzung getroffen werden, wie sich die Verwendung einer Düse mit anderem Durchmesser auf den Fluss, die Druckuntersetzung und die Signalintensität auswirken würde. Dazu sollen folgende Annahmen gemacht werden:

- Die Endgeschwindigkeit v_{Kanal} hängt nur von der Drehzahl der Pumpe ab und ist damit unabhängig vom Düsendurchmesser und der erreichten Druckuntersetzung.
- Der abgepumpte Kanal wird durch die Abwärme der Pumpe und anderer Komponenten des HALOX-Geräts aufgeheizt, seine Innentemperatur hängt damit ebenfalls nicht vom Düsendurchmesser ab (während des Fluges am 26. Januar 2003 lag sie etwa 30 K über der Außentemperatur).

Nach Gleichung (47) und (48) ergibt sich mit diesen Annahmen.

$$\frac{A_{D1}}{A_{D2}} \frac{\Psi_{D1}}{\Psi_{D2}} = \frac{j_{D1}}{j_{D2}} = \frac{\rho_{D1}}{\rho_{D2}} = \frac{P_{D1}}{P_{D2}} \frac{T_{D2}}{T_{D1}} \approx \frac{P_{D1}}{P_{D2}}, \quad (49)$$

Der Index D2 steht für die Referenz-Messwerte aus dem abgepumpten Kanal, welche unter Einsatz einer Düse mit Durchmesser d_{D2} erzielt wurden. D1 bezeichnet die Erwartungswerte für den Fall, dass anstelle dieser Düse auf demselben Flug eine Düse mit dem Durchmesser d_{D1} verwendet wurde. Wenn die Druckuntersetzung bereits den kritischen Wert unterschritten hätte, wären die Ψ -Werte identisch und Düsenfläche und Innendruck somit direkt zueinander proportional. Liegt die Druckuntersetzung hingegen noch über dem kritischen Wert, muss, sofern P_{D1} kleiner als P_{D2} ist, laut Abb. 5.5 Ψ_{D1} größer als Ψ_{D2} sein und der mit einer Verringerung der Düsenfläche von A_{D2} auf A_{D1} verbundene gewünschte Effekt auf die Druckuntersetzung wäre geringer als im kritischen Bereich.

Für eine Grobabschätzung des Einflusses des Düsendurchmessers auf das Bromsignal soll angenommen werden, dass das Verhältnis von Ψ_{D1} zu Ψ_{D2} nahe bei 1 liegt. Nun kann wieder eine Analyse analog zu (36-38) durchgeführt werden. Unter der Annahme, dass auch Kalibrationsfaktor und Konversionseffizienz in erster Näherung unabhängig vom Druck im abgepumpten Kanal sind, folgt

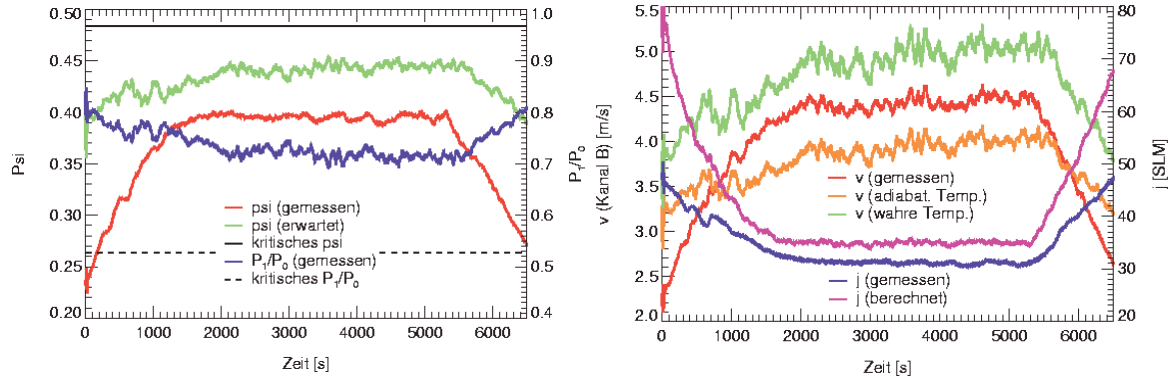


Abb. 5.7 (links): Geophysica-Flug vom 26. Januar 2003. Erwartete und gemessene Werte für Ψ („psi (erwartet)“ und „psi (gemessen)“) sowie die gemessene Druckuntersetzung („ P_1/P_0 (gemessen)“).

Abb. 5.8 (rechts): Erwartete und gemessene Werte für die Flussgeschwindigkeit v und den Normfluss j im abgepumpten Kanal. Die Berechnung erfolgte dabei nach Gleichung (48) aus den gemessenen Werten für Innendruck, Außendruck und Außentemperatur. Für die Innentemperatur im Kanal wurden einmal die tatsächlich im abgepumpten Kanal gemessene Temperatur („ v (wahre Temp.)“), welche etwa 30 K über der Außentemperatur lag, und einmal die nach der Adiabatenbeziehung (225) zu erwartende Temperatur („ v (adiabat. Temp.)“) in die Gleichung (48) eingesetzt. Der Normfluss j , dargestellt in der Einheit Standardliter pro Minute (SLM, Liter pro Minute unter Normaldruck und -temperatur), ist unabhängig von der Temperatur im Kanal.

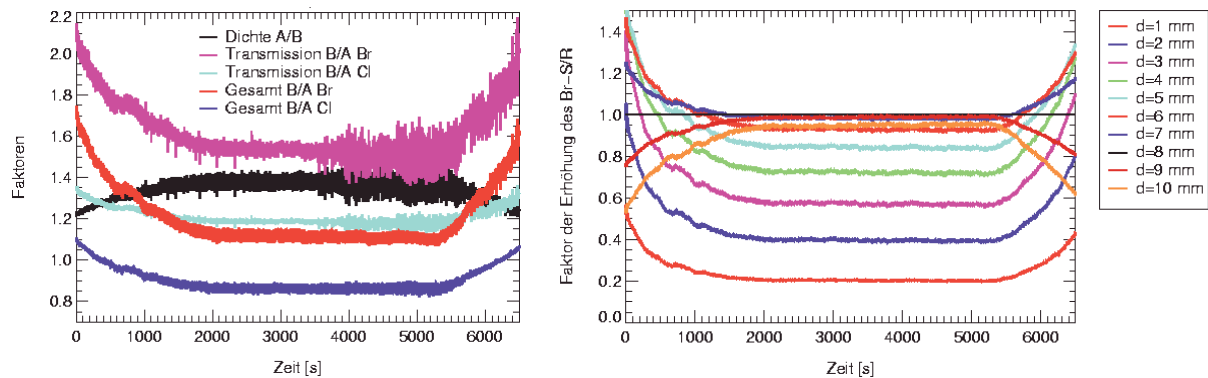


Abb. 5.9 (links): Geophysica-Flug am 26. Januar 2003 in Kiruna. Darstellung, um welchen Faktor sich die Signal-Rausch-Verhältnisse in beiden Kanälen aufgrund der unterschiedlichen Flüsse (Dichte A/B), der unterschiedlichen Sauerstoffabsorption (Transmission B/A Br bzw. Cl) und bei Zusammenspiel beider Effekte (Gesamt B/A Br bzw. Cl) voneinander unterscheiden sollten.

Abb. 5.10 (rechts): Abschätzung, um welchen Faktor der Einsatz eines anderen Düsendurchmessers beim Geophysica-Flug am 26. Januar 2003 die Intensität des Bromsignals verbessert hätte. Tatsächlich eingesetzt wurde eine Düse mit Durchmesser von 8 mm.

$$F = \sqrt{\frac{A_{D1}}{A_{D2}} \exp\left(-\frac{1}{k} x g_{O_2} q_{O_2} \frac{P_{D2}}{T_{D2}} \left(\frac{A_{D1}}{A_{D2}} - 1\right)\right)} \quad (50)$$

In Abb. 5.10 ist diese Abschätzung dargestellt. Demnach sollte im Bereich der „Reiseflughöhe“ der Düsendurchmesser zwischen 7 und 9 mm betragen, der gewählte Durchmesser von 8 mm stellte somit eine ideale Wahl dar. Eine weitere Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses der Brommessung im Vergleich zur Messung im durchströmten Kanal A ist bei gegebener Pumpleistung praktisch nicht zu erzielen.

5.4.3. Messung von Chlornitrat (ClONO_2) und des Dimers ClOOCl

Die Bedeutung einer hochaufgelösten Messung von ClONO_2 wurde beziehungsweise wird aus den Abschnitten 3.4 und 6.2.11 ersichtlich. Der Chlordimer ClOOCl tritt im Zyklus (15) auf. Auch dessen Bestimmung ist von Interesse, da auf diese Weise Theorien über den Ozonabbau und den Anteil der einzelnen Zyklen überprüft werden können (siehe Abschnitt 3.5). ClOOCl zerfällt bei Temperaturen über 90°C in zwei ClO -Moleküle. Bei Temperaturen über 300°C wird auch ClONO_2 thermisch zerlegt in ClO und NO_2 . Diese Temperaturen können an der Einlassdüse des abgepumpten Kanals leicht erzeugt, und ClO kann dann auf herkömmliche Weise detektiert werden. Anhand der Messungen im abgepumpten Kanal lässt sich damit, je nach der Düsentemperatur, das Mischungsverhältnis an Chloratomen in ClO , $\text{ClO}+\text{ClOOCl}$ oder $\text{ClO}+\text{ClOOCl}+\text{ClONO}_2$ ablesen. Das Mischungsverhältnis von ClO allein ist aus den Messungen des Kanals A bekannt. Falls das Ziel der Messkampagne in der Bestimmung des ClONO_2 -Mischungsverhältnisses besteht, muss somit die Düsenheizung entweder alternierend zwischen den Zerfallstemperaturen für ClOOCl und ClONO_2 hin- und hergeschaltet werden, was aber mit einem Verlust an Zeitauflösung und Genauigkeit einhergeht, oder es wird den bekannten Atmosphärenmodellen vertraut und das Mischungsverhältnis von ClOOCl aus den Mischungsverhältnissen von ClO und den Umgebungsbedingungen (Temperatur) einfach abgeschätzt. In letzterem Fall (bzw. auch dann, wenn ausschließlich ClOOCl detektiert werden soll) kann die Düsenheizung im Prinzip einfach auf Dauerbetrieb geschaltet werden. Allerdings wird gegenwärtig die gepulste Variante bevorzugt. Bislang liegen noch zu wenig Erfahrungen vor, in wieweit Wandkontakte an der Düse oder andere Einflüsse das reine ClO -Signal (d.h. bei nicht-beheizter Düse) gegenüber dem Signal im Kanal A verändern, so dass auch noch die Aufnahme einer größeren Anzahl von ClO -Vergleichs-Messreihen mit kalter Düse erforderlich ist. Der Gruppe der Harvard University gelang eine flugzeuggestützte ClONO_2 -Messung auf dem US-amerikanischen Höhenforschungsflugzeug ER-2 (der ehemaligen militärischen U2) bereits im Jahr 1997 [Stimpfle et al., 1999]. Die erste HALOX- ClONO_2 -Messung auf dem russischen Flugzeug M-55 „Geophysica“ im Rahmen einer Kampagne erfolgte während der EUPLEX-Kampagne zwischen Januar und März 2003 in Kiruna in Nordschweden.

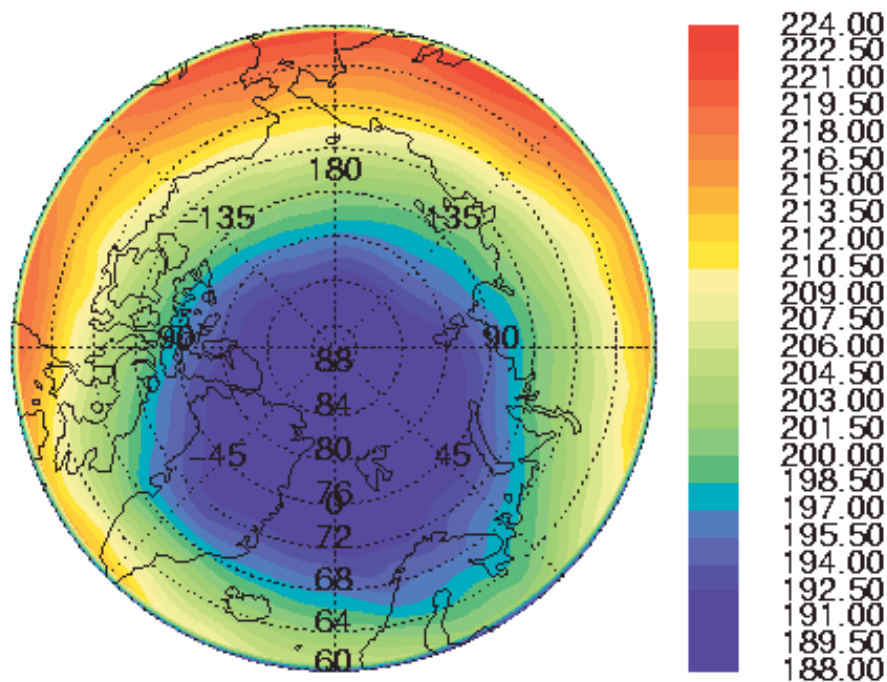


Abb. 6.1: Temperaturen am 11. Februar 1997 12 Uhr GMT auf dem 450K-Theta-Niveau. Gezeigt sind ECMWF-Daten (siehe Abschnitt 6.2.1).

6. Messwerte

6.1. Der arktische Polarwirbel des Winters 1996/97

6.1.1. Charakteristik und Vergleich zu anderen Wintern

Der Wirbel des Winters 1996/97 verhielt sich in mehrerer Hinsicht ungewöhnlich. Er war der sich am spätesten bildende, am längsten bestehende, am wenigsten durch Wellen beeinflusste, in seiner Form symmetrischste und zudem der kälteste arktische Polarwirbel der letzten 18 Jahre zuvor [Coy et al., 1997]. Die Wirbelbildung setzte erst Ende Dezember 1996 ein, während sonst in der Arktis bereits im November ein ausgeprägter Wirbel vorhanden ist. Abb. 6.2 a-f zeigt die Stabilisierungsphase des Polarwirbels Ende Januar und Anfang Februar 1997.

Nach Abschluss dieser Phase besaß der Wirbel im wesentlichen eine runde, symmetrische und etwa Pol-zentrierte Form. Während des gesamten Winters und Frühjahrs waren die durch Ballon-Ozonsonden und LIDAR-Messungen erhaltenen vertikalen Ozonprofile durch die Ausbildung von Schichten unterschiedlicher Ozonkonzentrationen, wie in Abb. 6.15 zu sehen, gekennzeichnet, wobei vertikale Ausdehnung dieser Schichten von weniger als einem Kilometer, aber auch von 6 Kilometern beobachtet wurden [Hansen & Chipperfield, 1999].

Als absolute Minimaltemperaturen wurden zwischen Dezember und Februar Werte um 180 K erreicht. Auf Theta-Niveaus zwischen 600 und 800 K traten diese schon Anfang Dezember auf. Mit der Zeit verschob sich die Lage des Temperaturminimums zu niedrigeren Theta-Niveaus. Unterhalb von 600 K traten sie erst ab Mitte Februar und damit vergleichsweise spät auf (siehe Abb. 7.1 auf Seite 85). Damit erlebten auch die durch die TRIPLE-Ballongondel untersuchten Luftmassen vor dem 11. Februar 1997 ungewöhnlich warme Temperaturen. Bis Mitte Februar war der Polarwirbel in den unteren Niveaus eher ungewöhnlich warm und der Ozonverlust vergleichsweise niedrig [Manney et al., 1997]. Wie im Abschnitt 6.2.3 noch dargestellt wird, wurde am Tag des TRIPLE-Ballonaufstiegs mit der Temperatur T_{NAT} (etwa 195 K, siehe Abb. 6.9) erstmals eine kritische Schwelltemperatur unterschritten, welche für die Existenz von NAT notwendig ist.

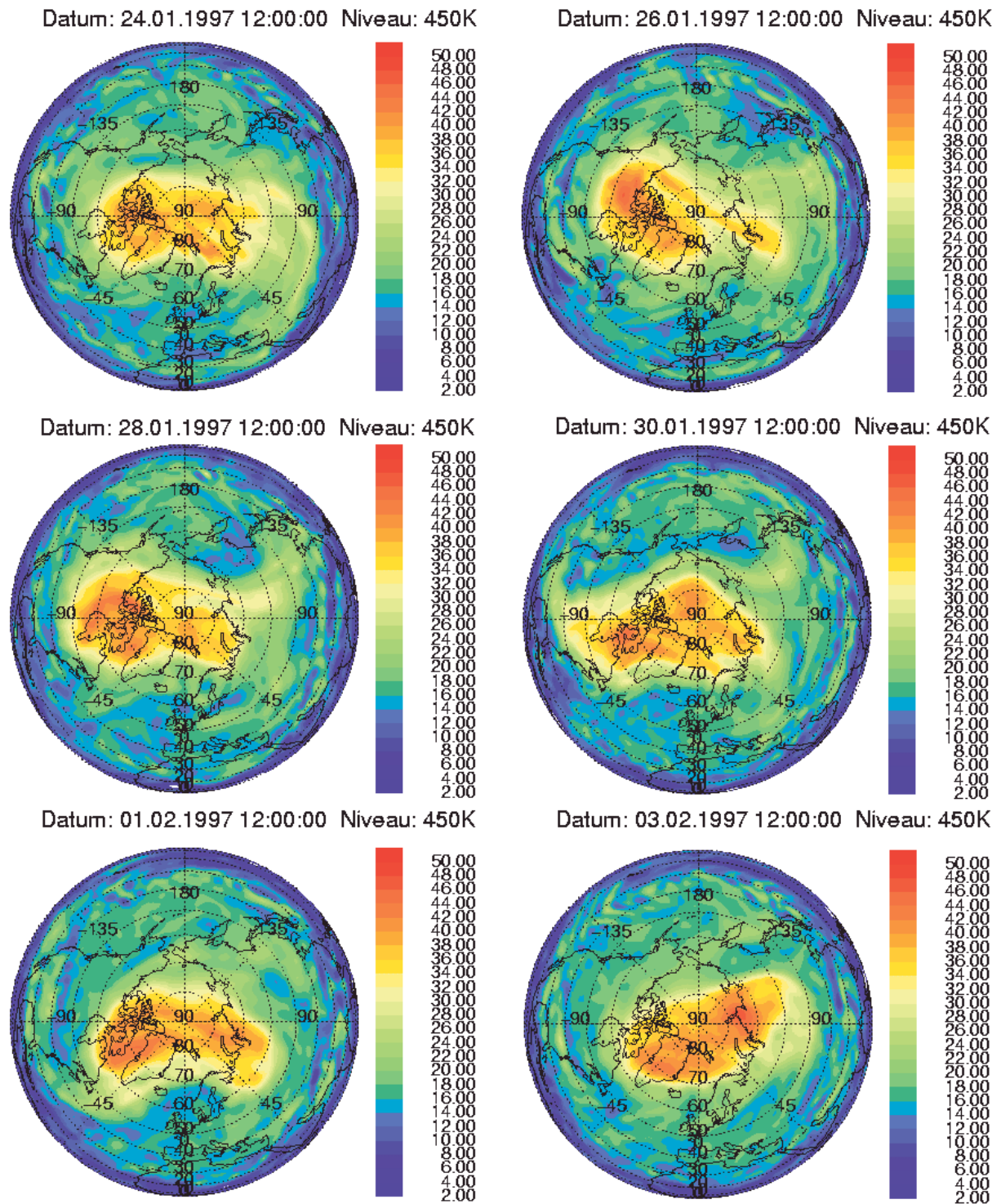


Abb. 6.2 a-f: Stabilisierungsphase des Polarwirbels vom 24. Januar bis zum 3. Februar 1997 auf dem 450-K-Theta-Niveau. Dargestellt ist die Potentielle Vortizität (in PVU, siehe Anhang 12.2). Die Vortexgrenze auf dem dargestellten Theta-Niveau befindet sich bei etwa 30 PVU [Kondo et al., 1999].

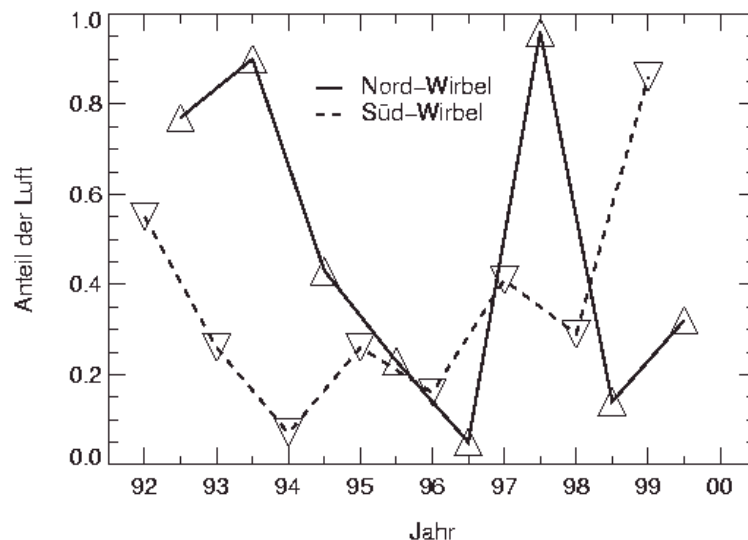


Abb. 6.3: Anteil der Luft mesosphärischer Herkunft im Polarwirbel des jeweiligen Winters, Näheres siehe im Text. Dargestellt sind Daten aus [Rosenfield & Schoeberl, 2001].

Entsprechend setzte auch der Ozonverlust relativ spät ein. Ende April begann der Zerfall des Wirbels, sein endgültiger Zusammenbruch erfolgte jedoch erst nach dem 10. Mai 1997 [Hansen & Chipperfield, 1999]. In „normalen“ Wintern hingegen geschieht die Auflösung bereits im März oder spätestens bis Mitte April.

Wie bereits im Abschnitt 2.2 beschrieben, besteht ein enger Zusammenhang zwischen dem Charakter des sich ausbildenden Polarwirbels und der Intensität der Dobson-Brewer-Zirkulation bzw. der Wirkung der „extratropical pump“. Rosenfield und Schoeberl berechneten auf der Basis meteorologischer Daten, auf welchem Theta-Niveau sich die Luftmassen, welche sich am 1. April eines ausgewählten Jahres im Bereich des Nordpolarwirbels auf dem Theta-Niveau von 650 K aufhielten, am 1. September des Vorjahres befanden [Rosenfield & Schoeberl, 2001]. Für die Südhemisphäre wurden entsprechend eine Initialisierung am 1. Oktober auf einem Endniveau von 700 K gewählt und die Rechnungen rückwärts bis zum 1. März geführt. Die entstehenden Spektren zeigen für die meisten Jahre Häufungen zum einen im Bereich über 2000 K, d.h. die Luftmassen sind im Verlauf des Winters aus der Mesosphäre abgestiegen, zum anderen um oder unterhalb von 1000 K, diese Luftmassen erfuhren eine geringere Abwärtsbewegung. Die Zusammensetzung ist für die verschiedenen Winter jedoch sehr unterschiedlich. Abb. 6.3 zeigt den Anteil der Vortexluft mesosphärischen Ursprungs (welche ihren Ursprung damit auch deutlich oberhalb der Ozonschicht hat) auf dem 650-K-Niveau (Nordhalbkugel) bzw. 700-K-Niveau (Südhalbkugel) für die einzelnen Jahre. Im Winter 1996/97 war er mit nur 5% extrem gering. Entsprechend hoch lagen die Ausgangs-Ozonkonzentrationen zu Beginn des Winters. Im darauffolgenden Winter erreichte der Anteil mesosphärischer Luft einen ebenso extremen Wert von 96%. Erst der Winter 1998/99 zeigte wieder ein dem Winter 1996/97 ähnliches Verhalten. In diesen Wintern wurde die Luftzirkulation in den polaren Breiten kaum durch Wellenbewegungen gestört, welche, wie bereits im Abschnitt 2.3 beschrieben, durch ihren bremsenden Einfluss die Luftmassen zum Abstieg zwingen.

Der 1996/97iger Wirbel wird wegen seiner besonderen Charakteristiken häufig als Wirbel mit antarktischen Charakter bezeichnet. In der Tat ähnelte, wie Newman anschaulich beschrieb [Newman et al., 1997], die Situation 1996/97 in vieler Hinsicht den Polarwirbeln der Antarktis. So beobachtet man jedes Jahr über der Antarktis einen polzentrierten und durch Wellen kaum gestörten Wirbel. Eine extreme Störung, welche in einer Spaltung des Polarwirbels in zwei Teile resultiert und in der Arktis häufiger geschieht, wurde in der

Antarktis erstmals im September 2002 beobachtet [Allen et al., 2003, Sinnhuber et al., 2003]. Wie in der Antarktis war 1996/97 die Lage des Ozonlochs identisch mit der Lage des Polarwirbels, und der Wirbel bzw. das Ozonloch wurde umgeben durch einen Ring mit maximalen Ozonwerten. Wie Lefèvre et al. zeigten, ist dieser Ring im Fall des 1996/97er arktischen Wirbels dynamischen Ursprungs [Lefèvre et al., 1998]. Ebenso charakteristisch für antarktische Wirbel wie für den 1996/97er arktischen Wirbel ist der zeitliche Verlauf der Abnahme der Ozonkonzentration, welche von Februar bis Ende März (Arktis 1996/97) bzw. August bis Ende September (Antarktis) zunächst sehr steil und danach langsamer und kontinuierlich erfolgt. Die Ende März 1997 gemessenen extremen Ozonsäulen-Minima² von 219 DU waren zwar noch etwa zweimal so groß wie die Ozonsäulen-Minima über der Antarktis, allerdings ist zu bedenken, dass auch in den Jahren vor dem Ozonloch über der Arktis höhere Ozonsäulen als über der Antarktis gemessen wurden (500 DU über der Arktis, 300 DU über der Antarktis in den 70er Jahren). Die Fläche des arktischen Ozonlochs im Frühjahr 1997 war auch deutlich kleiner als in der Antarktis. Andererseits umfasste das den Polarwirbel umgebende Ozonmaximum eine größere Fläche als im Süden, und es wurden auch deutlich höhere Ozonwerte erreicht [Newman et al., 1997].

Insgesamt war der chemische Ozonabbau des Winters 1996/97 trotz der tiefen Temperaturen vergleichsweise gering. Ursache war die polzentrierte Lage des Wirbels. Damit waren gleichzeitig das Rotationszentrum des Wirbels und das Kältezentrum der Nordhemisphäre etwa identisch, womit nur die zentrumsnahen Luftmassen extrem tiefe Temperaturen erfuhren (sogenannte äquivalent-barotrope Situation). In diesem Bereich trat nun zwar, wie die ab Mitte Februar vorliegenden Satellitenbeobachtungen bestätigen, eine bis zu 100%ige Chloraktivierung ein, wegen der geringeren Sonneneinstrahlung nahe des Pols war die Wirkung der photolytischen Ozonabbauzyklen aber entsprechend gering. In anderen Jahren hingegen ist das Rotationszentrum hingegen deutlich gegenüber dem Kältezentrum verschoben, womit während der Wirbelrotation alle Luftmassen des Wirbels abwechselnd kalte Temperaturen und starke Sonneneinstrahlung erfahren (sog. barokline Situation). Die Match-Kampagne des Winters 1996/97 ermittelte auf dem 475-K-Niveau zwischen dem 1. und dem 10. März 1997 eine maximale Ozonabbaurate (gemittelt über den Gesamtwirbel) von gerade 3,3 ppbv pro Sonnenstunde, welche die maximalen Verlustraten z. B. der Winter 1991/92, 1994/95 und 1995/96 (rund 10 ppbv pro Sonnenstunde) beträchtlich unterschritt [Schulz, 2001]. In den darauffolgenden Wochen fielen die Raten rapide ab. Laut SLIMCAT-Modellrechnungen von Hansen und Chipperfield hingegen wurde über Nord-Norwegen (am Standort des Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research (ALOMAR)) auf dem 475-K-Niveau die maximale Abbaurate erst zwischen dem 25. März und dem 10. April erreicht [Hansen & Chipperfield, 1999]. Die Übereinstimmung zwischen den ALOMAR-Messungen und den SLIMCAT-Modell-Ozondaten ist im Allgemeinen gut, ALOMAR lieferte allerdings zwischen dem 20. Februar und dem 15. März keine Daten. Eine Übereinstimmung zwischen den Studien von [Schulz, 2001] und [Hansen & Chipperfield, 1999] besteht jedoch dahingehend, dass ein erster kurzer aber signifikanter Ozonverlust Ende Januar 1997 auftrat, die massive Ozonzerstörung hingegen erst nach dem 11. Februar, dem Flugtag der TRIPLE-Gondel, eintrat. Um den 11. April 1997 (an diesem Tag endete die Match-Kampagne) kam die Wirkung der Chlor-Ozonabbauzyklen praktisch zum Stillstand [Hansen & Chipperfield, 1999]. Die durch das Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) gemessenen Ozonsäulen² erreichten nun in hohen Breiten Rekord-Tiefstwerte von unter

² Messung des gesamten Ozons oberhalb eines bestimmten Punktes auf der Erdoberfläche, wovon sich etwa 90% in der Stratosphäre befinden. Die Einheit ist Dobson Units (DU). 300 DU entsprechen einer reinen Ozonschicht auf der Erdoberfläche bei Normaldruck und -temperatur mit einer Dicke von 3 mm.

270 DU (Dobson Units). Extreme Einzelwerte lagen bei 219 DU und damit rund 170 DU unter den Mittelwerten der 70er Jahre für diesen Zeitraum [Newman et al., 1997]. Allerdings waren, wie durch Lefèvre et al. mit Hilfe des Reprobus-Modells überprüft wurde, von diesem Verlust nur 100 DU auf chemische, die übrigen 70 DU auf dynamische Vorgänge zurückzuführen [Lefèvre et al., 1998], womit kein Widerspruch zwischen den TOMS-Messungen sowie den Ergebnissen von [Schulz, 2001] und [Hansen & Chipperfield, 1999] (s.o.) besteht. Letztere Autoren stellten zudem fest, dass gleichzeitig mit dem Erliegen der Chlorzyklen der NO_x-Zyklus zu wirken begann (siehe Abschnitt 3.3) und der chemische Ozonverlust sich somit noch bis zur Vortexauflösung (ab dem 10. Mai 1997) fortsetzte. Im Moment der Auflösung waren 40% des Ausgangsozons auf chemischem Weg vernichtet, davon vier Fünftel durch das Wirken von Chlorzyklen und der Rest überwiegend durch diesen NO_x-Zyklus [Hansen & Chipperfield, 1999].

6.1.2. Meteorologische Situation um den 11. Februar 1997

In den Abb. 6.4 a-f ist die Lage des Polarwirbels für den 10., 11. und 14. Februar 1997 auf dem 450-K- und 550-K-Theta-Niveau dargestellt. Am 11. Februar 1997, dem Tag des TRIPLE-Ballonflugs, befand sich der Polarwirbel über Kiruna. Am 10. Februar 1997 hingegen befand sich Kiruna knapp und am 14. Februar 1997 deutlich außerhalb des Wirbels, so dass die ballongestützten Experimente CLD-1 (siehe Abschnitt 6.2.9) und LPMA (siehe Abschnitt 6.2.10) außerhalb des Wirbels stattfanden.

Interessant ist es auch, die Verhältnisse im Tropopausenbereich zu betrachten. Um den 11. Februar 1997, den Tag des TRIPLE-Ballonaufstiegs, lag über Europa und dem Nordatlantik eine typische zyklonale Wetterlage vor. Aus dem Süden vorgedrungene Warmluft schob sich dabei auf die kältere Luft nördlichen Ursprungs auf. Im Gefolge kam es zu einer zeitweiligen Hebung der Tropopause über Europa, welche in Abb. 6.5 a-f gut erkennbar ist (gezeigt ist die Höhe des 350-K-Theta-Niveaus, welches etwa der Tropopause entspricht). Am 11. Februar 1997 erstreckte sich ein Tropopausenrücken von Grönland über Nordskandinavien bis nach Russland. Gleichzeitig wurden im Tropopausenbereich deutlich erhöhte Windgeschwindigkeiten, mit Spitzengeschwindigkeit von 40 m/s auf einer Höhe von 9 km, gemessen. Im Zusammenhang sowohl mit einer Tropopausenanhebung als auch mit einem troposphärischen Starkwind-Ereignis wurden mehrfach wellenartige Strukturen in der darüberliegenden Stratosphäre beobachtet (z. B. [Kivi et al., 2001]). Die Windscherung im Umfeld des Jetstreams, einem Starkwind der oberen Troposphäre, gilt als Hauptquelle von Turbulenz im Tropopausenbereich [Luce et al., 2002, Joseph et al., 2003]. Durch Ballon-Radiosonden aufgenommene Temperatur- und Windprofile weisen um den 11. Februar 1997 ebenfalls Wellenstrukturen auf (Abb. 6.9 bis Abb. 6.13).

Die andere mögliche Ursache für die Ausbildung der Wellenstruktur, eine Anregung aufgrund der Überquerung des Skandinavischen Gebirges durch die Luftmassen, scheidet hingegen weitestgehend aus. Die bei einer Gebirgsüberquerung angeregten sogenannten orographischen Leewellen oder Schwerewellen (so bezeichnet, da die Schwer- und Auftriebskraft als rücktreibende Kraft wirkt) erreichen die Stratosphäre vor allem dann, wenn sich in der unteren Troposphäre auf der Luvseite dieses Gebirges (d.h. über dem Nordatlantik vor der norwegischen Küste) eine in Nord-Süd-Richtung, parallel zum Gebirgskamm, verlaufende kräftige Windströmung ausbildet, welche die Hinderniswirkung des Gebirges verstärkt. In höheren Luftschichten hingegen müssen Westwinde vorliegen, was im Polarwirbel in der unteren Stratosphäre der Fall ist. Zudem muss auch die Atmosphäre sehr stabil geschichtet sein, damit die angeregten Wellen nicht divergieren [Dörnbrack et al., 2002]. Die überwiegende Anzahl von Schwerewellen in der arktischen Stratosphäre werden durch die Topographie

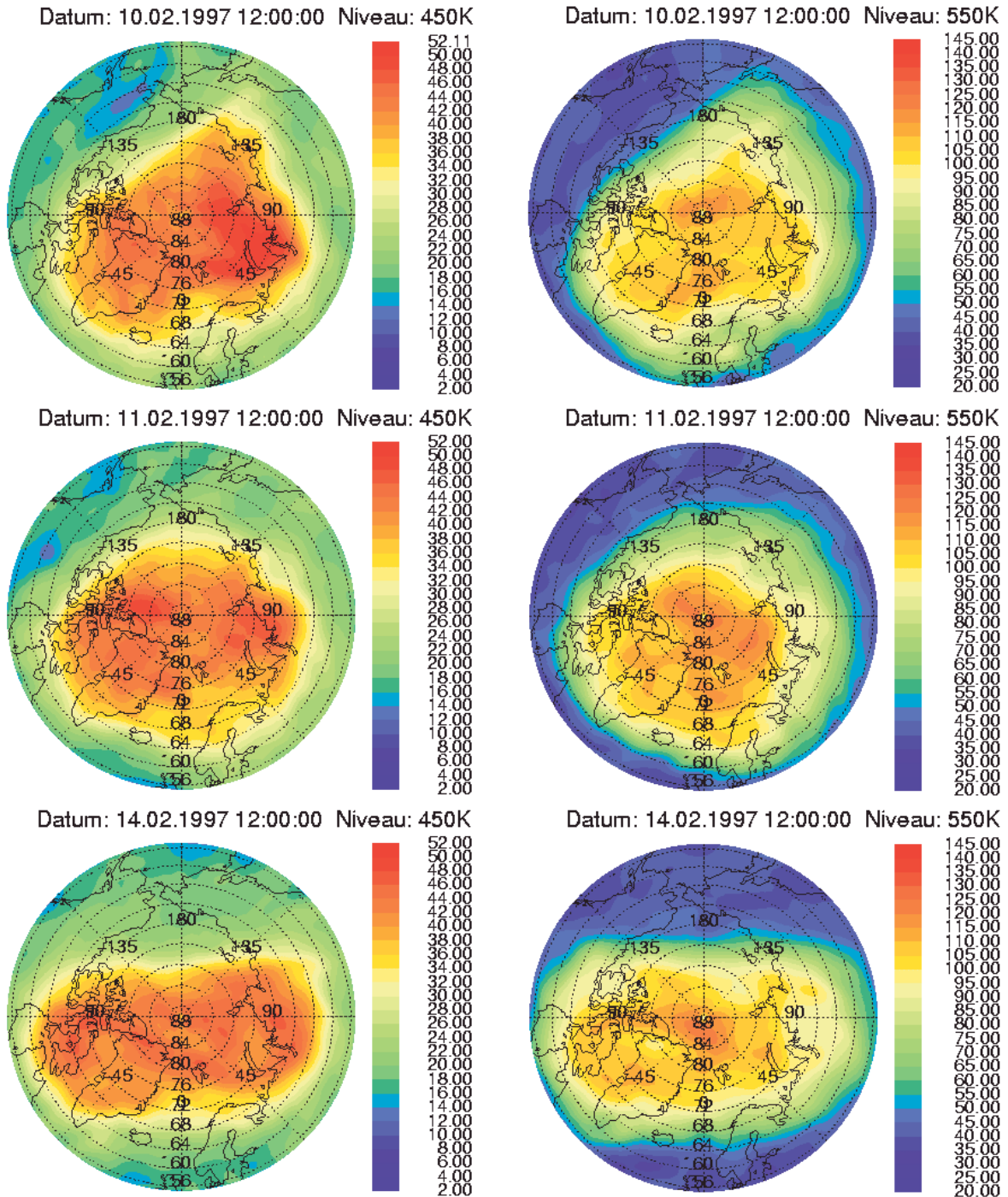


Abb. 6.4: a-f: PV-Werte (in PVU, siehe Anhang 12.2) für den 10., 11. und 14. Februar 1997 jeweils auf dem 450-K- und 550-K-Theta-Niveau. Die Grenze des Polarwirbels lag nach der Methode von [Nash et al., 1996] (Ermittlung, bei welcher PV der PV-Gradient als Funktion der geographischen Breite im Mittel am steilsten ist) auf dem 450-K-Theta-Niveau bei 30 PVU, auf dem 550-K-Theta-Niveau bei 90 PVU [Kondo et al., 1999].

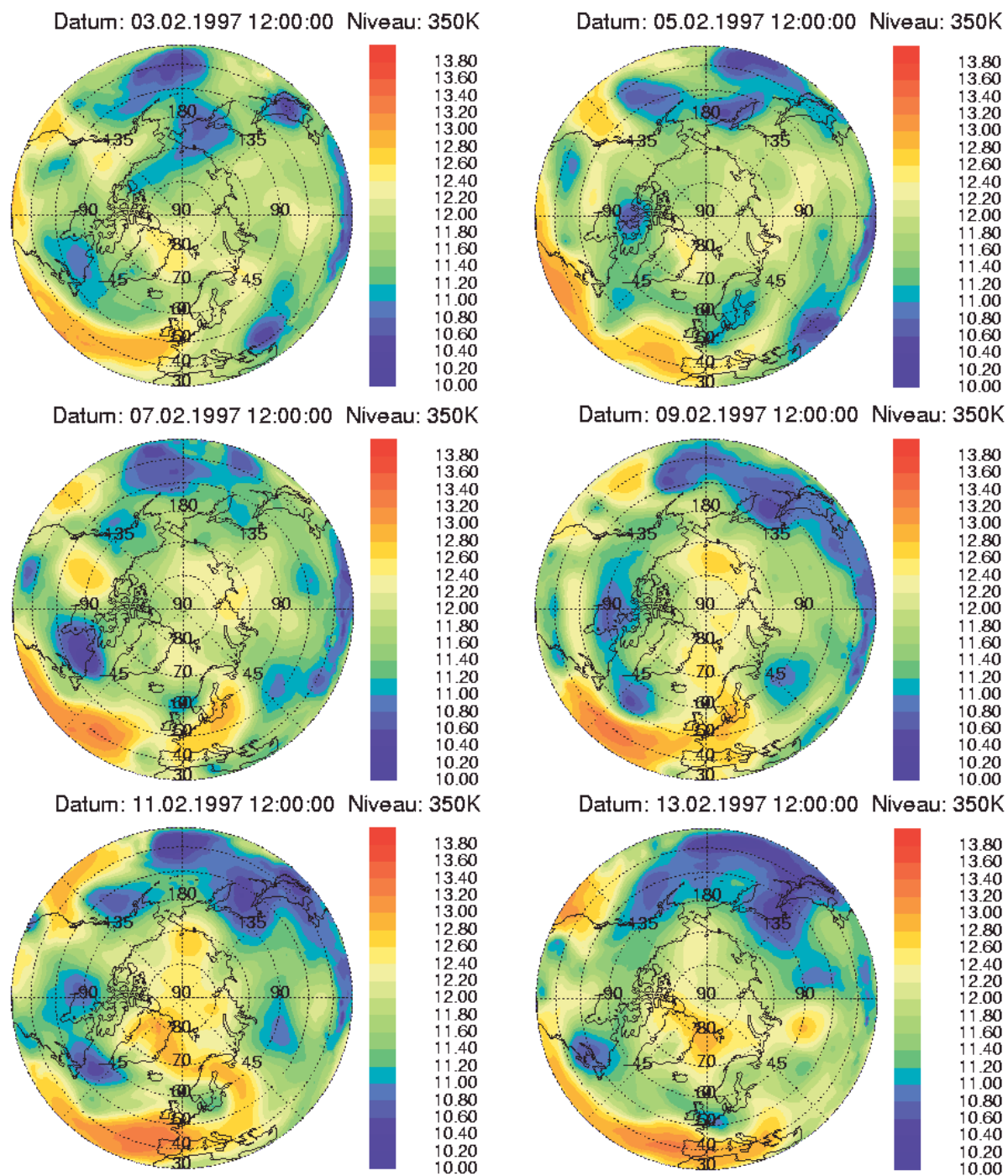


Abb. 6.5 a-f: Höhe (in km) des 350-K-Theta-Niveaus am 3., 5., 7., 9., 11. und 13. Februar 1997 (ECMWF-Daten).

induziert [Yoshiki et al., 2000]. Aufgrund der großen Dichte an Forschungsstationen sind diese Ereignisse vor allem in Skandinavien gut dokumentiert, aber auch andere Erhebungen wie der Ural oder Grönland sind von Bedeutung. Über der Antarktis hingegen spielt die Topographie eine geringe Rolle, hier treten Schwerewellen entsprechend seltener auf und werden durch inner-atmosphärische Prozesse angeregt [Yoshiki et al., 2000, Shibata et al., 2003]. Um den 11. Februar 1997 wurden allerdings auch über Skandinavien orographische Leewellen weder durch Modelle vorhergesagt noch beobachtet [Dörnbrack, 2001, Stebel, 2001].

6.2. Messergebnisse des TRIPLE-Ballons sowie aus seinem Umfeld

6.2.1. Übersicht

Der Start der TRIPLE-Ballongondel erfolgte am 11.2.1997 09:58 GMT in Esrange (Kiruna, Schweden) bei 67,9°N und 21,1°E. Um 10:58 GMT wurde bei 68,0°N und 23,1°E. die größte Höhe von 24,1 km erreicht. Beendet wurde die Messung um 12:21 GMT bei 68,0°N und 27,9°E, anschließend landete die Gondel sicher in Finnisch-Lappland.

Der Ballonflug diente, wie zahlreiche weitere Boden-, Flugzeug- und Ballon-gestützte Messungen, in erster Linie der Validierung von Daten, welche durch das Satelliten-gestützte Messgerät ILAS geliefert wurden. Das Gerät ILAS (Improved Limb Atmospheric Spectrometer) arbeitete an Bord des japanischen Satelliten ADEOS (Advanced Earth Observing Satellite). Eine allgemeine Darstellung dieses Gerätes findet sich in [Suzuki et al., 1995] und [Sasano et al., 1999], seine Charakteristiken und Leistungen werden in [Nakajima et al., 2002] beschrieben. Entsprechend seines Namens nahm ILAS das Sonnenspektrum in dem Moment auf, in welchem sich die Sonne im Limb befindet, d.h. die Linie Sonne-Satellit streift tangential die Erdatmosphäre und vom Satellit gesehen findet gerade der Sonnenaufgang oder Sonnenuntergang statt. Der Orbit (die Umlaufbahn) des ADEOS-Satelliten verlief dabei so, dass ILAS bei jedem Erdumlauf bei Sonnenaufgang (vom ADEOS-Satelliten aus gesehen) einen Messwert bei etwa 68° nördlicher Breite und bei Sonnenuntergang einen Messwert bei etwa 68° südlicher Breite aufnahm. ILAS war damit prinzipiell in der Lage, die Randbereiche beider Polarwirbel gut zu erfassen, allerdings lieferte es nur von November 1996 bis Juni 1997 Daten. Analysiert wurde das Sonnenspektrum auf insgesamt 1024 Kanälen im Bereich des sichtbaren Lichts zwischen 753 nm und 784 nm sowie 44 Kanälen im Infrarotbereich zwischen 6,21 µm und 11,76 µm. Zur TRIPLE-Ballonroute zeitlich und örtlich am nächsten liegend ist der Messpunkt vom 11.2.1997 um 14:30 GMT bei 68,4°N und 18,3°, welcher sich etwa 115 km westlich vom Startort des TRIPLE-Ballons befindet. Die zu diesem Zeitpunkt aufgenommenen ILAS-Profile können nun mit den Messungen verschiedener Instrumente, welche auf der TRIPLE-Gondel mitgeführt wurden, verglichen und auf diese Weise validiert werden. Sofern nicht anders angegeben, beziehen sich alle in dieser Arbeit publizierten ILAS-Profile auf diesen Datenpunkt.

Neben den ClO-Messwerten des ClO/BrO-Experiments werden in dieser Arbeit die Messwerte der Ozonsonde, des Kryosammlers BONBON (u.a. Methan und Cl_y), des Hygrometers FISH (Wasserdampf) und eines Aerosolzählers benutzt. Diese Geräte wurden auf der TRIPLE-Gondel mitgeführt.

Ebenfalls genutzt wurden Messwerte der ballongestützten Experimente CLD-1 und CLD-2, welche am 10. Februar bzw. am 25. Februar 1997 in Esrange gestartet wurden und Messwerte für u.a. NO_y und Ozon lieferten. Am 14.2.97 wurden beim ebenfalls in Esrange gestarteten LPMA-Experiment u.a. HCl, HF, Methan, Wasser und Ozon gemessen.

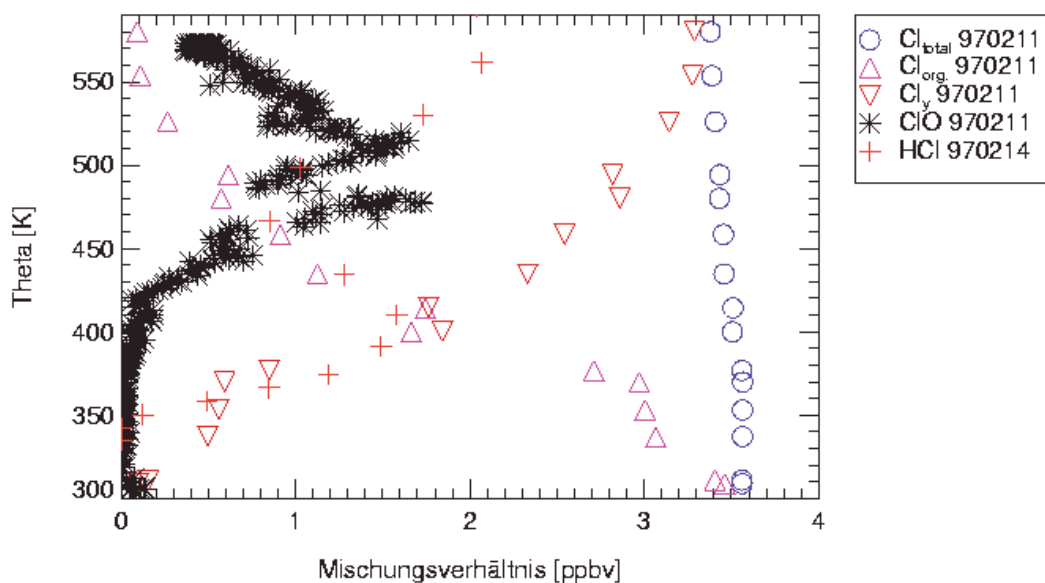


Abb. 6.6 Chlorbudget am 11. bzw. 14. Februar 1997 über Nordskandinavien. ClO und organisches Chlor Cl_{org} wurden während des Fluges des TRIPLE-Ballons am 11. Februar gemessen. Der Gehalt an Gesamtchlor Cl_{total} wurde ebenfalls auf Basis von Daten dieses Fluges abgeschätzt (Abschnitt 6.2.7), Cl_y entspricht der Differenz zwischen dem totalen und dem organischen Chlor. Das HCl-Profil stammt von der LPMA-Messung am 14. Februar (siehe Abschnitt 6.2.10)

Zudem wurden für diese Arbeit mehrere Messungen der Temperatur und Windgeschwindigkeit herangezogen, welche mittels Ballon-Radiosonden erfolgten. Gestartet wurden diese Sonden von Esrange bzw. Sodankylä (Finnland, 67,4°N, 26,6°E). Die Zeitauflösung der Sodankylä-Radiosonden beträgt 2 s, die der Esrange-Sonden zwischen 10 und 60 s.

Schließlich wurden Temperaturdaten des European Centre for Medium Range Weather Forecast (ECMWF) und des United Kingdom Meteorological Office (UKMO) genutzt. Dabei handelt es sich um synoptische Temperaturen, welche einen räumlichen und zeitlichen Mittelwert darstellen. Konkret liegen ECMWF-Temperaturen mit einer Auflösung von 6 Stunden, 1,125 Längen- bzw. Breitengrade und etwa 1-2 km Höhe vor. UKMO-Daten besitzen eine Auflösung von 24 Stunden, 3,75 Längengraden, 2,5 Breitengraden und etwa 2-3 km Höhe (als Vertikalkoordinate wird in beiden Fällen der Druck verwendet).

6.2.2. ClO-Messung

Die ClO-Messung vom 11. Februar 1997, welche erstmalig in [Stroh et al., 1997] publiziert wurde, erfolgte mittels des im Abschnitt 5.1 beschriebenen ClO/BrO-Gerätes. Das gemessene ClO-Profil (Abb. 6.7) zeigt einen charakteristischen Doppelpeak. Die beiden Maxima erreichen Werte von 1,7 ppbv, mit identischer Intensität und Struktur für Auf- und Abstieg. Der Gehalt an verfügbarem Chlor Cl_y (gemessen durch BONBON, Abschnitt 6.2.7) erreichte auf diesen Niveaus etwa 3 ppbv (Abb. 6.6). Damit sollten sich weniger als 1,3 ppbv an Chlor in den Reservoirspezies HCl und ClONO_2 befinden. Wenn wie im Abschnitt 3.2 angenommen wird, dass vor Beginn der Chloraktivierung die ClONO_2 -Konzentrationen etwa 1 ppbv unter der von HCl liegen, ist das ClONO_2 -Reservoir damit fast erschöpft und die Chloraktivierung stagniert. Das LPMA-Gerät (siehe Abschnitt 6.2.10) maß am 14. Februar 1997, drei Tage später, in der Tat dazu passende HCl-Konzentrationen von 1 ppbv im Wirbelrandbereich (Abb. 6.6).

Im zwischen beiden ClO-Peaks liegenden Minimum wurden lediglich Werte von 900 (Aufstieg) bzw. 700 pptv (Abstieg) gemessen. Während die Positionen von unterem Peak und

Zwischen-Minimum, sowohl bei Auf- und Abstieg auf denselben Höhen von 20 km bzw. 21 km Höhe festgestellt wurden, sind die Konturen für den oberen Peak, wie auch kleinere Konturdetails unterhalb von 19 km Höhe, bis zu 1 km gegeneinander verschoben. Der obere Peak befand sich beim Ballon-Aufstieg auf 21 km, beim Abstieg auf 22 km Höhe.

Ein anderes Bild ergibt sich, wenn als Vertikalkoordinate nicht die mittels GPS (Global Positioning System) bestimmte tatsächliche Höhe über der Erdoberfläche, sondern die Potentielle Temperatur Θ (Theta) verwendet wird (Abb. 6.8). Bei dieser Darstellung stimmen die CIO-Profile für Auf- und Abstieg praktisch deckungsgleich überein. Dieser interessante Befund wird im nächsten Abschnitt genauer betrachtet.

6.2.3. Temperatur- und Windmessungen

An der TRIPLE-Gondel wurden an verschiedenen Stellen Temperatursensoren angebracht, welche unabhängig voneinander Messwerte lieferten. Diese Werte konnten sich zum Teil beträchtlich voneinander unterscheiden, da der Ballon und die auf ihm befindlichen Geräte die Temperaturmessungen beeinflussen. Allerdings sollten alle denkbaren Einflüsse zu einer Erhöhung der gemessenen Temperatur gegenüber der tatsächlichen Temperatur der Umgebung führen. Damit wurde angenommen, dass von allen zu einem bestimmten Zeitpunkt eingelesenen Temperaturdaten der niedrigste Wert der Umgebungstemperatur entspricht. Zusätzlich wurden noch durch eine Glättungs-Prozedur alle verbleibenden Temperaturspitzen entfernt. In Abb. 6.9 sind die auf diese Weise erhaltenen Temperaturprofile für den Auf- und Abstieg der Ballonsonde dargestellt. Hinzugezogen wurden die Temperaturen von zwei Ballon-Radiosonden des selben Tages, zum einen SOD_97021111, gestartet um 11:39 GMT in Sodankylä (etwa zu diesem Zeitpunkt passierte der TRIPLE-Ballon im Abstieg die geographische Länge von Sodankylä), zum anderen ESR_97021112, gestartet um 12:25 GMT in Esrange (2,5 Stunden nach Start und etwa zum Zeitpunkt der Landung des TRIPLE-Ballons). Auffallend ist der wellenartige Verlauf aller Temperaturprofile. Es entsteht der Eindruck einer stehenden Welle, wobei die Position des Knotens etwa mit der des CIO-Minimums identisch ist und sich die Bäuche im Bereich der CIO-Peaks befinden. Wenn man die in der Abb. 6.9 ebenfalls dargestellten ECMWF- oder UKMO-Temperaturen um etwa 1,5 K verringert, erhält man einen passablen Mittelwert für das Temperaturprofil entlang der Ballonflugroute. Die Amplituden der diesen Mittelwert überlagernden Schwingung betragen bis zu 2,5 K, d.h. im Extremfall unterscheiden sich die bei Auf- und Abstieg auf demselben Theta-Niveau gemessenen Temperaturen um bis zu 5 K voneinander. Es werden Minima von 189 K erreicht.

In der Kürze der Zeit zwischen Ballonaufstieg und Abstieg (max. 2,5 Stunden) sollten keine diabatischen Prozesse auftreten, welche zu einer nennenswerten Veränderung der Theta-Niveaus der betrachteten Luftmassen führen. Zudem bestand in dem durch den TRIPLE-Ballon durchquerten Bereich nur eine schwache Abhängigkeit der Windgeschwindigkeit und Windrichtung von der Höhe, so dass bei Auf- und Abstieg etwa die selben Luftmassen passiert werden. Damit sollten die bei Aufstieg gemessenen Strukturen der Konzentrationen chemischer Tracer beim Abstieg auf dem selben Theta-Niveau gefunden werden. Dieser Befund wurde sowohl für die CIO- als auch für die Ozonprofile tatsächlich erhalten (Abb. 6.8). Daraus kann gefolgert werden, dass die Potentielle Temperatur nach Gleichung (1) korrekt berechnet wurde. Da in diese Gleichung wiederum die Zustandsgrößen Temperatur und Druck eingehen, wurden beide Größen offenbar korrekt ermittelt. Die beschriebene Methode der Bestimmung der Temperatur ist damit validiert, und die Luftmassen erfuhren tatsächlich eine adiabatische Höhen- und Temperaturänderung.

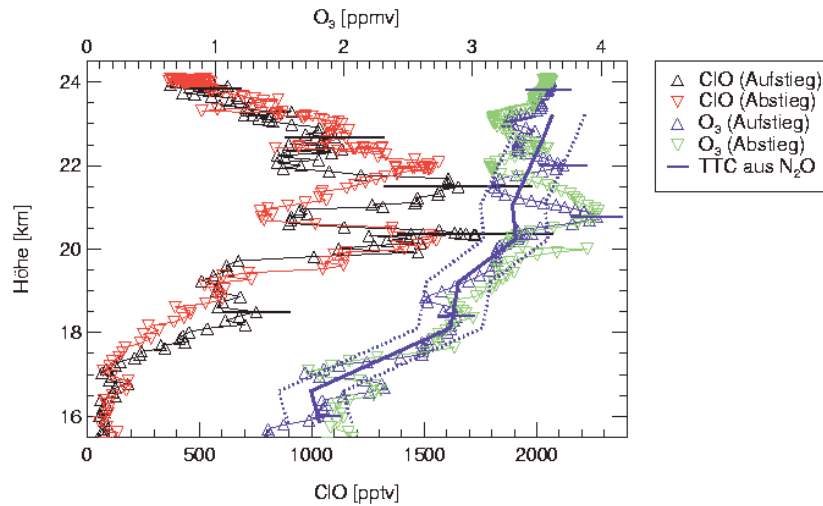


Abb. 6.7: Profile von ClO (Genauigkeit 20%, siehe Fehlerbalken) und O_3 (5%), gemessen auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997. Zusätzlich dargestellt (blaue Linie und gestrichelte Fehlergrenzen) sind die Ozon-Erwartungswerte, berechnet aus N_2O (Abb. 6.19) mittels der Tracer-Tracer-Korrelation (TTC, Abb. 4.3).

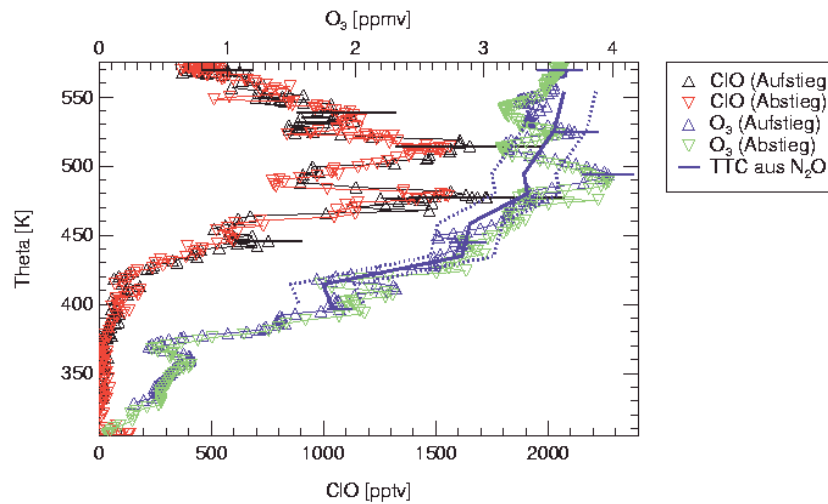


Abb. 6.8: Wie Abb. 6.7, Darstellung als Funktion der Potentiellen Temperatur (Theta).

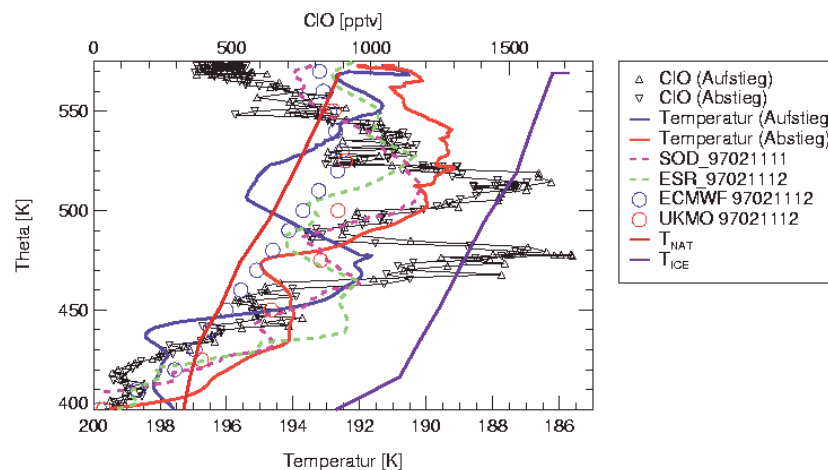


Abb. 6.9: ClO- und Temperaturprofile der TRIPLE-Gondel vom 11. Februar 1997. Man beachte die Orientierung der unteren x-Achse. Zusätzlich gezeigt sind die Daten von zwei Ballon-Radiosonden (SOD_97021111 und ESR_97021112, siehe Text), die ECMWF- und UKMO-Temperaturen vom 11. Februar 1997 12 Uhr, jeweils von dem Datenpunkt, welcher der Route der TRIPLE-Gondel am nächsten lag, und die kritischen Temperaturen T_{NAT} und T_{ICE} (siehe Text).

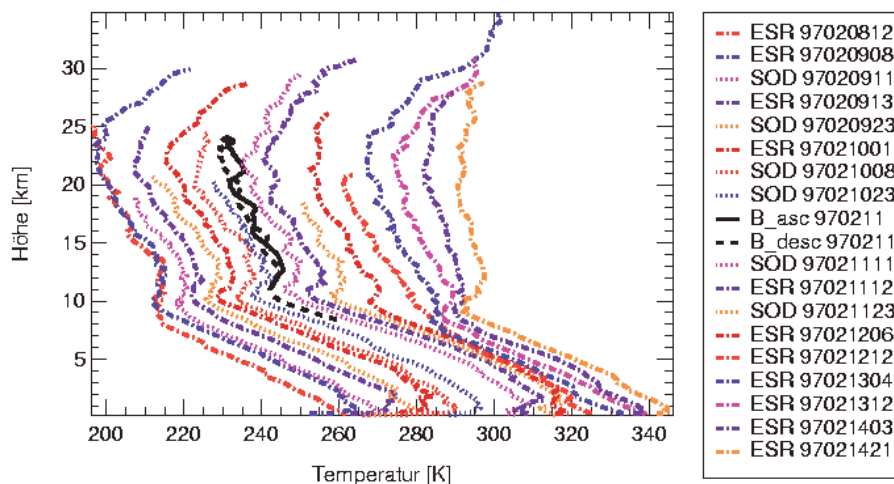


Abb. 6.10: Temperaturen, gemessen auf dem TRIPLE-Ballon (Aufstieg: B_asc 970211, Abstieg: B_desc 970211) und durch die zwischen dem 8. und dem 14. Februar 1997 aufgestiegenen Radiosonden (ESR bzw. SOD YYMMDDHH: Sonde gestartet in Esrange bzw. Sodankylä zum angegebenen Zeitpunkt. Die einzelnen Temperaturprofile sind dabei um 5 K gegeneinander verschoben dargestellt, d.h. die auf der x-Achse angegebene Temperatur entspricht nur dem tatsächlichen Temperaturprofil der ersten Radiosonde im Plot.

Im Zeitraum vom 8.-14. Februar 1997 fanden insgesamt 11 Radiosonden-Aufstiege von Esrange und 6 Aufstiege von Sodankylä aus statt, welche die Stratosphäre erreichten und Informationen über Temperatur, Druck und Windgeschwindigkeit lieferten. Es ist interessant, sich die einzelnen Temperatur- und Windprofile im Umfeld des TRIPLE-Fluges anzuschauen. Gut zu erkennen in Abb. 6.10 und Abb. 6.11 ist die Lage der Tropopause bei etwa 11 km oder 350°K. Unmittelbar darüber befindet sich zunächst die im Abschnitt 2.3 beschriebene typische Temperaturinversion, welche sich zwischen dem 8. und dem 10. Februar verstärkt, am 12. Februar verschwindet und am 14. Februar erneut auftaucht. Über der Inversion nimmt die Temperatur noch bis in eine Höhe von 22 km oder 550 K weiterhin, wenn auch deutlich langsamer als in der Troposphäre, mit wachsender Höhe ab. Dieser Bereich wird sowohl nach der Temperaturgradient-Definition als auch nach der PV-Definition bereits zur Stratosphäre und zur Oberwelt gezählt (siehe Abschnitt 2.3). Oberhalb von 22 km Höhe findet man den stratosphärischen Temperaturgradienten (Temperaturabnahme mit wachsender Höhe).

Eine am 10. Februar 1997 um 1:01 GMT in Esrange gestartete Radiosonde beobachtete ein weitestgehend ungestörtes Profil sowohl der Temperatur als auch der Windgeschwindigkeit, der Wind kam aus nordwestlicher Richtung. Eine 22,5 Stunden später (am 11. Februar 1997 um 23:31 GMT) in Sodankylä gestartete Radiosonde hingegen beobachtete im Tropopausenbereich deutlich erhöhte Windgeschwindigkeiten, mit Spitzengeschwindigkeit von 40 m/s auf einer Höhe von 9 km. Dieser Windpeak bildet sich wahrscheinlich im Zusammenhang mit den Durchgang eines Tropopausenrückens aus (siehe Abschnitt 6.1.2 sowie Abb. 6.5) und ist auch in den ECMWF-Daten enthalten, nicht jedoch in den zeitlich und örtlich geringer aufgelösten UKMO-Daten. In den folgenden Stunden nahm dieser Peak wieder ab, gleichzeitig drehte der Wind im gesamten Bereich auf West (d.h. v_x ist positiv und v_y verschwindet). Die Aufstiegsmessung des TRIPLE-Ballons weicht von diesem Trend allerdings ab). Oberhalb von 10 km Höhe ist nun deutlich eine Aufwellung der Temperatur- und Windprofile sichtbar. Es kann deshalb ein ursächlicher Zusammenhang zwischen der erhöhten Windgeschwindigkeit in der Troposphäre und den durch den TRIPLE-Ballon beobachteten adiabatischen Temperaturschwankungen bestehen. Dass troposphärische Starkwinde in der darüberliegenden Stratosphäre echte Wellen oder wellenartige Strukturen anregen können, wurde in zahlreichen Fällen dokumentiert und untersucht (z. B. [Kivi et al., 2001, Chane-Ming et al., 2002]).

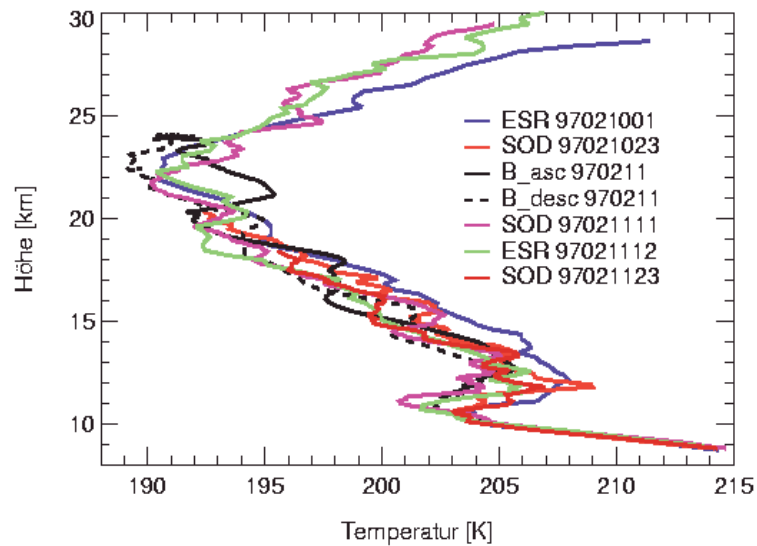


Abb. 6.11: Temperaturen, gemessen auf dem TRIPLE-Ballon und durch die Radiosonden des 10. und 11. Februar 1997.

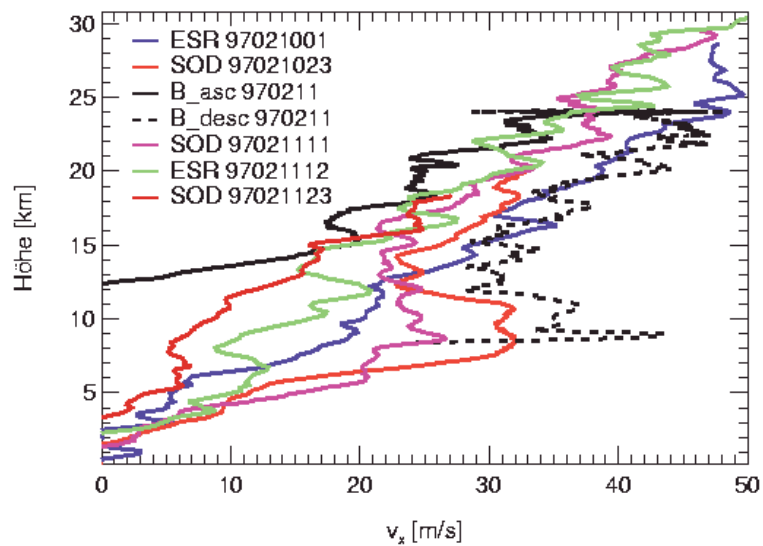


Abb. 6.12: Wie Abb. 6.11, Darstellung von v_x , der Westwind-Geschwindigkeit.

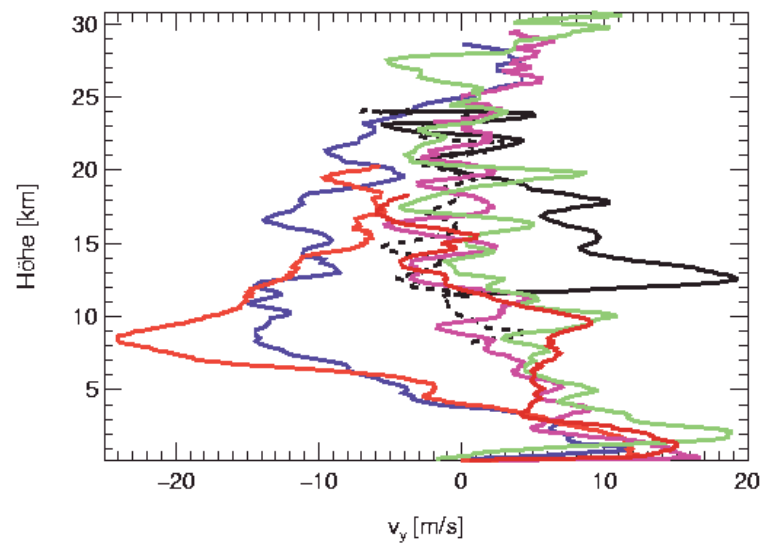


Abb. 6.13: Wie Abb. 6.12, (auch selbe Legende) Darstellung von v_y , der Südwind-Geschwindigkeit.

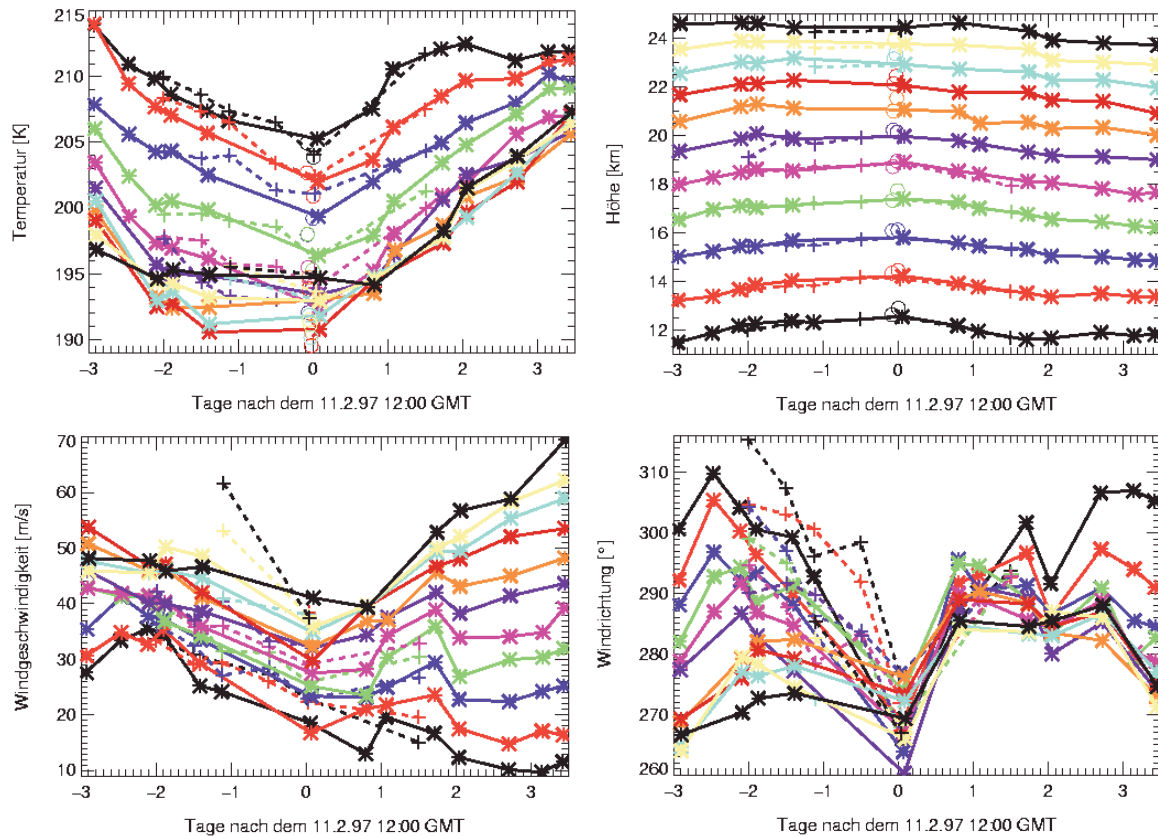


Abb. 6.14 a-d: Messwerte der TRIPLE-Gondel (11. Februar 1997) sowie der von Esrange (Sterne, durchgezogene Linien) oder Sodankylä (Kreuze, gestrichelte Linien) aufgestiegenen Radiosonden, sortiert nach Theta-Niveaus.

a: Temperaturen, b: Höhe der Theta-Niveaus, c: Windgeschwindigkeit, d: Windrichtung (d.h. der Richtung, aus welcher der Wind kommt).

Joseph et al. wiesen in einer Modellstudie darauf hin, dass die infolge der erhöhten Windgeschwindigkeiten angeregten Turbulenzen eine Umverteilung von thermischer und kinetischer Energie zur Folge haben, welche im Aufbau einer wellenartigen Vertikalstruktur der Zustandsgrößen Temperatur, Dichte und Windgeschwindigkeit resultieren. Da aufsteigende Ballonsonden im Allgemeinen nur eine eindimensionale Momentaufnahme dieser Struktur liefern, wird sie häufig mit Schwerewellen verwechselt [Joseph et al., 2003]. Auf diese Problematik wird im Abschnitt 8.1 eingegangen.

Abb. 6.14 a-d zeigt die Daten der Radiosonden, sortiert nach Theta-Niveaus. Praktisch im gesamten Theta-Bereich zwischen 350 und 600 K, d.h. zwischen 12 und 25 km Höhe, fielen die Temperaturen bis zum 11. Februar 1997 ab, um zum Zeitpunkt des TRIPLE-Fluges die Minimaltemperaturen des gesamten bisherigen Winters zu erreichen und danach wieder anzusteigen. Diese zeitweilige Absenkung der Temperatur ging einher mit einer ebenso zeitweiligen Anhebung der Theta-Niveaus (Abb. 6.14 b), einer leichten Verringerung der Windgeschwindigkeit (Abb. 6.14 c) und einem Drehen des Windes (d.h. der Herkunftsrichtung) von etwa WNW-NW (292,5°-315°) auf West (270°, Abb. 6.14 d).

Um die Bedeutung dieser Temperaturschwankungen abschätzen zu können, müssen nun zwei Schwelltemperaturen betrachtet werden, die sogenannte NAT-Temperatur T_{NAT} und die Eistemperatur T_{ICE} . Bei T_{NAT} (T_{ICE}) handelt es sich um die Schwelltemperatur, unterhalb welcher der Dampfdruck von NAT (Wasser-Eis) geringer ist als der Partialdruck von HNO_3 ·(Wasser). Damit können unterhalb dieser Temperatur feste NAT-Teilchen (Eis-

Teilchen) existieren. Zur Berechnung von T_{ICE} (in K) dient die Eis-Dampfdruckformel [Marti & Mauersberger, 1993]

$$x_{H_2O}P = \exp\left(24,306 - \frac{6144,9}{T_{ICE}}\right) \quad (51)$$

mit x_{H_2O} dem Volumenanteil des Wassers (dimensionslos, d.h. Kubikmeter Wasser pro Kubikmeter Luft) und P dem atmosphärischen Luftdruck (in hPa). Es wird somit angenommen, dass der Partialdruck des Wassers $x_{H_2O}P$ gerade dem Dampfdruck von Eis entspricht. Zur Berechnung von T_{NAT} (in K) dient die Formel [Hanson & Mauersberger, 1988]

$$\ln(x_{HNO_3}P) = -(a_0 + a_1T_{NAT})\ln p_{H_2O} + b_0 - \frac{b_{-1}}{T_{NAT}} + b_1T_{NAT} \quad (52)$$

mit $a_0=2,7836$, $a_1=0,00088$, $b_0=90,8556$, $b_{-1}=26242,6$ und $b_1=0.0213885$. Bei p_{H_2O} handelt es sich um den Wasser-Partialdruck, welcher dem Minimum aus $x_{H_2O}P$ und dem Eis-Dampfdruck bei der jeweiligen Temperatur T_{NAT} entspricht.

Wie bereits im Abschnitt 3.2 erwähnt, ist zwar nach wie vor ungeklärt, ob, wann und wie NAT-Teilchen überhaupt entstehen (das Unterschreiten der Schwelltemperatur ist nur eine von mehreren notwendigen Bedingungen), andererseits wurde empirisch festgestellt, dass T_{NAT} (oder eine Temperatur nahe T_{NAT}) offenbar eine Schwelltemperatur für das Eintreten der Chloraktivierung an PSC-Teilchen unabhängig von deren Aggregatzustand und Zusammensetzung bildet. Entsprechend wird sie auch als Schwelltemperatur im CLaMS-Modell verwendet (siehe Abschnitt 7.1.2).

Die zur Berechnung der NAT- und Eis-Temperaturen erforderlichen HNO_3 - und H_2O -Profile wurden aus den ILAS-Daten entnommen. Wie in Abb. 6.9 gezeigt, nehmen beide Schwelltemperaturen mit zunehmender Höhe ab. Die NAT-Temperatur wird durch die ECMWF-Werte vom 11.2.97 12 Uhr im Wesentlichen knapp, durch die entsprechenden UKMO-Werte sowie durch die am Ballon und mittels Radiosonde gemessenen Temperaturen beim Durchlaufen ihrer jeweiligen Minima dagegen deutlich unterschritten. Eine Eisbildung kann hingegen für den gesamten Bereich der Ballonflugroute ausgeschlossen werden. Auf Basis langjähriger Beobachtungserfahrung ist Eisbildung im extremen Fall zu erwarten, wenn die synoptische ECMWF-Temperatur, welche einen räumlichen und zeitlichen Mittelwert darstellt und sich damit lokal von der tatsächlichen Temperatur unterscheidet, 2 K über der Eistemperatur liegt [Wernli & Buss, 2003], im konkreten Fall beträgt die Differenz aber mindestens 5 K.

6.2.4. Ozonmessung

Die Ozonmessung auf der TRIPLE-Gondel wurde durch Terry Deshler, University of Wyoming, mittels eines ECC- (Electrochemical Concentration Cell) Ozonsensors durchgeführt. Den Ozondaten kommt im Rahmen dieser Arbeit besondere Bedeutung zu, da sie (neben Wasser) auf dem TRIPLE-Ballon als einzige mit derselben zeitlichen und räumlichen Auflösung wie ClO gemessen wurden (Abb. 6.8). Ozonmischungsverhältnisse wurden zudem auch durch ILAS, bei den Ballonaufstiegen CLD-1 und CLD-2 am 10. und 25. Februar 1997 (parallel mit NO_y , siehe Abschnitt 6.2.9) und durch das ballongestützte Infrarot-Absorptionsspektrometer LPMA am 14. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.10) gemessen. Im groben Verlauf sind die Profile aller fünf Messungen identisch. Das Ozonmischungsverhältnis nimmt bis zu einer Höhe von etwa 30 km zu, wo das Maximum der Ozonschicht erreicht wird. Diesem Trend überlagert sind im Fall von TRIPLE und CLD diverse Spitzen erhöhter Ozonkonzentration, welche sich bei allen drei Messungen etwa auf

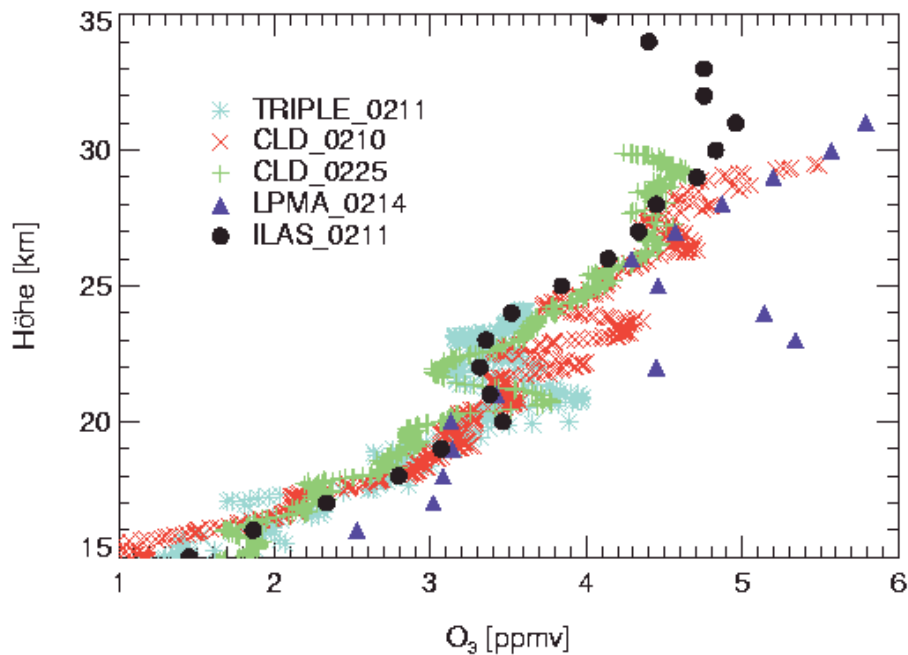


Abb. 6.15: Ozonprofile, gemessen auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997, auf den Ballongondeln CLD-1 am 10. Februar 1997 und CLD-2 am 25. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.9), durch das ballongestützte Infrarot-Absorptionsspektrometer LPMA am 14. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.10) sowie durch das Satellitengerät ILAS am 11. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.1).

demselben Theta-Niveau befinden (Abb. 6.15). Dies deutet darauf hin, dass im untersuchten Bereich großräumige Einmischungen stattfanden. LPMA maß unterhalb von 20 km Höhe sowie zwischen 20 und 25 km Höhe höhere Ozonkonzentrationen als die übrigen Instrumente. Auf die Problematik wird in den Abschnitten 6.2.7 und 6.2.9 näher eingegangen.

Im Fall der TRIPLE-Ozonmessung erscheint die Struktur der Ozonpeaks genau spiegelbildlich zur ClO-Doppelpeak-Struktur (Abb. 6.8). Man findet zwei markante Peaks bei 490 und 525 K mit Maxima von 4,0 bzw. 3,7 ppmv. Der untere Peak stimmt in seiner Position mit dem Minimum zwischen den beiden ClO-Peaks überein, und auch an der Position des oberen Ozon-Peaks erfährt das ClO-Profil einen Einschnitt. Die ClO-Peaks hingegen befinden sich in Bereichen, in welchen das Ozon-Mischungsverhältnis einen Wert um 3,2 ppmv annimmt. Die Ähnlichkeit mit Abb. 1.2, der berühmten Abbildung aus [Anderson et al., 1991] welche als experimenteller Beweis für die ozonzerstörende Rolle von ClO gilt (siehe Abschnitt 1.1), ist interessant, allerdings nicht ursächlich begründet und damit irreführend. Zum einen stimmen, wie in Abb. 6.8 gezeigt und im Abschnitt 6.2.7 noch erläutert wird, gerade die Ozonwerte im Bereich der ClO-Peaks mit den Erwartungswerten entsprechend der frühen Vortexkorrelation überein. Zum anderen traten die zur Erzeugung der Chloraktivierung notwendigen tiefen Temperaturen erst binnen der letzten Stunden vor dem TRIPLE-Ballonflug ein. Diese Zeitspanne war wesentlich zu kurz um auf chemischem Weg die Ozonkonzentration um 0,5 ppmv zu verringern. Die Tracer-Tracer-Beziehung zwischen Ozon und Methan oder N₂O spricht somit dagegen, dass das spiegelbildliche Verhalten von Ozon und ClO auf einen verstärkten Ozonabbau in den Bereichen der beiden ClO-Peaks zurückzuführen ist. Vielmehr sollte es sich bei den Ozonpeaks um Einmischungen handeln, während es sich bei der Luft im Bereich der ClO-Peaks um ungestörte Vortex-Luft handelt.

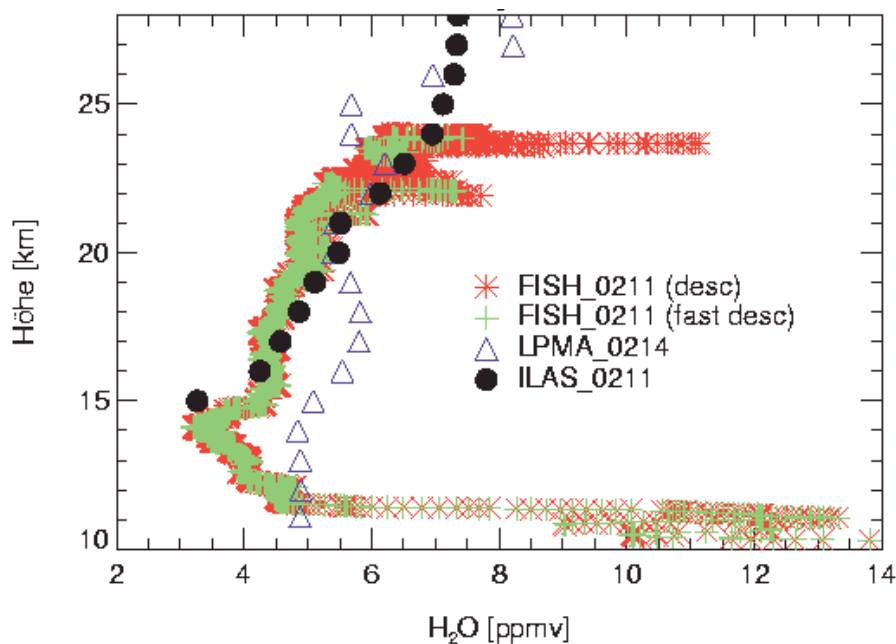


Abb. 6.16: Wasserprofil, gemessen durch das FISH-Hygrometer auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997 (misst den totalen Wassergehalt), durch das ballongestützte Infrarot-Absorptionsspektrometer LPMA am 14. Februar 1997 (nur Gasphasen-Wasser. Siehe Abschnitt 6.2.10) sowie durch das Satellitengerät ILAS am 11. Februar 1997 (nur Gasphasen-Wasser. Siehe Abschnitt 6.2.1). FISH_0211 (desc) bezeichnet alle während des Abstiegs der TRIPLE-Gondel gemessenen Werte, FISH_0211 (fast desc) nur die zu den Zeitpunkten aufgenommenen Werte, bei welchen der Abstieg schnell erfolgte (pro Minute Druckzunahme mindestens um 2%). Die während der Momente langsamen Abstiegs gemessenen Peaks im oberen Abschnitt der Messung (d.h. nachdem der TRIPLE-Ballon nach einer kurzen Drift gerade in den Abstieg überging) sind wahrscheinlich auf Verunreinigungen durch vom Ballon abgesondertes Wasser zurückzuführen.

6.2.5. Wassermessung

Wasser wurde durch das FISH-Hygrometer auf der TRIPLE-Gondel ebenfalls mit einer hohen Orts- und Zeitauflösung sowohl im Aufstieg als auch im Abstieg gemessen [Schiller et al., 2001a]. Allerdings sind nur die Abstiegs-Daten vertrauenswürdig, da die Aufstiegs-Messung zu stark von Ausgasungen des Ballons beeinflusst sind. Selbst in den Abstiegs-Daten finden sich noch einige markante Peaks, welche aber ebenso als fehlerhaft angesehen werden müssen. Ansonsten stimmt der Verlauf der FISH-Wasserdaten mit dem ILAS-Wasserprofil überein (Abb. 6.16). Dabei ist zu beachten, dass FISH den Gesamt-Wassergehalt der Atmosphäre maß, ILAS wie auch LPMA hingegen nur Gasphasen-Wasser. Zum LPMA-Wasserprofil ergeben sich stärkere Unterschiede, die LPMA-Messung fand allerdings zum Teil außerhalb des Polarwirbels statt (siehe Abschnitt 6.2.10).

Veröffentlicht wurden diese Messungen in folgenden Arbeiten: [Kanzawa et al., 2002] vergleicht die Qualität der ILAS-Wasserdaten mit den Messungen von diesem und anderen Ballonaufstiegen, [Schiller et al., 2001a] befasst sich mit der Problematik von Störeinflüssen des Ballons auf die Wassermessung.

Obwohl Wasser an der Chloraktivierung nicht als Reaktant beteiligt ist, kann seine Konzentration im Allgemeinen durchaus einen Einfluss auf diesen Prozess ausüben, da Wasser einen wesentlichen Bestandteil flüssiger und fester Wolkenteilchen bildet. In den Wasser-Messungen lässt sich allerdings keine Struktur erkennen, welche mit der ClO-Doppelpeak-Struktur assoziierbar wäre, so dass der Wassergehalt die Chloraktivierung im konkreten Fall offenbar nicht beeinflusste. Die FISH-Messungen beweisen auch, wie anhand der Betrachtungen zur Eistemperatur (Abschnitt 6.2.3) und der Identität der Profile von FISH

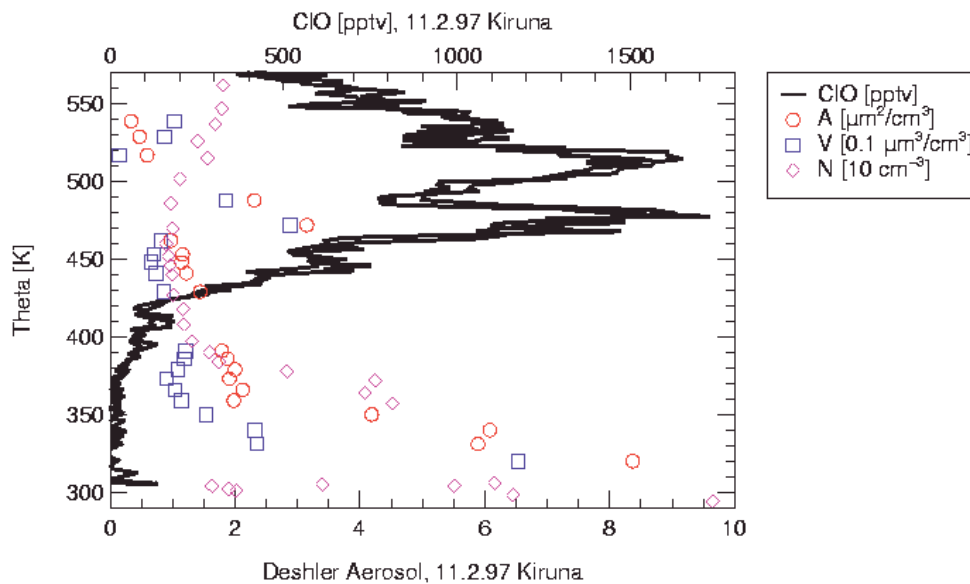


Abb. 6.17: Messungen des Aerosolzählers der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997. Dargestellt sind die Aerosoloberfläche A, das Aerosolvolumen V und die Teilchenanzahl N, jeweils pro Volumen, sowie das CIO-Profil dieses Fluges. Am unteren Rand der Abbildung ist deutlich der Übergang zur troposphärischen Aerosolkonzentration zu erkennen.

und ILAS bereits vermutet, dass im untersuchten Bereich keine Dehydrierung durch Gefrieren und Ausfallen von Wasserteilchen stattgefunden hat [Schiller et al., 2001b].

6.2.6. Aerosolmessung

Die durch Terry Deshler, University of Wyoming, mittels eines optischen Aerosolzählers ausgeführte Messung lässt sich wegen der geringen Anzahl Messpunkte nur bedingt zum Vergleich mit der CIO-Struktur heranziehen. Im Bereich des unteren CIO-Doppelpeaks befinden sich zwei Messpunkte auf 472 und 488 K, für welche sowohl die mittlere Aerosol-Oberfläche als auch die Aerosol-Volumendichte, nicht aber die Teilchenanzahl, signifikant gegenüber den Werten außerhalb dieses Bereichs erhöht sind (d.h. es sind genauso viele Teilchen pro Volumen vorhanden, aber sie sind größer). Eine Verfälschung der Ergebnisse aufgrund Wasserabsonderungen des Ballons kann allerdings nicht ausgeschlossen werden [Schiller et al., 2001a]. Im Bereich des oberen CIO-Doppelpeaks befinden sich ebenfalls Messpunkte, welche jedoch dem allgemeinen Trend entsprechen (Abb. 6.17).

6.2.7. BONBON

Das BONBON-Instrument der Johann-Wolfgang-von-Goethe-Universität Frankfurt/Main, dessen Einsatz von Andreas Engel geleitet wurde, ist ein kryogener Luftprobensammler [Schmidt et al., 1987]. Es besteht aus fünfzehn evakuierten Probenbehältern, welche mit flüssigem Neon gekühlt werden. Während des Abstiegs werden diese Behälter auf ausgewählten Höhenniveaus kurzzeitig geöffnet und wieder geschlossen. Dabei tritt Umgebungsluft in die Behälter ein und wird durch das kalte Neon sofort ausgefroren. Am Boden können die Luftproben dann im Labor mit Hilfe der Gaschromatographie oder Massenspektrometrie untersucht werden. Aus den Proben des 11. Februar 1997 wurden folgende Substanzen mit einer Genauigkeit von 1% ausgewertet:

CH₄, N₂O, SF₆, H₂, sowie die FCKW CFCl₃, CF₂Cl₂, C₂F₃Cl₃, CCl₄, C₂H₃Cl₃, CH₃Cl, CHF₂Cl.

Veröffentlicht wurden die Messungen unter [Müller et al., 1998], [Strunk et al., 2000] und [Engel et al., 2001]. Mit ILAS-Daten verglichen lassen sich die Profile von N₂O, CFCl₃ und

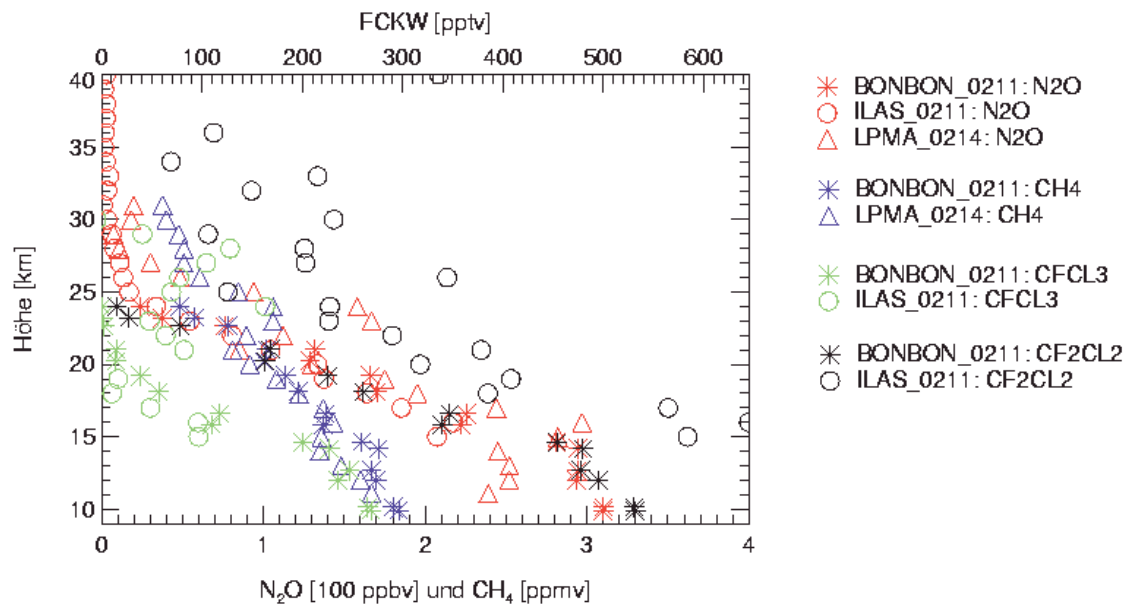


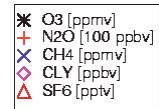
Abb. 6.18: Profile von N_2O , CH_4 sowie der FCKW CFCl_3 und CF_2Cl_2 , gemessen durch den Kryosammler BONBON und (außer CH_4) das ILAS-Satellitengerät am 11. Februar 1997 sowie (nur N_2O , und CH_4) durch das ballongestützte Instrument LPMA am 14. Februar 1997 (siehe auch Abschnitt 6.2.10).

CF_2Cl_2 mit der LPMA-Messung vom 14. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.10) die Profile von N_2O und CH_4 (Abb. 6.18). CH_4 wurde durch ILAS ebenfalls gemessen, die Daten jedoch verworfen [Kanzawa et al., 2002]. Die N_2O -Profile von BONBON und ILAS stimmen im Rahmen des Fehlerbereichs miteinander überein. Zu LPMA hingegen bestehen größere Unterschiede, was jedoch auf eine veränderte meteorologische Situation über Kiruna drei Tage nach dem TRIPLE-Flug sowie auf die geringere räumliche Auflösung von LPMA zurückzuführen ist. Für CFCl_3 und CF_2Cl_2 misst ILAS im Allgemeinen größere Werte als BONBON, die ILAS-Messungen streuen zudem sehr stark. Auf Basis der ILAS-Daten würde man unterhalb von 600 K den Gehalt an organischem Chlor um etwa den Faktor 2 über- und der Gehalt an Cl_y (s.u.) entsprechend unterschätzen.

Neben N_2O , welches zur Berechnung der Ozon-Erwartungswerte nach der Tracer-Tracer-Korrelation (Abb. 4.3) benutzt wurde, sind in dieser Arbeit vor allem die BONBON-Messwerte für Cl_y und in geringerem Maße auch für Methan (CH_4) von Interesse, da beide Spezies zur Initialisierung von Chemie-Simulationsrechnungen verwendet werden und insbesondere eine Veränderung des Cl_y -Initialisierungswertes das Ergebnis der Chemierechnung nachhaltig beeinflusst. Cl_y , die Summe an anorganischem bzw. verfügbarem Chlor (siehe Abschnitt 3.1), kann allerdings nicht direkt bestimmt werden. Zur Berechnung dieser Summe benötigt man zwei Größen, zum einen die Konzentration an organischem Chlor, welche als identisch mit der Summe aller in den obenerwähnten FCKW eingebundenen Chloratome angenommen wird [Engel et al., 2001], und die totale Chlorkonzentration.

Als totale Chlorkonzentration einer Luftmasse wiederum wird der Chlorgehalt angenommen, welcher in dem Moment in der (hinsichtlich Chlor gut durchmischten und damit homogenen) Troposphäre herrschte, in welchem die betreffende Luftmasse aus der Troposphäre in die Stratosphäre überwechselte. Der seitdem vergangene Zeitraum wird als (stratosphärisches) Alter der Luft bezeichnet und kann anhand von Alterstracern bestimmt werden. Dabei handelt es sich um Moleküle, welche zum einen aufgrund ihres anthropogenen Ursprungs einen deutlichen und eindeutigen, im Idealfall linearen, zeitlichen Trend in der Troposphäre

besitzen, zum anderen in der Stratosphäre chemisch inert sind, d.h. aus ihrer in der Stratosphäre gemessenen Konzentration kann eindeutig auf das Alter geschlossen werden. Ideale Alterstracer sind u.a. SF₆ und CO₂. Für Alter unter 5 Jahren sind SF₆- und CO₂-basierte Alterswerte im Allgemeinen identisch, für höhere Alter liegen die SF₆-Alter systematisch unter den CO₂-Altern. Wenngleich dieser Effekt, als dessen Ursache eine mesosphärische Senke für SF₆ angenommen wird, für die 1997er Messungen nicht stark ausgeprägt war, wurde hier für die genaue Altersbestimmung von Luftmassen, deren Alter 5 Jahre überstieg, das CO₂-Alter, für Luftmassen, deren Alter 2 Jahre unterschritt, das SF₆-Alter und für alle übrigen Luftmassen der Mittelwert aus beiden Altern als Alterswert angenommen [Strunk et al., 2000, Engel et al., 2001]. Die auf diese Weise bestimmten Werte steigen mit sinkenden N₂O-Mischungsverhältnissen und damit im Allgemeinen mit wachsender Höhe an. Damit konnten Engel et al. eine N₂O-Alter-Referenzkurve erstellen, welche die Bestimmung des Alters auch auf Basis von N₂O-Messungen gestattet [Engel et al., 2001]. Bei den aus den Tracern ermittelten Alterswert handelt es sich allerdings um einen Mittelwerte für ein Luftpaket einer bestimmten Größe, welches seinerseits eine Mischung aus kleineren Luftpaketen von gegebenenfalls extrem unterschiedlichen Altern darstellt. Deswegen wird häufig versucht, ein Altersspektrum zu ermitteln, d.h. ein Spektrum der prozentualen Anteile der verschiedenen Alter in dieser Luftmasse. Schauffler et al. erstellten eine entsprechende Studie für die Messungen der SOLVE-Kampagne des Winters 1999/2000 in Kiruna/Schweden [Schauffler et al., 2003]. Demnach weichen die auf der Basis des Alters-Mittelwertes (und damit auf Basis der Näherung, dass das Altersspektrum deltaförmig um diesen Mittelwert verteilt ist) ermittelten Mischungsverhältnisse des totalen Chlors mit wachsender Höhe immer stärker von den auf Basis des „tatsächlichen“ Spektrums ermittelten Werten nach oben ab. Aber selbst auf einer Höhe von etwa 23 km (N₂O=50 ppbv) beträgt die Differenz lediglich rund 50 pptv und damit nur etwa 1,5 % des angenommen Wertes für das totale Chlor-Mischungsverhältnis (rund 3,5 ppbv mit nur schwachem Abfall mit zunehmender Höhe), so dass die Ermittlung des totalen Chlors als robust gegen diese Unsicherheit angesehen werden kann.



Als Cl_y wird nun einfach die Differenz zwischen der totalen Chlorkonzentration und der Konzentration an organischem Chlor angenommen. Es wird somit davon ausgegangen, dass diese Differenz an Chloratomen durch photochemische Prozesse aus den FCKW-Verbindungen befreit wurde, sich aber noch in derselben Luftmasse befindet und nun in Form reaktiver Chlorverbindungen (deshalb „verfügbares Chlor“) vorliegt. Im nicht aktivierten Polarwirbel ist der größte Teil dieser Chloratome in HCl, und, in geringerem Maße, in ClONO₂ eingebunden. Ansonsten tragen auch die Verbindungen ClO, Cl₂O₂, Cl₂, OClO, HOCl, ClNO₂, BrCl sowie chlorhaltige Aerosole und freie Chloratome zur Cl_y-Gesamtsumme bei. Aus einem Vergleich mit der ClO-Messung ergibt sich, dass am Maximum der Chloraktivierung etwa 50% des gesamten Cl_y in Form von ClO vorliegt (Abb. 6.6 auf Seite 65).

Die gemessenen Mischungsverhältnisse aller aus den BONBON-Proben analysierten Spezies steigen im Allgemeinen mit zunehmender Höhe stetig an oder fallen stetig ab (Abb. 6.19 a). Dieser Befund spricht eher gegen eine vertikale Alternierung von Luftmassen unterschiedlicher Herkunft und unterschiedlichen Vortex-Verweilzeiten im Bereich der TRIPLE-Ballonflugbahn. Auch aufgrund des Vergleichs der auf der TRIPLE-Gondel und der während der LPMA-Messung am 14. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.10) erhaltenen Daten kann für die Luftmassen entlang der TRIPLE-Route größtenteils von hohen Vortex-Verweilzeiten ausgegangen werden.

Eine wichtige Ausnahme stellen allerdings die bei 490 K, an der Position des ClO-Minimums, gemessenen Werte dar. Bei den in Abb. 6.19 a gezeigten Spezies ist auf diesem Theta-Niveau

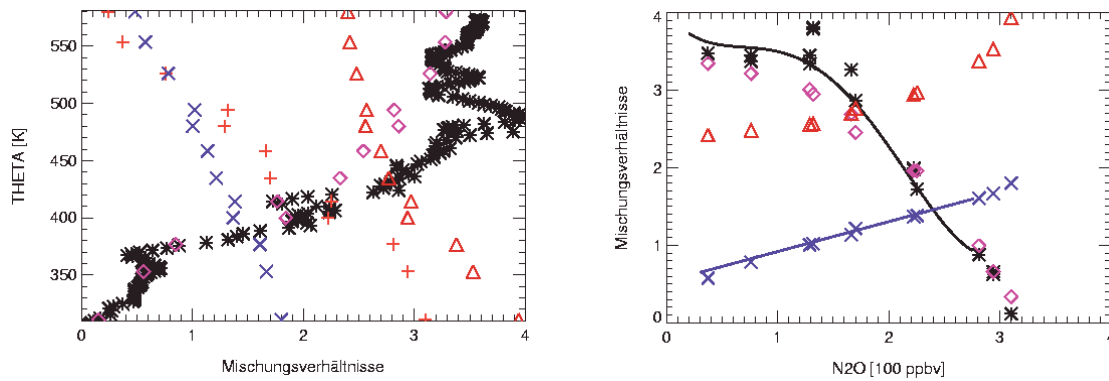


Abb. 6.19 a und b: Profile von N_2O , CH_4 , Cl_2 und SF_6 , analysiert aus den Proben des Kryosammlers BONBON vom 11. Februar 1997, dazu die Ozon-Messwerte des selben Fluges. Es wurden nur die während des Abstiegs der TRIPLE-Gondel gemessenen Werte dargestellt.

a: Darstellung als Funktion der Potentiellen Temperatur. b: Darstellung als Funktion des N_2O -Mischungsverhältnisses. Im Fall von Ozon ist jeweils der Messpunkt gezeigt, welcher dem Punkt der Kryosammler-Probenahme am nächsten lag. Zusätzlich gezeigt sind die Tracer-Tracer-Korrelationen (TTC) zwischen Ozon und N_2O (Early Vortex, Abb. 4.3) sowie CH_4 und N_2O (53).

eine leichte Abweichung vom ansonsten etwa linearen Trend erkennbar. Dieser Punkt muss nun mit Hilfe der Tracer-Tracer-Methode behandelt werden. Abb. 6.19 b zeigt die selben Werte wie Abb. 6.19 a, diesmal allerdings nicht als Funktion von Theta, sondern als Funktion des N_2O -Mischungsverhältnisses. Zusätzlich dargestellt sind zum einen die im Abschnitt 4.4 behandelte Early-Vortex-Korrelation (22) zwischen Ozon und N_2O sowie eine Korrelation zwischen CH_4 und N_2O , welche auf langjährigen (1988-92) Ballon-Luftsammler-Messungen beruht und ein globales und ganzjähriges Mittel darstellt [Engel et al., 1996].

$$\text{N}_2\text{O}[\text{ppbv}] = 259 \cdot \text{CH}_4[\text{ppmv}] - 138 \text{ppmv} \quad (53)$$

Gültig ist diese Gerade für Methan-Mischungsverhältnisse zwischen 0,65 und 1,6 ppmv und entsprechend für N_2O -Werte zwischen 275 ppbv und 30 ppbv. Da es sich um eine lineare Korrelation handelt, würden Mischungsprozesse zwischen verschiedenen Luftmassen, in welchen diese Korrelation ursprünglich galt, diese Korrelation nicht verändern. Wie in Abb. 6.19 b verdeutlicht, passt sich bei dieser Darstellung auch die Anomalie bei 490 K bzw. bei einem N_2O -Mischungsverhältnis von 1,3 ppbv gut in den allgemeinen Trend ein, mit wiederum einer Ausnahme: Bei 490 K wird mehr Ozon als erwartet gemessen, während die übrigen Ozon-Messwerte, welche auf einem der Kryosammler-Probenahme-Niveaus ermittelt wurden, praktisch perfekt auf die Kurve der frühen Vortexkorrelation (Abb. 4.3) passen. Wie in Abb. 6.8 gezeigt, befindet sich bei 490 K gerade die Spitze eines Ozonpeaks und das ClO-Minimum zwischen den beiden ClO-Peaks. In den ILAS-Daten tauchen Ozonwerte um 4 ppmv auf den Theta-Niveaus um 500 K durchaus auf (Abb. 4.4). Die Ozon-Mischungsverhältnisse auf diesem Niveau steigen dabei um so mehr an und entfernen sich um so mehr von den anhand der Early-Vortex-Korrelation (Abb. 4.3) erwarteten Werten, je geringer ihre Potentielle Vortizität ist (Abb. 4.5). Daraus kann geschlossen werden, dass der beobachtete Ozonpeak bei 490 K, und im Analogieschluss auch der Peak bei 525 K (auf diesem Niveau wurde keine Kryosammler-Probe genommen) auf das Eindringen von Luftmassen mit geringerer PV, und damit aus näher zum Wirbelrand gelegenen Bereichen oder gar von außerhalb des Wirbels, zurückzuführen sind.

6.2.8. Sauerstoff-Isotopenmessungen in CO_2

Einige BONBON-Kryosammler-Proben wurden an die University of California, San Diego, gebracht. Dort wurde das in der Probenluft enthaltene Kohlendioxid separiert und auf seine Sauerstoff-Isotopenzusammensetzung untersucht. Veröffentlicht wurden die Ergebnisse unter

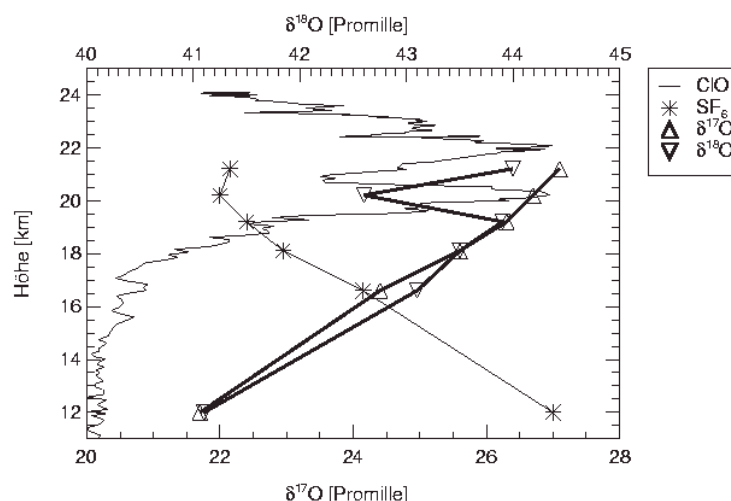


Abb. 6.20: $\delta^{18}\text{O}$ und $\delta^{17}\text{O}$ für das mittels des Kryosammlers BONBON am 11. Februar 1997 gesammelte Kohlendioxid, dazu die frei skalierten Profile für CIO und SF_6 , (nur Abstieg).

[Alexander et al., 2001]. Die natürliche Isotopenverteilung des Sauerstoffs, d.h. 99,76% ^{16}O , 0,04% ^{17}O und 0,20% ^{18}O wird als massenabhängig (mass-dependent distribution) bezeichnet, da sie nur von der Isotopenmasse abhängt, jede andere Verteilung entsprechend als massenunabhängig (mass-independent distribution). Stratosphärisches und mesosphärisches Kohlendioxid weist eine massenunabhängige Sauerstoff-Isotopenzusammensetzung auf. Diese ist wahrscheinlich auf einen kinetischen Isotopeneffekt, konkret auf einen O-Atom-Austausch mit Ozon zurückzuführen [Yung et al., 1991]. Aus diesem Grunde wurde der Gehalt an ^{18}O -Isotopen in Kohlendioxid bereits als ein alternatives Maß zur Bestimmung des stratosphärischen Alters vorgeschlagen [Yung et al., 1997].

SF_6 wurde aus den BONBON-Proben sowohl durch das BONBON-Team selbst [Strunk et al., 2000] als auch an der University of California [Alexander et al., 2001] aus den Proben bestimmt. Es fand sich die erwartete Antikorrelation zwischen $\delta^{18}\text{O}$ (relative Abweichung des Verhältnisses der Isotope ^{18}O und ^{16}O von dem Verhältnis in Standard-Meerwasser) oder $\delta^{17}\text{O}$ einerseits und SF_6 andererseits, mit einer Ausnahme: Im Fall des Messpunktes auf einer Höhe von 20,2 km (gemessen im Abstieg des Ballons) ergab sich ein im Vergleich zu den benachbarten, die Antikorrelation gut erfüllenden Messpunkten ein etwa 1 ‰ niedrigerer $\delta^{18}\text{O}$ -Messwert, während die $\delta^{17}\text{O}$ -Messung keine Abweichungen aufwies. Die Lage der Messpunkte relativ zur CIO ist aus Abb. 6.20 zu erkennen. Die Ursache dieser Abweichung in der Isotopenzusammensetzung blieb ungeklärt [Alexander et al., 2001].

6.2.9. NO_y -Messung der Ballonexperimente CLD-1 und CLD-2

Analog zu Cl_y versteht man unter NO_y die Gesamtheit der für chemische Reaktionen auf den betrachteten Höhenniveaus verfügbaren N-O-Verbindungen. Wichtigstes Reservoir ist Salpetersäure (HNO_3), ansonsten tragen NO , NO_2 , NO_3 , N_2O_5 , ClONO_2 , ClNO_2 und BrONO_2 sowie NO -haltige Aerosole (vor allem NAT und STS, siehe Abschnitt 3.2) zum NO_y -Signal bei. Das Mischungsverhältnis von NO_y ist ebenso wie das Mischungsverhältnis von Cl_y und die Temperatur ein kritischer Parameter des in dieser Arbeit verwendeten Chemiemodells CLaMS, d.h. geringe Variationen dieser Werte bei der Initialisierung der Chemierechnung können das Ergebnis entscheidend beeinflussen. Das NO_y -Mischungsverhältnis wurde allerdings nicht auf der TRIPLE-Gondel selbst gemessen. Die verwendeten Daten stammen vom japanischen Instrument CLD, welches bereits am Vortag, d.h. am 10. Februar 1997, von Kiruna aufstieg. Die Daten dieses Flugs sowie eines zweiten CLD-Experiments am

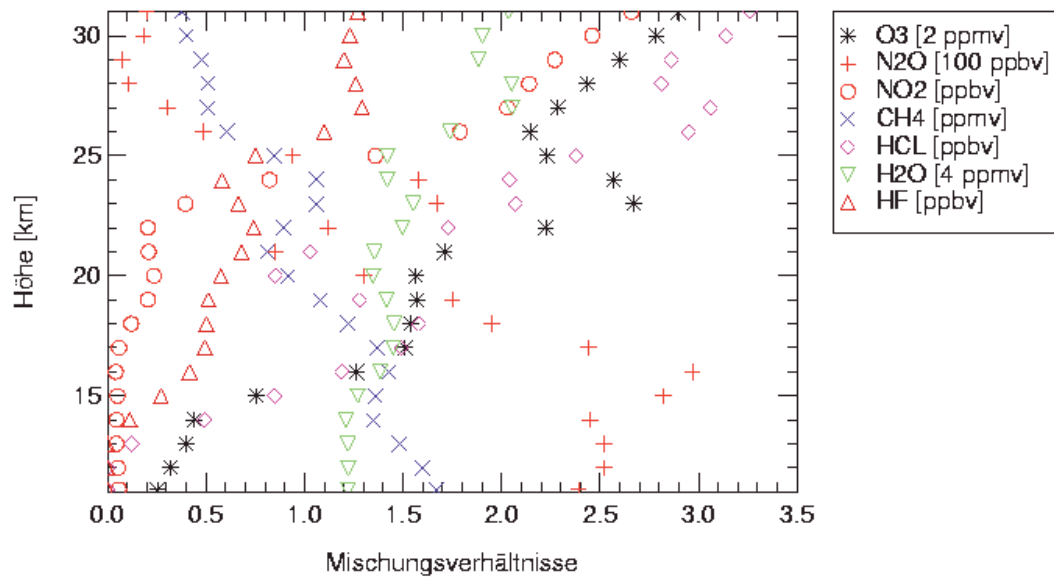


Abb. 6.21: Ozon, N_2O , NO_2 , CH_4 , HCl , Wasser und HF , gemessen durch das ballongestützte Instrument LPMA am 14. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.10).

25. Februar 1997, ebenfalls von Kiruna aus, wurden veröffentlicht in [Kondo et al., 1999]. Auf die Messung wird im Abschnitt 7.5.2. näher eingegangen.

6.2.10. LPMA

Es ist interessant, die am 11. Februar 1997 gewonnenen Daten mit der 3 Tage später am 14. Februar 1997 durchgeführten LPMA-Messung zu vergleichen. Das durch Claude Camy-Peyret, Université Pierre et Marie Curie, Paris, betreute LPMA-Gerät (Limb Profile Monitor of the Atmosphere) ist ein ballongestütztes Fernerkundungs-Instrument, welches die Absorption der Sonnenstrahlung im Infrarotbereich misst [Camy-Peyret, 1995a, Camy-Peyret et al., 1995b]. Das Funktionsprinzip entspricht damit dem ILAS-Satellitengerät. Der Ballon, welcher das LPMA-Instrument trägt, steigt vor Sonnenuntergang bis zu einer Drifthöhe, auf welcher er bis nach dem Sonnenuntergang verbleibt. Da sich die Absorptionsstrecke, welche das Sonnenlicht vom Eintritt in die Atmosphäre bis zum Erreichen des LPMA-Instruments zurücklegt, mit der Zeit verändert (während der Aufstiegsmessung (ascent mode) primär als Funktion der Ballonhöhe, während der Messung in der Drift (occultation mode) primär als Funktion des Sonnenstands), können nun Vertikalprofile erstellt werden. Wegen der besseren Qualität wurde hier das Aufstiegsspektrum verwendet. Die hohe Empfindlichkeit des LPMA-Instruments erlaubt, Spezies mit einem Mischungsverhältnis bis zu 0,1 ppbv zu messen. Damit können auch Substanzen wie HCl oder HF , welche mit In-Situ-Techniken schwer messbar sind, erfasst werden, allerdings mit geringer räumlicher Auflösung. Dieses Gerät wurde u.a. am 14. Februar und am 26. Februar 1997 mittels eines Ballons von Kiruna bis in eine Höhe von 30 km befördert. Neben HCl und HF sowie NO_2 wurden dabei auch Methan, N_2O , Ozon und Wasser gemessen, wobei für die letzteren vier Substanzen Vergleichswerte von der TRIPLE-Gondel sowie vom ILAS-Gerät vorliegen. Die Veröffentlichung der Ergebnisse erfolgte in [Camy-Peyret et al., 1997], [Kanzawa et al., 1997] und [Kanzawa et al., 2002].

Als sogenannte typische Zeit und Position der hier besprochenen Messung ist der 14. Februar 1997 14:40 GMT 65,8°N 22,8°E angegeben. Dieser Punkt befand sich, wie in Abb. 6.4 auf Seite 62 für das 450- und das 550-K-Niveau gezeigt, außerhalb des Polarwirbels. Trotzdem wurde um 20 km Höhe (466 K) offenbar typische Vortexluft vermessen. Die hier gemessenen Ozonkonzentrationen entsprechen den Messungen der TRIPLE-Gondel und des ILAS-Geräts

vom 11. Februar 1997 sowie den CLD-Messungen vom 10. bzw. 25. Februar 1997, während auf den darüber und darunter liegenden Niveaus höhere Ozonwerte gemessen wurden (siehe Abb. 6.15 auf Seite 72). Diese Struktur findet sich auch wieder in den Profilen der anderen durch LPMA gemessenen Spezies (Abb. 6.21). Die HCl-Messwerte erreichen zwischen 20 und 21 km Höhe ein Minimum von 1 ppbv. Wie aus Abb. 6.6 auf Seite 65 hervorgeht, ergänzt sich dieser Wert mit dem ClO-Maximum des 11. Februar 1997 von 1,8 ppbv gerade zum BONBON-Cl_y-Wert von 2,8 pptv. Sofern die Luftmassen des 11. und des 14. Februar 1997 vergleichbar sind, bedeutet dieser Befund, wie bereits in den Abschnitten 3.2 und 6.2.2 erläutert, Folgendes: Das ClONO₂-Mischungsverhältnis lag vor Beginn der Chloraktivierung etwa 1 ppbv unter dem Mischungsverhältnis von HCl (wie auch in Abb. 3.1 auf Seite 19), mittlerweile ist das ClONO₂-Reservoir aber praktisch erschöpft und das aus den Reservoiren HCl und ClONO₂ entstandene aktive Chlor Cl_x liegt fast zu 100% in Form von ClO vor (vergleiche dazu Abb. 7.11 und Abb. 7.13 auf Seite 95ff). Auch am 14. Februar 1997 hatte diese Chloraktivierung offenbar noch keine messbaren Auswirkungen auf das Ozonprofil. Damit kann weitestgehend ausgeschlossen werden, dass es sich bei dem am 11. Februar 1997 beobachteten spiegelbildlichen Verhalten von ClO und Ozon um eine durch chemischen Ozonabbau erzeugte Struktur handelt, vielmehr sollte es sich bei den beobachteten Ozonpeaks um Einmischungen aus dem Wirbelrandbereich handeln.

6.2.11. Beurteilung der vorliegenden Messergebnisse chemischer Tracer

Abschließend soll betrachtet werden, welche Theorien zur Entstehung der beobachteten ClO-Struktur auf Basis der vorhandenen Messwerte überprüft werden können. Denkbar wären folgende Ursachen:

- Die ClO-Struktur ist ein Resultat unterschiedlicher Cl_y-Ausgangskonzentrationen.

Die Cl_y-Messungen des BONBON-Kryosammlers sind zwar im Vergleich zur ClO-Struktur gering orts aufgelöst. Zufälligerweise stimmt aber der Kryosammler-Messpunkt bei 490 K mit dem ClO-Minimum zwischen den ClO-Peaks und dem Ozon-Maximum überein. Damit liegen sowohl aus diesem Bereich als auch aus dem Bereich beider ClO-Peaks Werte vor (Abb. 6.6). Wenn die indirekte Bestimmungsmethode von Cl_y (Abschnitt 6.2.7) im konkreten Fall korrekte Werte lieferte, kann die Theorie überprüft werden. Siehe dazu Abschnitt 7.6.

- Es lagen unterschiedliche Cl_y-Partitionierungen vor.

Aufgrund der hohen Temperaturen (Abb. 7.1) sollte Cl_y bis zum 10. Februar 1997 komplett in Form der Reservoire HCl und ClONO₂ vorgelegen haben. Das prozentuale Verhältnis zwischen ihnen kann die Chloraktivierung beeinflussen, da das aktivierte Chlor praktisch zu je 50% aus HCl und ClONO₂ gebildet wird. Bei Erschöpfung des in der Regel kleineren ClONO₂-Reservoirs stagniert die Aktivierung somit, sofern es nicht zur Reaktivierung kommt (siehe Abschnitt 3.2). Die mittels CLaMS erzielten Ergebnisse sprechen aber dagegen, dass eine Erschöpfung im Bereich der ClO-Minima eingetreten ist (Abb. 7.11 und Abb. 7.13 auf Seite 95ff). Für ClONO₂ stehen keine Messungen zur Verfügung.

- Die Ursache liegt im unterschiedlichen Gehalt an NO_y begründet.

Auf der TRIPLE-Gondel selbst wurde leider keine hochaufgelöste NO_y-Messung durchgeführt. Es muss deshalb auf Messungen vom Vortag zurückgegriffen werden, welche nicht aus dem Polarwirbel stammen. Wie im Abschnitt 3.4 erläutert, besteht die Bedeutung von NO_x-Radikalen, welche photolytisch aus NO_y-Spezies entstehen, darin, dass diese Radikale ClO in das Reservoir ClONO₂ überführen und damit aktives Chlor abbauen. Gleichzeitig ermöglichen sie dabei unter Umständen (wenn das ursprüngliche ClONO₂-Reservoir erschöpft ist) zwar auch die Fortführung der Aktivierung des in HCl eingebundenen Chlors. Da im konkreten Fall allerdings seit dem erstmaligen Unterschreiten der für die

Chloraktivierung kritischen Temperatur T_{NAT} nur etwa 24 Stunden vergangen waren, sollte dieser Reaktivierungseffekt noch keine Rolle spielen. Der Zusammenhang zwischen der NO_y - und der ClO-Struktur kann somit darin bestehen, dass am Minimum zwischen den ClO-Peaks ursprünglich eine ebenso hohe Chloraktivierung vorlag wie an den Peaks, diese aber durch Reaktion mit den hier zahlreicheren NO_y -Spezies wieder in ClONO_2 umgewandelt wurde. Im Abschnitt 7.5.2 wird eine entsprechende Abschätzung vorgenommen.

- Entweder der absolute Aerosolgehalt selbst, oder aber die Struktur der Aerosoloberflächen, und damit ihre Eignung als Matrix für heterogene Reaktionen, unterschied sich auf den verschiedenen Höhenniveaus voneinander. Möglich wäre, dass der TRIPLE-Ballon eine Sandwich-Wolke durchquert hat. Dabei handelt es sich um eine überwiegend aus Flüssigaerosolen bestehende Wolke, welche an ihrer Ober- und Unterseite von zwei Lagen aus überwiegend festen Aerosolen flankiert wird.

Shibata et al. haben um 20 km Höhe über Spitzbergen im Polarwinter Sandwich-Wolken mittels LIDAR beobachtet [Shibata et al., 1999a] und Modellstudien dazu durchgeführt [Shibata et al., 1999b]. Derartige Wolken stellen unter Umständen ein ideales Testobjekt für die Theorien zur Chloraktivierung dar, sofern sich die Temperaturgeschichten der flüssigen und festen Wolkenlagen nicht wesentlich voneinander unterscheiden. Unterschiede in der Chloraktivierung können in diesem Fall direkt auf den Einfluss der Aerosolphase zurückgeführt werden. Gegenwärtig wird davon ausgegangen (das CLaMS-Modell ist entsprechend konfiguriert), dass die Raten der Chloraktivierung an festen und flüssigen Aerosolen bei gleicher Temperatur praktisch identisch sind. Eine ClO-Messung in einer Sandwich-Wolke wurde allerdings bisher noch nicht dokumentiert. Die durch Shibata et al. beobachteten Wolken traten nur auf, wenn die Temperaturen der Luftmassen, in welchen sich die Wolken bildeten, mindestens einen Tag nahe oder sogar unter der Eistemperatur lagen, und der vertikale Abstand zwischen zwei festen Lagen betrug rund 5 km.

Für den 11. Februar 1997 liegen leider weder hochaufgelöste und verlässliche In-Situ-Aerosol-Messungen noch bodengestützte LIDAR-PSC-Messungen vor. Eine Kampagne zu „Koordinierten Feldmessungen zum Einfluss von Leewellen auf Wolkenfelder in der polaren Stratosphäre“, in deren Rahmen LIDAR-Messungen in Kiruna und Andøya/Nord-Norwegen durchgeführt wurden, endete am 7. Februar 1997 [Reichardt et al., 1999]. Die Auswertung der ILAS-Daten durch Lee et al. lieferte keine PSC-Messung am 11. Februar 1997 [Lee et al., 2003]. Aerosol-Theorien können damit nicht anhand von Messdaten überprüft werden. Es kann lediglich festgestellt werden, dass Wasser im durch die TRIPLE-Gondel durchquerten Bereich etwa uniform verteilt war und somit dieses Basismaterial für die Aerosolbildung überall im gleichen Maß zur Verfügung stand.

- Die ClO-Doppelpeak-Struktur ist ein Resultat der unterschiedlichen Temperaturen, welche die Luftpakete auf den verschiedenen Höhenniveaus erfuhren.

Temperaturunterschiede können, wie im Abschnitt 7.6 gezeigt wird, ohne zusätzliche Annahmen zur Erklärung der ClO-Struktur dienen. Sie sind jedoch nicht ausreichend für die Erklärung der Ozonstruktur, da letztere Struktur offenbar nicht chemisch verursacht ist, sondern auf Mischungsvorgängen beruht. Es wird sich im Kapitel 9 allerdings zeigen, dass beide Forderungen gut miteinander vereinbar sind.

7. CLaMS-Modellrechnungen und Vergleich mit den Messergebnissen

7.1. Das CLaMS-Modell

7.1.1. Euler- und Lagrange-Verfahren der Modellierung

Die Bezeichnung CLaMS steht für Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere [McKenna et al., 2002a, McKenna et al., 2002b]. Dieses am Forschungszentrum Jülich entwickelte Programm dient zur Simulation der Chemie und Dynamik von Luftpaketen, welche sich in zwei (geographische Länge und Breite) oder drei (geographische Länge und Breite sowie Höhe) Dimensionen bewegen können. Wie der Name sagt, liegt dem Modell die nach dem Mathematiker Lagrange benannte Methode zur Modellierung der zeitlichen Evolution von Vielteilchensystemen zu Grunde. Zum Zeitpunkt der Einführung von CLaMS arbeiteten die meisten Chemie- und Transport-Modelle (CTM) allerdings nach der Euler'schen Methode. Euler'sche CTM-Programme funktionieren dabei wie folgt:

- Zerlegen der Atmosphäre in Zellen, deren Inneres als homogen angesehen wird.
- Laufenlassen der chemischen Reaktionen in diesen Zellen in einem festgelegten Zeitschritt
- Berechnen, welcher Prozentsatz der Luft einer Zelle aufgrund der meteorologischen Bedingungen sich in diesem Zeitschritt in eine bestimmte Nachbarzelle bewegt hat.
- Neuaufteilung der Luftpakete auf das Zellraster.

Die Methode arbeitet mit einem festen Raster. Die Mischung zwischen benachbarten Rasterzellen ist im Modellmechanismus inbegriffen. Es können keine Strukturen entstehen, welche kleiner als die feste Ortsauflösung des Rasters sind. Bei Anwendung der Euler'schen Methode muss stets die zeitliche Evolution eines größeren zwei- oder dreidimensionalen Feldes verfolgt werden, aus welchem dann bei Bedarf eindimensionale Felder, wie zum Beispiel die Daten entlang einer Ballonflugroute, ermittelt werden können.

CTM-Programme nach der Lagrange'schen Methode hingegen arbeiten nach dem Prinzip

- Berechnen, entlang welchen Weges (Trajektorie) sich ausgewählte Luftpakete in einem festgelegten Zeitschritt bewegen.
- Berechnung der Chemie, welche sich entlang dieses Weges abspielt.

Die Methode beruht damit, in ihrer einfachsten Variante, auf Luftpaketen, welche ihre Identität entlang ihrer gesamten Trajektorie behalten. Ihre chemische Zusammensetzung verändert sich nur aufgrund von Reaktionen ihrer Bestandteile untereinander. Damit liegt dieser Methode kein regelmäßiges Raster mehr zugrunde, und es können beliebig kleine Strukturen entstehen. Die Methode gestattet mit geringem Rechenaufwand die direkte Simulation des Verhaltens eindimensionaler Felder. Ein Lagrange'sches Modell wie CLaMS stellt damit ein ideales Werkzeug für die Erstellung von Modell-Vergleichsrechnungen zu Ballon- oder Flugzeugmessungen im Allgemeinen und zur Planung und Auswertung von Match-Kampagnen und Tracer-Tracer-Messungen im Speziellen dar. Wenn angenommen werden kann, dass ein Luftpaket, welches durch eine Ballonsonde beprobt wurde, in einem bestimmten Zeitraum vor (nach) der Messung keinen signifikanten Mischprozessen unterlag, genügt es, den Weg dieses Luftpakets und die entlang dieses Weges erfahrenen Temperaturen, Drücke und Sonneneinstrahlungen rückwärts (vorwärts) zu verfolgen, d.h. eine Rückwärtstrajektorie (Vorwärtstrajektorie) zu erstellen. Anschließend wird die sogenannte Initialisierung erstellt, d.h. es wird eine Annahme gemacht über die Konzentrationen aller im chemischen Gleichungssystem des Modells enthaltenen Spezies am Startpunkt der

Trajektorie. Beim Startpunkt handelt es sich um den zeitlich am weitesten zurückliegenden Punkt der Trajektorie (im Fall einer Vorwärtstrajektorie somit um den Punkt, an welchem die Berechnung begonnen wurde, im Fall einer Rückwärtstrajektorie hingegen um den Punkt, an welchem sie endete). Nun wird eine Chemierechnung entlang der Trajektorie gestartet, d.h. es wird berechnet, wie sich das in der Initialisierung angenommene chemische System unter den vorgegebenen meteorologischen Bedingungen zwischen Start- und Endpunkt der Trajektorie entwickelt. Während die Erstellung der Trajektorie in Richtung (vorwärts) oder auch entgegen der Zeitachse (rückwärts) erfolgen kann, erfolgt die Chemierechnung stets vorwärts.

Die Evolution zwei- oder dreidimensionaler Felder kann ebenfalls mittels der Lagrange'schen Methode berechnet werden. Dabei müssen von einer ausreichenden Anzahl an Raumpunkten Trajektorien gestartet werden, um zu jedem Zeitpunkt ein raumfüllendes Bild zu erzeugen. Im CLaMS-Modell ist zudem explizit ein Mischungsmechanismus integriert. Wenn er verwendet wird, können (da es sich bei Mischungen um irreversible Prozesse handelt) nur Vorwärtstrajektorien erstellt werden. Falls Luftpakete einander zu nahe kommen, werden sie zu einem neuen Paket verschmolzen, falls sich zwischen ihnen ein zu großer Raum öffnet, wird ein neues Paket erschaffen. Kontrolliert wird dieser Mechanismus durch den kritischen finiten Lyapunov-Exponenten λ_c . Dieser stellt ein Maß für die maximal erlaubte Deformation des Gitters pro Zeit dar. Ein kreisförmiges Element, welches zum Zeitpunkt t_0 einen Durchmesser l_0 besaß, kann damit bis zum Zeitpunkt $t_1 = t_0 + \Delta t$ maximal zu einer Ellipse mit einer Länge von $l_0 \exp(\lambda_c \Delta t)$ und einer Breite von $l_0 \exp(-\lambda_c \Delta t)$ ausgezogen werden, ohne dass es mit den benachbarten Elementen verschmolzen wird. Für Simulationen der Dynamik des Nordpolarwirbels liefert ein Wert $\lambda_c = 1,1$ pro Tag gute Übereinstimmungen zwischen Beobachtung und Modell [McKenna et al., 2002b].

Auf den ersten Blick erscheint die Verwendung von CLaMS für die Simulation der Evolution mehrdimensionaler Felder umständlich gegenüber der Euler'schen CTM-Programmen. Allerdings bietet CLaMS mehrere Vorteile. CLaMS spart Rechenkapazität, da nur die Strukturen verfeinert werden müssen, für welche die Atmosphärendynamik eine Filamentierung ergibt, während Euler'sche Modelle nur dann Filamente auflösen können, wenn ein hinreichend kleines Gitter für das gesamte Untersuchungsgebiet gewählt wurde. Da allerdings atmosphärische Filamente ihre Identität noch auf wesentlich kleineren Skalen beibehalten (d.h. die Tracer-Tracer-Beziehung innerhalb des Filaments wird nicht durch Mischungsvorgänge mit der Umgebung verändert), als sie durch die üblichen Euler'schen Modelle aufgelöst werden [Flentje & Kiemle, 2003], werden bei der Euler'schen Methode Mischungsvorgänge überschätzt. Es tritt das Problem der numerischen Diffusion auf, ein durch das Modell erzeugter Diffusionsvorgang, welcher mit wachsender Rastergröße zunimmt und darauf beruht, dass Luft, welche aus der Rasterzelle A in die Zelle B einströmt, unmittelbar als gleichmäßig über die gesamte Zelle B verteilt angesehen wird.

In dieser Arbeit wurde CLaMS ausschließlich zur Modellierung der Evolution eindimensionaler Felder eingesetzt, der Mischungs-Mechanismus kam entsprechend nicht zur Anwendung.

7.1.2. Die Dynamik- und Chemie-Werkzeuge von CLaMS

Die Berechnung der Trajektorien der Luftmassen beruht von Windfeldern, zum Beispiel von ECMWF oder UKMO (Abschnitt 6.2.1), welche als vierdimensionales Feld (üblicherweise geographische Länge und Breite sowie Druckhöhe und Zeit) vorliegen. Aufgrund der hohen vertikalen Schichtungsstabilität der Stratosphäre (siehe Anhang 12.5) sind für Modellierungen in diesem Abschnitt der Atmosphäre für die meisten Aufgabenstellungen Vertikalwinde vernachlässigbar, es genügen somit Angaben über die horizontalen Winde. Vor allem bei Langzeitberechnungen für die Polargebiete muss aber der diabatische Abstieg der Luftmassen

berücksichtigt werden. Zu diesem Zweck muss die Größe $d\Theta/dt$, die zeitliche Veränderung der Potentiellen Temperatur (Theta), ermittelt werden. Im Fall von CLaMS dient dazu eine verbesserte und numerisch effizientere Version [Zhong & Haigh, 1995] des Morcrette-Strahlungsschemas [Morcrette, 1991]. Windstärke und -richtung für die Position eines bestimmten Luftpakets werden aus den zeitlich und örtlich nächstgelegenen Datenpunkten interpoliert. Die Lösung der Bewegungs-Differentialgleichungen geschieht mit einem Runge-Kutta-Schema 4. Ordnung.

Eine Liste der im CLaMS-Modell verwendeten chemischen Reaktionen ist in [McKenna et al., 2002b] aufgeführt. Darunter befinden sich auch insgesamt 11 heterogene Reaktionen, deren Geschwindigkeitskonstanten von Zusammensetzung und Aggregatzustand der Reaktionsoberfläche abhängen. Die heterogenen Reaktionsraten sowie die Mikrophysik der flüssigen und festen Teilchen werden dabei nach dem Schema von Carslaw et al. berechnet [Carslaw et al., 1995]. In diesem Schema sind die drei festen Spezies NAT (Salpetersäure-Trihydrat), SAT (Salpetersäure-Tetrahydrat) und Eis sowie das Flüssigaerosol STS (supercooled ternary solution) vorgesehen. Die Bildungsrate von STS steigt bei Absinken der Temperatur auf die kritische Temperatur T_{NAT} (etwa 195 K in der unteren Stratosphäre), welche eigentlich die Grenze des Existenzbereichs für NAT-Teilchen darstellt, massiv an. Im Standard-Modelllauf wird davon ausgegangen, dass von diesen flüssigen STS-Aerosolen jedes zehnte zu einem festen NAT-Teilchen gefriert, sobald eine HNO_3 -Übersättigung relativ zu NAT von 10 erreicht ist. Dieser Moment tritt bei etwa 3 K Unterkühlung ein, d.h. die Temperatur liegt mindestens 3 K unter T_{NAT} . Diese Parameter können im CLaMS-Modell durch den Nutzer verändert werden. Im Fall des TRIPLE-Ballonaufstiegs vom 11. Februar 1997 lagen allerdings keine Messdaten vor, mittels welchen man auf die Partikelphase (flüssig oder fest) schließen und die Parametrisierung validieren könnte. Deshalb wurde sich bei den Modellierungen zur TRIPLE-CIO-Struktur auf den Standardfall beschränkt.

7.2. Erstellung der Rückwärtstrajektorien

Es wurden nun mit den CLaMS-Dynamikwerkzeugen sowohl auf Basis der ECMWF- als auch der UKMO-Daten Rückwärtstrajektorien erstellt, welche an der TRIPLE-Ballonroute vom 11. Februar 1997 starten. Abb. 7.1 zeigt die Temperaturen, welche die am 11. Februar 1997 durch die TRIPLE-Gondel durchquerten Luftpakete entsprechend der ECMWF- bzw. UKMO-Daten in den vergangenen 10 Tagen zuvor erfuhren. Bis 6 Tage zuvor wurden aus beiden Datensätzen praktisch identische Temperaturverläufe ermittelt, mit tendenziell tieferen Temperaturen für die UKMO-Trajektorien, bei weiterem Zurückgehen ergeben sich stärkere Unterschiede. Übereinstimmung herrscht jedoch dahingehend, dass Temperaturen unterhalb von T_{NAT} (etwa 195 K auf dem 550-K-Theta-Niveau) erst während der letzten 24 Stunden vor dem TRIPLE-Flug erreicht wurden. Da die ECMWF-Daten eine höhere Orts- und Zeitauflösung besitzen (Abschnitt 6.2.1), wird sich im Folgenden auf diese Daten beschränkt.

Zur Überprüfung der Zuverlässigkeit der ECMWF-Trajektorien wurden neben den in Abb. 7.1 dargestellten, im Folgenden Zentraltrajektorien genannten Trajektorien auch sogenannte Offset-Trajektorien erstellt. Diese begannen zum selben Zeitpunkt wie die zugehörige Zentraltrajektorie, starteten aber nicht wie diese direkt an Ballonroute, sondern um 1° in der Länge oder Breite relativ zur Ballonroute verschoben. Zu jeder Zentraltrajektorie gehören damit 8 Offset-Trajektorien. In Abb. 7.2 und Abb. 7.3 ist der Verlauf von Zentral- und Offset-Trajektorien gezeigt. Im dargestellten Zeitraum von 10 Tagen ist kein Auseinanderlaufen der Zentral- und Offset-Trajektorien zu beobachten. Wie Abb. 7.2 ebenfalls zeigt, fand in diesem Zeitraum auch keine signifikante Änderung der Potentiellen Vortizität statt. Auf diese Problematik wird im nächsten Abschnitt eingegangen.

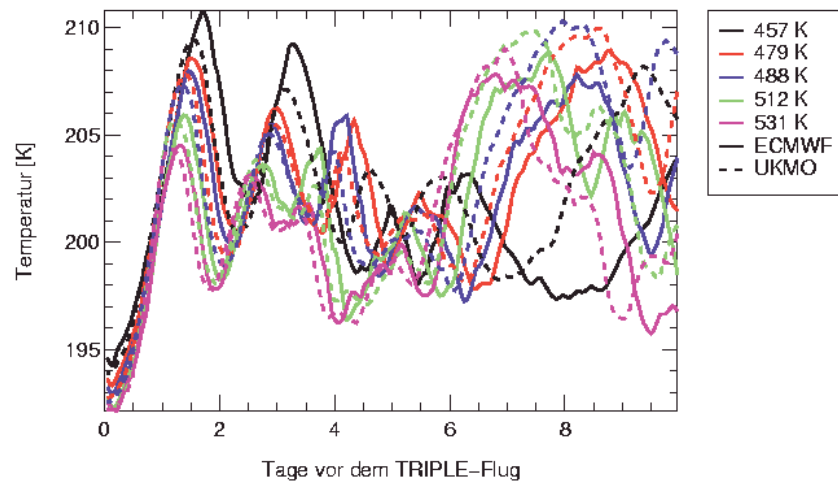


Abb. 7.1: Temperaturen (in K) entlang der ECMWF- (durchgezogen) und UKMO- (gestrichelt) Rückwärtstrajektorien für die Theta-Niveaus 457 K (unterhalb des CIO-Doppelpeaks vom 11. Februar 1997), 479 K (unterer CIO-Peak), 488 K (Minimum zwischen beiden Peaks), 512 K (oberer CIO-Peak) und 531 K (oberhalb des CIO-Doppelpeaks).

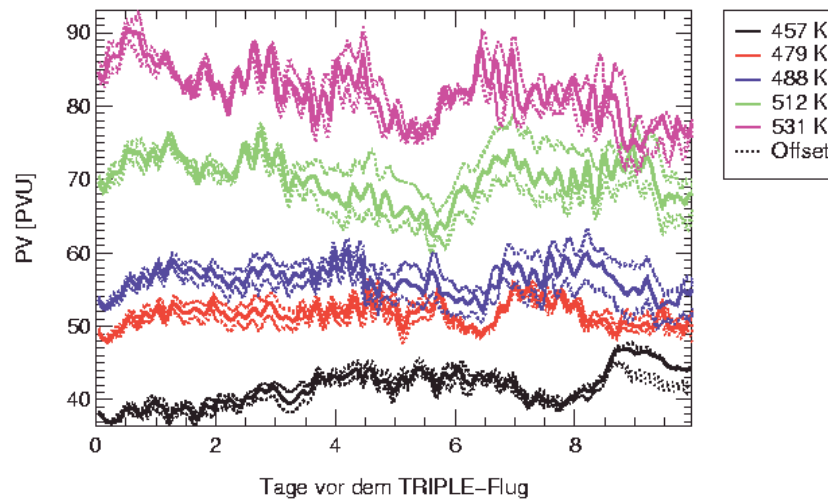


Abb. 7.2: Potentielle Vortizität (in PVU) entlang der ECMWF-Rückwärtstrajektorien für die selben Theta-Niveaus wie in Abb. 7.1 Gepunktete Linien bezeichnen die Offset-Trajektorien (siehe Text).

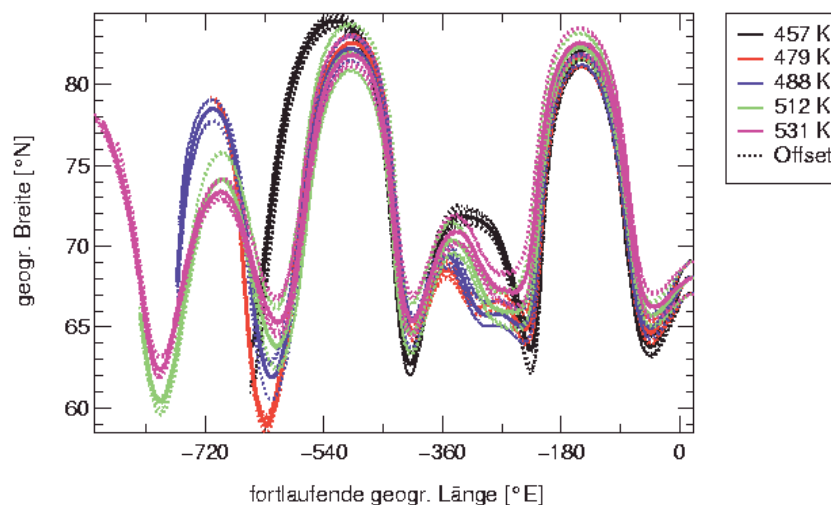


Abb. 7.3: Wie Abb. 7.2, Darstellung der geographischen Breite als Funktion der geographischen Länge. Letztere Größe wurde dabei fortlaufend gedruckt, d.h. ein Wert von -360° bedeutet, dass die Trajektorie nach einer kompletten Erdumrundung in westlicher Richtung (zeitlich rückwärts) wieder den Nullmeridian erreicht.

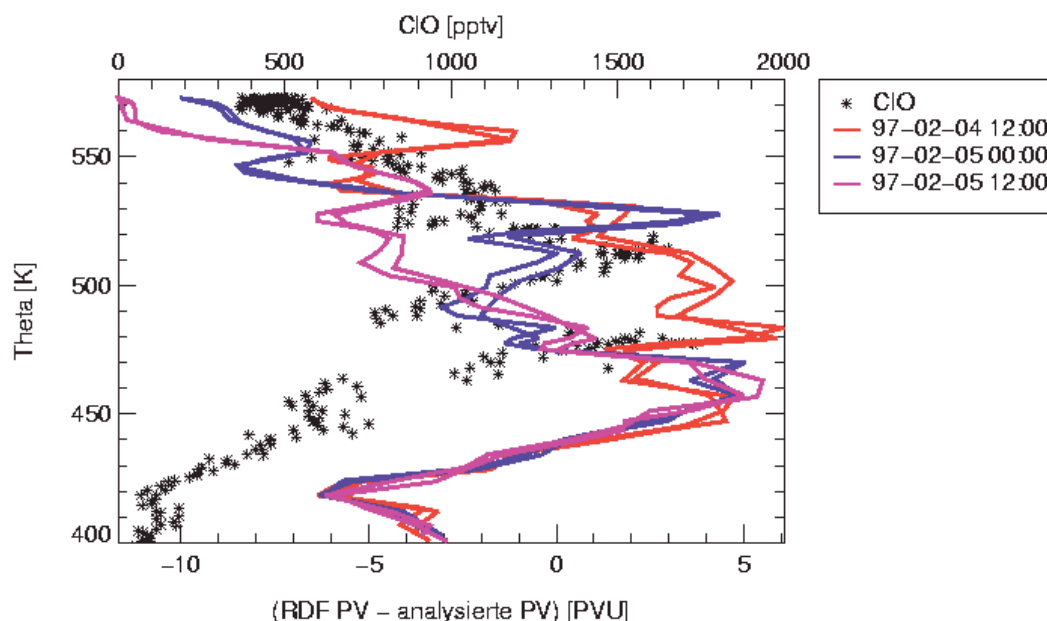


Abb. 7.4: RDF-PV-Profil, extrahiert aus den ECMWF-Rückwärtstrajektorien am 4. Februar 1997 12 Uhr GMT, 5. Februar 1997 0 Uhr GMT und 5. Februar 1997 12 Uhr GMT. Gezeigt ist die Differenz aus den PV-Werten entlang dieser Trajektorien (RDF PV) zu den genannten Zeitpunkten und den Werten, welche für den 11. Februar 1997 entlang der TRIPLE-Flugroute ermittelt wurden (analysierte PV). Zusätzlich dargestellt ist das TRIPLE-CIO-Profil.

7.3. Ist die RDF-Methode anwendbar auf die TRIPLE-Messungen?

Im Abschnitt 4.3 wurde die Reverse Domain Filling- (RDF-) Methode zur Identifizierung von Mischungsvorgängen vorgestellt und auch auf die kontroversen Debatten zur Nützlichkeit und Anwendbarkeit dieser Methode hingewiesen. Wenn sich ab einer bestimmten Länge der Rückwärtstrajektorien (RDF-Länge) eine deutliche Ähnlichkeit zwischen dem RDF-PV-Profil und dem Profil bestimmter durch eine Ballonsonde gemessener chemischer Tracern feststellen lässt, kann dies als Indiz für eine unterschiedliche Herkunft der Luftmassen entlang des Ballonroute gewertet werden. Allerdings ist dies nur berechtigt, sofern die passende PV-Struktur nicht nur bei dieser bestimmten RDF-Länge erhalten wird, sondern auch bei weiterem Zurückgehen in der Zeit stabil bleibt (ggf. können sich Unterstrukturen bilden). Das bei einer Rückrechnung bis zum 5. Februar 1997 0:00 GMT erhaltene PV-Profil weist eine verblüffende Ähnlichkeit mit dem CIO-Profil des 11. Februar 1997 auf. Allerdings handelt es sich offenbar um ein zufälliges Ergebnis, wie man bei einem Vergleich mit den PV-Profilen für eine um 12 Stunden kürzere bzw. längere RDF-Länge erkennt. Wie Abb. 7.3 erkennbar ist, liefen die Trajektorien im betrachteten Zeitraum auch nicht nennenswert auseinander sondern legten alle etwa den gleichen Weg zurück, allerdings unterschiedlich schnell. Damit durchquerten sie zu unterschiedlichen Zeitpunkten Gebiete, in welchen CLaMS den Luftmassen hohe bzw. niedrige PV-Werte zuordnete. Als Konsequenz entsteht am 5. Februar 1997 0:00 GMT zufällig das passende RDF-PV-Profil. Zur Aufklärung der CIO-Doppelpeak-Struktur des 11. Februar 1997 ist die RDF-Methode somit nicht anwendbar. Es kann zwar nicht ausgeschlossen werden, dass die gemessenen Profile von CIO oder vor allem Ozon (dieses Profil kann ausschließlich dynamisch erklärt werden) auf Mischungsvorgänge in den vergangenen 10 Tagen vor dem TRIPLE-Flug zurückzuführen sind. Die Dynamikwerkzeuge von CLaMS liefern allerdings kein Indiz dafür.

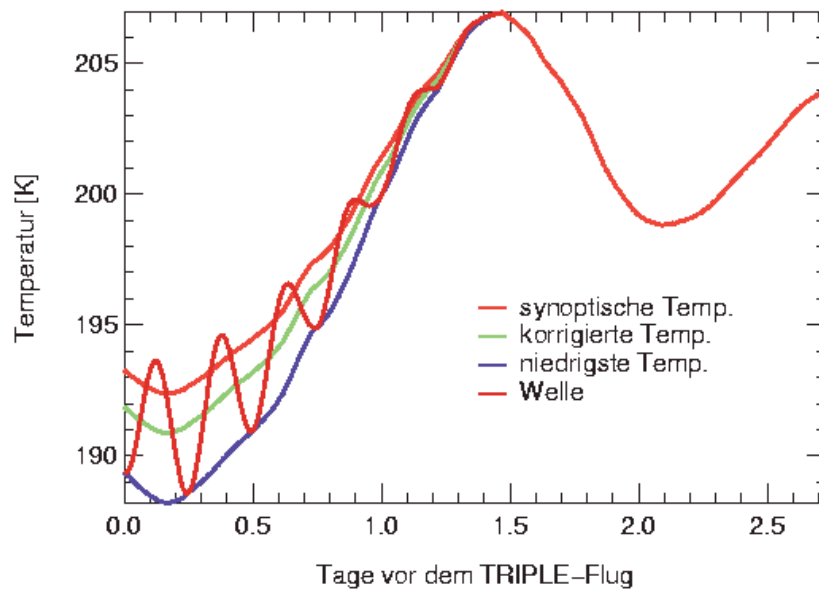


Abb. 7.5: Synoptische Temp: Trajektorie auf dem 503-K-Theta-Niveau, endend (bei Tag 0) an der TRIPLE-Route am 11. Februar 1997 und erstellt durch CLaMS auf der Basis von ECMWF-Daten. Übrige Plots: Modifikationen dieser Trajektorien, welche vorgenommen wurden, damit die Temperatur am Endpunkt der Trajektorie dem entsprechenden Profil aus Abb. 7.6 entspricht.

7.4. Temperatur-Szenarien

Bei den ECMWF- und UKMO-Daten handelt es sich um Fernerkundungsdaten mit einer zeitlichen Auflösung von 6 (ECMWF) und 24 (UKMO) Stunden. Aus diesen Datensätzen bestimmte CLaMS für jeden Zeitpunkt entlang der Rückwärtstrajektorien einen Temperaturwert. Diese in Abb. 7.1 auf Seite 85 dargestellten und im Folgenden als synoptische Temperaturen bezeichneten Werte stimmen im Allgemeinen nicht mit den tatsächlichen Temperaturen entlang der Trajektorien der Luftmassen überein. Es können drei verschiedene Arten von Diskrepanzen auftreten:

- Der Temperaturtrend entlang der Trajektorie wurde falsch berechnet, weil CLaMS eine andere Trajektorie ermittelte als tatsächlich durch die Luftmasse zurückgelegt. Prinzipiell kann dieser Fall nie ausgeschlossen werden. Allerdings konnte, wie im Abschnitt 7.2 beschrieben, kein Hinweis auf eine Unsicherheit in der Berechnung der Trajektorie festgestellt werden (Zentral- und Offset-Trajektorien laufen nicht auseinander).
- Es liegt eine systematische Abweichung der tatsächlichen Temperaturen von den ECMWF- oder UKMO-Temperaturen vor. Der wahre Temperaturtrend stimmt mit dem in Abb. 7.1 gezeigten Trend überein, die wahre Temperatur weicht jedoch von den synoptischen Temperaturen ab.
- Es treten kurzfristige Temperaturänderungen auf, welche in den zeitlich niedrig aufgelösten synoptischen Meteorologiedaten nicht enthalten sind und somit durch die Dynamik-Werkzeuge des CLaMS-Modells auch nicht berücksichtigt werden konnten.

Die beiden letzten Fälle können überprüft werden, indem man die Temperaturen entlang der Trajektorie modifiziert und sowohl auf Basis der synoptischen als auch der veränderten Temperaturen eine CLaMS-Chemierechnung durchführt. Laut Abb. 7.1 auf Seite 85 durchliefen die von der TRIPLE-Gondel durchquerten Luftmassen ein bis zwei Tage vor dem 11. Februar 1997 noch einmal ein Temperaturmaximum. Erst danach trat ein rapider Temperaturabfall ein, in dessen Folge am 11. Februar 1997 erstmals in diesem Winter Temperaturen um die NAT-Schwelltemperatur (etwa 195 K, siehe Abb. 6.9 auf Seite 67) erreicht wurden. Zur Untersuchung der Einflusses der Temperatur wurde deshalb

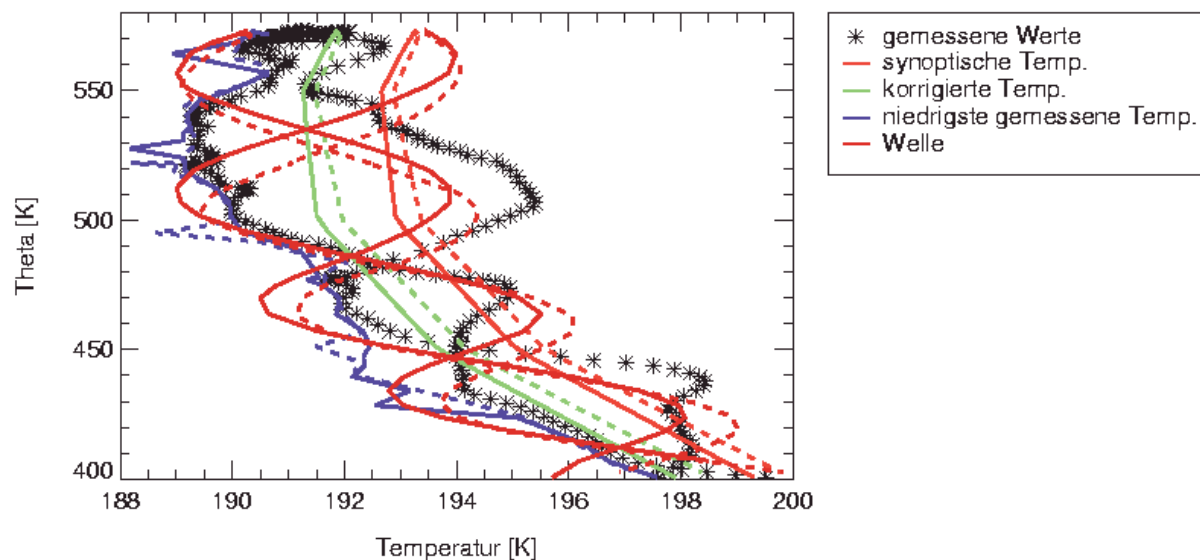


Abb. 7.6: Temperaturen am Endpunkt der Trajektorien (d.h. am 11. Februar 1997) für die einzelnen Szenarien. Gemessene Werte: Temperatur, gemessen auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997. Synoptische Temp.: Temperaturen an den Endpunkten der Trajektorien (siehe Abb. 7.1). korrigierte Temp.: Die selben Temperaturen um 1,4 K vermindert. Niedrigste gemessene Temp.: Niedrigste Temperatur, welche auf dem jeweiligen Theta-Niveau gemessen wurde (siehe Text). Welle: Angenommen stehende Welle. Durchgezogene Linien bezeichnen die Anpassung der Temperaturen des Ballonaufstiegs, gestrichelte Linien die Anpassung der Temperaturen des Abstiegs.

ausschließlich der Bereich dieses Temperaturabfalls nach dem letzten Temperaturmaximum verändert.

Dabei wurde wie folgt vorgegangen: Die Temperaturmessungen legen die Vermutung nahe, dass zumindest in den letzten Stunden vor der TRIPLE-Messung die Temperaturen um einen Mittelwert schwankten (Abb. 6.9 auf Seite 67 und Abb. 7.6). Es wurde nun angenommen, dass dieses Verhalten bei der Passage des letzten Temperaturmaximums startete und der Temperaturverlauf somit etwa dem Plot „Welle“ der Abb. 7.5 entspricht. Als einfachster Test des Temperatureinflusses, für welchen noch keine Annahmen über Mittelwert, Amplitude und Frequenz dieser Schwingung gemacht werden müssen, wurden die Trajektorientemperaturen zunächst so modifiziert, dass ihr Verlauf dem Plot „niedrigste Temp.“ der Abb. 7.5 entspricht. Dieser Verlauf kann als eine Untergrenze der durch die Luftmassen erlebten Temperaturen angenommen werden. Das Endprofil („niedrigste gemessene Temp.“ in Abb. 7.6) wird dabei wie folgt erstellt: Auf jedem Theta-Niveau existieren drei Temperaturmessungen: Die Temperatur an der TRIPLE-Gondel, gemessen einmal beim Aufstieg und einmal beim Abstieg, sowie die Temperatur einer 2 Stunden nach dem TRIPLE-Ballon ebenfalls in Kiruna gestarteten Ballon-Radiosonde (siehe Abb. 6.9). Für jedes Theta-Niveau wird das Minimum dieser drei Messungen ausgewählt und dem Endpunkt der Trajektorie auf dem jeweiligen Theta-Niveau zugeordnet.

Die auf der TRIPLE-Gondel gemessenen Temperaturen (Abb. 7.6, „gemessene Werte“) konnten aber auch durch eine Welle angepasst werden. Es wurde dabei von der Annahme einer stehenden Welle senkrecht zur Erdoberfläche ausgegangen. Luftmassen, deren Trajektorie an einem Bauch dieser Welle endet, erfahren damit periodisch tiefe Temperaturen, welche für die Chloraktivierung förderlich sind. Die Temperaturen der Luftmassen, deren Trajektorie durch den Knoten verläuft, verbleiben dagegen auf einem Mittelwert. Eine stehende Welle sollte somit prinzipiell in der Lage sein, eine ClO-Doppelpeak-Struktur wie beobachtet zu erzeugen.

Einen akzeptablen Mittelwert für die stehende Welle erhält man offenbar, wenn man die synoptischen Temperaturen um 1,4 K verringert („korrigierte Werte“ in Abb. 7.5 und Abb. 7.6). Dieses Profil wurde durch eine Welle mit einer Wellenlänge von 2 km Länge und einer Amplitude von 2,5 K überlagert. Man erhält die Struktur „Welle“ in Abb. 7.6, welche die Amplituden der anzulegenden Wellen auf den einzelnen Theta-Niveaus bestimmt. Analog zum Vorgehen für die niedrigste gemessene Temperatur kann nun zunächst eine modifizierte Trajektorie angelegt werden, als deren Endtemperaturen die untere Einhüllende dieser Wellenstruktur angenommen wird. Zusätzlich wurden noch verschiedene Periodendauern angenommen und eine Trajektorie der Form „Welle“ (Abb. 7.5) angelegt. Konkret wurden Perioden von 100, 200 und 400 Minuten gewählt. Da Start und Landung der TRIPLE-Gondel etwa 2 Stunden und die Passage des 500-K-Niveaus bei Auf- und Abstieg etwa 1 Stunde auseinander liegen, in dieser Zeit aber mindestens eine halbe Schwingungsperiode durch die Luftmassen absolviert wurde, sollten die tatsächlichen Schwingungsdauern etwa von dieser Größenordnung sein.

Insgesamt wurden damit Chemie-Rechnungen für drei verschiedene Temperatur-Szenarien durchgeführt:

- Synoptisches Szenario: Die Rechnung wurde zum einen auf Basis der in Abb. 7.1 dargestellten synoptischen ECMWF-Temperaturen, zum anderen auf Basis eines korrigierten Temperaturverlaufs (Endtemperatur um 1,4 K gegenüber der synoptischen Endtemperatur vermindert) durchgeführt („synoptische Temp.“ und „korrigierte Temp.“ in Abb. 7.5, Abb. 7.6, Abb. 7.10 (nur synoptisch) und Abb. 7.12).
- Tieftemperatur-Szenario: Als Temperatur-Endprofil wurden zum einen die untere Einhüllende des Plots „Welle“ in Abb. 7.6 („Welle, niedrigste Temp.“ in Abb. 7.12), zum anderen die tatsächlich gemessene niedrigste Temperatur auf jedem Theta-Niveau („niedrigste gemessene Temp.“ in Abb. 7.6, Abb. 7.10 und Abb. 7.12) angenommen. Der zeitliche Temperaturverlauf ist wie in Abb. 7.5 („niedrigste Temp.“) gezeigt. Dieses Szenario besitzt den Charakter einer Extremwert-Abschätzung, da, wie ein Vergleich der Temperatur-Messwerte von Aufstieg und Abstieg der TRIPLE-Gondel zeigt, die Luftmassen in Wahrheit abwechselnd hohe und tiefe Temperaturen erfuhren.
- Wellen-Szenario („Welle“): Abb. 7.6 zeigt die Amplituden der angenommenen Welle in Abhängigkeit vom Theta-Niveau, Abb. 7.5 den zeitlichen Verlauf auf einem ausgewählten Niveau und Abb. 7.12 die Ergebnisse der Chemierechnung.

7.5. Die Ermittlung der Chemie-Initialisierung

7.5.1. Erster Schritt

Ziel des folgenden Schrittes ist es, eine realistische Initialisierung für die Chemierechnungen zu finden. Unter Initialisierung versteht man die angenommene Konzentration der chemischen Tracer an den Startpunkten der Trajektorien. Als Bedingung für eine ideale Initialisierung wurde gestellt, dass die darauf basierende Chemierechnung folgende Messwerte exakt reproduziert

- Die Messungen der Ozonsonde der TRIPLE-Gondel (Abb. 6.15)
- Die Cl_y - und CH_4 -Messwerte des Kryosammlers BONBON (nur Messungen beim Abstieg), ebenfalls auf der TRIPLE-Gondel (Abb. 6.19)
- Die Wassermessungen des Hygrometers FISH (ebenfalls nur Messungen beim Abstieg, wobei einige extreme Spitzen, welche offenbar auf Ausgasungen des Ballons zurückzuführen sind, eliminiert wurden), ebenfalls auf der TRIPLE-Gondel (Abb. 6.16)

- Die NO_y -Messung am 10. Februar 1997 in Kiruna (Experiment CLD-1, Abb. 7.7).

Diese Messwerte werden im Folgenden als Parameterspezies bezeichnet. Zusätzlich zu den an der TRIPLE-Ballonroute endenden Trajektorien wurden zunächst Trajektorien angelegt, deren Endpunkte jeweils einem Messpunkt der NO_y -Messung am 10. Februar 1997 entsprachen. Da, wie im Abschnitt 7.2 festgestellt, die ECMWF-Trajektorien in den vergangenen 10 Tagen vor dem 11. Februar 1997 als vertrauenswürdig angesehen werden können, wurde auf allen Trajektorien nun eine Chemierechnung, beginnend am 1. Februar 1997 12 Uhr GMT, durchgeführt. Als Zeitschritt für diese Rechnung wurde eine Stunde gewählt.

Die Initialisierung dieser ersten Rechnung erfolgte mit Hilfe des Mainzer Modells. Beim Mainzer Modell handelt es sich um ein Box-Modell der Stratosphäre, welches am Max-Planck-Institut für Chemie (Otto-Hahn-Institut) in Mainz, Abteilung Chemie der Atmosphäre, entwickelt wurde [Groß, 1996]. Die Atmosphäre wird in diesem Modell als zonal (entlang der Breitengrade) uniform angenommen, die Modellierung erfolgt zweidimensional (als Funktion der geographischen Breite und der Höhe über der Erdoberfläche). Der jährliche Trend bestimmter Spezies wird berücksichtigt, als Temperaturen werden allerdings mittlere Werte für den jeweiligen Tag des Jahres angenommen, d.h. von den erwähnten langfristigen Trends abgesehen sind die Modellwerte des Mainzer Modells unabhängig vom Jahr, für welches die Berechnung durchgeführt wird. Zur Übertragung der Modellergebnisse aus diesem zweidimensionalen Gitter in das dreidimensionale Gitters des CLaMS-Modells wurde für jeden Trajektorienstartpunkt die äquivalente Breite berechnet ([Lary et al., 1995], siehe Abschnitt 4.4) und die Werte des Mainzer Modells, erzielt auf dieser Breite, dem Startpunkt zugeordnet.

Nun konnte die Differenz zwischen den gemessenen und den durch CLaMS modellierten Mischungsverhältnissen der Parameterspezies gebildet werden. Um diese Differenz mussten jetzt die Initialisierungswerte verändert werden. Im Fall von NO_y wurde, in Übereinstimmung mit den in Abb. 7.7 gezeigten Messungen des Gesamt- NO_y sowie des NO_y -Reservoirs HNO_3 , die Differenz vollständig zu den Initialisierungswerten von HNO_3 hinzugefügt. Im Fall von Cl_y wurde in Übereinstimmung mit den Feststellungen der Abschnitte 3.1 und 6.2.2 angenommen, dass am Startpunkt der Trajektorien das gesamte Cl_y in Form von HCl und ClONO_2 vorlag, wobei das ClONO_2 -Mischungsverhältnis genau 1 ppbv unter dem von HCl lag (dort, wo weniger als 1 ppbv gemessen wurden, wurde entsprechend das gesamte Cl_y als ursprünglich in Form von HCl vorliegend angenommen, was aber nur weit unterhalb der ClO -Struktur der Fall war (Abb. 6.6 auf Seite 65), somit ist diese Annahme unproblematisch hinsichtlich des Ziels der Reproduktion dieser Struktur). Für alle übrigen Spezies wurde die Initialisierung entsprechend des Mainzer Modells beibehalten. Mit dieser veränderten Initialisierung wurde eine neue Chemierechnung gestartet. Dieser Lauf erfüllte bereits die Bedingung, dass die gemessenen und die durch CLaMS modellierten Mischungsverhältnisse der Parameterspezies exakt übereinstimmen. Damit war eine erste brauchbare Initialisierung für die Chemierechnung gefunden.

7.5.2. Einfluss der Denitrifizierung

Allerdings beruht die so ermittelte Initialisierung auf einem NO_y -Profil, gemessen während des CLD-Ballonflugs vom 10. Februar 1997, d.h. einen Tag vor dem TRIPLE-Flug. Am 10. Februar 1997 befand sich über Kiruna gerade der Rand des Polarwirbels (Abb. 2.1 auf Seite 12). Auf den Theta-Niveaus von 400, 475 und 500 K lagen die PV-Werte etwa um 2 PVU unter den Werten, welche nach der Definition von Nash et al. [Nash et al., 1996] als Vortexrand ermittelt wurden [Kondo et al., 1999]. Es besteht somit Grund zur Annahme, dass das am 10. Februar 1997 gemessene NO_y -Profil nicht mit dem entlang der Route des TRIPLE-Ballons vorhandenen Profil identisch ist. Allerdings können die chemischen

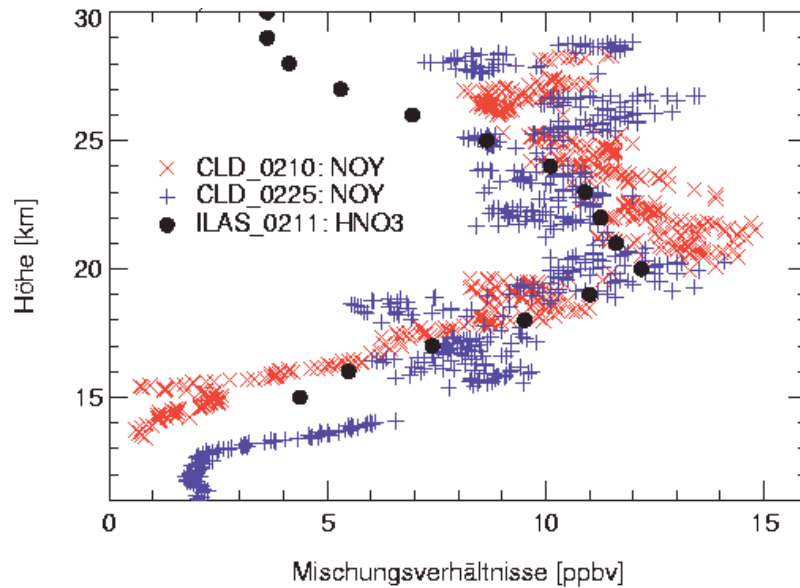


Abb. 7.7: Profile von NO_y , gemessen bei Kiruna/Nordschweden auf den Ballongondeln CLD-1 am 10. Februar 1997 und CLD-2 am 25. Februar 1997 sowie von HNO_3 , gemessen durch das Satellitengerät ILAS am 11. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.1).

Zusammensetzungen der Luft entlang der Ballonrouten vom 10. Februar 1997 und vom 11. Februar 1997 nach den vorliegenden Informationen als weitestgehend identisch angesehen werden. Zum Vergleich herangezogen werden können die durch CLD, ILAS und TRIPLE gemessenen Profile von Ozon (Abb. 6.15 auf Seite 72). Wie bereits im Abschnitt 6.2.4 bemerkt, weisen die hochaufgelösten Ozonprofile der CLD-Messungen sowohl vom 10. Februar (CLD-1) als auch vom 25. Februar 1997 (CLD-2) sowie der TRIPLE-Messung bis ins Detail Ähnlichkeiten auf (Abb. 6.15), was darauf hindeutet, dass hier großräumige Einmischungen beobachtet wurden. Auch die NO_y -Struktur scheint stellenweise im Zusammenhang mit der Ozonstruktur der jeweiligen CLD-Messung zu stehen, wobei die Ähnlichkeiten zwischen beiden Strukturen am 11. Februar 1997 deutlicher sind als am 25. Februar 1997 (Abb. 7.8).

Kondo et al. verglichen die gemessenen NO_y -Mischungsverhältnisse mit den Erwartungswerten aufgrund einer Korrelation mit N_2O , welches aus ebenfalls während des CLD-Flugs genommenen Kryosammler-Proben analysiert wurde. Dabei wurde folgende Korrelationsfunktion verwendet, welche im November 1994 während der ATLAS-3-Mission zwischen 39° und 49°N gewonnen wurde [Sugita et al., 1998]:

$$\text{NO}_y[\text{ppbv}] = 5,71 - 2,28x + 11,8x^2 - 2,14x^3 - 1,04x^4 \quad (54)$$

mit

$$x = \log_{10}(\text{N}_2\text{O}[\text{ppbv}]) \quad (55)$$

Das Verhältnis zwischen NO_y und N_2O wird dabei durch photochemische Prozesse eingestellt. Für N_2O -Konzentrationen größer als 80 ppbv (am 10. Februar 1997 unterhalb von 500 K) steigt die NO_y -Konzentration mit abnehmender N_2O -Konzentration (und damit wachsender Höhe) linear an. Darüber flacht der Anstieg ab, bei 50 ppbv N_2O (etwa 550 K) erreicht die NO_y -Konzentration schließlich ein Maximum, auf größeren Höhen fallen sowohl die NO_y - als auch die N_2O -Konzentration mit wachsender Höhe ab. Innerhalb des Polarwirbels besitzt diese Korrelation nur Gültigkeit, solange keine tiefgreifenden Mischungen stattfinden und solange keine De- bzw. Renitrifizierung (NO_y wird irreversibel

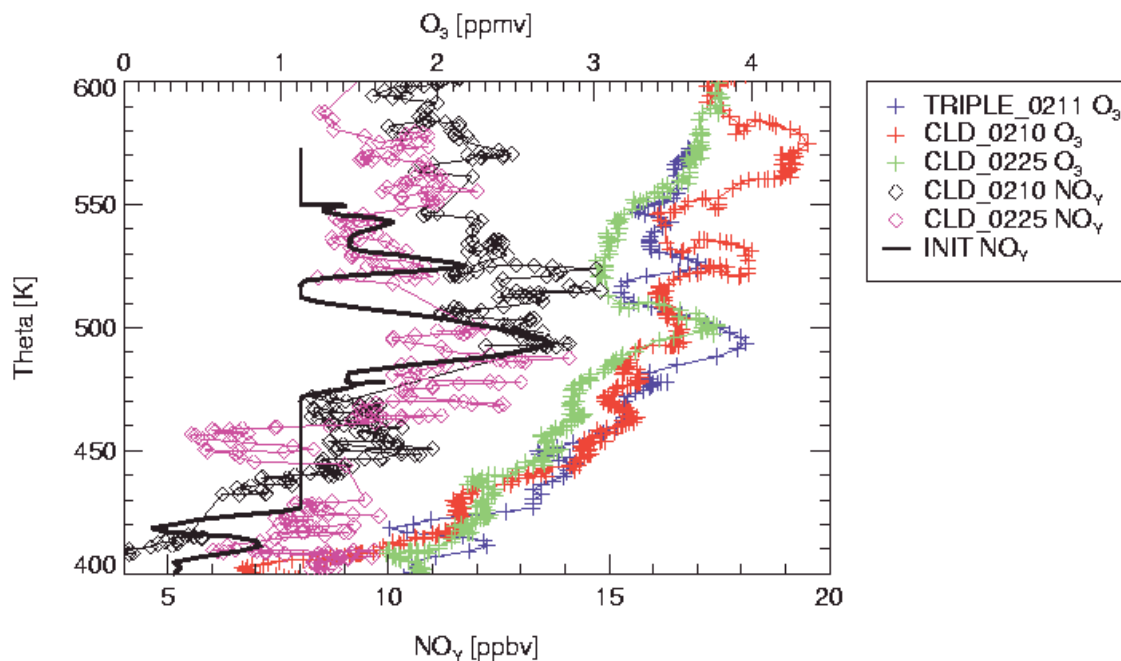


Abb. 7.8: Profile von NO_y und Ozon, gemessen auf den Ballongondeln CLD-1 am 10. Februar 1997 und CLD-2 am 25. Februar 1997, dazu das Ozonprofil der TRIPLE-Gondel vom 11. Februar 1997 (siehe Abschnitt 6.2.4) und das NO_y -Grenzwert-Profil (INIT NO_y), welches anhand des TRIPLE-Ozonprofils erstellt und zur Initialisierung von CLaMS benutzt wurde (siehe Text).

aus einer bestimmten Luftschicht entfernt und sammelt sich in einer darunterliegenden Schicht an) eintritt. Bis in eine Höhe von 510 K wurde diese Korrelation zwischen NO_y und N_2O am 10. Februar 1997 durch die Messwerte gut erfüllt [Kondo et al., 1999]. Oberhalb von 510 K traten niedrigere NO_y -Werte auf als aufgrund der Vortex-Korrelation zwischen NO_y und N_2O erwartet.

Ein anderes Bild ergab sich bei dem Ballonflug CLD-2 am 25. Februar 1997, ebenfalls mit Start in Kiruna, diesmal allerdings innerhalb des Polarwirbels. Hier traf bereits oberhalb von 400 K diese Korrelation nicht mehr zu. Direkt bei 400 K wurden zu hohe, oberhalb von 420 K hingegen zu niedrige NO_y -Werte gemessen. Kondo et al. vermuteten als Ursache für die Abweichungen von der Korrelation bei beiden Flügen dynamische Vorgänge und schlossen Denitrifizierung weitestgehend aus, da die Temperaturen der durchquerten Luftmassen in den vorangegangenen Tagen die kritische Temperatur T_{ICE} für die Bildung von Eiskristallen nie bzw. nicht ausreichend lange unterschritten hatten [Kondo et al., 1999]. Zum damaligen Zeitpunkt wurde davon ausgegangen, dass Denitrifizierung nur stattfinden kann, wenn NO_y in große Eiskristalle eingebunden wird und diese aufgrund ihres Eigengewichts nach unten fallen.

Diese Ansicht muss aber eventuell revidiert werden. Seit dem Winter 1999/2000 ist bekannt, dass auch NAT-Teilchen bis auf Durchmesser von 20 μm und mehr anwachsen können, die sogenannten NAT Rocks, welche ebenfalls schwer genug sind, um schnell auszufallen. Für deren Wachstum genügt das Unterschreiten der kritischen Temperatur T_{NAT} , und diese Bedingung war für die am 25. Februar 1997 durch den Ballon CLD-2 beprobten Luftmassen durchaus erfüllt [Kondo et al., 1999]. Mann et al. führten eine Neuberechnung der Denitrifizierung auf der Basis des NAT-Rock-Mechanismus durch [Mann et al., 2002]. Demnach wies ähnlich wie der Winter 1999/2000 auch der Winter 1996/97 hervorragende Bedingungen zur Ausbildung von NAT Rocks auf (Kältepol-zentrierte Lage des Wirbels und, ab Februar 1997, großflächiges Unterschreiten von T_{NAT}), und entsprechend ergaben die Modelle für den 25. Februar 1997 gemittelt über den Wirbel eine etwa 20-30%ige

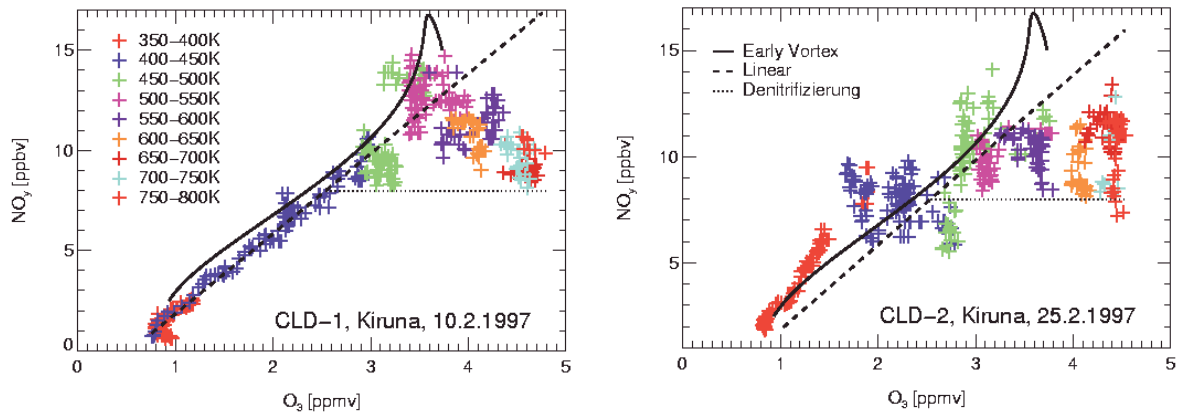


Abb. 7.9 a und b: NO_y als Funktion von Ozon, beide Werte gemessen während der Ballonflüge CLD-1 am 10. Februar 1997 (a) und CLD-2 am 25. Februar 1997 (b). Zusätzlich dargestellt sind die Early-Vortex-Korrelation zwischen NO_y und Ozon (siehe Text), eine lineare Korrelation und ein unteres NO_y -Limit von 8 ppbv für die Annahme von Denitrifizierung.

Denitrifizierung zwischen 420 K und 520 K, bei etwa 370 K hingegen eine etwa 70%ige Renitrifizierung. Am 10. und auch am 11. Februar 1997 hingegen sind im Modell, über den Wirbel gemittelt, nur geringe bis keine Veränderungen in den NO_y -Konzentrationen sichtbar. Auch die Tatsache, dass die Zusammenhänge zwischen Ozon und NO_y am 25. Februar 1997 stärker verwischt erscheinen als am 11. Februar 1997 (Abb. 7.8), deutet auf De- und Renitrifizierung hin. Für das weitere Vorgehen ist die Ursache der Abweichung von der Korrelation jedoch ohne Belang. Zur Vereinfachung sollen im Folgenden Luftmassen, deren NO_y -Konzentration unter dem Erwartungswert liegt, deshalb pauschal als denitrifiziert bezeichnet werden, obwohl der Begriff Denitrifizierung streng nur für eine irreversible Entfernung von NO_y verwendet wird.

Es soll nun ein NO_y -Grenzwert-Profil für den 11. Februar 1997 erstellt werden. Dieses Profil soll so gestaltet sein, dass es die Ausbildung einer CIO-Doppelppeak-Struktur möglichst befördert. In Übereinstimmung mit den Feststellungen des Abschnitts 3.4 sollten sich CIO und NO_y zu diesem Zweck spiegelbildlich zueinander verhalten, da NO_y für die Chlor-Deaktivierung sorgt (der Reaktivierungseffekt sollte unter Zugrundelegung synoptischer Temperaturen keine dominierende Rolle spielen). Gleichzeitig sollen aber realistische NO_y -Werte angenommen werden. Wie in Abb. 6.8 auf Seite 67 gezeigt, verhalten sich Ozon und CIO tatsächlich spiegelbildlich zueinander. Um ein realistisches NO_y -Grenzwert-Profil zu erstellen, muss somit der Zusammenhang zwischen NO_y und Ozon betrachtet werden. Aus der CLD-Messung vom 10. Februar 1997 für Theta-Niveaus unterhalb von 460 K wurde folgende lineare Korrelation zwischen NO_y und Ozon ermittelt (Abb. 7.9 a):

$$\text{NO}_y[\text{ppbv}] = -2,16 + 4,00 \cdot \text{O}_3[\text{ppmv}] \quad (56)$$

In diesem Bereich stimmt sie in guter Näherung überein mit der Early-Vortex-Korrelation zwischen NO_y und Ozon, welche als Kombination aus der Mittlere-Breiten-Korrelation (54) zwischen NO_y und N_2O [Sugita et al., 1998] und der Early-Vortex-Korrelation (Abb. 4.3) zwischen N_2O und O_3 [Tilmes et al., 2003] angenommen wird. Für die darüberliegenden Höhen sollen nun folgende Annahmen getroffen werden:

- Für Luftmassen, welche aus mittleren Breiten in den Wirbel eindringen, gilt die lineare Anpassung (56) als oberer Grenzwert für den Gehalt an NO_y . Die Werte in Abb. 7.9 a, welche deutlich oberhalb dieser Gerade (aber nahe des Peaks der Early-Vortex-Korrelation an dieser Stelle) liegen, können als Intra-Vortex-Werte angesehen werden.

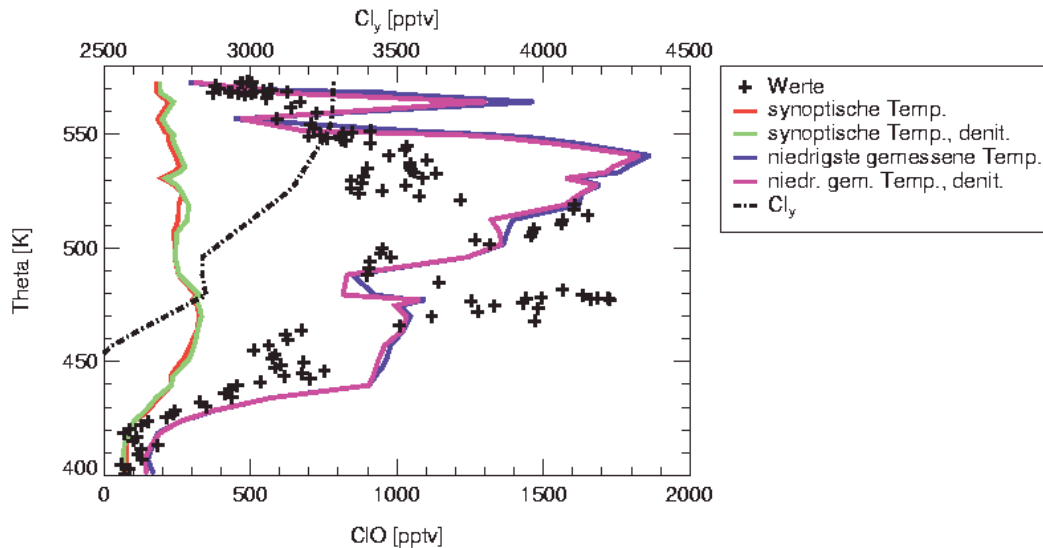


Abb. 7.10: TRIPLE-CIO-Profil vom 11. Februar 1997 sowie die Ergebnisse mehrerer CLaMS-ECMWF-Simulationen. Zusätzlich dargestellt ist das für alle Simulationen zur Initialisierung verwendete Cl_y -Profil (Strich-Punkt-Linie). Die Rechnungen wurden einmal durchgeführt auf Basis der synoptischen Temperaturen und einmal auf Basis der niedrigsten gemessenen Temperaturen (siehe Abschnitt 7.4) sowie in zwei Fällen zusätzlich unter Annahme eines denitrifizierten NO_y -Profils („denit.“, siehe Abschnitt 7.5.2)

- Entsprechend Abb. 6.8 bzw. Abb. 7.8 (Ozonmessung der TRIPLE-Gondel) wurde am 11. Februar 1997 auf dem Theta-Niveau von 490 K ein Ozonpeak festgestellt. Es wird angenommen, dass die Luft an dieser Stelle komplett von außerhalb in den Wirbel eindrang. Damit ergibt sich ein erster Fixpunkt für eine lineare Regression: der Ozonmesswert an dieser Stelle und der zugehörige NO_y -Wert nach Gleichung (56).
- In Luftmassen, welche sich ständig innerhalb des Polarwirbels aufhalten, soll eine vollständige Denitrifizierung stattfinden und der NO_y -Gehalt auf 8 ppbv abfallen. In Abb. 7.9 b treten im Bereich zwischen 437 und 460 K zwar Werte auf, welche deutlich sowohl unterhalb der linearen Anpassung als auch unterhalb von 8 ppbv liegen, dieses Theta-Niveau befindet sich allerdings unterhalb des unteren CIO-Peaks vom 11. Februar 1997.
- Für alle Luftmassen unterhalb des Theta-Niveaus von 550 K, deren Ozon-Mischungsverhältnis am 11. Februar 1997 einen Wert von 3,2 ppmv überstieg, soll angenommen werden, dass sie mit Extra-Vortex-Luft in Berührung kamen (siehe Abb. 6.8). Die Denitrifizierung in diesen Luftmassen ist damit nicht vollständig (d.h. erreicht Endwerte oberhalb von 8 ppbv NO_y). In Luftmassen mit einem Ozongehalt unterhalb von 3,2 ppmv und einem sich daraus laut Anpassung (56) ergebenden NO_y -Gehalt von mehr als 8 ppbv soll hingegen die vollständige Denitrifizierung stattfinden. Damit ergibt sich ein zweiter Fixpunkt für eine lineare Regression (8 ppbv NO_y , 3,2 ppmv Ozon).

Die Berechnung des NO_y -Grenzwert-Profils für den 11. Februar 1997 geschieht damit wie folgt:

1. Die NO_y -Werte werden mittels der linearen Korrelation (56) aus den Ozonwerten der TRIPLE-Gondel berechnet.
2. Wo sich dabei ein NO_y -Wert von mehr als 8 ppbv ergibt (das ist für einen Ozongehalt von mehr als 2,54 ppmv der Fall), wird die NO_y -Konzentration auf diesen Wert gesetzt.
3. Auf allen Theta-Niveaus unterhalb von 550 K, bei welchen das Ozon-Mischungsverhältnis 3,2 ppmv überschreitet, d.h. in den Bereichen, in welchen ein

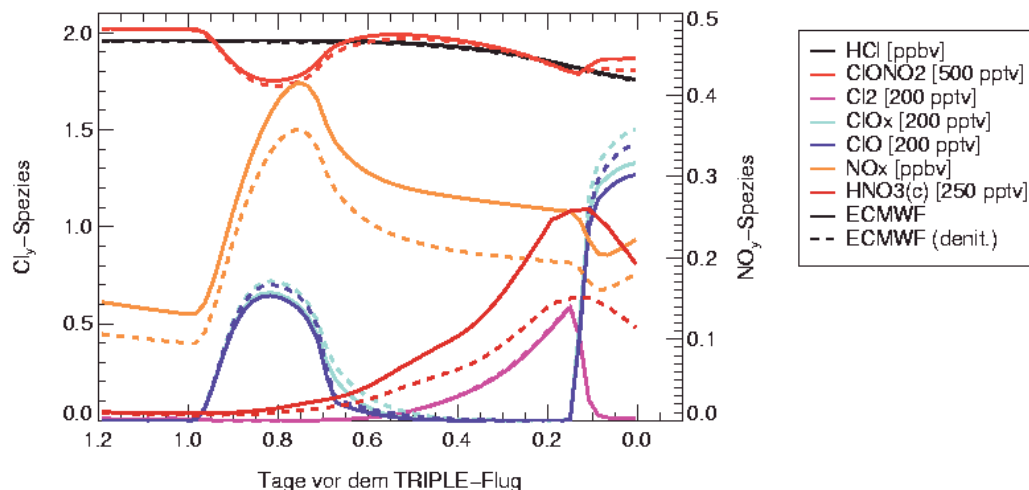


Abb. 7.11: CLaMS-Simulationen des Verlaufs der Konzentrationen von HCl, ClONO₂, Cl₂, ClO_x (=Cl+ClO+2·Cl₂O₂) und ClO (linke y-Achse) sowie NO_x (=NO+NO₂+NO₃) und HNO₃(c), d.h. der in feste oder flüssige Aerosole eingebundenen HNO₃-Moleküle (rechte y-Achse). Gewählt wurde eine Trajektorie auf dem 512-K-Niveau. Die Simulationen basieren auf synoptischen ECMWF-Temperaturen, wobei einmal das am 10. Februar 1997 gemessene NO_y-Profil (durchgezogene Linie, entspricht dem Graphen „Synoptisch“ der Abb. 7.10) und einmal ein denitrifiziertes NO_y-Profil (siehe Abschnitt 7.5.2 Strich-Punkt-Linie, entspricht dem Graphen „Synoptisch, Denit.“ der Abb. 7.10) zugrunde gelegt wurde.

Eindringen angenommen wird, wird nun das NO_y-Mischungsverhältnis anhand einer linearen Regression aus den oben angegebenen Fixpunkten berechnet.

Das Ergebnis ist in Abb. 7.8 („INIT NO_y“) dargestellt. Im vorigen Abschnitt wurde hingegen vorgeschlagen, als ersten Schritt die NO_y-Messung vom 10. Februar 1997 direkt zur Initialisierung zu verwenden („CLD_0210 NO_y“ in Abb. 7.8). Während im Bereich von 490 K, d.h. an der Position des ClO-Minimums, beide Profile identische NO_y-Werte aufweisen, wurde im Profil „INIT NO_y“ vor allem um das 510-K-Theta-Niveau, d.h. an der Position des oberen ClO-Peaks, der NO_y-Gehalt deutlich reduziert. Dieses denitrifizierte Profil sollte damit prinzipiell in der Lage sein, im Modell die Bildung einer ClO-Doppelpeak-Struktur stärker zu befördern als das am 10. Februar 1997 gemessene Profil.

7.6. Ergebnisse der CLaMS-Modellierungen

Abb. 7.10 zeigt die Ergebnisse von CLaMS-Chemierechnungen, welche entlang der Trajektorien vom 1. Februar 1997 12 Uhr GMT bis zum 11. Februar 1997, d.h. über einen Zeitraum von 10 Tagen durchgeführt wurden (die genaue Endzeit entspricht dem Moment der Passage der TRIPLE-Gondel durch die jeweilige Luftmasse). Der Zeitintervall der Chemierechnungen betrug dabei eine Stunde. Zunächst wurden zwei Rechnungen auf Basis der synoptischen ECMWF-Temperaturen durchgeführt, wobei einmal das am 10. Februar 1997 gemessene NO_y-Profil („synoptische Temp.“) und einmal das angenommene denitrifizierte NO_y-Profil („synoptische Temp., denit.“, siehe Abschnitt 7.5.2) zur Initialisierung verwendet wurde. Beide Rechnungen wurden anschließend wiederholt auf einer Trajektorie, deren Temperaturen wie im Abschnitt 7.4 erläutert anhand der niedrigsten gemessenen Temperatur modifiziert wurden.

Bereits die Basis-Modellierung „synoptische Temp.“ enthält die Andeutung eines Doppelpeaks. Dieser Unterschied entspricht aber etwa der Differenz an initialisiertem Cl_y zwischen diesen Bereichen, welches wiederum den gemessenen Werten (Abb. 6.6) entspricht. Unter zusätzlicher Annahme des denitrifizierten NO_y-Profils ergibt sich wie erwartet (Abschnitt 7.5.2) eine Verstärkung der Chloraktivierung vor allem im Bereich des oberen ClO-Peaks, die Veränderung ist jedoch marginal. Die Zugrundelegung synoptischer

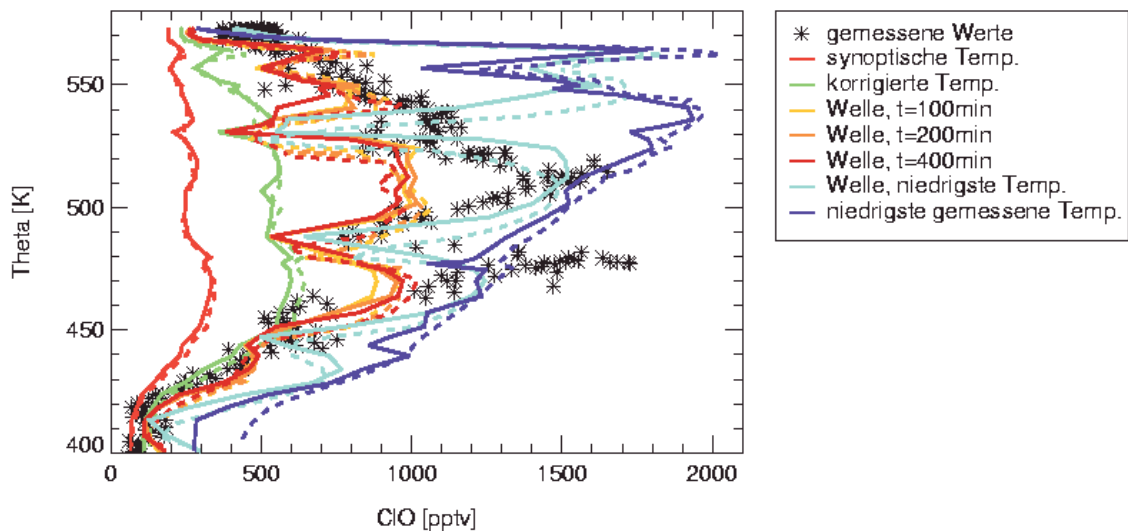


Abb. 7.12: CIO-Profil der TRIPLE-Messung vom 11. Februar 1997 und Ergebnisse von CLaMS-Chemierechnungen, welche auf den Rückwärtstrajektorien gerechnet wurden. Zur Benennung der Plots siehe Abb. 7.5 und Abb. 7.6 sowie den Text. Rechnungen mit einem wellenartigen Temperaturverlauf wurden dabei für drei verschiedene endliche Periodendauern (100, 200 und 400 Minuten) durchgeführt. Durchgezogene Linien bezeichnen die Anpassung des Aufstiegs-, gestrichelte Linien des Abstiegsprofils.

Temperaturen führt somit zu einer deutlichen Unterschätzung der Chloraktivierung. In der Abb. 7.11 ist für diese beide synoptischen ECMWF-Läufe der modellierte Verlauf der Konzentrationen ausgewählter Spezies auf dem 512-K-Niveau in den letzten 30 Stunden vor dem TRIPLE-Aufstieg dargestellt. Nach Sonnenaufgang, etwa 3,5 Stunden vor der Passage des Ballons, kam es zu massiver Bildung der Ozonzerstörer ClO_x ($=\text{Cl}+\text{ClO}+2\text{ClOOCl}$, Abschnitt 3.3), wovon der größte Teil in Form von ClO vorliegt. Gleichzeitig wurden aber mittels Reaktion (19) ein Teil des entstandenen ClO sowie den entsprechenden Anteil an NO_x wieder in das Reservoir ClONO_2 überführt. Die ClONO_2 -Konzentration, welche bis zu Sonnenaufgang stetig abgenommen hatte, wächst deshalb wieder signifikant an und pegelt sich schließlich auf einem konstanten Wert ein. Gleichzeitig ging ein Teil des Wolkenmaterials, der HNO_3 -haltigen Aerosole ($\text{HNO}_3(\text{c})$), verloren. Im Ergebnis stagnierte die Chloraktivierung. Im denitrifizierten Szenario fällt das Wiederaufwachen von ClONO_2 geringer aus, im Ergebnis entsteht eine geringfügig höhere Chloraktivierung.

Eine Verringerung der Temperaturen entlang der Trajektorien resultiert in einer drastischen Erhöhung der Chloraktivierung, welche nun den gemessenen Werten entspricht bzw. diese sogar übersteigt. Da das Temperaturprofil „niedrigste gemessene Temp.“ (Abb. 7.6), dessen Erstellung im Abschnitt 7.4 beschrieben ist, am Knotenpunkt der drei Temperaturmessungen (Aufstieg, Abstieg, Radiosonde) höhere Werte erreicht als an den Bäuchen der Temperaturverläufe, und die Lage von Bäuchen und Knoten etwa identisch zur Lage der gemessenen CIO-Peaks und des dazwischen liegenden Minimums ist (Abb. 6.9 auf Seite 67), befördert dieses Profil wie erwartet das Entstehen einer CIO-Doppelpeak-Struktur (Abb. 7.10). Eine zusätzliche Berücksichtigung des in Abschnitt 7.5.2 eingeführten denitrifizierten NO_y -Profils resultiert auch hier nur in marginalen Veränderungen. Im Gegensatz zu den Läufen auf Basis synoptischer Temperaturen kommt es aber zu einer geringfügigen Verringerung der Chloraktivierung, d.h. der in Abschnitt 3.4 beschriebene Reaktivierungseffekt tritt ein: Wegen der praktischen Erschöpfung des ClONO_2 -Reservoirs führt die Rückbildung von ClONO_2 aus ClO und NO_x nach Reaktion (19) nicht mehr zur Reduzierung der Chloraktivierung, sondern ermöglicht im Gegenteil deren Fortsetzung.

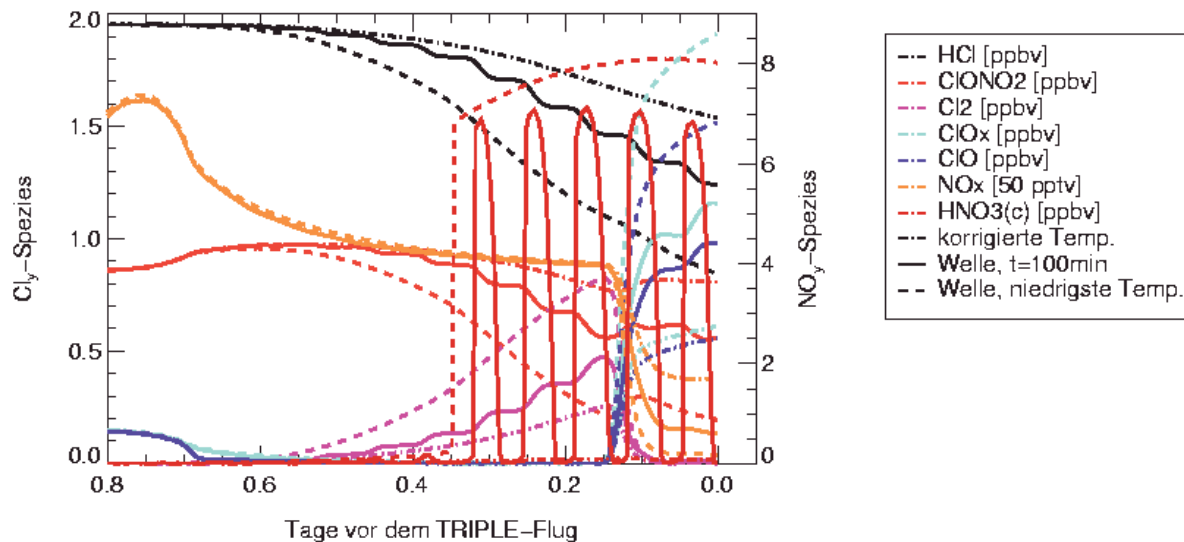


Abb. 7.13: Wie Abb. 7.11 (allerdings mit veränderten Einheiten) für die CLaMS-Chemierechnungen auf Basis der korrigierten synoptischen Temperatur (Strich-Punkt-Linie), bei einer zusätzlich aufgeprägten Welle mit einer Periodendauer von 100 min (durchgezogene Linie) und bei einer Rechnung basierend auf den negativen Amplituden dieser Welle (gestrichelte Linie).

In Abb. 7.12 („korrigierte Temp.“) ist gezeigt, dass bereits die Verringerung der synoptischen Endtemperatur um 1,4 K in einer deutlichen Erhöhung der Chloraktivierung resultiert, wobei das auf diese Weise erzeugte Profil sehr gut mit dem gemessenen Profil unter Eliminierung der ClO-Peaks übereinstimmt. Das Profil „korrigierte Temp.“ wurde, wie Abb. 7.6 zeigt, als idealer Mittelwert für die Anpassung der Temperaturmessungen der TRIPLE-Gondel in Form einer stehenden Welle angenommen.

Im Folgenden wurden Simulationsrechnungen nach dem Wellen-Szenario (siehe Ende des Abschnitts 7.4) durchgeführt. Da als Periodendauern 100, 200 und 400 Minuten gewählt wurden, musste der Zeitschritt der Chemierechnungen von einer Stunde auf 5 Minuten verkürzt werden. Zum Einsparen von Rechenzeit wurden die Chemierechnungen erst am 8. Februar 1997 18:00 UTC gestartet. Dieser Zeitpunkt liegt auf allen Theta-Niveaus vor dem Einsetzen der Temperaturmodifizierung nach Abb. 7.5 zugrunde. Als Initialisierung verwendet wurde das Zwischenergebnis der synoptischen ECMWF-Chemierechnung für diesen Zeitpunkt.

Mit Hilfe dieser einfachen Wellenanpassung erzeugt das CLaMS-Modell eine ClO-Struktur, welche hinsichtlich der Lage der ClO-Peaks und –Einschnitte eine gute Übereinstimmung mit der gemessenen Struktur zeigt (Abb. 7.12). Die Periodendauer der Schwingung spielt dabei offensichtlich eine geringe Rolle. Im Vergleich zur Rechnung mit den korrigierten Temperaturen kommt es bei Aufprägung einer Schwingung etwa zur Verdopplung der Chloraktivierung. Eine nochmalige Erhöhung des Ergebnisses, welche nun auch die höchsten gemessenen ClO-Peaks übersteigt, lässt sich unter Zugrundelegung des Tieftemperatur-Szenarios erzeugen („Welle, niedrigste Temp.“ und „niedrigste gemessene Temp.“).

Abb. 7.13 zeigt wieder den Verlauf ausgewählter Spezies auf dem Theta-Niveau von 512 K. Im Vergleich zu den Rechnungen mit synoptischen Temperaturen (Abb. 7.11) wurde die NAT-Temperatur hier deutlich unterschritten, entsprechend entsteht nun etwa die 100fache Konzentration an HNO₃-haltigen Aerosole (HNO₃(c)). Der Unterschied in der resultierenden Chloraktivierung zwischen dem Wellen-Szenario (durchgezogene Linie) und dem Tieftemperatur-Szenario (gestrichelte Linie) ist auf Prozesse zurückzuführen, welche vor dem Eintreten dieser massiven Wolkenbildung, etwa 8 Stunden vor der Passage des TRIPLE-Ballons, auftraten. Ab etwa 15 Stunden (0,6 Tage) vor der Passage des TRIPLE-Ballons

wurden den Trajektorien auf dem Theta-Niveau von 512 K unterschiedliche Temperaturen aufgeprägt. Während im Wellen-Szenario die Konzentrationen von HCl und ClONO₂ vorerst trotzdem kaum von den entsprechenden Konzentrationen im synoptischen Szenario (Strich-Punkt-Linie) abweichen, kommt es im Fall der Annahme durchgängig tiefere Temperaturen bereits zu einer deutlichen Verringerung der Konzentrationen beider Spezies, wobei die Chloratome bei Abwesenheit des Sonnenlichts überwiegend in Cl₂ eingebunden werden. Nach dem massiven Beginn der Bildung HNO₃-haltiger Wolken (HNO₃(c)) hingegen sind die Zerfallsraten von HCl und ClONO₂ und die Cl₂-Bildungsrate für das Wellen-Szenario und das Tieftemperatur-Szenario etwa identisch, d.h. die Zeitdauer der Aussetzung gegenüber niedrigen Temperaturen spielt nun nur noch eine geringe Rolle. Nach Sonnenaufgang kommt es zur praktisch kompletten Umsetzung von Cl₂ in ClO_x. Da beim Tieftemperatur-Szenario das größte Cl₂-Nachtreservoir aufgebaut wurde, entsteht hier entsprechend die größte ClO-Konzentration. Das Ergebnis des Modelllaufs „Welle, niedrigste Temp.“ kommt unterhalb eines Theta-Niveaus von 530 K den Messwerten am nächsten. Deshalb ist anzunehmen, dass die Temperatur der betrachteten Luftmassen in einem unbestimmten Zeitraum vor dem TRIPLE-Ballonaufstieg und vor dem Unterschreiten der NAT-Temperatur systematisch unter dem synoptischen Wert lag. Dieser Lauf stellt allerdings, wie am Ende des Abschnitts 7.4 bereits festgestellt, eine Extremwert-Abschätzung dar, in Wahrheit muss ein wellenartiger Verlauf vorliegen. Es ist zwar nicht anzunehmen, dass, wie den Wellen-Modellläufen zugrundegelegt, die Luftmassen stets Bewegungen in Form einer perfekten Sinuskurve (konkret der Multiplikation einer Sinusfunktion der Zeit und einer Sinusfunktion der Höhe) ausführten. In guter Näherung folgten sie aber offenbar durchaus diesem Trend, entsprechend stimmt das Ergebnis des Laufs „Welle, niedrigste Temp.“ deutlich besser mit den Messwerten überein als das Ergebnis des Laufs „niedrigste gemessene Temp.“.

Zusammenfassen kann festgestellt werden, dass das beobachtete ClO-Profil, unter Zugrundelegung synoptischer ECMWF-Temperaturen und aller bekannten Tracer-Informationen, mit Hilfe von CLaMS nicht erzeugt werden kann. Dagegen wird ein ähnliches Profil problemlos erhalten, wenn man lediglich einige kleinere Veränderungen an den Temperaturen vornimmt. Daraus kann nun die Schlussfolgerung gezogen werden, dass eine Modifikation der Temperaturen, orientiert an den beobachteten Diskrepanzen zwischen tatsächlicher und synoptischer Temperatur, einerseits notwendig, andererseits völlig ausreichend ist, um das gemessene ClO-Profil auch im Modell zu erzeugen. Es ist nicht notwendig, zusätzlich Ungenauigkeiten der Kenntnis der chemischen Zusammensetzung der Luftmassen oder der im System wirkenden Geschwindigkeitskonstanten anzunehmen. Insofern muss, wenn die ClO-Struktur isoliert betrachtet wird, auch keine Einmischung von Luftmassen aus dem Wirbelrandbereich oder gar von außerhalb des Wirbels angenommen werden. Nicht in dieses Bild passt jedoch die Struktur des Ozons, welche spiegelbildlich zu der von ClO verläuft. Dieses Profil konnte in der kurzen Zeitspanne seit dem erstmaligen Unterschreiten der NAT-Temperatur keinesfalls chemisch erzeugt werden. Die Ozonmessung liefert somit ein Indiz, dass Mischungsvorgänge doch eine Rolle spielen. In den folgenden Kapiteln wird gezeigt, dass beide Befunde allerdings gut miteinander vereinbar sind.

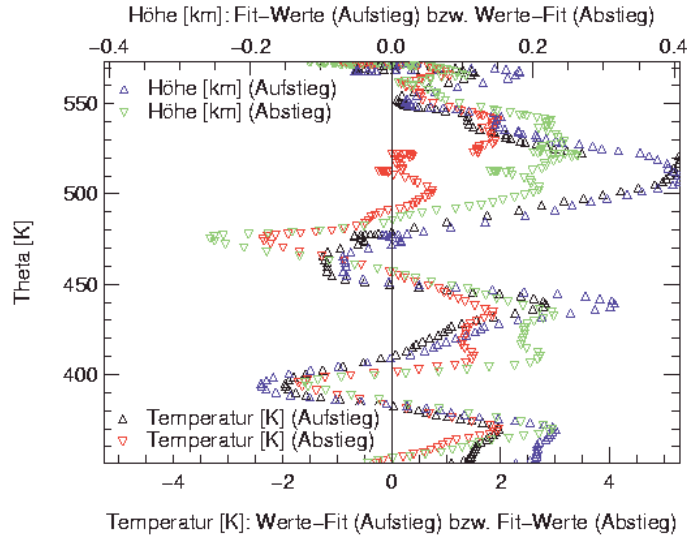


Abb. 8.1: Temperatur, gemessen auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997, sowie die Höhe dieser Gondel über der Erde, getrennt für Auf- und Abstieg und abzüglich einer exponentiellen Anpassung (Fit) an die mittlere Höhe (siehe Abschnitt 9.1). Aufstiegs- und Abstiegs- sowie Temperatur- und Höhenmessungen sind jeweils spiegelbildlich zueinander dargestellt, d.h. im Fall der Abstiegs-Höhen und der Aufstiegs-Temperaturen wurde die Anpassung von den Messwerten abgezogen (Werte – Fit), im Fall der Aufstiegs-Höhen und der Abstiegs-Temperaturen hingegen umgekehrt (Fit – Werte).

8. Atmosphärische Schwingungen am 11. Februar 1997

8.1. Informationen aus den Beobachtungen

Die CLaMS-Simulationen zum Wellen-Szenario, deren Ergebnisse im vorigen Abschnitt dargestellt sind, beruhen auf der Annahme, dass sich die Temperatur T_{total} der Luftpakete wie folgt verhielt

$$T_{\text{total}} = T_0(z_0) + T_a(z_0) \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t) \cos(\mu_z z_0) \quad (57)$$

mit T_0 dem Temperatur-Mittelwert, z_0 der aus der Potentiellen Temperatur berechneten Gleichgewichtshöhe (d.h. der Höhe, auf welcher sich das betreffende Theta-Niveau im Ruhezustand befindet), T_a der Temperaturamplitude, μ dem Wellenzahl-Vektor und ω der Frequenz, welche ein im x-y-z-Koordinatensystem ruhender Beobachter wahrnehmen würde. Die erste Kosinusfunktion lässt sich auch zusammenfassen zu $\cos(\sigma)$ mit σ der intrinsischen Frequenz, welche ein mit dem Luftpaket mitreisender Beobachter wahrnehmen würde. In den Modellrechnungen unterlagen T_0 und T_a zudem einem zeitlichen Trend, welcher in den folgenden Kapiteln nicht betrachtet werden soll.

Gleichung (57) beschreibt eine stehende Welle entlang der senkrecht zur Erdoberfläche ausgerichteten z-Achse. Das durch die TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997 gemessene Temperaturprofil (Abb. 6.9 auf Seite 67) ähnelt einer solchen stehenden Welle. Wie in der Abb. 8.1 gut zu erkennen ist (Aufstiegs- und Abstiegsmessungen sind zueinander spiegelbildlich dargestellt), finden sich Bäuche und Knoten im Auf- und Abstiegsprofil etwa auf der selben Höhe und zudem etwa im selben Abstand voneinander. Prinzipiell kann dieses Ergebnis auch durch Zufall zustande kommen, wenn in Wahrheit eine laufende Welle

$$T_{\text{total}} = T_0(z_0) + T_a(z_0) \cos(\mu_x x + \mu_y y + \mu_z z_0 - \omega t) \quad (58)$$

vorlag. In dem Fall hätten die Temperaturen aber auch am Ort des (in diesem Falle scheinbaren) Knotens zeitlich versetzt die selben Minimal- und Maximalwerte wie in den darüber- und darunterliegenden (ebenfalls scheinbaren) Bäuchen erfahren. Der TRIPLE-

Ballon passierte lediglich das Knotenniveau sowohl beim Auf- als auch beim Abstieg zufällig in dem Moment, als die Temperatur gerade dem Mittelwert entsprach. Die Temperatur kann dann allerdings nicht mehr, wie durch die Modellergebnisse des vorigen Abschnitts nahegelegt, zur Erklärung der CIO-Doppelpeak-Struktur herangezogen werden, die Ähnlichkeiten zwischen dem CIO- und dem Temperaturprofil wären ebenfalls Zufall.

Es ist wichtig, festzuhalten, dass die relativ sichere Charakterisierung als stehende Welle nur auf Basis des Vergleichs von Aufstiegs- und Abstiegs-Temperaturdaten geschehen konnte. Unterstützt wurde die Vermutung zudem durch die Benutzung von CIO als Temperaturtracer, als Maß für die durch die jeweiligen Luftmassen erfahrene minimale Temperatur. Ballon-Radiosonden liefern üblicherweise nur Temperatur- und Winddaten während ihres Aufstiegs, aus einer isolierten Betrachtung der Aufstiegsmessungen hätte jedoch nicht zwischen einer stehenden und einer laufenden Welle unterschieden werden können. Auch prinzipiell ist die Bestimmung von Wellenparametern aus Ballonsondendaten eher schwierig. Z. B. kann die beobachtete Temperaturschwingung auch als Funktion der Zeit (Abb. 10.2 und Abb. 10.3 auf Seite 137ff.) anstelle der Potentiellen Temperatur bzw. Höhe aufgetragen und aus dem zeitlichen Abstand der Peaks eine Frequenz ermittelt werden. Diese Frequenz hängt allerdings (sofern die Annahme einer stehenden Welle entlang der z-Achse korrekt ist) von der Aufstiegsrate des Ballons ab und ist damit nicht intrinsisch. Welche aus den Schwingungskurven ermittelte Größe man als intrinsisch ansehen kann (im konkreten Fall wäre es die vertikale Wellenlänge), muss somit von Fall zu Fall entschieden werden.

Neben dem Ansatz (57) lassen sich aus den Messdaten aber noch weitere Fakten entnehmen, welche durch die Wellentheorie erfüllt werden müssen, um die dynamische Struktur des 11. Februar 1997 korrekt zu beschreiben:

- Alle auftretenden Schwingungen sind rein adiabatisch, d.h. die Potentielle Temperatur Θ (Theta) und damit auch die Gleichgewichtshöhe z_0 sind Systemerhaltungsgrößen. Entsprechend lagen die CIO-Profile der Aufstiegs- und der Abstiegsmessung, aufgetragen als Funktion von Theta, deckungsgleich übereinander (Abb. 6.8 auf Seite 67). Nach den Adiabatenbeziehungen (223-225) müssen Druck und Dichte in Phase mit der Temperatur schwingen.
- Die Phasenverschiebung zwischen der Temperatur (und entsprechend auch dem Druck und der Dichte) und der Vertikalauslenkung (d.h. der Differenz zwischen der tatsächlichen Höhe z und der Gleichgewichtshöhe z_0) beträgt 180° . Diese Tatsache ist ebenfalls in der Abb. 8.1 auf Seite 99 gut zu erkennen (Temperatur- und Höhenprofil sind zueinander spiegelbildlich dargestellt). Insbesondere passt sich der Druck stets unmittelbar an den Druck der Umgebung an. In einer Darstellung des Drucks als Funktion der wahren Höhe ist damit keine wellenartige Störung zu erkennen (Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106).

Eine Aussage über die Phasenlage kann auf der Basis von Ballondaten (sofern die Höhe wie im vorliegenden Fall per GPS (Global Positioning System) und nicht aus dem Druck ermittelt wurde) oder Satellitenmessungen relativ leicht getroffen werden. Die Aufmerksamkeit, welche dieser Größe in Veröffentlichungen von Wellenbeobachtungen gewidmet wird, ist jedoch sehr unterschiedlich. Medvedev und Klaasen legten dar, dass der räumliche Mittelwert des Produkts der Fluktuationen von Temperatur und Vertikalgeschwindigkeit, welcher von der Phasenverschiebung zwischen beiden Größen abhängt, ein Maß für den diabatischen Abwärts-Wärmetransport darstellt [Medvedev & Klaassen, 2003]. Dieser Transport tritt in Verbindung mit dem Brechen oder Sättigen von Schwerewellen auf und führt zur Abkühlung einer Atmosphärenschicht und zur Erwärmung der darunterliegenden Schicht. Im Fall des 11. Februar 1997 spielen, wie

bereits bemerkt, diabatische Prozesse keine Rolle, die Bedeutung der Phasenverschiebung im vorliegenden Fall wird im Abschnitt 9.3.7 erläutert.

- Es liegt eine geschichtete Struktur der Atmosphäre vor, d.h. der TRIPLE-Ballon durchquerte während des Aufstiegs Luftschichten mit verschiedenen chemischen und dynamischen Charakteristiken. Wichtigstes Indiz dafür ist das Ozonprofil, welches sich sowohl zum ClO- als auch zum Temperaturprofil spiegelbildlich verhält, d.h. an den Positionen der Temperaturknoten und ClO-Minima liegen signifikant erhöhte Ozonwerte vor (Abb. 6.8 auf Seite 67). Einen weiteren Hinweis bilden die Messungen der Geschwindigkeit des Ballons v_x und v_y . v_x bezeichnet dabei die Änderung der geographischen Länge und v_y die Änderung der geographischen Breite als Funktion der Zeit, jeweils umgerechnet auf die Einheit m/s. In Abb. 6.12 und Abb. 6.13 auf Seite 69 sind die gemessenen Profile von v_x und v_y , bestimmt aus den TRIPLE-Flugdaten, sowie die entsprechenden Daten verschiedener im Umfeld gestarteter Radiosonden dargestellt. Auffallend ist die gewellte Struktur besonders des v_y -Profils und die örtliche Übereinstimmung der Peaks, d. h. es ist kein Durchschwingen zu erkennen. Noch deutlicher kann dieser Sachverhalt anhand von Abb. 8.2, Abb. 8.3 und Abb. 8.4 gezeigt werden. Die Peaks der Temperaturstruktur sind bei Auf- und Abstieg etwa um 180° gegeneinander phasenverschoben, die Geschwindigkeitspeaks hingegen phasengleich. Auffallend ist zudem dass im Fall der Geschwindigkeit, im Gegensatz zu ClO und Ozon, die bessere Übereinstimmung der Auf- und Abstiegsprofile bei einer Darstellung als Funktion der Höhe anstatt als Funktion von Theta erzielt wird. Ein gewisser Einfluss der Trägheit des TRIPLE-Ballons, welcher auf eine Veränderung der Windgeschwindigkeit, z. B. beim Auf- oder Abstieg in ein anderes Höhenniveau nur mit Verzögerung reagiert, ist zwar nicht auszuschließen, trotzdem deutet der Befund darauf hin, dass die Vertikalbewegung der Luftmassen langsam genug erfolgte und somit die angehobenen oder abgesenkten Luftschichten ihre Eigengeschwindigkeit jeweils an die Umgebungsgeschwindigkeit anpassen konnten.

Die Behandlung der am 11. Februar 1997 beobachteten dynamischen und chemischen Struktur kann damit in zwei Teilprobleme zerlegt werden. Primär bildete sich eine regelmäßige vertikale Schichtung, welche anschließend in vertikale Schwingungen geriet. Diese Vertikalbewegung und die damit verbundene Temperaturfluktuation, welche wahrscheinlich für die Ausbildung der ClO-Doppelpeak-Struktur hauptverantwortlich ist, ist damit ein sekundärer Prozess. Auch mit diesem Schwingvorgang sind, wie aus dem Gleichungssystem (101-104) im Abschnitt 9.2.5 hervorgeht, Fluktuationen der Windgeschwindigkeiten in der x- und y-Richtung verbunden, welche jedoch offenbar nicht identisch mit den Peaks der gemessenen v_x - und v_y -Profile, sondern von geringerer Größenordnung sind. Auch diese Tatsache konnte nur durch einen Vergleich von Aufstiegs- und Abstiegsmessung, wie er für Ballon-Radiosonden wegen der fehlenden Abstiegsmessung nicht möglich ist, festgestellt werden. Auch Joseph et al. wiesen auf die Gefahr der Verwechslung von wellenartigen, aber nicht schwingenden Strukturen mit tatsächlichen Schwerewellen hin (Joseph et al., 2003, siehe auch Abschnitt 9.4.2). Die Betrachtungen des Kapitels 9 widmen sich überwiegend dem sekundären Schwingvorgang, im Abschnitt 9.4 wird jedoch auch auf mögliche Ursachen für die Ausbildung der geschichteten Struktur eingegangen.

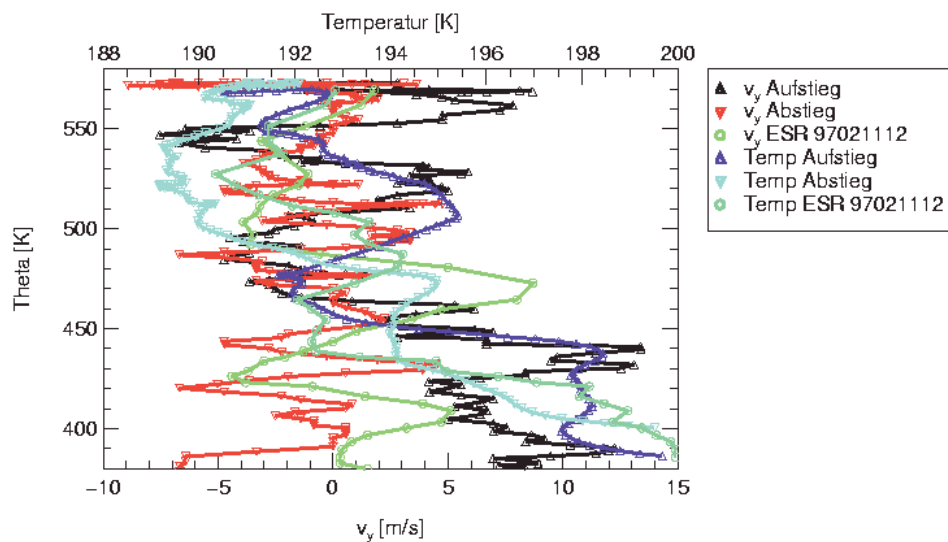


Abb. 8.2: Temperatur und v_y (Windgeschwindigkeit in Richtung Norden), gemessen auf der TRIPLE-Gondel sowie durch eine ebenfalls in Esrange gestartete Ballon-Radiosonde am 11. Februar 1997.

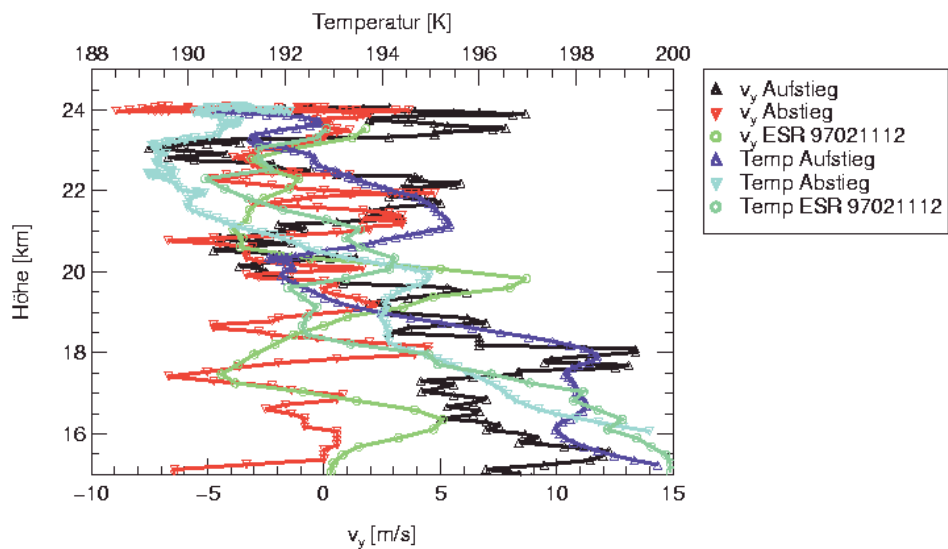


Abb. 8.3: Wie Abb. 8.2, Darstellung als Funktion der Höhe.

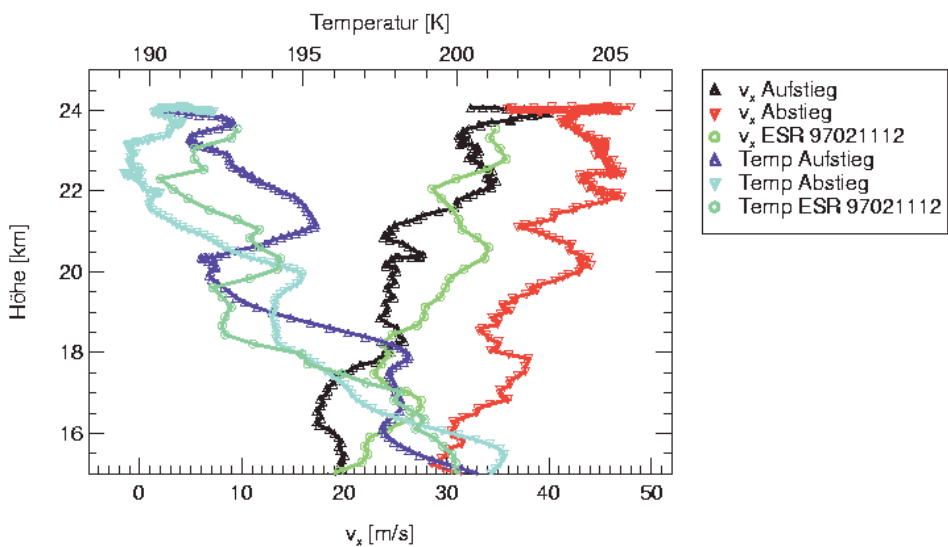


Abb. 8.4: Wie Abb. 8.3, Darstellung von Temperatur und v_x (Windgeschwindigkeit in Richtung Osten).

8.2. Vorgehensweise bei der theoretischen Betrachtung

Adiabatische Vorgänge in der Atmosphäre werden durch ein System der folgenden Gleichungen beschrieben, welche in den angegebenen Abschnitten behandelt werden:

1. Die Bewegungsgleichung, welche das Kräftegleichgewicht beschreibt (Abschnitt 9.2.1)
2. Die Kontinuitätsgleichung, welche den Erhalt der Masse beschreibt (Abschnitt 9.2.2)
3. Die Adiabatenbeziehungen, welche den Zusammenhang zwischen den Zustandsgrößen Druck, Temperatur und Dichte beschreiben (Abschnitt 9.2.4)

Zusätzlich benötigt werden Annahmen über die Höhenabhängigkeit der ungestörten, nicht durch Wellenereignisse beeinflussten, Zustandsgrößen und über das Wellenprofil. Zum Erzielen einer analytischen Lösung müssen zudem Vereinfachungen vorgenommen werden. Die Vorgehensweise der verschiedenen Autoren unterscheidet sich dabei voneinander. Andrews, Holton und Leovy wählten die Beschreibung auf der Basis von Druckhöhen [Andrews et al., 1987], als Schwingungsvariable wird in den Gleichungen (4.6.19 in [Andrews et al., 1987]), neben den Geschwindigkeiten, entsprechend nicht der Druck, sondern das sich dem Betrachter etwas schwerer erschließende Geopotential (definiert als die Arbeit, welche notwendig ist, ein Luftpaket vom Erdboden auf seine momentane Höhe zu bringen) verwendet. Auf einen weiteren wichtigen Unterschied in der Vorgehensweise zwischen Andrews et al. und dieser Arbeit wird im Abschnitt 9.2.2 hingewiesen. Diese Arbeit orientiert sich an [Pichler, 1986] (unter Verzicht auf durch Pichler vorgenommene Koordinatentransformationen) und folgt diesen Prinzipien:

- Es wird näherungsweise eine isotherme Atmosphäre angenommen. In diesem Fall ergeben sich mehrere Vereinfachungen (Abschnitt 9.1 und Anhang 12.3).
- Zur Beschreibung der Schwingung werden ausschließlich die Variablen Druck, Temperatur, Dichte und Windgeschwindigkeit verwendet. Diese werden in Mittelwerte und Störungen zerlegt. Die Störungen werden durch Sinuswellen in Abhängigkeit von der Zeit t sowie der Ortskoordinaten x , y und z_0 beschrieben. Bei z_0 handelt es sich um die Gleichgewichtshöhe, auf welcher sich das Luftpaket befinden würde, wenn keine Störungen vorliegen (Abschnitt 9.1). In [Pichler, 1986] oder auch der im Abschnitt 9.3.5 zitierten Arbeit [Walterscheid & Hecht, 2003] hingegen wird eine Sinuswelle als Funktion von t , x , y und der tatsächlichen Höhe z angenommen. Bei dieser Definition der Störungsterme liegt jedoch keine Druckstörung mehr vor, wenn sich der Druck eines vertikal ausgelenkten Luftpakets stets unmittelbar an seine Umgebung anpasst.
- Es wird eine rein lineare Wellentheorie betrieben (Abschnitt 9.1).
- Es wird, entsprechend der Beobachtung vom 11. Februar 1997, ein spezieller Ansatz zur Behandlung stehender Wellen verwendet, parallel dazu werden jedoch auch laufende Wellen betrachtet (Abschnitt 9.3.1).
- Wie üblich wird die Abhängigkeit der Störungen von Ort und Zeit als sinusförmig angenommen (Abschnitt 9.3.1) und in die obenerwähnten Gleichungen eingesetzt. Diese Herangehensweise kann jedoch den experimentellen Befund (trotz des Auftretens vertikaler Schwingungen bleibt der Druck auf einem bestimmten Höhenniveau stets konstant) nicht erklären (Abschnitt 9.3.5). Deshalb wird sowohl in der Kontinuitätsgleichung als auch in der vertikalen Bewegungsgleichung eine Korrekturgröße (Abschnitt 9.2.3) eingeführt. Diese Korrektur stellt ein entscheidendes Ergebnis dieser Arbeit dar und ist essentiell für das Verständnis der Kopplung zwischen Wellen- und Mischungsvorgängen insbesondere am und über den Rand des Polarwirbels.

9. Adiabatische Schwingungen der Atmosphäre

9.1. Mittelwerte und Störungen

Zur Beschreibung adiabatischer Schwingungen der Atmosphäre wird angenommen, dass die Zustandsgrößen Temperatur, Dichte und Druck nur geringfügig um einen Mittelwert schwanken. Damit bietet es sich an, diese Größen in Mittelwerte und Störungen zu zerlegen, wobei allerdings mehrere Herangehensweisen möglich sind und auch in der Literatur auftauchen. Störungen sind im Allgemeinen mit Vertikalauslenkungen von Luftpaketen verbunden, d.h. ein Luftpaket, welches sich auf der Höhe z aufhält, würde sich bei Abwesenheit von Störungen nicht hier, sondern auf der Gleichgewichtshöhe z_0 befinden. z_0 kann direkt aus der Potentiellen Temperatur mittels Beziehung (68) bestimmt werden, d.h. ein bestimmtes z_0 -Niveau ist identisch mit einem bestimmten Theta-Niveau. In Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106 wird gezeigt, dass sich der Druck bei den am 11. Februar 1997 beobachteten Vertikalbewegungen stets unmittelbar an seine Umgebung anpasste. Wenn Mittelwerte und Störungsterme als Funktion der Höhe, auf welcher sich das Luftpaket momentan befindet, definiert werden, wäre die Störung für den Druck somit stets gleich Null. In diesem Fall können somit neben den Geschwindigkeiten und Vertikalauslenkungen entweder ausschließlich Störungen der Dichte und der Temperatur betrachtet werden, oder es muss zur Definition von Mittelwerten und Störungen auf Basis der Gleichgewichtshöhe z_0 übergegangen werden. Diese Variante wird (mit Ausnahme des Abschnitts 9.4.3) in dieser Arbeit verwendet. Man definiert

$$P_{\text{total}} = P_0(z_0) + P(x, y, z_0, t) \quad (59)$$

$$\rho_{\text{total}} = \rho_0(z_0) + \rho(x, y, z_0, t) \quad (60)$$

$$T_{\text{total}} = T_0(z_0) + T(x, y, z_0, t) \quad (61)$$

$$\vec{v}_{\text{total}} = \vec{v}_0(z_0) + \vec{v}(x, y, z_0, t) \quad (62)$$

Bei den Werten P_0 , ρ_0 , T_0 und v_0 handelt es sich um die Mittelwerte der Zustandsgrößen Druck, Dichte, Temperatur und Geschwindigkeit auf der Gleichgewichtshöhe z_0 , bei P , ρ , T und v entsprechend um die Störungen. Gerechnet werden soll auf einem x-y- z_0 -Koordinatensystem, d.h. die x- und y-Achsen verlaufen entlang eines festen z_0 - bzw. Theta-Niveaus. Es gilt somit

$$z_0 = z(x, y, z_0, t) - s(x, y, z_0, t) \quad (63)$$

mit s der Vertikalauslenkung. Die partielle Ableitung nach z kann durch die partielle Ableitung nach z_0 ersetzt werden.

$$\frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial(z-s)}{\partial z} \frac{\partial}{\partial z_0} = \left(1 - \frac{\partial s}{\partial z}\right) \frac{\partial}{\partial z_0} = \left(1 - \left(1 - \frac{\partial s}{\partial z}\right) \frac{\partial s}{\partial z_0}\right) \frac{\partial}{\partial z_0} \approx \left(1 - \frac{\partial s}{\partial z_0}\right) \frac{\partial}{\partial z_0} \quad (64)$$

Daraus folgt

$$\frac{\partial P_{\text{total}}}{\partial z} = \left(1 - \frac{\partial s}{\partial z_0}\right) \frac{\partial P_{\text{total}}}{\partial z_0} = \left(1 - \frac{\partial s}{\partial z_0}\right) \left(\frac{\partial P_0}{\partial z_0} + \frac{\partial P}{\partial z_0}\right) \approx \left(1 - \frac{\partial s}{\partial z_0}\right) \frac{\partial P_0}{\partial z_0} + \frac{\partial P}{\partial z_0} \quad (65)$$

In den letzten beiden Gleichungen wurden dabei alle Störungsterme zweiter und höherer Ordnung, d.h. Produkte der Störungsterme P , ρ , T , v und s untereinander, eliminiert. Sofern die Störungen klein im Vergleich zu den Mittelwerten sind, ist diese Praxis zulässig und wird

deshalb im Folgenden beibehalten, d.h. es wird ausschließlich eine lineare Wellentheorie betrieben.

Für die Mittelwerte soll gelten

$$\frac{1}{P_0} \frac{\partial P_0}{\partial z_0} = -\frac{\kappa g}{c^2} \quad (66)$$

$$\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \rho_0}{\partial z_0} = -\delta \quad (67)$$

$$\frac{1}{\Theta} \frac{\partial \Theta}{\partial z_0} = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \rho_0}{\partial z_0} + \frac{1}{\kappa P_0} \frac{\partial P_0}{\partial z_0} = \delta - \frac{g}{c^2} = \frac{N^2}{g} \quad (68)$$

Bei κ und g handelt es sich um zwei Konstanten, den Adiabatenkoeffizient (1,4 für trockene Luft) und die Schwerebeschleunigung ($9,81 \text{ m/s}^2$). Die Parameter δ , c (Schallgeschwindigkeit) und N (Brunt-Väisälä-Frequenz) werden an dieser Stelle ad hoc eingeführt, die physikalische Bedeutung der beiden letzten Parameter wird im Anhang (Abschnitte 12.4 und 12.5) erläutert. Gleichung (68) lässt sich aus der Definition (1) der Potentiellen Temperatur Θ (Theta) sowie der idealen Gasgleichung (222) leicht herleiten. Da die Potentielle Temperatur bei trockenadiabatischen Vorgängen (welche hier ausschließlich behandelt werden) erhalten bleibt und somit keine Störungsterme auftreten, wurde Θ nicht mit dem Index 0 versehen. In der realen Atmosphäre sind die Parameter δ , c und N von der Temperatur und damit von der Höhe über der Erdoberfläche abhängig. In einer isothermen Atmosphäre hingegen muss zwingend ein exponentieller Abfall von Druck und Dichte mit wachsender Höhe vorliegen. Wie im Anhang 12.3 erläutert wird, folgt diese Tatsache im Fall des Drucks aus dem Druckgleichgewicht der statischen Atmosphäre (75), im Fall der Dichte aus der Boltzmann-Verteilung von Zuständen unterschiedlicher potentieller Energie. Die Exponenten von Druck und Dichte sind dabei identisch. Im Fall einer isothermen Atmosphäre muss somit gelten

$$P_0 = P_s e^{-\frac{\kappa g}{c^2} z_0} = P_s e^{-\delta z_0} \quad (69)$$

$$T_0 = T_s \quad (70)$$

$$\rho_0 = \rho_s e^{-\delta z_0} \quad (71)$$

$$\Theta = \Theta_s e^{\frac{N^2}{g} z_0} = \Theta_s e^{\left(\delta - \frac{g}{c^2}\right) z_0} = \Theta_s e^{\delta \left(1 - \frac{1}{\kappa}\right) z_0} = \Theta_s e^{\frac{g}{c^2} (\kappa - 1) z_0} \quad (72)$$

In Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106 sind die Temperatur, der Druck und die Dichte in Abhängigkeit von der Höhe gezeigt. Im Höhenbereich zwischen 10 und 25 km beträgt die Differenz zwischen der maximalen und der minimalen gemessenen Temperatur lediglich 17 K und damit weniger als 9 Prozent der mittleren Temperaturen dieses Bereichs, während der Druck um etwa eine Größenordnung abfällt. Die Abhängigkeit des Drucks von der Höhe ist in sehr guter Näherung exponentiell, der Exponent entspricht fast dem Exponent der Dichte. Damit kann die Luft in diesem Bereich in erster Näherung als isotherm angenommen werden und es können höhenunabhängige Parameter δ , c und N festgelegt werden.

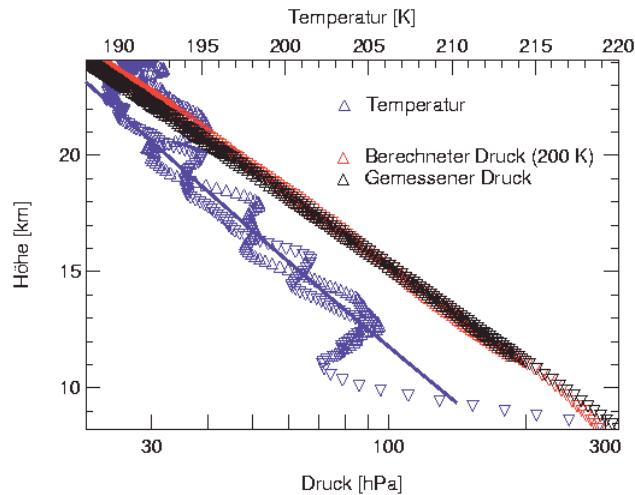


Abb. 9.1: Abhängigkeit der Temperatur, des gemessenen Drucks und der Dichte von der Höhe nach den Messdaten der TRIPLE-Gondel vom 11. Februar 1997. Die Dichte wurde dabei nach der idealen Gasgleichung (222) mit dem konstanten Faktor $R/M \cdot 200 \text{ K}$ multipliziert, d.h. dargestellt ist der Druck, welcher bei dieser Dichte und einer konstanten Temperatur von 200 K herrschen würde (berechneter Druck). Nach oben weisende Dreiecke bezeichnen die Messwerte des Ballonaufstiegs, nach unten weisende Dreiecke die Werte des Abstiegs. Für die Temperatur wurde zusätzlich eine exponentielle Anpassung an die Höhe dargestellt.

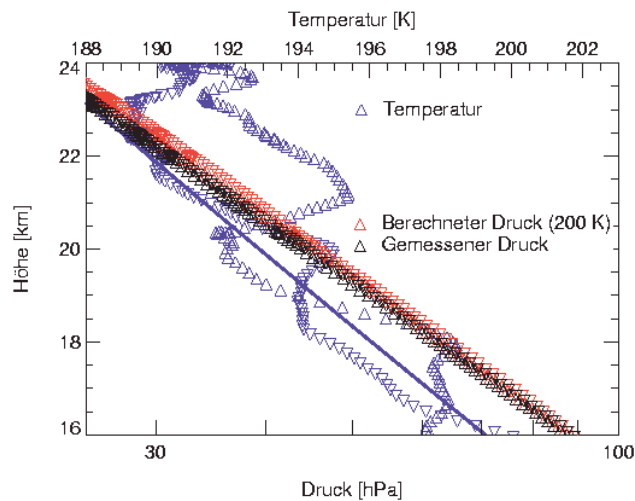


Abb. 9.2: Ausschnitt aus Abb. 9.1 für den Bereich zwischen 16 und 24 km Höhe.

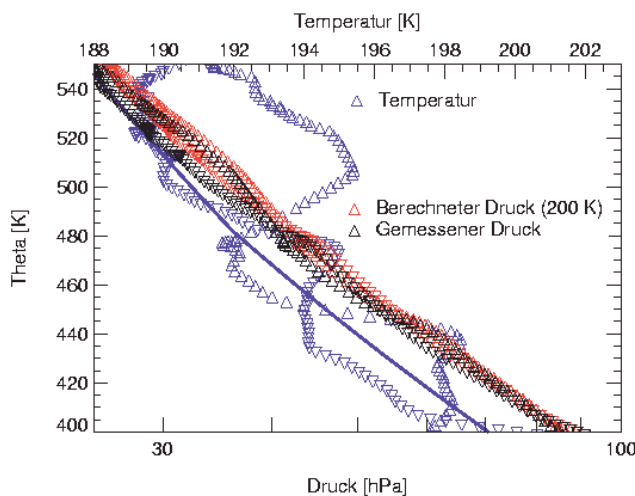


Abb. 9.3: Ausschnitt aus Abb. 9.1 für den Bereich zwischen 400 und 550 K Potentieller Temperatur (Theta).

Offen bleibt die Frage nach dem Mittelwert v_0 der Geschwindigkeit. Nach Abb. 8.3 und Abb. 8.4 bietet sich eine lineare Anpassung der Geschwindigkeit an die Höhe an. Allerdings wurde im Abschnitt 8.1 bereits festgestellt, dass die sich auf diese Weise ergebenden Geschwindigkeitsstörungen zwar ein Wellenprofil zeigen, dieses aber nicht mit den Fluktuationen der Temperatur (und entsprechend auch des Drucks und der Dichte) korrespondiert, mit anderen Worten, auch dieses Wellenprofil ist Teil des Mittelwerts v_0 . Das Profil der Störung v kann damit nicht aus den Messwerten bestimmt und entsprechend auch keine Hodographenanalyse zur Bestimmung der Ausbreitungsrichtung der Welle (siehe Gleichung (148) im Abschnitt 9.3.4) durchgeführt werden. Es stellt sich zudem die Frage, ob v_0 überhaupt wie in Gleichung (62) eine Funktion der Gleichgewichtshöhe z_0 oder aber eher eine Funktion der tatsächlichen Höhe z darstellt, d.h. ein vertikal ausgelenktes Luftpaket passt seine Geschwindigkeit unmittelbar an die Umgebung an und erfährt zusätzlich Störungen. Im Rahmen der linearen Störungstheorie spielt diese Frage allerdings keine Rolle.

In erster Näherung soll angenommen werden, dass der Grundstrom v_0 ausschließlich eine Komponente in der x-y-Ebene (parallel zur Erdoberfläche) besitzt. Seine Richtung soll sich weder zeitlich noch örtlich ändern. Sein Betrag soll ausschließlich von z_0 abhängen. Das Koordinatensystem wird dann so ausgerichtet, dass der Grundstrom in x-Richtung verläuft. Die genaue Ausrichtung des Koordinatensystems (d.h. die Himmelsrichtungen der x- und y-Achse) spielt nur dann eine Rolle, wenn die Corioliskraft nicht vernachlässigt werden kann.

9.2. Gleichungen

9.2.1. Die Bewegungsgleichung im rotierenden Koordinatensystem

Die Bewegungsgleichung im rotierenden Koordinatensystem lautet

$$\rho_{\text{total}} \frac{d\vec{v}}{dt} = -\nabla P_{\text{total}} - \rho_{\text{total}} \vec{g} - 2\rho_{\text{total}} \vec{\Omega} \times \vec{v}_{\text{total}} \quad (73)$$

mit dem Nabla-Operator

$$\nabla = \frac{\partial}{\partial x} \hat{i} + \frac{\partial}{\partial y} \hat{j} + \frac{\partial}{\partial z} \hat{k} \quad (74)$$

Die Terme auf der rechten Seite beschreiben von links nach rechts den Einfluss des Druckgradienten, der Schwerkraft (der Vektor $\vec{g}$ besitzt nur eine Komponente in vertikaler Richtung) und der Corioliskraft. Bei Eliminierung aller Störungsterme und der Geschwindigkeit reduziert die Gleichung sich auf das Druckgleichgewicht der statischen Atmosphäre, in welcher tatsächliche Höhe z und Gleichgewichtshöhe z_0 identisch sind.

$$\frac{\partial}{\partial z_0} P_0 = -g\rho_0 \quad (75)$$

Nach Zerlegung der Zustandsgrößen in Mittelwerte und Störungen (59-62) und unter Vernachlässigung von Störungstermen zweiter Ordnung kann die Bewegungsgleichung zu

$$(\rho_0 + \rho) \left(\frac{d\vec{v}_0}{dt} + \vec{g} + 2\vec{\Omega} \times \vec{v}_0 \right) + \rho_0 \left(\frac{d\vec{v}}{dt} + 2\vec{\Omega} \times \vec{v} \right) = -\nabla(P_0 + P) \quad (76)$$

umgeschrieben werden. Im Folgenden soll, wie bereits im Abschnitt 9.1 erwähnt, die Konvention getroffen werden, dass die x- und y-Achsen (und entsprechend auch die Geschwindigkeitskomponenten v_x und v_y) nicht exakt parallel zur Erdoberfläche, sondern als entlang eines festen z_0 - bzw. Theta-Niveaus verlaufend definiert werden. Im anderen Fall

müsste eine zusätzliche x- und y-Abhängigkeit von P_0 , ρ_0 und v_0 berücksichtigt werden, welche laut der Ansätze (59-62) Funktionen von z_0 und nicht von z darstellen. Die z-Richtung des Koordinatensystems müsste nun aber auch senkrecht zu den Theta-Niveaus ausgerichtet werden und die Schwerebeschleunigung besäße Komponenten in allen Raumrichtungen. Es soll jedoch angenommen werden, dass die Neigung der Theta-Niveaus gegen die Horizontale gering ist und die z-Achse somit praktisch als senkrecht zur Erdoberfläche verlaufend betrachtet werden kann.

Auch die totale Zeitableitung kann mit Hilfe der Beziehung

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + (\vec{v}_{\text{total}} \nabla) = \frac{\partial}{\partial t} + (v_0 + \vec{v}) \nabla = \frac{\partial}{\partial t} + v_0 \frac{\partial}{\partial x} + \vec{v} \nabla = \frac{d_0}{dt} + \vec{v} \nabla \quad (77)$$

ersetzt werden, womit der Operator

$$\frac{d_0}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + v_0 \frac{\partial}{\partial x} \quad (78)$$

definiert ist. Angewendet auf eine Störungsgröße würde der Term $v \nabla$ einen Störungsterm zweiter Ordnung liefern. Im Rahmen der linearen Störungstheorie ist der Operator (78), angewandt auf eine Störungsgröße, deshalb mit der totalen Zeitableitung dieser Größe identisch. Angewandt auf eine mittlere Größe, welche ausschließlich von z_0 abhängt, liefert der Operator d_0/dt hingegen den Wert Null, während die totale Zeitableitung d/dt einer mittleren Größe dem Operator $v_z \partial / \partial z_0$ entspricht.

Dieser Operator kann nun auf die Gleichung (76) angewendet werden. Zudem kann mit Hilfe der Beziehungen (64) und (65) die Ersetzung der partiellen Ableitung nach z durch die partielle Ableitung nach der Gleichgewichtshöhe z_0 erfolgen. Anschließend können alle Terme entfernt werden, welche ausschließlich Mittelwerte enthalten (diese bilden die Mittelwertgleichung, welche dann gilt, wenn keine Störungen auftreten). Vernachlässigt werden kann zudem der Term $2\rho \vec{\Omega} \times v_0$. Unter Vernachlässigung von Störungstermen zweiter Ordnung ergibt sich

$$\rho_0 \left(\frac{d_0 \vec{v}}{dt} + \left(v_z \frac{\partial}{\partial z_0} \right) v_0 + 2 \vec{\Omega} \times \vec{v} \right) + \rho g = -\nabla_0 P + \frac{\partial s}{\partial z_0} \frac{\partial P_0}{\partial z_0} \quad (79)$$

Der Nabla-Operator ∇_0 ist dabei als

$$\nabla_0 = \frac{\partial}{\partial x} \hat{i} + \frac{\partial}{\partial y} \hat{j} + \frac{\partial}{\partial z_0} \hat{k} \quad (80)$$

definiert. Nach Zerlegung der Bewegungsgleichung in die x-, y- und z-Komponente erhält man (unter Anwendung von Beziehung (75) auf die z-Komponente)

$$\rho_0 \frac{d_0 v_x}{dt} + \rho_0 \left(v_z \frac{\partial}{\partial z_0} \right) v_0 + 2 \rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_x = -\frac{\partial P}{\partial x} \quad (81)$$

$$\rho_0 \frac{d_0 v_y}{dt} + 2 \rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_y = -\frac{\partial P}{\partial y} \quad (82)$$

$$\rho_0 \frac{d_0 v_z}{dt} + 2 \rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_z = -\frac{\partial P}{\partial z_0} - g \rho_0 \frac{\partial s}{\partial z_0} - \rho g \quad (83)$$

Wen man Mittelwert und Störung der Zustandsgrößen als Funktion von z anstelle von z_0 definiert hätte, würde sich auf der rechten Seite der letzten Gleichung der Ausdruck $-\partial P/\partial z - \rho_0 g$ ergeben.

9.2.2. Die Kontinuitätsgleichung

Zur Herleitung der Kontinuitätsgleichung betrachtet man ein Volumenelement fester Länge, Höhe und Breite, welches auf einem bestimmten z_0 - bzw. Theta-Niveau verankert ist. Jede Veränderung der Dichte der Luft in diesem Element muss durch Massefluss durch die Oberfläche kompensiert werden, d.h.

$$\frac{\partial \rho_{\text{total}}}{\partial t} + \nabla(\rho_{\text{total}} v_{\text{total}}) = 0 \quad (84)$$

Einsetzen der Ansätze (59-62) liefert unter der Beachtung, dass der Grundstrom v_0 ausschließlich eine Komponente in x -Richtung besitzt und ebenso wie der Dichte-Mittelwert ρ_0 ausschließlich von der Gleichgewichtshöhe z_0 abhängt, sowie unter Eliminierung von Störungstermen zweiter Ordnung (sofern der Nabla-Operator ∇ mit einem Störungsterm multiplikativ verbunden ist, kann er einfach durch ∇_0 (80) ersetzt werden)

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + v_0 \frac{\partial \rho}{\partial x} + \rho_0 \nabla_0 v + v_z \frac{\partial \rho_0}{\partial z_0} = 0 \quad (85)$$

Mittels des Zeitableitungs-Operators (78) sowie des Ausdrucks (67) für die Höhenabhängigkeit von ρ_0 kann diese Gleichung dann vereinfacht werden zu

$$\frac{d_0 \rho}{dt} + \rho_0 \nabla_0 v - \delta \rho_0 v_z = 0 \quad (86)$$

Andrews et al. verwenden die Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} + \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \rho_0 v_z}{\partial z} = 0 \quad (87)$$

(Gleichung 4.6.19c in [Andrews et al., 1987]). Sie nehmen näherungsweise an, dass auf einem bestimmten Druckniveau z (Andrews et al. rechnen auf Druckniveaus) auch die Dichte stets konstant bleibt, d.h. die Luftpakete sind inkompressibel. Damit erhalten sie eine einfache Dispersionsgleichung (Gleichung 4.6.22)

$$\sigma^2 = \Omega^2 + \frac{N^2 \mu^2}{\mu_{zR}^2 + \mu_{zI}^2} \quad (88)$$

mit σ der durch einen sich mit den Luftmassen mitbewegenden Beobachter gemessenen Frequenz, Ω der Frequenz der Erddrehung, μ und μ_{zR} der horizontalen und vertikalen Wellenzahl und μ_{zI} dem Exponenten, welcher den exponentiellen Abfall der Amplituden mit wachsender Höhe beschreibt (μ_{zR} und μ_{zI} bilden Real- und Imaginärteil der komplexen vertikalen Wellenzahl μ_z). Mit der Annahme inkompressibler Luftpakete lässt sich der Wert der Brunt-Väisälä-Frequenz N allerdings nicht korrekt berechnen (siehe Anhang 12.5.), Prozesse wie das Umkippen der Atmosphäre von einer stabilen in eine labile Schichtung (ebenfalls Anhang 12.5.), oder auch das Auftreten von Schallwellen (Anhang 12.4) wären nicht erklärbar. Wie im nächsten Abschnitt erläutert wird, verhalten sich unter den für den 11. Februar 1997 angenommenen Bedingungen die Luftmassen auf bestimmte Theta-Niveaus

allerdings tatsächlich inkompressibel. Wenn die Vorgänge auf diesen Niveaus das Verhalten der gesamten Wellenstruktur bestimmen, stellt die Dispersionsgleichung (88) damit durchaus eine gute Näherung dar. Sie ergibt sich (für den Fall vernachlässigbarer Größen Ω und μ_{zi}) unter Anwendung der im folgenden Abschnitt beschriebenen Korrektur auch in dieser Arbeit als Lösung (Gleichung (180) in Abschnitt 9.3.7).

9.2.3. Der Korrekturfluss

Es muss nun eine wichtige Korrektur vorgenommen werden. Um das Problem zu illustrieren, soll der am 11. Februar 1997 beobachtete Fall (Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106) angenommen werden, dass der Druck eines vertikal ausgelenkten Luftpakets sich stets unmittelbar an den Umgebungsdruck auf der Höhe, auf welcher sich das Luftpaket befindet, anpasst. Ausdrücke für die Druckstörung P und die Dichtestörung ρ in diesem Fall werden im Anhang 12.5 hergeleitet (Gleichungen (265) und (268)). Die Zeitableitung von Gleichung (265) ergibt

$$\frac{d_0 P}{dt} = \frac{d_0}{dt} (P_{\text{umg}} - P_0) = -\frac{\kappa g}{c^2} P_0 v_z \quad (89)$$

Wenn nun, wie im Fall des 11. Februar 1997, eine stehende Welle entlang der z -Achse angenommen wird, d.h. die Höhenabhängigkeit von P und v_z kann wie in den Ansätzen (106-109) in der Form $\cos(az_0)\exp(-bz_0)$ beschrieben werden (P und v_z besitzen dabei unterschiedliche Exponenten b), müssen P und v_z somit entlang der z -Achse in Phase sein. Gleichung (86) kann mit Beziehung (268) umgeschrieben werden zu

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} + \frac{\partial v_z}{\partial z_0} = \left(\frac{g}{c^2} + \delta \right) v_z \quad (90)$$

woraus folgt

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} \propto a \sin(az_0) + \left(b + \frac{g}{c^2} + \delta \right) \cos(az_0) \quad (91)$$

Die z_0 -Abhängigkeit der Geschwindigkeitskomponenten v_x und v_y muss somit im Allgemeinen durch die Summe aus zwei Winkelfunktionen beschrieben werden. Eine Funktion, welche im Fall $b = -g/c^2 - \delta$ verschwindet, ist mit v_z und damit auch der Druckstörung P entlang der z -Achse in Phase. Dieser Fluss, im Folgenden als Gradientenfluss bezeichnet, kompensiert in den horizontalen Bewegungsgleichungen (81-82) den Druckgradient, seine Richtung ist damit durch den Druckgradient festgelegt. In Übereinstimmung mit diesen Bewegungsgleichungen sollen sich die Symbole v_x und v_y im Folgenden ausschließlich auf den Gradientenfluss beziehen. Zu beachten ist, dass dieser Gradient laut Definition der x - und y -Achse nicht parallel zur Erdoberfläche verläuft, sondern entlang der z_0 - bzw. Theta-Niveaus (Abb. 9.4 auf Seite 112). Da im hier betrachteten Spezialfall der Druck eines Luftpakets stets an den Umgebungsdruck auf dem selben Höhenniveau angepasst ist, ist der Druckgradient parallel zur Erdoberfläche stets gleich Null. Dort, wo ein Druckgradient entlang der x - oder y -Achse vorliegt, sind diese Achsen demnach zur Erdoberfläche gekrümmt.

Die zweite Komponente ist entlang der z -Achse um 90° gegenüber Druck und Vertikalgeschwindigkeit phasenverschoben. Sie beschreibt das periodische Verdrängen und Wiedereinströmen von Luft aus dem bzw. in den Zwischenraum zwischen zwei vertikal gegeneinander schwingenden Luftpaketen. Diese Komponente, im Folgenden als Korrekturfluss und mit dem Symbol v_c bezeichnet, verschwindet nur dann, wenn die vertikale

Wellenzahl a verschwindet, d.h. wenn die Luftsäule als Ganzes eine Vertikalschwingung ausführt. In den horizontalen Bewegungsgleichungen (81-82), nach welchen P , v_x und v_y entlang der z -Achse zueinander in Phase sind, taucht sie bisher nicht auf (sofern die Angleichung des Drucks an seine Umgebung auf diesen ruhenden Niveaus als unendlich schnell verlaufend angenommen wird). Für den Korrekturfluss kann aber nun eine eigene horizontale Bewegungsgleichung aufgestellt werden

$$\rho_0 \frac{d_0 \bar{v}_C}{dt} = \frac{\partial P_C}{\partial x} + \frac{\partial P_C}{\partial y} \quad (92)$$

Bei dem Korrekturdruck P_C handelt es sich (bei unendlich schneller Druckanpassung) nicht um einen tatsächlich auftretenden Druck, sondern um einen Kraftterm, welcher die Beschleunigung der verdrängten Luftmassen in der x - y -Ebene bewirkt. Die Vorzeichen dieser Gleichung wurden dabei so gewählt, dass der Korrekturdruck P_C dort am höchsten ist, wo der Vertikalabstand zwischen zwei Theta-Niveaus am geringsten ist. Zur Erläuterung soll nach dem Vorbild der Ansätze (106-109) angenommen werden, dass sich alle Parameter der Welle und somit auch P_C und v_C in Form einer Funktion $\cos(\mu x - \omega t) \cos(\mu_z z_0)$ beschreiben lassen, d.h. die Welle ist stehend entlang der z -Achse und laufend entlang der x -Achse. Entlang der y -Achse soll zur Vereinfachung keine Bewegung stattfinden. Eine Anwendung des Operators d_0/dt (78) liefert den Ausdruck $(\omega - v_0 \mu) \sin(\mu x - \omega t) \cos(\mu_z z_0)$, eine partielle Ableitung nach x den Ausdruck $-\mu \sin(\mu x - \omega t) \cos(\mu_z z_0)$. Da der Quotient aus ω und μ gerade der Phasengeschwindigkeit entlang der x -Achse entspricht, müssen entsprechend Gleichung (92) P_C und v_C entlang der x - bzw. t -Achse somit in Phase sein, sofern die Phasengeschwindigkeit kleiner als die mittlere Windgeschwindigkeit v_0 ist, und um 180° außer Phase, wenn die Phasengeschwindigkeit größer als v_0 ist. Beide Fälle sollen hier betrachtet werden:

Fall 1: Die Phasengeschwindigkeit der Wellen entlang der x -Achse ist geringer als die Windgeschwindigkeit. Auf den Knotenniveaus ($\cos(\mu_z z_0)=0$) erfährt der Luftstrom keine Vertikalauslenkung, aber passiert in x -Richtung abwechselnd Engstellen und Erweiterungen. Da sich dabei die Dichte nicht ändern soll, muss die Geschwindigkeit an den Engstellen, wo per Definition P_C sein Maximum erreichen soll, ebenfalls ihr Maximum und an den Erweiterungen entsprechend ihr Minimum erreichen. P_C und v_C sind entlang der x - bzw. t -Achse somit wie gefordert in Phase. Dieser Fall ist in Abb. 9.4 dargestellt.

Fall 2: Die Phasengeschwindigkeit der Wellen entlang der x -Achse ist höher als die Windgeschwindigkeit. Entlang der x -Achse soll sich nun eine Welle nach rechts, d.h. in Richtung dieser Achse, bewegen. An den Knoten der Welle erfahren die Luftmassen dabei keine Vertikalauslenkung, werden jedoch komprimiert, da sich die darunter befindlichen Luftmassen nach oben, die darüber befindlichen Luftmassen nach unten bewegt haben. Der Druck und entsprechend auch die Dichte auf diesem Knotenniveau sollen sich nicht verändern. Am Ort der stärksten Komprimierung, d.h. dort, wo per Definition P_C sein Maximum erreichen soll, weicht ein Teil der Luft nach links, entgegen der x -Achse, in den hinter der stärksten Komprimierung freiwerdenden Raum aus. v_C erreicht somit sein Minimum, und P_C und v_C sind wie gefordert entlang der x - bzw. t -Achse um 180° außer Phase.

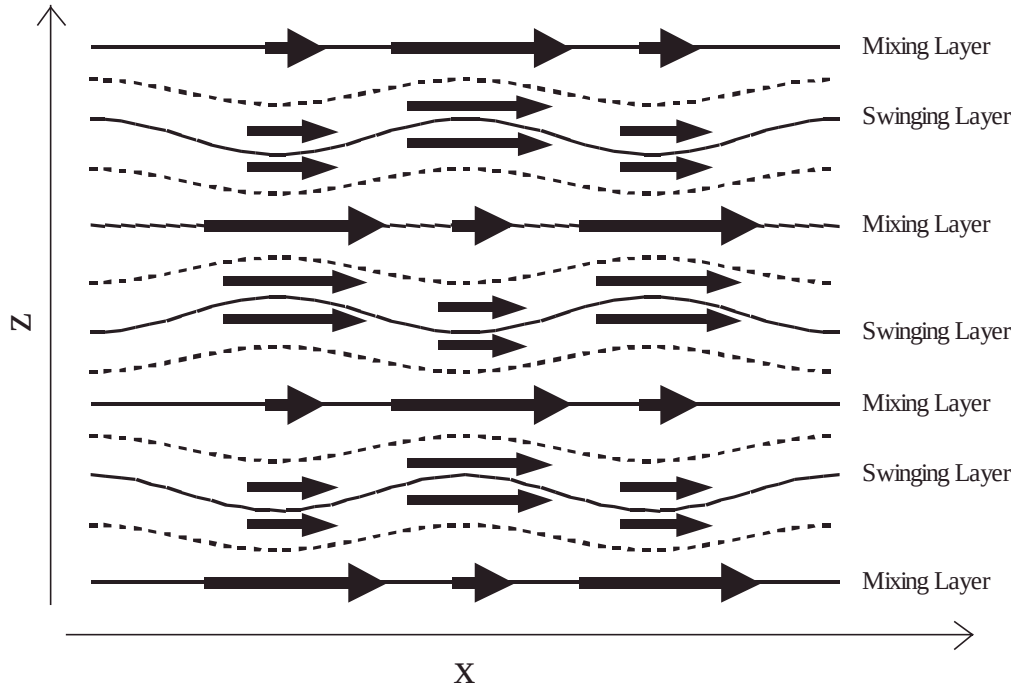


Abb. 9.4: Vertikale Schichtung der Atmosphäre in Swinging und Mixing Layer. Gezeigt ist Fall 1, d.h. ein Luftstrom entlang der x-Achse passiert eine sich langsamer bewegende oder ruhende Wellenstruktur. Auf dem Mixing Layer wird der Fluss an den Engstellen der Struktur beschleunigt (d.h. zusätzlich zur Windgeschwindigkeit v_0 ergibt sich ein positiver Korrekturfluss v_C), an den Erweiterungen gebremst ($v_C < 0$). Auf dem Swinging Layer wird er gebremst ($v_0 + v_x < v_0$), v_x : Gradientenfluss) wenn die Luftmassen unter ihre Normalhöhe absinken und sich damit ihre Dichte erhöht (siehe dazu auch Abschnitt 9.3.3). Im Fall 2 (die Wellenstruktur bewegt sich schneller entlang der x-Achse als die Luftmassen), invertieren v_x und v_C ihre Vorzeichen.

Allgemein kann die Kontinuitätsgleichung (86) somit wie folgt formuliert werden

$$\frac{d_0 \rho}{dt} + \rho_0 \nabla_0 (\vec{v} + \vec{v}_C) - \delta \rho_0 v_z = 0 \quad (93)$$

mit v_C dem Korrekturfluss. Wie oben gezeigt, besitzt dieser Fluss, welcher Vertikalbewegungen ausgleicht, nur Komponenten entlang der x- und y-Achse. Damit kann der Ausdruck ∇v_C problemlos durch $\nabla_0 v_C$ ersetzt werden.

Da die durch den Korrekturdruck P_C beschriebene Kraft durch eine Umlenkung der Bewegung aus der Vertikalen in die horizontale Ebene entsteht, muss dieser Korrekturdruck entsprechend in der vertikalen Bewegungsgleichung (83) berücksichtigt werden.

$$\rho_0 \frac{d_0 v_z}{dt} + 2\rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_z = -\frac{\partial P}{\partial z_0} - g\rho_0 \frac{\partial s}{\partial z_0} - \rho g + \frac{\partial P_C}{\partial z_0} \quad (94)$$

Die Wahl des Vorzeichens kann hier wie folgt begründet werden: Der Korrekturdruck P_C ist per Definition dort am höchsten, wo der Vertikalabstand zwischen zwei Theta-Niveaus am geringsten ist. Die unmittelbar darunter befindlichen Luftmassen sind vertikal nach oben ausgelenkt, die darüber befindlichen Luftmassen entsprechend nach unten. Umgekehrt betrachtet: Wenn auf einem bestimmten Niveau die Luftmassen nach oben ausgelenkt sind, erreicht der Korrekturdruck P_C oberhalb dieses Niveaus seinen Maximalwert, unterhalb davon seinen Minimalwert, sein Gradient $\partial P_C / \partial z_0$ ist somit positiv. Damit eine Vertikalschwingung zustande kommt, müssen die vertikal nach oben ausgelenkten Luftmassen eine negative, nach unten gerichtete, Beschleunigung erfahren. Das Auftreten des Korrekturflusses bewirkt nun

netto eine Verringerung dieser Abwärtsbeschleunigung, da die potentielle Energie eines ausgelenkten Luftpakets nicht nur in die kinetische Energie dieses Pakets, sondern auch in kinetische Energie des Korrekturflusses umgewandelt werden muss. Die zusätzlich wirkende Beschleunigung ist damit positiv und besitzt dasselbe Vorzeichen wie $\partial P_C / \partial z_0$.

Wichtig ist nun folgende Feststellung: Die genaue Ausrichtung des Korrekturflusses in der x-y-Ebene ist durch das Gleichungssystem nicht festgelegt. In beiden oben beschriebenen Fällen kann die Ausgleichsbewegung auch eine Komponente in y-Richtung besitzen. Der Korrekturdruck P_C ist lediglich eine Hilfsgröße zur Beschreibung der Umlenkung von Bewegung aus der Vertikalen in die Horizontale, es besteht jedoch kein zwingender Grund, dass die Bewegung in der x-y-Ebene in Richtung des stärksten P_C -Gradienten verlaufen muss. Dieser Sachverhalt kann anhand von Abb. 9.4 beschrieben werden. Die z_0 - bzw. Theta-Niveaus, auf welchen der Gradientenfluss vorherrscht, erfahren eine periodische vertikale Auslenkung und damit auch periodisch hohe und tiefe Temperaturen. Die Bewegungen auf diesen Niveaus müssen aber dem Druckgradient folgen und sind daher eher geordnet. Sie werden deshalb hier als „Swinging Layer“ bezeichnet. Auf den dazwischen liegenden Schichten können die Bewegungsvorgänge unter Umständen chaotisch ablaufen. Deswegen werden sie hier als „Mixing Layer“ bezeichnet. Sie verändern jedoch ihre Höhe und ihre Zustandsgrößen Temperatur, Druck und Dichte kaum. Sie verhalten sich somit inkompressibel. Wenn das Verhalten der Gesamtstruktur durch das Verhalten auf den „Mixing Layers“ bestimmt wird, kann somit angenommen werden, dass die am Ende des vorigen Abschnitts gezeigte inkompressible Näherung von Andrews et al. zulässig ist. Im Abschnitt 9.3.8 wird eine Abschätzung der Amplituden von Gradienten- und Korrekturfluss vorgenommen.

9.2.4. Die Adiabatangleichung für ideale Gase

Die Ableitung der Adiabatenbeziehung (223) nach der Zeit liefert

$$0 = \rho_{\text{total}} \frac{dP_{\text{total}}}{dt} - \kappa P_{\text{total}} \frac{d\rho_{\text{total}}}{dt} \quad (95)$$

Es sei nun angenommen, dass in einem ausgewählten Zeitintervall das betrachtete Luftpaket sich von einem ungestörten in ein gestörtes System umwandelt. Die Änderungen von Druck und Dichte in diesem Zeitintervall entsprechen damit gerade den Störungstermen P und ρ (siehe Gleichungen (59-60)), so dass unter Vernachlässigung von Störungstermen 2. Ordnung die Gleichung (95) umgeschrieben werden kann zu

$$0 = \rho_0 P - \kappa P_0 \rho \quad (96)$$

Diese einfache Vorgehensweise ist nur möglich, weil Mittelwerte und Störungen anhand der z_0 - bzw. Theta-Niveaus definiert wurden, bei einer Definition auf Basis der tatsächlichen Höhe ergeben sich andere Ausdrücke. Die totale Zeitableitung mittels des Operators (78) liefert

$$0 = \rho_0 \frac{d_0 P}{dt} - \kappa P_0 \frac{d_0 \rho}{dt} \quad (97)$$

Diese Gleichung kann nun genutzt werden um aus der z-Komponente der Bewegungsgleichung (94) sowie der Kontinuitätsgleichung (93) die Störung der Dichte zu eliminieren. Die Bewegungsgleichung (94) muss zu diesem Zweck noch einmal total nach der Zeit abgeleitet werden. Dabei wird von der Tatsache Gebrauch gemacht, dass die Vertikalgeschwindigkeit v_z die totale Zeitableitung der Vertikalauslenkung s darstellt und die Ableitungen nach der Zeit und der Höhe vertauscht werden können.

$$\frac{d_0^2 v_z}{dt^2} + \frac{d_0}{dt} \left(2(\vec{\Omega} \times \vec{v})_z + \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial(P - P_C)}{\partial z_0} \right) + \frac{g}{\rho_0} \frac{d_0 \rho}{dt} + g \frac{\partial v_z}{\partial z_0} = 0 \quad (98)$$

In diese Gleichungen wird die Adiabatenbeziehung (97) eingesetzt

$$\frac{d_0^2 v_z}{dt^2} + \frac{d_0}{dt} \left(2(\vec{\Omega} \times \vec{v})_z + \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial(P - P_C)}{\partial z_0} \right) + \frac{g}{\kappa P_0} \frac{d_0 P}{dt} + g \frac{\partial v_z}{\partial z_0} = 0 \quad (99)$$

Aus der Kontinuitätsgleichung (93) ergibt sich nach Einsetzen von Beziehung (97)

$$0 = \frac{d_0 P}{dt} + \kappa P_0 \nabla_0 (\vec{v} + \vec{v}_C) - \delta \kappa P_0 v_z \quad (100)$$

9.2.5. Resultierendes Gleichungssystem

Die Gleichungen (81), (82), (99), (100) und (92) bilden nun folgendes Gleichungssystem:

$$\rho_0 \frac{d_0 v_x}{dt} + \rho_0 \left(v_z \frac{\partial}{\partial z_0} \right) v_0 + 2\rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_x + \frac{\partial P}{\partial x} = 0 \quad (101)$$

$$\rho_0 \frac{d_0}{dt} v_y + 2\rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_y + \frac{\partial P}{\partial y} = 0 \quad (102)$$

$$\frac{d_0^2 v_z}{dt^2} + \frac{d_0}{dt} \left(2(\vec{\Omega} \times \vec{v})_z + \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial(P - P_C)}{\partial z_0} \right) + \frac{g}{\kappa P_0} \frac{d_0 P}{dt} + g \frac{\partial v_z}{\partial z_0} = 0 \quad (103)$$

$$\frac{d_0 P}{dt} + \kappa P_0 \nabla_0 (\vec{v} + \vec{v}_C) - \delta \kappa P_0 v_z = 0 \quad (104)$$

$$\rho_0 \frac{d_0 \vec{v}_C}{dt} - \frac{\partial P_C}{\partial x} - \frac{\partial P_C}{\partial y} = 0 \quad (105)$$

9.3. Lösung des Gleichungssystems durch eine harmonische Schwingung

9.3.1. Ansatz

In Übereinstimmung mit den aus den Messungen resultierenden Annahmen (57) soll nun für das Gleichungssystem (101-105) eine Lösung nach folgendem Muster gefunden werden

$$P = P_a \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t) e^{i\mu_z z_0} e^{-\delta z_0} = P_a f_c e^{i\mu_z z_0} e^{-\delta z_0} \quad (106)$$

$$v_x = v_{xa} \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t + \psi_x) e^{i\varphi_x} e^{i\mu_z z_0} = v_{xa} f_{cx} e^{i\varphi_x} e^{i\mu_z z_0} \quad (107)$$

$$v_y = v_{ya} \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t + \psi_y) e^{i\varphi_y} e^{i\mu_z z_0} = v_{ya} f_{cy} e^{i\varphi_y} e^{i\mu_z z_0} \quad (108)$$

$$v_z = v_{za} \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t + \psi_z) e^{i\varphi_z} e^{i\mu_z z_0} = v_{za} f_{cz} e^{i\varphi_z} e^{i\mu_z z_0} \quad (109)$$

Dabei handelt es sich um komplexe Größen, die eigentlichen Druck- und Geschwindigkeitskomponenten werden durch den jeweiligen Realteil dargestellt. Es wurden

folgende Parameter verwendet, welche alle als unabhängig von der Zeit t sowie der Ortskoordinaten x und y und z angenommen werden sollen:

- ω : Die durch einen auf der Erde ruhenden Beobachter gemessene Frequenz.
- μ : Wellenzahl. Für die Wellenzahl der Geschwindigkeitskomponenten soll gelten

$$\vec{\mu} = \mu_x x + \mu_y y + (\mu_{zR} + i\mu_{zI})z \quad (110)$$

Die z -Komponente soll damit im Allgemeinen als komplex angenommen werden. Während die reale Komponente eine Welle entlang der z -Achse beschreibt, stellt der Imaginärteil den exponentiellen Abfall mit zunehmender Höhe dar. Für die x - und y -Komponenten hingegen sollen rein reale Werte angenommen werden. In den bisher behandelten Gleichungen ist entsprechend auch kein Dämpfungsglied vorhanden, welches einen zeitlichen Abfall der Amplituden, und aufgrund der Wellenausbreitung auch einen exponentiellen Abfall in der x - y -Ebene erzeugen würde.

Für die Wellenzahl des Drucks muss gelten

$$\vec{\mu}' = \mu_x x + \mu_y y + (\mu_{zR} + i(\mu_{zI} + \delta))z \quad (111)$$

Die Notwendigkeit des zusätzlichen Einfügens des Dichte- und (in einer isothermen Atmosphäre) Druckgradienten δ (definiert durch Gleichung (67)) in den Ansatz (106) wird unmittelbar deutlich aus dem Gleichungssystem (101-104). Neben den Störungen P und v hängen in diesem System auch die Mittelwerte P_0 und ρ_0 von der Höhe ab (69, 71).

- ψ_x , ψ_y und ψ_z : Phasenverschiebung der jeweiligen Geschwindigkeitskomponente zur Oszillation des Drucks entlang der x - bzw. z -Achse.
- ϕ_x , ϕ_y und ϕ_z : Phasenverschiebung der jeweiligen Geschwindigkeitskomponente zur Oszillation des Drucks entlang der z -Achse.

Die Ansätze (106-109) beschreiben eine stehende Welle entlang der z -Achse und unterscheiden sich daher von den in der Literatur überwiegend verwendeten Ansätzen für laufende Wellen

$$P = P_a e^{i(\mu_x x + \mu_y y + \mu_z z - \omega t)} e^{-\delta z} \quad (112)$$

$$v_x = v_{xa} e^{i(\mu_x x + \mu_y y + \mu_z z - \omega t + \psi_x)} \quad (113)$$

$$v_y = v_{ya} e^{i(\mu_x x + \mu_y y + \mu_z z - \omega t + \psi_y)} \quad (114)$$

$$v_z = v_{za} e^{i(\mu_x x + \mu_y y + \mu_z z - \omega t + \psi_z)} \quad (115)$$

Der Realteil von z. B. der Vertikalgeschwindigkeit lautet nach diesem Ansatz

$$v_z = v_{za} \operatorname{Re} \left(e^{i(F + \psi_z)} e^{-\mu_{zI} z} \right) = v_{za} (\cos(F) \cos \psi_z - \sin(F) \sin \psi_z) e^{-\mu_{zI} z} \quad (116)$$

während der entsprechende Realteil des Ansatzes (109)

$$v_z = v_{za} \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t + \psi_z) \cos(\mu_{zR} z_0 + \phi_z) e^{-\mu_{zI} z_0} \quad (117)$$

beträgt. Die komplexen Ansätze (112-115) stellen somit eine Welle dar, deren Wellenfronten z. B. in der x - z -Ebene je nach dem Verhältnis der Wellenzahlen μ_x und μ_{zR} gegen die x - und

z-Achse geneigt sind. Die Ansätze (106-109) entsprechen dem experimentellen Befund (57) und sollen deshalb im Folgenden hauptsächlich benutzt werden. Es wird sich zeigen, dass der Übergang zu den Ansätzen (112-115) in jedem Moment unkompliziert möglich ist. Im Falle einer rein imaginären oder völlig verschwindenden vertikalen Wellenzahl μ_z entsprechen beide Ansätze einander.

9.3.2. Einsetzen in das Gleichungssystem

Der Ansatz (106-109) kann nun in das Gleichungssystem (101-104) eingesetzt werden. Zu diesem Zweck wird zunächst die Wirkung des Operators der totalen Zeitableitung, welcher durch Gleichung (78) definiert ist, betrachtet. Mit Hilfe des Doppler-Effekts (Gleichung (285) im Anhang 12.6) ergibt sich, angewendet auf die Kosinusfunktion f_c des Ansatzes (106) bzw. die entsprechend definierte Sinusfunktion f_s

$$\frac{d_0}{dt} f_c = \frac{\partial}{\partial t} f_c + v_0 \frac{\partial}{\partial x} f_c = -(v_0 \mu_x - \omega) f_s = \sigma f_s \quad (118)$$

$$\frac{d_0}{dt} f_s = \frac{\partial}{\partial t} f_s + v_0 \frac{\partial}{\partial x} f_s = (v_0 \mu_x - \omega) f_c = -\sigma f_c \quad (119)$$

Eine Anwendung auf die komplexen Ansätze (112-115) liefert

$$\frac{d_0}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + v_0 \frac{\partial}{\partial x} = i(v_0 \mu_x - \omega) = -i\sigma \quad (120)$$

Die zweifache Anwendung des Operators der totalen Zeitableitung ergibt in jedem Fall

$$\frac{d_0^2}{dt^2} = -\sigma^2 \quad (121)$$

Nun können alle im Gleichungssystem (101-104) vorkommenden Ableitungen bestimmt werden (hier am Beispiel P).

Ansätze (106-109):

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial x} = -\mu_x f_t$$

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial y} = -\mu_y f_t$$

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial z_0} = i\mu_z = i\mu_{zR} - \mu_{zI} - \delta$$

$$\frac{1}{P} \frac{d_0}{dt} P = \sigma f_t$$

Ansätze (112-115):

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial x} = i\mu_x \quad (122)$$

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial y} = i\mu_y \quad (123)$$

$$\frac{1}{P} \frac{\partial P}{\partial z_0} = i\mu_z = i\mu_{zR} - \mu_{zI} - \delta \quad (124)$$

$$\frac{1}{P} \frac{d_0}{dt} P = -i\sigma \quad (125)$$

f_t bezeichnet die Tangensfunktion, welche analog zur Kosinusfunktion f_c des Ansatzes (106) definiert wird. Die Ableitung der Geschwindigkeitskomponenten geschieht analog, es müssen lediglich f_t durch f_{tx} , f_{ty} oder f_{tz} ersetzt werden, und der Term δ entfällt.

Nun können die Ansätze (106-106) auf das Gleichungssystem (101-104) angewendet werden. Ein Wechsel zu den Ansätzen (112-115) ist jederzeit möglich durch den Übergang

$$f_t, f_{tx}, f_{ty}, f_{tz} \rightarrow -i \quad (126)$$

Der umgekehrte Wechsel ist allerdings im Allgemeinen nicht möglich, da keine Information vorliegt, welche Tangensfunktion eingesetzt werden muss. Das Gleichungssystem (101-104) verändert sich nach Ausführung der Ableitungen zu

$$\rho_0 \left(\sigma f_{tx} v_x + \left(v_z \frac{\partial}{\partial z_0} \right) v_0 \right) + 2\rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_x - \mu_x f_t P = 0 \quad (127)$$

$$\sigma f_{ty} \rho_0 v_y + 2\rho_0 (\vec{\Omega} \times \vec{v})_y - \mu_y f_t P = 0 \quad (128)$$

$$(ig\mu_z - \sigma^2) v_z + 2\sigma (\vec{\Omega} \times f_{txyz} \vec{v})_z + \sigma f_t \left(\frac{g}{\kappa P_0} - \frac{\delta}{\rho_0} + i \frac{\mu_z}{\rho_0} \right) P - \frac{1}{\rho_0} \frac{d_0}{dt} \frac{\partial P_C}{\partial z_0} = 0 \quad (129)$$

$$\sigma f_t P - \kappa P_0 (\mu_x f_{tx} v_x + \mu_y f_{ty} v_y - (i\mu_z - \delta) v_z - \nabla_0 \vec{v}_C) = 0 \quad (130)$$

Zunächst soll der minimal mögliche Wert für die Frequenz σ ermittelt werden. Dieser ergibt sich dann, wenn keine Schwingung in vertikaler Richtung stattfindet und sich auch die Drücke nicht ändern (d.h. v_z und P verschwinden). Die Frequenz der Erdumdrehung Ω wiederum besitzt nur eine y- und eine z-Komponente. Die Gleichungen (127) und (128) vereinfachen sich dann zu

$$-\frac{1}{2} \sigma_{\min} f_{tx} v_x = (\vec{\Omega} \times \vec{v})_x = -v_y \Omega_z \quad (131)$$

$$-\frac{1}{2} \sigma_{\min} f_{ty} v_y = (\vec{\Omega} \times \vec{v})_y = v_x \Omega_z \quad (132)$$

Eine Addition beider Gleichungen liefert

$$\left(\Omega_z - \frac{1}{2} \sigma_{\min} f_{tx} \right) v_x = - \left(\Omega_z + \frac{1}{2} \sigma_{\min} f_{ty} \right) \hat{v}_y \quad (133)$$

Wenn nun, was im gegebenen Fall anzunehmen ist, die Schwingungen in x- und y-Richtung gerade um 90° gegeneinander phasenverschoben sind, muss, wie sich leicht überprüfen lässt, die Funktion f_{ty} gerade den negativen Wert von f_{tx} darstellen und es ergibt sich

$$\sigma_{\min} = 2\Omega_z = 2\Omega \cos \Theta \quad (134)$$

mit Ω der Frequenz der Erdumdrehung und Θ dem Breitengrad.

Im weiteren Verlauf sollen die Coriolisterme vernachlässigt werden. Dies ist zulässig, sofern die Frequenz Ω der Erdumdrehung klein gegenüber der Frequenz σ ist, was hier als gegeben angenommen werden soll. Damit ist es von nun an auch gleichgültig, in welche Himmelsrichtung der Grundstrom v_0 verläuft (die x-Achse wurde parallel zu v_0 festgelegt). Zudem kann auch in den Gleichung (129) und (130) noch von den in den Anhängen 12.4 und 12.5 besprochenen speziellen Lösungen Gebrauch gemacht werden. Mit Hilfe der Beziehungen (259) und (282) können der mittlere Druck P_0 sowie der Dichteexponent δ durch die mittlere Dichte ρ_0 , die Brunt-Väisälä-Frequenz N und die Schallgeschwindigkeit c ersetzt werden. Das Gleichungssystem lautet nun

$$\rho_0 \left(\sigma f_{tx} v_x + \left(v_z \frac{\partial}{\partial z_0} \right) v_0 \right) - \mu_x f_t P = 0 \quad (135)$$

$$\sigma f_{ty} \rho_0 v_y - \mu_y f_t P = 0 \quad (136)$$

$$\rho_0 \left(i g \mu_z - \sigma^2 \right) v_z + \frac{\sigma}{g} f_t \left(i g \mu_z - N^2 \right) P - \frac{d_0}{dt} \frac{\partial P_C}{\partial z_0} = 0 \quad (137)$$

$$\frac{\sigma}{c^2} f_t P - \rho_0 \left(\mu_x f_{tx} v_x + \mu_y f_{ty} v_y - (i \mu_z - \delta) v_z - \nabla_0 \vec{v}_C \right) = 0 \quad (138)$$

9.3.3. Horizontale und zeitliche Phasenbeziehungen

Aus den Gleichungen (135-138) können nun Aussagen getroffen werden über die Phasenverschiebung zwischen Druck und Geschwindigkeiten. In den Ansätzen (106-109) wurden sowohl Phasenverschiebungen in der x-y-Ebene (bzw. entlang der Zeitachse) als auch entlang der z-Achse angenommen. Begonnen werden soll mit der Behandlung der Phasenverschiebung in der x-y-Ebene. Es soll dabei die Konvention getroffen werden, dass die Amplitude des Drucks, der Grundstrom v_0 (die x-Achse wurde in Richtung dieses Stroms definiert) sowie die durch einen Beobachter auf der Erde gemessene Frequenz ω stets positiv sind. Wenn zudem auch die realen Wellenzahlen μ_x , μ_y und μ_{zR} sowie die intrinsische Frequenz σ positiv sind, sollen auch die Amplituden der Geschwindigkeitskomponenten positive Werte annehmen. Die Phasenwinkel sollen als unabhängig von den Vorzeichen dieser Parameter festgelegt werden, d.h. ein Vorzeichenwechsel einer der Wellenzahlen bzw. der Frequenz soll mit einem Vorzeichenwechsel der entsprechenden Amplituden verbunden sein, um das Gleichungssystem weiterhin zu erfüllen.

Die Phasenwinkel ψ_x und ψ_y müssen unter dieser Konvention offensichtlich den Wert Null annehmen, was laut der Ansätze (106-108) gleichbedeutend ist mit

$$f_c = f_{cx} = f_{cy} \quad (139)$$

Für die Sinus- und Tangensfunktionen f_s und f_t gilt Entsprechendes. Sofern die Wellenzahlen μ_x und μ_y positiv sind, d.h. die Wellenausbreitung erfolgt in Richtung der x- und y-Achse, und auch die intrinsische Frequenz σ positiv ist (dies gilt insbesondere im Spezialfall $v_0=0$, d.h. Windstille, siehe Gleichung (285) im Anhang 12.6 zum Doppler-Effekt), verlaufen Druck und Horizontalgeschwindigkeit damit in der x-y-Ebene sowie entlang der Zeitachse in Phase, jeder Druckaufbau ist mit der Erhöhung der Geschwindigkeit verbunden. Falls σ hingegen negativ ist (dies gilt insbesondere im Spezialfall $\omega=0$, d.h. zur Erdoberfläche stationäre Wellen, siehe ebenfalls Gleichung (285)), würde der Wind bei jeder Passage eines Gebiets erhöhten Drucks abgebremst werden, Druck und Horizontalgeschwindigkeit sind damit um 180° außer Phase. Dieses Verhalten ist in der Abb. 9.4 auf Seite 112 illustriert.

Zur Ermittlung der Phasenverschiebung zwischen Vertikalgeschwindigkeit und Druck soll zunächst die Vertikalauslenkung betrachtet werden. Wie bereits in den Abschnitten 9.2.3 und 12.5 diskutiert, besteht die physikalisch sinnvolle Annahme darin, dass ein vertikal ausgelenktes Luftpaket seinen Druck an den Umgebungsdruck anpasst, d.h. für die Vertikalauslenkung s sollte nach Ansatz (106) gelten

$$s = -s_a \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t) e^{i \mu_z z_0} = -s_a f_c e^{i \mu_z z_0} \propto -P e^{\delta z_0} \quad (140)$$

wobei die Amplitude s_a dasselbe Vorzeichen besitzt wie die Druckamplitude P_a . Mathematisch möglich wäre auch, dass sich P und s in Phase befinden, physikalisch ist dieser Fall jedoch unsinnig. Die totale Zeitableitung von s ergibt gerade die Vertikalgeschwindigkeit

$$v_z = \frac{d_0 s}{dt} = -s_a \sigma f_s e^{i\mu_z z_0} = -v_{za} f_s e^{i\mu_z z_0} = v_{za} f_{cz} e^{i\mu_z z_0} \quad (141)$$

Der Phasenwinkel ψ_z besitzt laut Ansatz (106) und (109) damit den Wert 90° .

Damit kann das Gleichungssystem (135-138) weiter vereinfacht werden zu

$$\rho_S \left(\sigma v_{xa} e^{i\varphi_x} - e^{i\varphi_z} \left(v_{za} \frac{\partial}{\partial z_0} \right) v_0 \right) - \mu_x P_a = 0 \quad (142)$$

$$\sigma \rho_S v_{ya} e^{i\varphi_y} - \mu_y P_a = 0 \quad (143)$$

$$\rho_S \left(i g \mu_z - \sigma^2 \right) v_{za} e^{i\varphi_z} - \frac{\sigma}{g} \left(i g \mu_z - N^2 \right) P_a + \frac{1}{f_s e^{(i\mu_z - \delta)z_0}} \frac{d_0}{dt} \frac{\partial P_C}{\partial z_0} = 0 \quad (144)$$

$$\frac{\sigma}{c^2} P_a - \rho_S \left(\mu_x v_x e^{i\varphi_x} + \mu_y v_y e^{i\varphi_y} + (i\mu_z - \delta) v_z e^{i\varphi_z} \right) + \rho_S \frac{\nabla_0 \vec{v}_C}{f_s e^{i\mu_z z_0}} = 0 \quad (145)$$

Dabei wurde Gebrauch gemacht von Beziehung (71), um den exponentiellen Abfall mit dem Exponenten δ zu eliminieren. Die Gleichungen (142) und (143) können nun in Gleichung (145) eingesetzt werden.

$$\left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 \right) P_a - \rho_S e^{i\varphi_z} v_{za} \left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z_0} v_0 + (i\mu_z - \delta) \sigma \right) + \rho_S \sigma \frac{\nabla_0 \vec{v}_C}{f_s e^{i\mu_z z_0}} = 0 \quad (146)$$

Der Ausdruck μ^2 bezeichnet die Summe $\mu_x^2 + \mu_y^2$. Es verbleibt ein System, bestehend aus den zwei Gleichungen (144) und (146).

9.3.4. Vertikale Phasenbeziehungen

Schließlich soll noch die Phasenverschiebung entlang der z-Achse betrachtet werden. Wenn man die Abhängigkeit des Grundstroms von der Höhe, welche in Gleichung (142) auftaucht, außer Betracht lässt, sollte laut der Gleichungen (142) und (143) offenbar auch entlang der z-Achse gelten

$$\varphi_x = \varphi_y = 0 \quad (147)$$

d.h. auch entlang der z-Achse sind Druck und Horizontalgeschwindigkeit in Phase. Unter Vernachlässigung der Höhenabhängigkeit des Grundstroms v_0 folgt aus den Gleichungen (142) und (143)

$$\frac{v_x}{v_y} = \frac{\mu_x}{\mu_y} \quad (148)$$

d.h. aus einem v_y - v_x -Diagramm, einem sogenannten Hodographen, kann eine Information über die Verhältnisse der horizontalen Wellenzahlen und damit über die Ausbreitungsrichtung der Welle in der x-y-Richtung gewonnen werden. Unter Einbeziehung der Coriolisterme

ergibt sich anstelle der linearen Beziehung zwischen v_y und v_x eine Ellipse. Wie im Abschnitt 9.1 erläutert wurde, wurde im Fall des 11. Februar 1997 aufgrund der Unsicherheit in der Trennung zwischen Mittelwerten und Störungen jedoch keine Hodographenanalyse durchgeführt.

Völlig offen hingegen ist jedoch die Phasenverschiebung zwischen Druck und Vertikalgeschwindigkeit. Um über diese Phasenbeziehung eine Aussage zu gewinnen, wird die Gleichung (146) in Real- und Imaginärteil zerlegt. Dabei sollen zunächst nur Lösungen betrachtet werden, welche ohne den Korrekturfluss v_C auskommen. Der Imaginärteil von Gleichung (146) liefert dann den Ausdruck

$$\mu_{zR} \cos \varphi_z + \left(\frac{\mu_x}{\sigma} \frac{\partial}{\partial z} v_0 - (\mu_{zI} + \delta) \right) \sin \varphi_z = 0 \quad (149)$$

Im Fall einer Phasenverschiebung von 0° gilt

$$\mu_{zR} = 0 \quad (150)$$

Dies steht offenbar zu den Beobachtungen am 11. Februar 1997 im Widerspruch, da hier zum einen eine Phasenverschiebung entlang der z-Achse von 0° , zum anderen aber auch eine vertikale Wellenlänge festgestellt wurde. Die Lösung des Widerspruchs wird im Abschnitt 9.3.7 dargelegt.

Im Fall einer Phasenverschiebung von 90° oder auch -90° hingegen ergibt sich unter Vernachlässigung der Höhenabhängigkeit des Grundstroms v_0 die Lösung

$$\mu_{zI} = -\delta \quad (151)$$

d.h. die Amplitude der Geschwindigkeitskomponenten, und damit auch der Vertikalauslenkung, nimmt mit wachsender Höhe exponentiell mit dem Exponenten δ zu, während die Amplitude des Drucks laut der Ansätze (107-109) nicht von der Höhe abhängt.

9.3.5. Dispersionsgleichung ohne Korrekturfluss

Die Gleichungen (144) kann nun in Gleichung (146) eingesetzt und dabei die Zustandsgrößen P und v_z eliminiert werden. Hier sollen nur Lösungen betrachtet werden, welche ohne die Korrekturterme v_C und P_C auskommen. Es ergibt sich die Dispersionsgleichung

$$\left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 \right) \left(i g \mu_z - \sigma^2 \right) - \frac{\sigma}{g} \left(i g \mu_z - N^2 \right) \left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 + (i \mu_z - \delta) \sigma \right) = 0 \quad (152)$$

welche sich zur Vereinfachung umstellen lässt zu

$$i \mu_z \left(\frac{g}{c^2} - \frac{g \mu^2}{\sigma^2} - \frac{\mu_x}{\sigma} \frac{\partial}{\partial z} v_0 + \delta + \frac{N^2}{g} \right) = \frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 - \frac{N^2}{g \sigma} \mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 + \delta \frac{N^2}{g} - \mu_z^2 \quad (153)$$

Diese Gleichung kann nun in Real- und Imaginärteil zerlegt werden. Dabei wird Gebrauch gemacht von der Beziehung (282) zwischen den Koeffizienten N , δ und c . Der Realteil beträgt

$$\mu_{zI} \left(g \frac{\mu^2}{\sigma^2} + \frac{\mu_x}{\sigma} \frac{\partial}{\partial z} v_0 - 2\delta \right) = \frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 - \frac{N^2}{g\sigma} \mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 + \delta \frac{N^2}{g} - \mu_{zR}^2 + \mu_{zI}^2 \quad (154)$$

Der Imaginärteil beträgt

$$\mu_{zR} \left(g \frac{\mu^2}{\sigma^2} + \frac{\mu_x}{\sigma} \frac{\partial}{\partial z} v_0 - 2\delta \right) = 2\mu_{zR}\mu_{zI} \quad (155)$$

Drei spezielle Lösungen sollen hier betrachtet werden

1. Es tritt keine vertikale Geschwindigkeitskomponente v_z auf

Die in diesem Fall entstehenden Wellen werden auch als Lamb-Wellen bezeichnet [Pichler, 1986]. Laut der Gleichungen (144) und (146) treten sie dann auf, wenn gilt

$$\mu_{zR} = 0, \quad (156)$$

$$\mu_{zI} = -\frac{N^2}{g}, \quad (157)$$

$$\mu^2 = \mu_x^2 + \mu_y^2 = \frac{\sigma^2}{c^2} \quad (158)$$

Letztere Gleichung beschreibt offenbar Schallwellen, welche sich in der x-y-Ebene ausbreiten. Diese Lösung ist nichtdispersiv, d.h. die Phasengeschwindigkeit, welche durch den Quotienten aus Frequenz und Wellenzahl beschrieben wird, ist unabhängig von diesen beiden Größen und entspricht der Schallgeschwindigkeit c . Im Fall $\mu=0$ würde auch die Frequenz σ verschwinden. Wie weiter oben festgestellt wurde (Gleichung (134)), gestattet die Einbeziehung der Corioliskraft in die Betrachtung jedoch nicht das Erreichen dieses Nullpunktes. Damit muss deshalb in Gleichung (158) σ^2 durch $\sigma^2 - (\sigma_{\min})^2$ ersetzt werden, wobei $\sigma_{\min}$ durch Gleichung (134) geliefert wird [Pichler, 1986]. Somit ist die Phasengeschwindigkeit von Lamb-Wellen vor allem im Bereich niedriger Frequenzen doch von der Wellenzahl abhängig. Nach den Ansätzen (106-109) nehmen die Amplituden der Geschwindigkeit v , welche nur Komponenten in der x-y-Ebene besitzt, mit wachsender Höhe exponentiell mit dem Exponenten N^2/g zu, während die Druckamplituden mit dem Exponenten g/c^2 abnehmen. Dieser Exponent unterscheidet sich vom Exponenten des Abfalls des mittleren Drucks (66) um den Faktor $\kappa=1,4$ (für trockene Luft), d.h. die Amplituden von Lamb-Wellen fallen mit der Höhe langsamer ab als der mittlere Druck.

2. Der Phasenwinkel ϕ_z beträgt 0° .

Dieser Phasenwinkel entspricht dem experimentellen Befund am 11. Februar 1997. Nach Gleichung (149) gilt gleichzeitig auch

$$\mu_{zR} = 0 \quad (159)$$

was allerdings im Widerspruch zu der Beobachtung am 11. Februar 1997 steht. Die Dispersionsgleichung (152) vereinfacht sich damit zu

$$\left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2\right)(\sigma^2 + g\mu_{zI}) = \frac{\sigma}{g}(N^2 + g\mu_{zI})\left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 - (\mu_{zI} + \delta)\sigma\right) \quad (160)$$

Diese Gleichung wird zunächst durch die oben aufgeführten Ansätze (156-158) für Lamb-Wellen gelöst. Im Spezialfall $\sigma=N$ ermöglicht Gleichung (144) allerdings durchaus das Auftreten einer vertikalen Geschwindigkeitskomponente. Wie Walterscheid und Hecht darlegten, ist somit eine Kopplung zwischen Schwereoszillationen und Lamb-Wellen möglich, sofern σ nahe bei der Brunt-Väisälä-Frequenz N liegt [Walterscheid & Hecht, 2003]. Eine Wellenausbreitung in der x-y-Ebene mit Schallgeschwindigkeit wird durch die Dispersionsgleichung in zwei Fällen ermöglicht: Entweder gilt $\mu_{zI}=-N^2/g$ (Ansatz (157) für Lamb-Wellen), oder $\mu_{zI}=-\delta$ ist, d.h. die Amplituden der Geschwindigkeitskomponenten und damit auch der vertikalen Auslenkung nehmen mit wachsender Höhe mit dem Exponenten δ zu, während die Druckamplituden unabhängig von der Höhe sind.

3. Der Phasenwinkel φ_z beträgt 90° .

Laut Gleichung (149) muss in diesem Fall gelten

$$\mu_{zI} = \frac{\mu_x}{\sigma} \frac{\partial}{\partial z} v_0 - \delta \quad (161)$$

und aus dem Imaginärteil (155) der Dispersionsgleichung folgt, sofern μ_{zR} nicht verschwindet,

$$\mu_{zI} = \frac{g\mu^2}{\sigma^2} - \delta \quad (162)$$

Unter Vernachlässigung der Höhenabhängigkeit von v_0 muss somit die horizontale Wellenzahl μ verschwinden, während die imaginäre vertikale Wellenzahl μ_{zI} identisch mit $-\delta$ ist. Der Realteil (154) der Dispersionsgleichung vereinfacht sich damit sowie unter Verwendung von Beziehung (282) zu

$$0 = -\delta^2 + \frac{\sigma^2}{c^2} + \delta \frac{N^2}{g} - \mu_{zR}^2 = \frac{\sigma^2 - \delta g}{c^2} - \mu_{zR}^2 \quad (163)$$

Daraus ergibt sich

$$\sigma^2 = g\delta + \mu_{zR}^2 c^2 \quad (164)$$

als Schwingungsfrequenz für den Fall einer sich ausschließlich in vertikaler Richtung ausbreitenden Welle. Die minimal mögliche Frequenz für eine derartige Schwingung beträgt damit

$$\sigma_{\min} = \sqrt{g\delta} = \sqrt{N^2 + \frac{g^2}{c^2}} \quad (165)$$

Diese Frequenz erfüllt zusammen mit $\mu_{zI}=-\delta$ die Dispersionsgleichung (160) für eine rein imaginäre vertikale Wellenzahl, allerdings verschwindet laut Gleichung (144) in diesem Fall die Druckamplitude P . Dieses Ergebnis illustriert die Tatsache, dass Schwingungen, welche eine Druckänderung eines Luftpakets relativ zum Umgebungsdruck auf ihrem Höhenniveau

beinhalten (Vertikalgeschwindigkeit und Druck sind damit entlang der z-Achse gegeneinander phasenverschoben) wesentlich schneller ablaufen als Schwingungen, bei welchen kein horizontaler Druckgradient vorliegt. In diesem Fall ist die rücktreibende Kraft eine Konsequenz der Dichtedifferenz zwischen Luftpaket und Umgebung und die Brunt-Väisälä-Frequenz N stellt eine obere Grenze für diese Schwingungen dar.

Zusammengefaßt kann damit festgestellt werden: Im Fall eines Phasenwinkels φ_z (entlang der z-Achse) zwischen Druck und Vertikalgeschwindigkeit von 0° breiten sich Wellen ausschließlich in der x-y-Ebene aus, im Fall einer Verschiebung von 90° hingegen ausschließlich entlang der z-Achse. Die Lage der Phasenverschiebung lässt sich auch physikalisch begründen:

Die Existenz einer realen vertikalen Wellenlänge μ_{zR} bedeutet laut Ansatz (109), dass die Luftschichten auf den verschiedenen Höhengniveaus gegeneinander schwingen. Ohne Berücksichtigung des Korrekturflusses müssen die dazwischen liegenden Luftschichten periodisch komprimiert oder dekomprimiert werden. Somit sind Vertikalgeschwindigkeit und Druck entlang der z-Achse um 90° gegeneinander phasenverschoben. Umgekehrt gilt: Sofern Druck und Vertikalgeschwindigkeit entlang der z-Achse nicht gegeneinander phasenverschoben sind, muss ohne die Annahme eines Korrekturflusses die vertikale Luftsäule als Ganzes eine Vertikalschwingung ausführen, damit können sich Wellen nur in der x-y-Ebene ausbreiten.

9.3.6. Phasenverschiebungen für laufende Wellen

Zum Vergleich sollen in diesem Abschnitt die komplexen Ansätze (112-115) für laufende Wellen anstelle der Ansätze (106-109) auf das Gleichungssystem angewendet werden. Zur Vereinfachung sollen auch hier nur Wellen betrachtet werden, welche keinen Korrekturfluss erfordern. Im Gleichungssystem (135-138) muss der Übergang (126) vollzogen werden, d.h. die Tangensfunktion muss durch $-i$ ersetzt werden. Gleichung (135) verändert sich zu

$$\rho_s \left(\sigma v_{xa} e^{i\psi_x} + i e^{i\psi_z} \left(v_{za} \frac{\partial}{\partial z} \right) v_0 \right) - \mu_x P_a = 0 \quad (166)$$

Der Phasenwinkel ψ_x zwischen Druck und Geschwindigkeit in x-Richtung (parallel zur Erdoberfläche und in Windrichtung) kann damit nur, wie im Abschnitt 9.3.3, den Wert Null annehmen, wenn gleichzeitig entweder der Phasenwinkel ψ_z zwischen Druck und Vertikalgeschwindigkeit einen Wert von 90° oder -90° besitzt oder aber die Höhenabhängigkeit des Grundstroms v_0 vernachlässigbar ist. Der Phasenwinkel ψ_y zwischen Druck und Geschwindigkeit in y-Richtung (parallel zur Erdoberfläche und quer zur Windrichtung) hingegen muss, wie aus Gleichung (136) und Ansatz (114) folgt, stets verschwinden.

Die Gleichung (138) verändert sich nach dem Übergang und nach Einsetzen von Beziehung (166) und der entsprechenden y-Bewegungsgleichung zu

$$-i \left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 \right) P_a + \rho_s \left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 - (\mu_{zI} + \delta) \sigma + i \mu_{zR} \sigma \right) v_{za} e^{i\psi_z} = 0 \quad (167)$$

Nach analogem Vorgehen zum Abschnitt 9.3.5 kann eine Dispersionsgleichung erstellt werden. Die entstehende Gleichung ist identisch mit der Dispersionsgleichung (152), entsprechend können alle weiteren Betrachtungen zu dieser Gleichung aus dem Abschnitt 9.3.5 übernommen werden.

Der Zusammenhang zwischen den Wellenzahlen und dem Phasenwinkel ψ_z lässt sich (sofern die Vertikalgeschwindigkeit nicht Null ist) direkt aus dem Realteil dieser Gleichung ablesen. Es ergibt sich

$$\left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 - (\mu_{zI} + \delta) \sigma \right) \cos \psi_z - \sigma \mu_{zR} \sin \psi_z = 0 \quad (168)$$

und damit

$$\tan \psi_z = \frac{1}{\mu_{zR}} \left(\frac{\mu_x}{\sigma} \frac{\partial}{\partial z} v_0 - (\mu_{zI} + \delta) \right) \quad (169)$$

Im Fall eines Phasenwinkels von 90° muss somit der Realteil der vertikalen Wellenzahl μ_{zR} verschwinden, d.h. man würde entlang der z-Achse ausschließlich ein exponentielles Abfallen oder Anwachsen der Temperaturen beobachten. Im Fall eines Phasenwinkels von 0° wie auch 180° , d.h. der Betrag der Vertikalgeschwindigkeit wäre mit dem Betrag des Drucks in Phase, wäre hingegen der Imaginärteil μ_{zI} identisch mit $-\delta$, d.h. die Amplituden der Druckschwingung wären unabhängig von der Höhe. Es ergibt sich zudem nach analogem Vorgehen wie im Abschnitt 9.3.5, dass in dem Fall die horizontale Wellenzahl μ verschwinden muss. Auch dieses Ergebnis ist physikalisch verständlich:

Eine Phasenverschiebung von 0° zwischen dem Druck und der Geschwindigkeitskomponente in einer beliebigen Richtung entsteht durch die Übertragung des Impulses eines Luftpakets auf seinen Nachbarn in der Bewegungsrichtung des Luftpakets. Konsequenterweise muss eine Phasenverschiebung von 0° zwischen Druck und Vertikalgeschwindigkeit einer Wellenausbreitung in vertikaler Richtung entsprechen. Eine Phasengeschwindigkeit von 90° zwischen Vertikalgeschwindigkeit und Druck hingegen wurde für den Fall einer reinen Schwereoszillation erwartet (der mathematisch mögliche Phasenwinkel von -90° ist physikalisch unsinnig). Die gesamte Luftsäule gerät dabei nur aufgrund der Unterschiede zwischen ihrer eigenen Dichte und der Dichte der Umgebung in vertikale Schwingungen, und entlang der z-Achse können sich keine Wellen ausbilden. In dem Fall sind die Ansätze für laufende und für stehende Wellen entlang der z-Achse identisch.

9.3.7. Vertikale Schwingungen mit Korrekturfluss

Es wird nun zurückgekehrt zu den Ansätzen (106-109) für stehende Wellen entlang der z-Achse. Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106 zeigen die Abhängigkeit des Drucks von der Höhe, gemessen auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997. Der Druck der beprobten Luftpakete war offenbar zu jedem Zeitpunkt an den Umgebungsdruck auf dem jeweiligen Höhengniveau angepasst. Eine unmittelbare Anpassung des Drucks an die Umgebung lag auch der Herleitung der Brunt-Väisälä-Frequenz zugrunde (Anhang 12.5), sie stellt somit eine typische Eigenschaft der Atmosphäre dar. Zur messtechnischen Überprüfung dieses Sachverhalts bedarf es allerdings einer vom Druck unabhängigen Bestimmung der Höhe mittels GPS. Es können somit nur Luftpakete, welche sich vertikal bewegen, auch ihren Druck relativ zu ihrem Gleichgewichtsniveau verändern und der Phasenwinkel φ_z entlang der z-Achse muss stets 0° betragen (siehe die Ansätze (106-109)). Im Abschnitt 9.2.3 wurde bereits festgestellt, dass in diesem Fall die mathematische Beschreibung von Wellen entlang der z-Achse die Berücksichtigung des Korrekturflusses in der Kontinuitätsgleichung (93) und des Korrekturdrucks in der vertikalen Bewegungsgleichung (94) erfordert. Der Korrekturfluss ist somit eine Konsequenz des im Vergleich zur rücktreibenden Bewegung einer Schwereschwingung schnellen Druckausgleichs.

Begonnen wird mit der Gleichung (146). Diese lautet nun

$$f_s e^{i\mu_z z_0} \left\{ \left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 \right) P_a - \rho_S v_{za} \left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z} v_0 + (i\mu_z - \delta) \sigma \right) \right\} + \rho_S \sigma \nabla_0 \vec{v}_C = 0 \quad (170)$$

Diese Gleichung lässt sich zunächst in Realteil und Imaginärteil zerlegen. Diese wiederum können erneut in zwei Teile zerlegt werden, von welchen einer aller Terme enthält, welche den Ausdruck $\cos(\mu_{zR} z_0)$ beinhalten, während der andere alle Terme enthält, in welchen der Ausdruck $\sin(\mu_{zR} z_0)$ vorkommt. Erstere Gleichung soll im Folgenden als symmetrischer Real- bzw. Imaginärteil, letztere als asymmetrischer Real- bzw. Imaginärteil bezeichnet werden. Begonnen wird mit dem asymmetrischen Realteil der Gleichung (146). Dieser kann bei Auftreten einer komplexen oder rein realen vertikalen Wellenzahl nur durch den Korrekturstrom v_C erfüllt werden und lautet damit unter Ausschreiben der Sinusfunktion f_s

$$\mu_{zR} v_{za} \sin(\mu_x x + \mu_y y - \omega t) \sin(\mu_{zR} z_0) e^{-\mu_{zI} z_0} + \text{Re}(\nabla_0 \vec{v}_C) = 0. \quad (171)$$

Wie bereits im Abschnitt 9.2.3 dargelegt, verfügt der Korrekturstrom v_C lediglich über eine x- und y-Komponente. Mathematisch sind für diese Gleichung mehrere Lösungen möglich, insbesondere ist das Verhältnis der Korrekturflüsse in x- und y-Richtung nicht festgelegt. Allgemein soll deshalb formuliert werden

$$v_C = \frac{\mu_{zR}}{\mu} v_{za} \cos(\vec{\mu} \vec{r} - \omega t) e^{i\left(\mu_{zR} z_0 - \frac{\pi}{2}\right)} e^{-\mu_{zI} z_0}, \quad (172)$$

wobei der Vektor r wie die Wellenzahl μ nur über eine x- und y-Komponente verfügt.

Nach der Bewegungsgleichung (105) ist der Korrekturfluss v_C mit dem Auftreten eines Korrekturdrucks P_C verbunden. Einsetzen des Ansatzes (172) in diese Gleichung liefert unter Benutzung der Beziehungen (71) und (118)

$$P_C = i\rho_S \sigma \frac{\mu_{zR}}{\mu^2} v_{za} f_C e^{i\mu_{zR} z_0} e^{-(\mu_{zI} + \delta) z_0} \quad (173)$$

Die Ableitung nach der Gleichgewichtshöhe z_0 und anschließend nach der Zeit lautet damit

$$\frac{d_0}{dt} \frac{\partial P_C}{\partial z_0} = -(\mu_{zR} + i(\mu_{zI} + \delta)) \rho_S \sigma^2 \frac{\mu_{zR}}{\mu^2} v_{za} f_s e^{(i\mu_z - \delta) z_0} \quad (174)$$

Realteil und Imaginärteil der vertikalen Bewegungsgleichung (144) lauten damit im Fall eines Phasenwinkels φ_z von 0°

$$\rho_S g \left(\sigma^2 \left(1 + \frac{\mu_{zR}^2}{\mu^2} \right) + g\mu_{zI} \right) v_{za} - \sigma (N^2 + g\mu_{zI}) P_a = 0 \quad (175)$$

$$\rho_S \left(g - \sigma^2 \frac{(\mu_{zI} + \delta)}{\mu^2} \right) v_{za} - \sigma P_a = 0 \quad (176)$$

Aus der Verknüpfung beider Gleichungen ergibt sich

$$\sigma^2 \left(\mu^2 + \mu_{zR}^2 + \left(\frac{N^2}{g} + \mu_{zI} \right) (\mu_{zI} + \delta) \right) = N^2 \mu^2 \quad (177)$$

bzw. nach Ausmultiplizieren von N unter Verwendung von Beziehung (282)

$$\sigma^2 \left(\mu^2 + \mu_{zR}^2 + (\mu_{zI} + \delta)^2 - \frac{g}{c^2} (\mu_{zI} + \delta) \right) = N^2 \mu^2 \quad (178)$$

Wenn der Term $\sigma^2(\mu_{zI}+\delta)/\mu^2$ klein gegenüber g ist, kann die Gleichung (176) angenähert werden als

$$\rho_S g v_{za} - \sigma P_a = 0 \quad (179)$$

Diese Gleichung muss nun aber exakt erfüllt sein im Fall einer ständigen Druckanpassung eines vertikal ausgelenkten Luftpakets an die Umgebung, wie sich leicht überprüfen lässt (laut Gleichung (141) gilt $v_{za} = \sigma P_a$, die Gleichung entspricht damit Gleichung (265)). Mit anderen Worten, eine ständige Druckanpassung würde verlangen dass μ_{zI} identisch mit $-\delta$ ist, d.h. die Amplituden der Geschwindigkeitskomponenten und damit auch der vertikalen Auslenkung nehmen mit wachsender Höhe mit dem Exponenten δ zu, während die Druckamplituden unabhängig von der Höhe sind. Bei hinreichend kleinem Term $\sigma^2(\mu_{zI}+\delta)/\mu^2$ ist diese Bedingung aber auch für andere Exponenten μ_{zI} erfüllt. Wenn zudem die horizontale Ausdehnung der schwingenden Luftmasse viel größer ist als die vertikale Ausdehnung, d.h. der Quotient $(\mu_{zR}/\mu)^2$ ist groß gegen 1, folgt aus Gleichung (175) die einfache Dispersionsgleichung

$$\frac{\sigma^2}{\mu^2} = \frac{N^2}{\mu_{zR}^2} \quad (180)$$

Diese Gleichung entspricht, sofern μ_{zI} klein gegen μ_{zR} und σ groß gegenüber der Frequenz der Erdumdrehung ist, der Dispersionsgleichung von Andrews et al. (Gleichung (88) im Abschnitt 9.2.2). Andrews et al. erhielten ihre Dispersionsgleichung unter der vereinfachten Annahme, dass sich die Dichte auf einem bestimmten Druckniveau nicht verändert. Auf den Niveaus, auf welchen die Beträge von Korrekturfluss und Korrekturdruck ihre Maximalwerte erreichen (durch diese Korrekturgrößen wurde die horizontale Wellenzahl μ auch in die vertikale Bewegungsgleichung eingeführt) ist diese Annahme allerdings erfüllt.

Der symmetrische Imaginärteil der Gleichung (146) (d.h. alle Terme des Imaginärteils, welche den Ausdruck $\cos(\mu_{zz})$ enthalten) benötigt ebenfalls einen Korrekturfluss und der Ausdruck $\nabla_0 v_c$ besitzt somit einen asymmetrischen Realteil und einen symmetrischen Imaginärteil. Die übrigen zwei Komponenten der Gleichung (146) (symmetrischer Realteil und asymmetrischer Imaginärteil) enthalten damit keinen Korrekturfluss und liefern beide den Ausdruck

$$\left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 \right) P_a - \rho_S \left(\mu_x \frac{\partial}{\partial z_0} v_0 - (\mu_{zI} + \delta) \sigma \right) v_{za} = 0 \quad (181)$$

Mit Ausnahme der horizontalen Wellenzahl μ sind im Fall des 11. Februar 1997 alle Größen dieser Gleichung bekannt. Im Abschnitt 10.3 wird entsprechend eine Bestimmung von μ aus einerseits aus Gleichung (181), andererseits aus den Gleichungen (175) bzw. (180) vorgenommen. Dabei ergeben sich allerdings Diskrepanzen von einer Größenordnung.

Vermutet wird, wie im Abschnitt 10.3 noch dargelegt wird, dass die Ursache in einer zu groben Näherung bei Aufstellung der horizontalen Bewegungsgleichung besteht, d.h. die Gleichung (181) bietet im Gegensatz zu den Gleichungen (175) bzw. (180) keine korrekte Beschreibung des Systems. Gleichung (181) lässt sich mit Gleichung (175) oder (176) kombinieren. Die im Ergebnis entstehenden Gleichungen, nach welchen die Frequenz σ und die horizontale Wellenlänge μ unabhängig voneinander aus Real- und Imaginärteil der vertikalen Wellenzahl μ_z bestimmbar wären, liefern entsprechend ebenfalls keine sinnvollen Werte, sollen hier aber pro forma niedergeschrieben werden. Aus der Gleichung (181) folgt nach Einsetzen von (176)

$$\left(\frac{\sigma^2}{c^2} - \mu^2 \right) g - (\mu_{zI} + \delta) \frac{\sigma^2}{\mu^2} \left(\frac{\sigma^2}{c^2} - 2\mu^2 \right) - \sigma \mu_x \frac{\partial}{\partial z_0} v_0 = 0 \quad (182)$$

Unter Vernachlässigung der Höhenabhängigkeit der Geschwindigkeit v_0 ergibt sich zunächst eine einfache Lösung für den Fall $\mu_{zI} = -\delta$. Die entstehenden Wellen breiten sich in der x-y-Ebene mit Schallgeschwindigkeit aus. Falls zudem auch μ_{zR} verschwindet, d.h. die Luftsäule schwingt vertikal als Ganzes, und somit auch kein Korrekturfluss auftritt, entspricht die intrinsische Frequenz σ laut Gleichung (178) der Brunt-Väisälä-Frequenz N. Falls μ_{zR} hingegen nicht mit $-\delta$ identisch ist, kann die Gleichung (182) umgestellt werden zu

$$\frac{\sigma^2}{\mu^2} = \frac{g}{2(\mu_{zI} + \delta)} + c^2 \pm \sqrt{\frac{g^2}{4(\mu_{zI} + \delta)^2} + c^4} = 0 \quad (183)$$

9.3.8. Verhältnis der Amplituden von Gradientenfluss und Korrekturfluss

Schließlich soll nun noch das Verhältnis der Amplituden von Gradientenfluss und Korrekturfluss bestimmt werden. Die Kontinuitätsgleichung (90) für den Spezialfall einer ständigen Druckanpassung an die Umgebung lautet unter getrennter Schreibung von v und v_c und unter Zusammenfassung der x- und y-Koordinaten zu r

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial \vec{r}} + \frac{\partial \vec{v}_c}{\partial \vec{r}} = \left(\frac{g}{c^2} + \delta \right) v_z - \frac{\partial v_z}{\partial z_0} \quad (184)$$

Da v und v_z entlang der z-Achse um 90° phasenverschoben gegenüber v_c sind, lässt sich diese Gleichung nun in zwei Teilgleichungen zerlegen. Unter Verwendung der Ansätze (107-109) für die Vertikalgeschwindigkeit folgt für den Anteil, welcher v enthält

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial \vec{r}} = -\bar{\mu} \vec{v} f_t = \left(\frac{g}{c^2} + \delta + \mu_{zI} \right) v_z \quad (185)$$

Das Verhältnis der Amplituden von vertikalem Fluss und Vertikalauslenkung ist aus Gleichung (141) im Abschnitt 9.3.3 bekannt. Für die Beziehung zwischen den Amplituden von Gradientenfluss und vertikalem Fluss bzw. Vertikalauslenkung gilt damit

$$\mu v_a = \left(\frac{g}{c^2} + \delta - \mu_{zI} \right) v_{za} = \left(\frac{g}{c^2} + \delta - \mu_{zI} \right) \sigma s_a \quad (186)$$

Für die Beziehung zwischen den Amplituden von Korrekturfluss und vertikalem Fluss bzw. Vertikalauslenkung ergibt sich aus Beziehung (172) im

$$\mu v_{ca} = \mu_{zR} v_{za} = \mu_{zR} \sigma s_a \quad (187)$$

und für das Verhältnis zwischen den Amplituden von Gradienten- und Korrekturfluss somit

$$\frac{v_a}{v_{ca}} = \frac{1}{\mu_{zR}} \left(\frac{g}{c^2} + \delta + \mu_{zI} \right) \quad (188)$$

Im Fall des 11. Februar 1997 lag dieses Verhältnis bei einer vertikalen Wellenlänge von 4-6 km und bei vernachlässigbarem Exponent μ_{zI} zwischen 0,18 und 0,27 d.h. der überwiegende Anteil des horizontalen Flusses sollte in Form des Korrekturflusses und damit im Mixing Layer (Abschnitt 9.2.3) auftreten.

9.4. Mögliche ursächliche Erklärungen der Ausbildung einer stehenden Welle

9.4.1. Reflektierte Welle

Im Abschnitt 8.1 wurde dargelegt, dass es sich bei den am 11. Februar 1997 beobachteten Temperaturfluktuationen, welche wahrscheinlich für die Ausbildung der ClO-Doppelpeak-Struktur hauptverantwortlich waren, offenbar um einen sekundären Prozess handelte, d.h. es lag eine vertikal regelmäßig geschichtete Struktur der Atmosphäre vor, welche in Schwingungen geriet. Dieser sekundäre Prozess lässt sich durch das Gleichungssystem (101-105), bestehend aus Bewegungsgleichung, Kontinuitätsgleichung, Adiabatenbeziehung und Bewegungsgleichung für den Korrekturstrom beschreiben. Offen blieb jedoch bislang die Frage nach dem Primärprozess, welcher zur Ausbildung dieser regelmäßigen Struktur führte. In diesem und dem nächsten Abschnitt sollen mögliche Ansätze verfolgt werden.

Angenommen, eine laufende Welle, welche sich mittels des Ansatzes (112-115) beschreiben lässt, wird an einer parallel zur x-y-Ebene verlaufenden Fläche reflektiert. Um die reflektierte Welle zu erhalten, müssen nun in den Ansätzen (112-115) die Vorzeichen der realen vertikalen Wellenzahl μ_{zR} , der Amplitude der Vertikalgeschwindigkeit v_{za} sowie des Phasenwinkels ψ_z invertiert werden. Man erhält damit den folgenden Ansatz für die reflektierte Welle:

$$P = P_a e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \mu_{zR} z_0 - \omega t)} e^{-(\mu_{zI} + \delta) z_0} = P_a F e^{-i\mu_{zR} z_0} e^{-\delta z_0} \quad (189)$$

$$v_x = v_{xa} e^{i\psi_x} e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \mu_{zR} z_0 - \omega t)} e^{-\mu_{zI} z_0} = v_{xa} F e^{i\psi_x} e^{-i\mu_{zR} z_0} \quad (190)$$

$$v_y = v_{ya} e^{i\psi_y} e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \mu_{zR} z_0 - \omega t)} e^{-\mu_{zI} z_0} = v_{ya} F e^{i\psi_y} e^{-i\mu_{zR} z_0} \quad (191)$$

$$v_z = -v_{za} e^{-i\psi_z} e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \mu_{zR} z_0 - \omega t)} e^{-\mu_{zI} z_0} = -v_{za} F e^{-i\psi_z} e^{-i\mu_{zR} z_0} \quad (192)$$

Wenn der Phasenwinkel ψ_z einen Wert von 90° annimmt, wären die Ansätze (115) und (192) für die einlaufende und reflektierte Welle miteinander gerade dann identisch, wenn μ_{zR} den Wert Null besitzt. Das deckt sich jedoch mit der Feststellung aus dem Abschnitt 9.3.6, dass im Fall eines Phasenwinkels von 90° sich die Wellen nur in der x-y-Ebene ausbreiten und somit auch keine Reflexion zustande kommen kann.

Eine Addition von einfallender und reflektierter Welle liefert schließlich

$$P e^{\delta z_0} = P_a F \left(e^{i\mu_{zR} z_0} + e^{-i\mu_{zR} z_0} \right) = 2 P_a e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)} e^{-\mu_{zI} z_0} \cos(\mu_{zR} z_0) \quad (193)$$

$$v_x = v_{xa} F e^{-i\psi_x} \left(e^{i\mu_{zR} z_0} + e^{-i\mu_{zR} z_0} \right) = 2 v_{xa} F e^{-i\psi_x} \cos(\mu_{zR} z_0) \quad (194)$$

$$v_y = v_{ya} F e^{-i\psi_y} \left(e^{i\mu_{zR} z_0} + e^{-i\mu_{zR} z_0} \right) = 2v_{ya} F e^{-i\psi_y} \cos(\mu_{zR} z_0) \quad (195)$$

$$v_z = v_{za} F \left(e^{i(\mu_{zR} z_0 + \psi_z)} - e^{-i(\mu_{zR} z_0 + \psi_z)} \right) = 2v_{za} F i \sin(\mu_{zR} z_0 + \psi_z) \quad (196)$$

Voll ausgeschrieben lauten diese Gleichungen

$$P = 2P_a e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)} e^{-(\mu_{zI} + \delta)z_0} \cos(\mu_{zR} z_0) \quad (197)$$

$$v_x = 2v_{xa} e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)} e^{-\mu_{zI} z_0} \cos(\mu_{zR} z_0) \quad (198)$$

$$v_y = 2v_{ya} e^{i(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)} e^{-\mu_{zI} z_0} \cos(\mu_{zR} z_0) \quad (199)$$

$$v_z = 2v_{za} e^{i\left(\mu_x x + \mu_y y - \omega t + \frac{\pi}{2}\right)} e^{-\mu_{zI} z_0} \cos\left(\mu_{zR} z_0 + \psi_z - \frac{\pi}{2}\right) \quad (200)$$

Diese Gleichungen beschreiben eine stehende Welle entlang der z-Achse. Die Realteile dieser Gleichungen stimmen offensichtlich mit den Realteilen der Ansätze (106-109) überein, sofern die Geschwindigkeitskomponenten v_x und v_y mit dem Druck in Phase sind, während die Vertikalgeschwindigkeit v_z entlang der x-Achse gerade 90° außer Phase mit dem Druck ist. Im Abschnitt 9.3.3 wurde jedoch genau diese Variante bereits als sinnvolle Lösung des Gleichungssystems festgestellt.

Für die Phasenverschiebung entlang der z-Achse kann festgestellt werden: Wenn in der ursprünglichen laufenden Welle Druck und Vertikalgeschwindigkeit in Phase sind, d.h. $\psi_z=0^\circ$, sind sie in der stehenden Welle entlang der z-Achse um 90° außer Phase, der Druck in den schwingenden Luftmassen stimmt dann aber nicht mehr mit dem Umgebungsdruck überein. Um diesen Zustand herzustellen, muss ein Umschlagen zu einem Phasenwinkel von 0° und gleichzeitig die Ausbildung des Korrekturflusses stattfinden.

Der Beobachtungsbereich des TRIPLE-Ballons lag, wie im Abschnitt 10.4 noch detaillierter gezeigt wird, zwischen zwei Unstetigkeitsniveaus der Atmosphäre, der Tropopause bei etwa 11 km Höhe und dem Umkehrpunkt des Temperaturtrends bei etwa 22 km Höhe, an welchen durchaus eine Reflexion stattgefunden haben kann. Wie aus Abb. 10.5 hervorgeht, lag die Brunt-Väisälä-Frequenz, die Eigenfrequenz einer Schwerschwingung, im Höhenbereich von 8-10 km (knapp unterhalb der Tropopause) um den 11. Februar 1997 zeitweilig um den Faktor 4 unter der Brunt-Väisälä-Frequenz für den Bereich zwischen 12 und 22 km Höhe, während die Unterschiede zum Bereich oberhalb von 22 km Höhe gering ausfällt. Die Ausbildung einer stehenden Welle allein erzeugt aber noch keine wellenartige Struktur der mittleren Windgeschwindigkeiten oder eines chemisch inerten Tracers wie Ozon, wie am 11. Februar 1997 beobachtet. Eine Destabilisierung einer stehenden Welle im Wirbelrandbereich kann aber prinzipiell dazu führen, dass es entlang der z-Achse in regelmäßigen Abständen zu Einmischungen kommt.

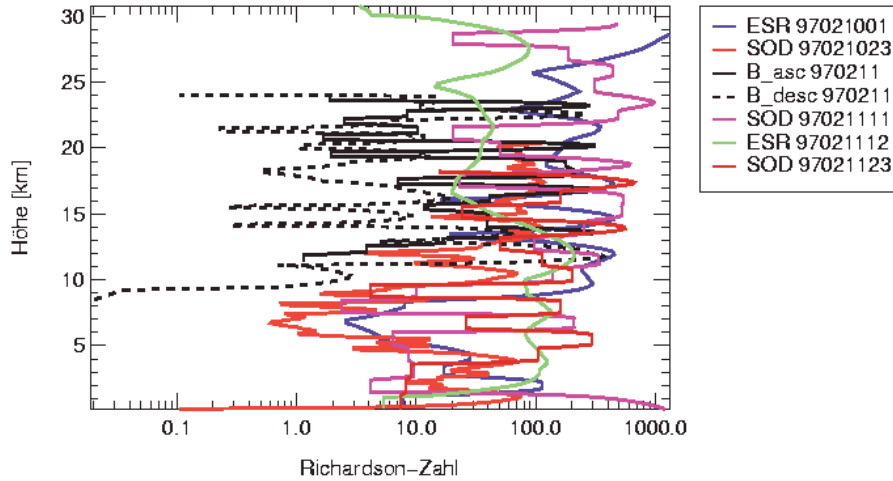


Abb. 9.5: Richardson-Zahlen, bestimmt aus den Daten des TRIPLE-Ballons und der Radiosonden des 10. und 11. Februar 1997. Die Abkürzungen bedeuten: ESR YYMMDDHH und SOD YYMMDDHH: Sonde gestartet in Esrange bzw. Sodankylä zum angegebenen Zeitpunkt, B_asc 970211 und B_desc 970211: Aufstiegs- und Abstiegsmessungen des TRIPLE-Ballons.

9.4.2. Durch Windscherung angeregte Turbulenzen

Bei den Jetstreams (Strahlströmen) handelt es sich um ein Westwindssystem in etwa 12 km Höhe, welches durch die Temperaturunterschiede zwischen dem Äquator und den Polen und die Ablenkung der ausgleichenden Bewegung der Luft durch die Corioliskraft erzeugt wird und durchaus Windgeschwindigkeiten von 100 m/s erreichen kann. Diese Jetstreams stellen die wichtigste Quelle für Turbulenz im Tropopausenbereich dar [Luce et al., 2002]. Als Maß für die Turbulenz gilt dabei die Richardson-Zahl Ri [Pichler, 1986]

$$Ri = N^2 \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)^{-2} = \frac{g}{\Theta} \frac{\partial \Theta}{\partial z} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)^{-2} \quad (201)$$

Der Zusammenhang zwischen der Brunt-Väisälä-Frequenz N und der Höhenableitung der Potentiellen Temperatur z folgt dabei aus Gleichung (68). Während, wie im Anhang 12.5 dargelegt, N ein Maß für die Stabilität der vertikalen Schichtung der Atmosphäre darstellt, sorgt ein hoher Gradient der horizontalen Windgeschwindigkeit v entlang der z -Achse für eine Destabilisierung. Es wird angenommen, dass Turbulenz entsteht, sobald Ri diese Größe den Wert 0,25 unterschreitet [Pichler, 1986]. In Abb. 9.5 sind die aus den Messwerten des TRIPLE-Ballons sowie der Radiosonden vom 10. und 11. Februar 1997 ermittelten Richardson-Zahlen dargestellt. Deutlich zu erkennen ist eine Verminderung der Werte im Bereich zwischen 5 und 10 km Höhe im Profil der Sodankylä-Sonde vom 10. Februar, welcher im Zusammenhang mit dem im gleichen Profil beobachteten Windpeak mit Spitzenwerten von 40 m/s (Abb. 6.12 und Abb. 6.13) steht. Ein Unterschreiten des kritischen Wertes von 0,25 tritt nur im Abstiegs-Profil des TRIPLE-Ballons auf. Aufgrund der statistischen Schwankungen insbesondere der Geschwindigkeit ist die Bestimmung der Richardson-Zahl allerdings mit großen Unsicherheiten verbunden und abhängig vom Höhenintervall, auf welchem die Ableitungen von θ und v bestimmt werden. Es kann prinzipiell nicht ausgeschlossen werden, dass auch der am 10. Februar 1997 beobachtete Windpeak zur Entstehung von Turbulenzen führte.

Joseph et al. legten mittels einer Modellstudie dar, dass es infolge dieser angeregten Turbulenzen zu einer Umverteilung von thermischer und kinetischer Energie kommt [Joseph et al., 2003]. Im Ergebnis entsteht ein wellenartiges Profil der Zustandsgrößen Dichte,

Temperatur und Geschwindigkeit entlang der Höhenachse sowohl oberhalb als auch unterhalb des Jetstreams, und es kann auch zu Mischungsvorgängen sowie, nach Abflauen des Windes, zu Ausgleichsschwingungen kommen. Skalenlängen der inneren Dynamik des Jetstreams von der Größenordnung zwischen 10 und 100 m erzeugen dabei Turbulenzen mit einer Skalenlänge der Größenordnung von 1 km. Joseph et al. weisen darauf hin, dass diese turbulenten Strukturen häufig mit Schwerewellen (deren rücktreibende Kraft die Schwer- und Auftriebskraft darstellt) verwechselt werden.

9.4.3. Überquerung eines Hindernisses: Der Scorer-Parameter

Wenn ein horizontaler Luftstrom auf ein Hindernis trifft, wird er in die vertikale Richtung abgelenkt. Das Verhalten an diesem Hindernis lässt sich mittels der Gleichung

$$\frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial z^2} + L^2 \hat{v}_z = 0 \quad (202)$$

mit

$$\hat{v}_z = v_z e^{-\delta z} \quad (203)$$

beschreiben. Diese Gleichung definiert den Scorer-Parameter L . Wie im Anhang 12.7 gezeigt, erhält man für diesen Parameter unter bestimmten Annahmen (Höhenunabhängigkeit von N und v_0) den Ausdruck

$$L^2 = \frac{N^2}{v_0^2} \quad (204)$$

Die physikalische Bedeutung des Scorer-Parameters wird ersichtlich, wenn man die Dauer einer Schwereoszillation T_N (dem Inversen der Brunt-Väisälä-Frequenz N) mit der Dauer T_a des Überfluges über ein Hindernis der Länge $2a$ vergleicht. Es ergibt sich

$$\frac{T_a}{T_N} = \frac{2a}{v_0} \frac{N}{2\pi} \approx \frac{aL}{\pi} \quad (205)$$

Bei einer festen Ausdehnung a des Hindernisses beschreibt der Scorer-Parameter somit angenähert das Verhältnis zwischen diesen Zeiten. Auch wenn die Brunt-Väisälä-Frequenz N und die Grundstrom-Geschwindigkeit v_0 im üblichen Maß von der Höhe abhängen, stellt Gleichung (204) stellt noch eine gute Näherung für den Scorer-Parameter L (definiert durch Gleichung (202)) dar [Pichler, 1986], welcher damit in der unteren Stratosphäre mit zunehmender Höhe abnehmen sollte. Diese Bedingung muss in der Tat erfüllt sein, damit hinter dem Hindernis Leewellen auftreten können [Scorer, 1949, Smith, 1979, Pichler, 1986]. Allerdings ist in diesem Fall die Gleichung (202) nicht mehr analytisch lösbar. Zur Betrachtung in erster Näherung soll deshalb von der Annahme einer konstanten Brunt-Väisälä-Frequenz abgegangen und statt dessen ein konstanter Scorer-Parameter L angenommen werden. In dem Fall wird Gleichung (202) durch den Ansatz

$$\hat{v}_z = \hat{v}_{za} \exp\left(iz\sqrt{L^2 - \mu_x^2} + ix\mu_x\right) \quad (206)$$

erfüllt. Dieser Ansatz gilt jedoch nur für eine einzelne Wellenzahl μ_x . Der wahre Verlauf der Vertikalgeschwindigkeit über dem Hindernis stellt eine Superposition von Sinuswellen mit verschiedenen Wellenzahlen dar, d.h.

$$\hat{v}_z(x, z) = \operatorname{Re} \int_0^{\infty} \hat{v}_{za}(\mu_x) \exp\left(i\sqrt{L^2 - \mu_x^2} z + i\mu_x x\right) d\mu_x \quad (207)$$

Die Abhängigkeit der Amplitude v_{za} von der Wellenzahl μ_x wird dabei durch das Profil des Hindernisses vorgegeben, welches sich ebenfalls als eine Superposition von Sinuswellen beschreiben lässt. Ein glockenförmiges Profil wird z. B. durch

$$h(x) = h_a \frac{a^2}{a^2 + x^2} = \operatorname{Re} \int_0^{\infty} h_a a \exp(-\mu_x a) (i\mu_x x) d\mu_x \quad (208)$$

beschrieben. Je kleiner die Breite a des Hindernisses ist, um so größere Wellenzahlen μ_x liefern noch einen signifikanten Beitrag zu diesem Integral. Aus der Kombination ergibt sich der Ansatz

$$\hat{v}_z(x, z) = \operatorname{Re} v_0(0) h_a a i \int_0^{\infty} \mu_x \exp\left(i\sqrt{L^2 - \mu_x^2} z + i\mu_x x - \mu_x a\right) d\mu_x \quad (209)$$

für das Geschwindigkeitsprofil über einem glockenförmigen Hindernis [Pichler, 1986]. Diese Gleichung ist im Allgemeinen nicht analytisch lösbar, in zwei Grenzfällen ergeben sich jedoch einfache Lösungen. Diese Grenzfälle sollen anhand von Gleichung (206) erläutert werden. Die zweifachen Ableitungen nach x bzw. z liefern

$$\frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial x^2} = -\mu_x^2 \hat{v}_z \quad (210)$$

$$\frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial z^2} = -(L^2 - \mu_x^2) \hat{v}_z \quad (211)$$

Entlang der x -Achse baut sich eine Welle mit der Wellenzahl μ_x auf. Das Vorzeichen der Differenz zwischen den Quadraten von L und der Wellenzahl μ_x entscheidet darüber, ob entlang der z -Achse ebenfalls eine Welle entsteht oder ein exponentieller Abfall vorliegt. Wenn sowohl der Scorer-Parameter L als auch a , die Breite des überströmten Hindernisses, sehr kleine Werte annehmen, ist laut Gleichung (205) die Überströmzeit sehr klein gegenüber der Periode einer Schwereschwingung. Der Scorer-Parameter L kann nun vernachlässigt werden, und es tritt der aperiodische Grenzfall ein. Pichler gibt folgende Lösung für die Auslenkung beim Überströmen eines glockenförmigen Hindernisses an

$$s = \frac{v_0(0)}{v_0(z)} e^{\delta z} \frac{h_a a(a + z)}{(a + z)^2 + x^2} \quad (212)$$

[Pichler, 1986]. Die Vertikalgeschwindigkeit erhält man durch Ableitung dieser Gleichung nach x . Wenn umgekehrt L und a große Werte annehmen, ist laut Gleichung (205) die Überströmzeit groß gegenüber der Periode einer Schwereschwingung. Zum Gesamtintegral tragen nun nur kleine Wellenzahlen μ_x nennenswert bei, welche gegenüber L vernachlässigt werden können. Gleichung (202) wird damit durch Gleichung (211) ersetzt. Entlang der z -Achse bildet sich eine Wellenstruktur mit der Wellenzahl L . Es tritt der periodische Grenzfall ein, dessen Lösung für den Fall eines glockenförmigen Hindernisses die Form

$$s = \frac{v_0(0)}{v_0(z)} e^{\delta z} h_a a \frac{a \cos Lz - x \sin Lz}{a^2 + x^2} \quad (213)$$

annimmt [Pichler, 1986]. Im Gegensatz zum aperiodischen Grenzfall hängt die Auslenkung unmittelbar über dem Hindernis, d.h. für $x=0$, nicht mehr von der Länge a des überquerten Hindernisses ab, sondern nur noch von dessen Höhe.

Sowohl im aperiodischen als auch im periodischen Grenzfall baut sich entlang der x -Achse keine Welle auf. Derartige Wellen lassen sich nur unter der Annahme eines mit der Höhe abnehmenden Scorer-Parameters L erzielen [Scorer, 1949, Smith, 1979, Pichler, 1986]. Diese Annahme wäre laut (204) in Übereinstimmung mit der Annahme einer höhenunabhängigen Brunt-Väisälä-Frequenz und einer mit wachsender Höhe zunehmenden Geschwindigkeit. In dem Fall lässt sich das System aber nicht mehr einfach analytisch lösen, deshalb soll er hier auch nicht weiter verfolgt werden. Es sei lediglich auf Gleichung (206) verwiesen. Aus dieser ergibt sich aus einer Abnahme des Scorer-Parameters L mit zunehmender Höhe die Konsequenz, dass für eine Auswahl von Wellenzahlen unmittelbar über dem Hindernis noch Wellen sowohl parallel zur x - als auch zur z -Achse angeregt werden, auf einer bestimmten Höhe und einem bestimmten Scorer-Parameter jedoch die vertikale Wellenkomponente verschwindet. Die Welle wird damit auf dieser Höhe reflektiert. Stromabwärts bilden sich nun stationär zum Hindernis die sogenannten Leewellen aus.

Analog zur Behandlung von Interferenzen im vorigen Abschnitt gilt auch hier: Die Überquerung eines Hindernisses allein führt noch nicht zu einer wellenartigen Struktur chemisch inerter Tracer. Aber auch hier kann eine Destabilisierung der entstandenen Struktur prinzipiell dazu führen, dass es entlang der z -Achse in regelmäßigen Abständen zu Einmischungen kommt und schließlich eine Struktur chemischer Tracer oder auch der Windgeschwindigkeiten entsteht, wie sie am 11. Februar 1997 beobachtet wurde. Als Hindernis können nicht nur Gebirge dienen, sondern auch angehobene Luftmassen, eine Veränderung von deren Position hat damit auch eine Destabilisierung der über diesem Hindernis entstandenen Struktur zur Folge. Wie im Abschnitt 6.1.2 erläutert, traten um den 11. Februar 1997 keine orographischen, durch Gebirge induzierte, Leewellen auf, sehr wohl aber eine Anhebung der Tropopause. Die Scorer-Theorie erlaubt nun eine Abschätzung der bei hinreichend langgestreckten Hindernissen zu erwartenden vertikalen Wellenzahl L .

Ein höhenunabhängiger Scorer-Parameter L für einen ausgewählten Höhenabschnitt der Atmosphäre kann wie folgt ermittelt werden: In Gleichung (204) kann die Brunt-Väisälä-Frequenz durch Gleichung (68) ersetzt werden

$$L^2 = \frac{1}{v_0^2} \left(-\frac{g}{\rho_0} \frac{\partial \rho_0}{\partial z} + \frac{g}{\kappa} \frac{1}{P_0} \frac{\partial P_0}{\partial z} \right) = \frac{1}{A} \frac{g}{v_0^2} \frac{\partial}{\partial z} A \quad (214)$$

mit

$$A = \frac{1}{\rho_0} (P_0)^{\frac{1}{\kappa}} \quad (215)$$

Des weiteren soll angenommen werden, dass gilt

$$v_0 = \alpha(z - z_a) \quad (216)$$

Daraus folgt

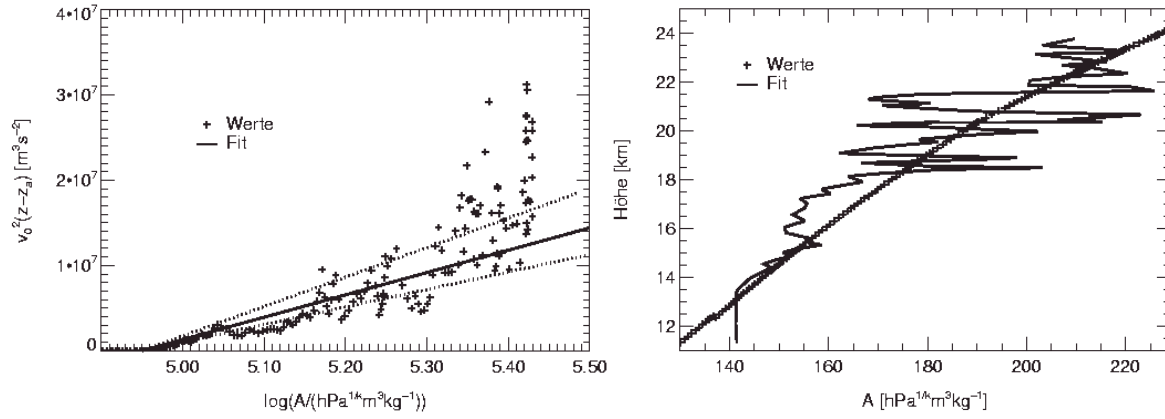


Abb. 9.6 a und b : Bestimmung des Scorer-Parameter am Beispiel des Aufstiegs der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997. Dargestellt sind die Größen der Gleichung (219). Der Geradenanstieg in Abb. a entspricht einem Scorer-Parameter L von etwa $1,1 \text{ km}^{-1}$ und damit einer Scorer-Länge π/L von etwa $3,0 \text{ km}$, die gestrichelten Linien geben Fehlerabschätzungen an und entsprechen Scorer-Längen von $2,6$ bzw. $3,4 \text{ km}$. In Abb. b sind die Messwerte für A sowie die sich ergebende Anpassung von A an die Höhe dargestellt. Der Fit ist verrauscht, nicht die Messwerte (siehe Text)!

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(v_0^2 (z - z_a) \right) = \alpha^2 \frac{\partial}{\partial z} \left((z - z_a)^3 \right) = 3\alpha^2 (z - z_a)^2 = 3v_0^2 \quad (217)$$

und somit

$$\frac{1}{3v_0^2} \frac{\partial}{\partial z} A = \frac{\partial}{\partial (v_0^2 (z - z_a))} A = \frac{L^2}{3g} A \quad (218)$$

bzw.

$$\frac{(P_0)^{\frac{1}{\kappa}}}{\rho_0} = A = A_0 \exp \left(\frac{L^2}{3g} v_0^2 (z - z_a) \right) \quad (219)$$

Der Scorer-Parameter L kann somit aus einer Linearanpassung der Geschwindigkeit v_0 an die Höhe z , welche den Parameter z_a liefert, und einer anschließenden Anpassung der Exponentialfunktion A gewonnen werden. Wie in Abb. 9.6 b gezeigt, ist die Anpassung wesentlich stärker verrauscht als die Werte selbst, da zur Berechnung der Anpassung die Windgeschwindigkeit v_0 eingeht. Die Annahme eines höhenunabhängigen Scorer-Parameters kann, sofern v_0 nicht ebenfalls höhenunabhängig ist, somit keine gute Anpassung des Messwerts A liefern wie die Annahme konstanter Parameter N und δ . Für kleinere Höhenbereiche ist sie in erster Näherung aber trotzdem akzeptabel.

10. Auswertung der Messwerte anhand der linearen Wellentheorie

10.1. Zusammenfassung der notwendigen Größen

Der Auswertung liegen die Annahmen zugrunde, dass in einem bestimmten Abschnitt der Atmosphäre die Mittelwerte von Druck, Dichte und Potentieller Temperatur exponentiell von der Höhe abhängen (Gleichungen (66-68) auf Seite 105). Damit muss das beobachtete Vertikalprofil zunächst in Bereiche unterteilt werden, in welchen eine exponentielle Anpassung dieser Größen an die Höhe möglich ist. Zunächst werden entsprechend der Gleichungen (66-67) die Exponenten $\alpha = \kappa g/c^2$ und δ für den mittleren Druck P_0 und die Dichte ρ_0 sowie die zugehörigen Nulldurchgänge P_s und ρ_s ermittelt. Diese Exponenten stellen jetzt nur, wenn auch sehr gute, Näherungen dar, da eine exponentielle Höhenabhängigkeit von Druck und Dichte exakt nur in einer isothermen Atmosphäre erfüllt wird, in dem Fall müssten die ermittelten Exponenten δ und α einander zudem entsprechen. In der Realität hängt auch die Temperatur von der Höhe ab und fällt nach der idealen Gasgleichung (222) mit dem Exponenten $\beta = \delta - \alpha$ mit wachsender Höhe ab (falls δ kleiner als α ist, nimmt sie entsprechend mit wachsender Höhe zu). Die Potentielle Temperatur Θ (Theta, die Ermittlung erfolgt nach Gleichung (1)) wiederum wächst bei stabiler Schichtung der Atmosphäre mit wachsender Höhe exponentiell an, der Exponent ergibt sich aus δ und α nach Beziehung (68). Die Anpassungsgleichungen für die Temperatur und Theta können somit aus den exponentiellen Anpassungen von Druck und Dichte berechnet werden (diese Vorgehensweise empfiehlt sich, da aufgrund der geringeren Exponenten die exponentielle Abhängigkeit von Temperatur und Theta durch Störungen stärker verfälscht wird als im Fall von Druck und Dichte). Durch eine eigene Anpassung kann die Abhängigkeit der Grundstrom-Geschwindigkeit v_0 von der Höhe ermittelt werden, wobei hier ein linearer Zusammenhang erwartet wird.

Da bei adiabatischen Vorgängen die Höhe Veränderungen unterliegt, die Potentielle Temperatur hingegen erhalten bleibt, empfiehlt es sich, Gleichung (72) auf Seite 105 umzukehren und die Höhe aus der Potentiellen Temperatur anzupassen. Damit kann nun die Differenz zwischen momentaner und mittlerer Höhe und ebenso auch zwischen momentaner und mittlerer Temperatur, Druck und Dichte ermittelt werden.

Diese Schwingungskurven lassen sich nun wahlweise als Funktion der Zeit oder aber der horizontal oder vertikal zurückgelegten Wegstrecke auftragen, und aus den Abständen der Minima und Maxima der Schwingung kann versucht werden, der Schwingung eine Frequenz oder eine horizontale bzw. vertikale Wellenlänge zuzuordnen. Zu bedenken ist dabei aber, dass, wenn überhaupt, nur eine der auf diese Weise ermittelten Größen intrinsisch ist, während die anderen beiden Größen von der Geschwindigkeit der Ballonsonde abhängen. Welche Größe man als intrinsisch ansehen kann, muss von Fall zu Fall entschieden werden. Im Fall des 11. Februar 1997 wurden die Minima und Maxima sowie die Nulldurchgänge der sich ergebenden Schwingungen bei Auf- und Abstieg der Ballonsonde auf etwa dem selben Theta-Niveau vorgefunden. Daraus wurde geschlossen, dass im untersuchten Bereich eine Wellenstruktur mit fester vertikaler Wellenzahl μ_{zR} vorlag. Unter dieser Annahme konnte aus einem Vergleich von Aufstiegs- und Abstiegsprofil zudem auch die intrinsische Frequenz σ bestimmt werden, wie im Abschnitt 10.2. noch dargestellt wird.

Aus einem Vergleich der Schwingungskurven für die einzelnen Größen lässt sich nun auch der Phasenwinkel zwischen Druck, Temperatur und Dichte einerseits und der Höhe andererseits abschätzen. Falls es sich um Schwerewellen handelt, sollte dieser Phasenwinkel 180° betragen. Für den Druck folgte dies aus einer logischen Überlegung, siehe Anhang 12.5, Temperatur und Dichte müssen laut der Adiabatenbeziehungen (223-225) in Phase mit dem

Druck schwingen. Ebenso kann nun auch die Amplitudenhöhe gemessen und eine Abschätzung zur Abhängigkeit dieser Amplitude von der Höhe getroffen werden. Der Zusammenhang zwischen den Verläufen der Amplituden in Abhängigkeit von der Höhe ergibt sich dabei aus den Gleichungen (229) und (230).

Aus $\alpha = \kappa g / c^2$ und δ , den Exponenten für den Druck und die Dichte, lassen sich zudem noch einige Parameter bestimmen.

- Die isotherme Schallgeschwindigkeit c anhand Gleichung (69). Die tatsächliche Schallgeschwindigkeit ist allerdings Temperatur- und damit höhenabhängig und folgt aus Gleichung (258).
- Die Brunt-Väisälä-Frequenz N anhand Gleichung (68).

Für den Fall, dass der Druck sich stets an seine Umgebung anpasst, gilt zudem die Beziehung (265) für den Zusammenhang zwischen den Amplituden von Druck P und Vertikalauslenkung s . Wenn (wie im gegebenen Fall) eine stehende Welle angenommen und eine vertikale Wellenlänge bestimmt werden kann, kann nun auch noch folgende Größe bestimmt werden:

- Das Verhältnis der Amplituden von Gradientenfluss, Korrekturfluss und Vertikalgeschwindigkeit bzw. Auslenkung anhand der Gleichungen (187) und (188). Wenn zudem die intrinsische Frequenz σ bekannt ist, folgt aus diesen Gleichungen auch das Verhältnis dieser Amplituden zur Amplitude der Vertikalauslenkung.

Durch eine Anpassung der Messwerte nach Gleichung (219) kann ein einheitlicher Scorer-Parameter L für einen ausgewählten Abschnitt des Höhenprofils bestimmt werden. Ein Profil der Richardson-Zahl kann mit Hilfe von Gleichung (201) erstellt werden.

10.2. Zerlegung der Messwerte in Mittelwert und Störungen

Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106 zeigen die Abhängigkeit von Druck, Dichte und Temperatur von der Höhe, welche offenbar in allen drei Fällen als exponentiell angenommen werden kann. Nach Abzug der exponentiellen Anpassung der Zustandsgrößen an die mittlere Höhe (welche wiederum durch eine exponentielle Anpassung der Potentiellen Temperatur an die Höhe gewonnen wird) ergeben sich die in Abb. 10.1 und Abb. 10.2 dargestellten Schwingungskurven, hier für die Temperatur, den Druck und die momentane Höhe. Zusätzlich wurde zum einen eine konstante Amplitude der vertikalen Auslenkung von 200 m, zum anderen eine konstante Amplitude des Drucks von 2 hPa angenommen und berechnet (Gleichungen (265) und (229)), wie sich unter diesen Annahmen die Amplituden der anderen dargestellten Größen verhalten müssten. Wie in Abb. 10.1 und Abb. 10.2 erkennbar ist, sprechen die Beobachtungen für die Richtigkeit der Annahme einer höhenunabhängigen Amplitude der Vertikalauslenkung von 200 m. In diesem Fall sind auch die Amplituden der Temperaturschwingung nahezu unabhängig von der Höhe und nehmen einen Wert von ca. 2 K an. Die tatsächlichen Amplituden können diesen Wert allerdings noch überschreiten, da der Ballon das betreffende Höhenniveau nicht unbedingt im Moment der maximalen Auslenkung passiert haben muss. Aus den Abb. 10.1 und Abb. 10.2 kann nun wahlweise eine vertikale Wellenlänge oder eine Periodendauer der Schwingungen abgelesen werden. Aus den bereits im Abschnitt 8.1 diskutierten Gründen wird der ersten Variante den Vorzug gegeben, die Beobachtungen sprechen dabei für eine vertikale Wellenlänge zwischen 4 und 6 Kilometern. Aus Abb. 10.2 könnte man ebenso eine Periodendauer von etwa 15-20 min ablesen, diese Periodendauer ist aber von der Aufstiegs- bzw. Abstiegsrate des TRIPLE-Ballons abhängig. Trotzdem muss aber auch eine, allerdings langsamere, zeitliche oder örtliche Schwingung vorliegen.

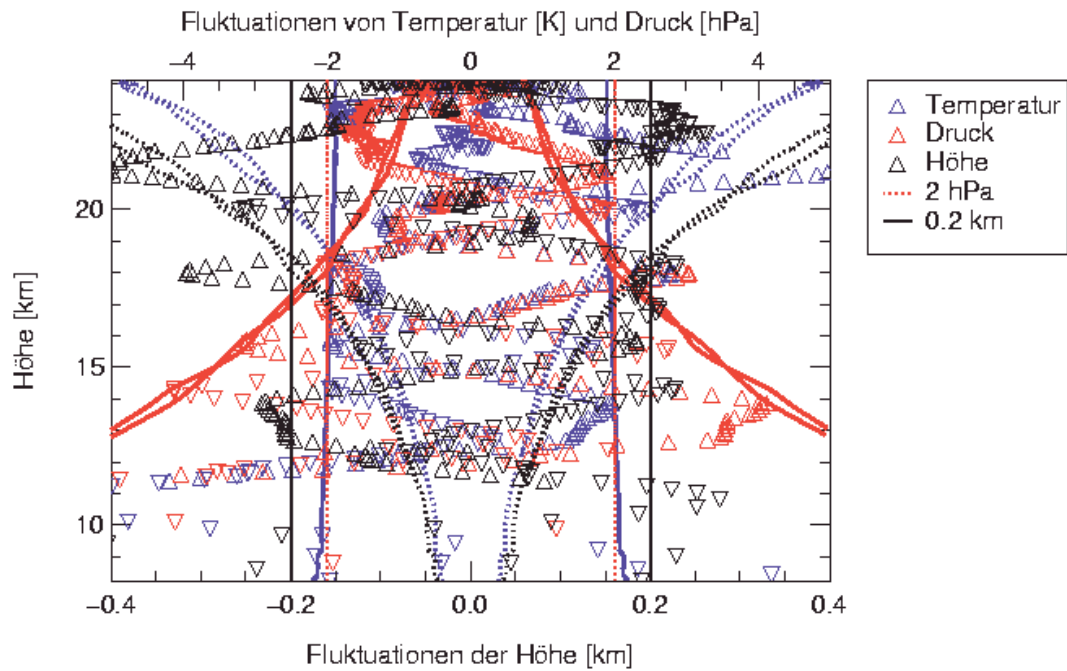


Abb. 10.1: Fluktuationen der Temperatur, des Drucks und der Höhe (per GPS gemessen) als Funktion der mittleren Höhe. Nach oben weisende Symbole zeigen die Messwerte des Aufstiegs, nach unten weisende Symbole die des Abstiegs. Die zusätzlich dargestellten Linien zeigen die sich nach den Gleichungen (229) und (265) ergebenden Temperatur-, Druck- und Höhenamplituden (die Farbe entspricht der Farbe der jeweiligen Messwerte) für die Annahme einer mittleren Amplituden der Druckschwingung von 2 hPa (gestrichelte Linien), sowie für eine mittlere Amplitude der Höhenschwingung von 200 m (durchgezogene Linien)

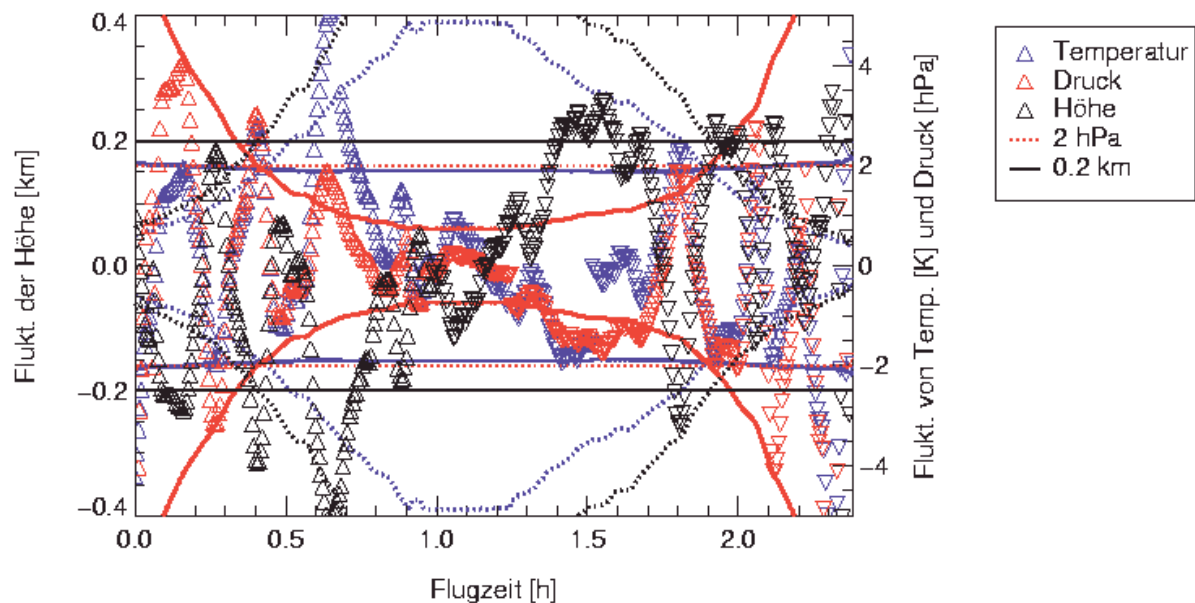


Abb. 10.2: Wie Abb. 10.1, Darstellung als Funktion der Zeit.

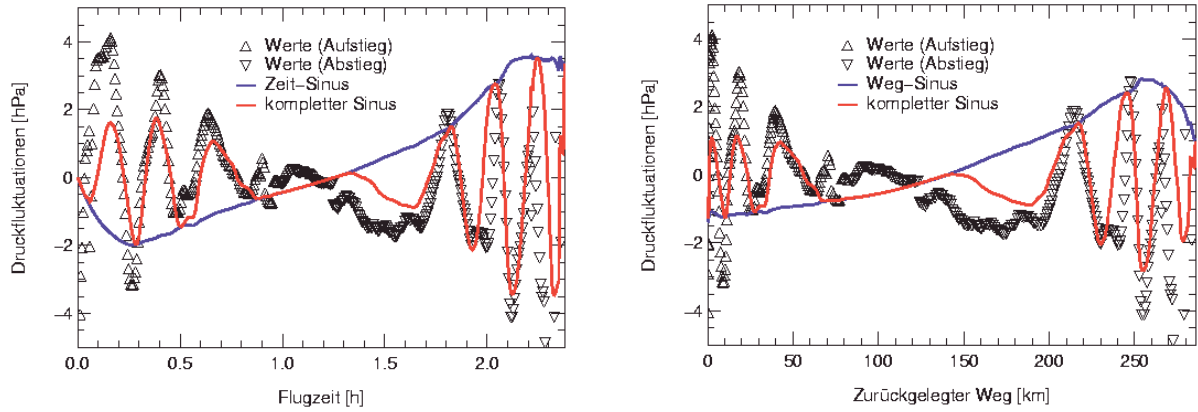


Abb. 10.3 a und b: Fluktuationen des Drucks, gemessen auf der TRIPLE-Gondel am 11. Februar 1997. Nach oben (unten) weisende Dreiecke bezeichnen die Werte des Aufstiegs (Abstiegs).

a: Anpassung nach Gleichung (220) als Funktion der Zeit. Angenommen wurden eine Amplitude der vertikalen Auslenkung von 200 m, eine Periodendauer von 2,5 Stunden und eine vertikale Wellenlänge von 4 km. „Zeit-Sinus“ bezeichnet die Funktion $f(t, z_0)$ aus Gleichung (220), „kompletter Sinus“ die komplette Gleichung (220).

b: Anpassung als Funktion des zurückgelegten Weges nach Gleichung (221). Angenommen wurde eine horizontale Wellenlänge von 300 km. „Weg-Sinus“ bezeichnet die Funktion $f(x, z_0)$ aus Gleichung (221), „kompletter Sinus“ die komplette Gleichung (221).

In Abb. 10.3 a und b sind entsprechende Anpassungen des Drucks nach den Formeln

$$P = \frac{\kappa g}{c^2} P_0(z_0) s_a \sin\left(\frac{2\pi}{T} t\right) \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda_z} z_0\right) = f(t, z_0) \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda_z} z_0\right) \quad (220)$$

$$P = \frac{\kappa g}{c^2} P_0(z_0) s_a \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda_x} x\right) \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda_z} z_0\right) = f(x, z_0) \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda_z} z_0\right) \quad (221)$$

gezeigt. Die Beziehung zwischen den Druck- und Höhenamplituden P_a und s_a sowie dem mittleren Druck P_0 ergab sich dabei aus Gleichung (265). Die Anpassung nach Gleichung (220), dargestellt in Abb. 10.3 a, entspricht dem Fall, dass die Luftmassen mit einer Periodendauer von etwa 2,5 Stunden gegeneinander schwingen, die gemessene horizontale Wellenlänge λ_z hängt in diesem Fall von der Geschwindigkeit des Luftstroms ab. Die Schwingungsbewegung kann nur durch Reibung zum Stillstand gebracht werden und somit lange andauern, die aufgebaute Struktur kann allerdings durch Verdriftung zerstört werden. Die Anpassung nach Gleichung (221), dargestellt in Abb. 10.3 b, entspricht hingegen dem Fall, dass sich nach dem Überqueren eines relativ zur Erdoberfläche ruhenden Hindernisses wie im Abschnitt 9.4.3 erläutert stationäre Wellen mit einer Wellenlänge von 300 km gebildet haben (d.h. ein relativ zur Erde ruhender Beobachter würde keine Schwingung wahrnehmen). In diesem Fall hängt die gemessene Periodendauer von der Windgeschwindigkeit ab, ihr Betrag hätte nach Gleichung (285) den Wert $2\pi/(\mu_x v_0) = \lambda_x/v_0$. Wenn die Wellen nicht hinter einem ruhenden Hindernis entstanden, ist v_0 in dieser Gleichung durch $(v_0 - v_{\text{Hindernis}})$ zu ersetzen mit $v_{\text{Hindernis}}$ der Eigengeschwindigkeit des Hindernisses in Richtung von v_0 , die Wellenlänge λ wäre dann aber nicht mehr identisch mit der gemessenen Wellenlänge von 300 km, welche anhand der relativ zur Erdoberfläche zurückgelegten Entfernung bestimmt wurde. Jede Veränderung der Windgeschwindigkeit oder des Hindernisses (falls es sich dabei ebenfalls um Luftmassen handelt) führt allerdings, wie aus dem Abschnitt 9.4.3 hervorgeht, auch zur Veränderung der aufgebauten Struktur (in dem Zusammenhang kann es auch zu Ausgleichsschwingungen kommen, für welche wiederum die Periodendauer eine intrinsische Größe darstellt). Da die Windgeschwindigkeit v_0 aber nur eine geringe Höhenabhängigkeit

zeigt, ist die Periodendauer T und damit auch die Frequenz $\sigma=2\pi/T$ auch im letzteren Fall praktisch höhenunabhängig, und aus der Anpassung allein kann nicht festgestellt werden, ob T oder aber λ_x eine intrinsische Größe darstellt (auch eine Kombination wäre möglich). Auf die Erklärung der am 11. Februar 1997 beobachteten CIO-Struktur, welche binnen weniger Stunden entstand, hat diese Frage aber keinen Einfluss. Beide Varianten führen dazu, dass die Luftmassen auf bestimmten Höhenniveaus („Swinging Layer“ der Abb. 9.4 auf Seite 112) periodisch tiefe Temperaturen erfahren, womit die Chloraktivierung in diesem Bereich stärker gefördert wird als auf den dazwischen liegenden Niveaus („Mixing Layer“) und sich somit eine CIO-Doppelpeak-Struktur ausbilden kann.

10.3. Vergleich der Messwerte mit der Theorie

Die erhaltene Frequenz $\sigma=2\pi/T$ mit $T=2,5$ h kann nun in die im Abschnitt 9.3.7 erhaltenen Gleichungen eingesetzt werden. Als vertikale Wellenlänge $\lambda_z=2\pi/\mu_{zR}$ wird ein Wert von 4 km und als Amplitude der vertikalen Auslenkung s_a ein höhenunabhängiger Wert von 200 m angenommen. Der Exponent μ_{zI} verschwindet entsprechend, und die Druckamplituden fallen mit wachsender Höhe ebenso wie die mittlere Dichte exponentiell mit dem Exponenten δ ab. Aus einer Anpassung der Dichte an die Höhe (Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106) ergab sich ein Exponent δ von $0,16 \text{ km}^{-1}$ sowie ein Dichte-Nulldurchgang ρ_S von $2,1 \text{ kg/m}^3$. Für P_a , die Druckamplitude auf der Höhe $z_0=0$, ergibt sich damit nach Gleichung (265) ein Wert von 43,9 hPa. Die Amplitude der Vertikalgeschwindigkeit v_{za} besitzt laut Gleichung (141) den Wert σs_a . Mit einer Brunt-Väisälä-Frequenz N von $0,02 \text{ s}^{-1}$ und einer Schallgeschwindigkeit c von 283,5 m/s (siehe Abschnitt 3.4) ergeben sich folgende horizontalen Wellenzahlen μ und Wellenlängen $\lambda=2\pi/\mu$:

Nr.	Gleichung	Quelle	μ/km^{-1}	λ/km
1	Gemessen		0,021	300
2	$\mu^2 = \frac{\sigma^2}{c^2} + \rho_S \delta \frac{v_{za}}{P_a}$	(181)	0,004	1707
3	$\mu^2 = \frac{\rho_S g \sigma \mu_{zR}^2 v_{za}}{N^2 P_a - \rho_S g \sigma v_{za}}$	(175)	0,053	110
4	$\mu^2 = \mu_{zR}^2 \frac{\sigma^2}{N^2}$	(180)	0,055	114
5	$\frac{\sigma^2}{\mu^2} = \frac{g}{2\delta} + c^2 - \sqrt{\frac{g^2}{4\delta^2} + c^4}$	(183)	0,004	1414
6	$\mu^2 = \frac{\sigma^2}{c^2}$		0,002	2552

Tab. 10.1: Bestimmung der horizontalen Wellenzahl μ und der entsprechenden Wellenlänge λ aus den Gleichungen des Abschnitts 9.3.7. Hinzugefügt wurden die gemessenen Werte (welche dem Wert μ der Gleichungen aber nur im Fall einer zur Erdoberfläche stationären Welle entsprechen würden, siehe Text) und die Wellenzahl und Wellenlänge, welche sich bei einer Bewegung mit Schallgeschwindigkeit ergeben würden.

Die horizontale Wellenlänge wäre nur aus Fernerkundungsdaten, welche im konkreten Fall nicht vorliegen, oder aus einer ebenfalls nicht vorhandenen hohen Dichte von Ballonsonden-Messungen bestimmbar. Das Ergebnis welcher Zeile der Realität am nächsten liegt, lässt sich aus den gemessenen Daten somit nicht direkt feststellen. Die Zeilen bedeuten im einzelnen:

- Zeile 1: Der aus Abb. 10.3 b entnommene Messwert. Er muss nur dann der Wellenzahl μ der Wellenstruktur entsprechen, wenn eine zur Erdoberfläche stationäre Welle vorliegt und somit die Frequenz σ nach Gleichung (285) den Wert $-\mu_x v_0$ annimmt.
- Zeile 2: Wert nach Gleichung (181) entstanden aus Kombination von Kontinuitätsgleichung und horizontaler Bewegungsgleichung, welche aufgrund ihrer Phasenlage entlang der z-Achse das Verhalten im „Swinging Layer“ (Abb. 9.4 auf Seite 112) beschreibt.
- Zeile 3: Wert nach Gleichung (175), welche den Realteil der vertikalen Bewegungsgleichung (144) unter Berücksichtigung des Korrekturflusses darstellt. Sie beschreibt somit das Zusammenwirken von Vertikalbewegung und horizontaler Verdrängung und damit das Verhalten im „Mixing Layer“ (Abb. 9.4 auf Seite 112).
- Zeile 4: Wert nach Gleichung (180), der aus dem Realteil der vertikalen Bewegungsgleichung (144) abgeleiteten Näherungsfunktion (beschreibt damit ebenfalls das Verhalten im „Mixing Layer“ und entspricht der Dispersionsgleichung (88) nach [Andrews et al., 1987]).
- Zeile 5: Wert nach Dispersionsgleichung (183), entstand aus der Kombination von Gleichung (181) und dem Imaginärteil (176) der vertikalen Bewegungsgleichung (144) und beschreibt wie Zeile 2 das Verhalten im „Swinging Layer“.
- Zeile 6: Wurde nur als Vergleichswert angegeben und entspricht der Wellenausbreitung mit Schallgeschwindigkeit bei der gemessenen Frequenz.

Es ergibt sich somit eine Diskrepanz von einer Größenordnung zwischen den Zeilen 3 und 4 einerseits, welche das Verhalten im „Mixing Layer“ (Abb. 9.4 auf Seite 112) beschreiben, und 2 und 5 andererseits, welche sich auf den „Swinging Layer“ und damit auf den Gradientenfluss v_x und v_y beziehen. Als Ursache für die Diskrepanz wird Folgendes vermutet: Bei der Aufstellung der horizontalen Bewegungsgleichungen (81) und (82), welche den Gradientenfluss beschreiben, wurde im Abschnitt 9.2.1 eine Näherung getroffen. Die x- und y-Achsen wurden als entlang der Theta-Niveaus verlaufend betrachtet, und es wurde angenommen, dass ein horizontaler Druckgradient auf diesen Niveaus eine Beschleunigung entlang der x- oder y-Achse, d.h. entlang dieses Theta-Niveaus zur Folge hat. Die z-Achse hingegen wurde als vertikal verlaufend angenommen. Die Näherung bestand somit darin, dass die Theta-Niveaus als horizontal verlaufend angenommen wurden. Im Fall des 11. Februar 1997 wurde jedoch festgestellt, dass sich auf einem bestimmten Theta-Niveau nur dann ein Druckgradient ausbildet, wenn dieses Theta-Niveau nicht horizontal verläuft. Nach den Ansätzen (106-109) sollen die Theta-Niveaus sinusförmig auf und ab verlaufen. Je langgestreckter diese Sinuskurve bei festgehaltener Amplitude ist, um so geringer ist der Druckgradient auf dem Theta-Niveau, und um so geringer ist auch die horizontale Wellenzahl μ . Diese wiederum ist proportional zur Frequenz σ . Eine niedrige Frequenz bedingt somit eine niedrige horizontale Wellenzahl bzw. eine hohe horizontale Wellenlänge. Entlang einer Gerade, welche flacher gegen die Horizontale geneigt als eine Tangente an die Sinuskurve, herrscht allerdings stets auch ein geringerer Druckgradient als entlang der Tangente. Das bedeutet: Wenn die horizontale Ausgleichsbewegung zur Druck- und Dichtezunahme an einem bestimmten Punkt des sinusförmig angenommenen Theta-Niveaus nicht entlang dieses Niveaus, sondern geneigt dazu erfolgt (d.h. die Sinuskurve wird verformt), ist bei gleicher Vertikalauslenkung eine geringere horizontale Wellenlänge zur Erklärung der gemessenen

Frequenz erforderlich. Davon unberührt bleibt aber die Feststellung, dass sich die Amplitude der horizontalen Ausgleichsbewegung in einer bestimmten Richtung proportional zum Druckgradienten in dieser Richtung verhalten muss, womit diese Bewegungen eher geordnet verlaufen.

Im Fall der vertikalen Bewegungsgleichung (94) besteht dieses Problem nicht. Mittels des in dieser Gleichung auftretenden Korrekturdruck P_C wird die horizontale Wellenzahl μ auch in die vertikale Bewegungsgleichung eingeführt und somit auch das Aufstellen einer diese Größe enthaltenden Dispersionsgleichung (Gleichung (178) bzw. Näherung (180)) ohne Berücksichtigung der horizontalen Bewegungsgleichungen (81) und (82) ermöglicht. Auf den Höhenniveaus, auf welchen der Betrag von P_C seinen Maximalwert erreicht (den Niveaus, welche vertikal nicht ausgelenkt werden), verlaufen die Theta-Niveaus horizontal, und die Luftmassen verhalten sich inkompressibel (sie verändern ihre Zustandsgrößen Druck, Temperatur und Dichte nicht). Damit ist das Ergebnis unabhängig vom Grad der eventuellen Verformung der allgemein als sinusförmig angenommenen Theta-Niveaus in der x-y-Ebene. Die Verformung wird vielmehr durch diese Lösung bestimmt. Es kann somit angenommen werden, dass die Dispersionsgleichung (178) bzw. die Näherung (180) zur Beschreibung des Systems dienen können und die in den Zeilen 3 und 4 aufgeführten Lösungen dem tatsächlichen Wert der Horizontalausdehnung der schwingenden Luftmassen nahe kommen.

Diese Vermutung wird unterstützt durch die Abschätzungen nach den Gleichungen (187-188). Für den 11. Februar 1997 ergibt sich dabei unter der Annahme einer horizontalen Wellenlänge von 110 km eine Amplitude v_a des Gradientenflusses von 0,70 m/s und des Korrekturflusses v_{ca} von 3,84 m/s. Das Verhältnis zwischen beiden Amplituden (welches von der horizontalen Wellenlänge nicht abhängt) beträgt damit 0,18, d.h. der horizontale Fluss wird durch den Korrekturfluss bestimmt. Die berechnete Amplitude des Korrekturflusses liegt damit in der Größenordnung der Wellenamplituden, wie man sie aus den gemessenen Geschwindigkeitsprofilen des TRIPLE-Ballons nach Abzug einer linearen Anpassung ableiten würde (Abb. 8.4 auf Seite 102), allerdings bleibt die Feststellung bestehen, dass die aus der Anpassung ermittelten Amplituden nicht wie die Amplituden der Temperatur schwingen und somit wahrscheinlich bereits die mittlere Geschwindigkeit in Form eines Wellenprofils vorliegt. Dazu kommt das Problem, dass das Geschwindigkeitsprofil aus der Änderung der Position des Ballons bestimmt wurde, aufgrund von Trägheitseffekten muss es somit nicht unbedingt mit dem tatsächlichen Windprofil übereinstimmen.

10.4. Aus den Daten der Radiosonden ermittelte Parameter

Wie bereits im Abschnitt 6.2.3 dargestellt, fanden im Umfeld des TRIPLE-Ballonaufstiegs vom 11. Februar 1997 zahlreiche Aufstiege von Ballon-Radiosonden statt. Die Werte des Drucks, der Dichte, der Temperatur und der Potentiellen Temperatur (Theta), welche durch diese Sonden im Zeitraum vom 8.-14. Februar 1997 sowie auf der TRIPLE-Gondel selbst gemessen wurden, können wie in Abb. 9.1 und Abb. 9.2 auf Seite 106 gezeigt an die Höhe angepasst werden. Wie in Abb. 6.10 und Abb. 6.11 auf Seite 68 gut zu erkennen ist, zeigen die Verläufe der Temperatur dabei zwei deutliche Unstetigkeiten, die Tropopause bei etwa 11 km Höhe und den Umkehrpunkt des Temperaturtrends bei etwa 22 km Höhe. Unmittelbar oberhalb der Tropopause tritt zudem in den meisten Profilen die im Abschnitt 2.3 näher beschriebene Temperaturinversion auf. Die am 11. Februar 1997 beobachtete CIO-Struktur befand sich zwischen diesen beiden kritischen Niveaus. Die exponentielle Anpassung von Druck und Dichte wurde entsprechend für die drei Bereiche getrennt voneinander vorgenommen, konkret erfolgte eine Anpassung im Bereich unmittelbar unterhalb der Tropopause („unter TP“), im Bereich unmittelbar oberhalb der Tropopause („über TP“), d.h. oberhalb der Temperaturinversion und unterhalb des Temperatur-Umkehrpunkts, sowie

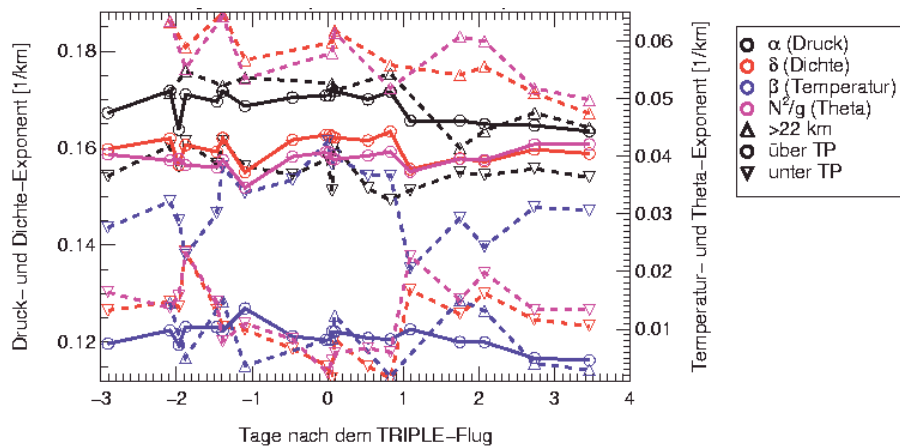


Abb. 10.4: Anpassung der Daten der TRIPLE-Gondel vom 11. Februar 1997 sowie der zwischen dem 8. und dem 14. Februar 1997 in Esrange und Sodankylä gestarteten Radiosonden an die Höhe. Dargestellt sind die Exponenten $\alpha = \kappa g / c^2$ des Drucks und δ der Dichte, welche sich aus der exponentiellen Anpassung der jeweiligen Größe an die Höhe ergaben, sowie die daraus berechneten Exponenten der Temperatur und der Potentiellen Temperatur (Theta), siehe Text. Die Anpassung erfolgte getrennt voneinander in drei Bereichen: unmittelbar unterhalb der Tropopause („unter TP“), im Bereich zwischen etwa 12 und 22 km Höhe („über TP“, = Bereich der CIO-Messung) und oberhalb von 22 km (Bereich des negativen Temperaturgradienten, d.h. β ist hier negativ und in der Abbildung ist für diesen Bereich der Wert $-\beta$ dargestellt).

oberhalb des Temperatur-Umkehrpunkts bei 22 km Höhe. Da die exponentiellen Abhängigkeiten der Temperatur und der Potentiellen Temperatur (Theta) weniger ausgeprägt sind, wurden im Fall dieser Größen die erwarteten Exponenten aus dem Druckexponent $\alpha = \kappa g / c^2$ und dem Dichteexponent δ rechnerisch ermittelt. α und δ sind per Definition positiv, wenn der Druck bzw. die Dichte mit wachsender Höhe abfällt. Der Temperaturexponent ist entsprechend der idealen Gasgleichung (222) identisch mit $\alpha - \delta$ und kann sowohl positive (bei Temperaturabfall mit wachsender Höhe) als auch negative Werte annehmen. Der Theta-Exponent entspricht laut Gleichung (72) der Größe $N^2/g = \delta - g/c^2$, Theta nimmt bei stabil geschichteter Luft mit wachsender Höhe stets zu. Das Ergebnis ist in Abb. 10.4 dargestellt.

Die Druckexponenten α unterscheiden sich in den drei Bereichen nur geringfügig voneinander und verändern zudem auch zeitlich ihren Wert kaum. Im Bereich „über TP“ und oberhalb von 22 km Höhe sind sie zudem fast identisch mit den Dichteexponenten δ . Damit ist die näherungsweise Betrachtung dieses Bereichs als isotherm (in dem Fall müssen beide Exponenten einander exakt entsprechen) zulässig. Laut Abb. 10.4 sind die Temperaturexponenten β dieser Bereiche praktisch identisch, es ist allerdings zu beachten, dass im erstgenannten Bereich (wie auch im Bereich unterhalb der Tropopause) die Temperatur mit wachsender Höhe mit diesem Exponenten abfällt, während sie oberhalb von 22 km Höhe mit dem dargestellten Exponenten anwächst (d.h. β ist hier negativ und in der Abbildung ist für diesen Bereich der Wert $-\beta$ dargestellt). Mit anderen Worten, der Exponent des Abfalls unmittelbar unterhalb des Umkehrpunktes des Temperaturgradienten entspricht etwa dem Exponent des Anwachsens oberhalb dieses Punktes. Oberhalb von 22 km Höhe nimmt die Dichte entsprechend mit wachsender Höhe schneller ab und die Potentielle Temperatur schneller zu als unterhalb davon, d.h. die Luft ist hier stabiler geschichtet.

Im Bereich unmittelbar unterhalb der Tropopause kommt es zwischen dem 9. und dem 12. Februar zu einer leichten Abnahme des Dichteexponenten. Als Konsequenz erhöhte sich der Exponent des Temperaturabfalls um etwa ein Drittel, und der Theta-Exponent verringerte sich entsprechend auf etwa einen Drittel seines vorherigen Wertes. Die Stabilität der Luftschichtung unmittelbar unterhalb der Tropopause war zu diesem Zeitpunkt somit signifikant vermindert. Abb. 10.5 zeigt die Brunt-Väisälä-Zeit $t_N = 2\pi/N$, d.h. den Kehrwert der

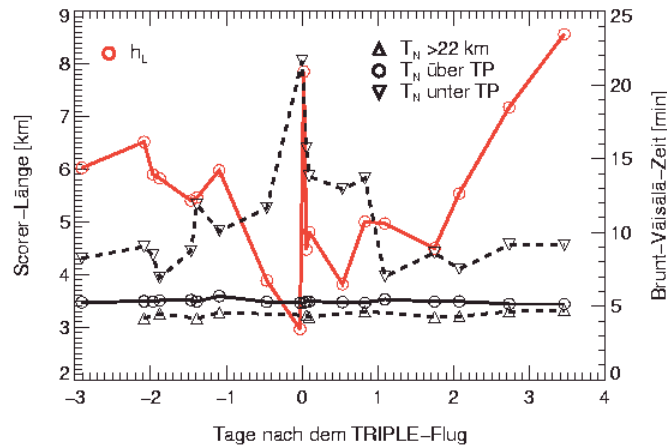


Abb. 10.5: Scorer-Länge $h_L = \pi/L$ mit L dem Scorer-Parameter und Brunt-Väisälä-Zeit $t_N = 2\pi/N$ mit N der Brunt-Väisälä-Frequenz. Die Bestimmung von L erfolgte nur für den Höhenbereich zwischen etwa 12 und 22 km nach Gleichung (219), N wurde nach Gleichung (282) aus den Exponenten α und δ (Abb. 10.4) ermittelt,

Brunt-Väisälä-Frequenz N , für denselben Zeitraum. Sofern der Einfluss des Korrekturflusses vernachlässigbar ist, würde unter Normalbedingungen oberhalb der Tropopause ein vertikal ausgelenktes Luftpaket mit einer Periodendauer von 5 Minuten um seine Gleichgewichtsposition schwingen. Unmittelbar unterhalb der Tropopause beträgt diese Periodendauer vor dem 9. und nach dem 12. Februar 1997 etwa 10 Minuten, d.h. die Brunt-Väisälä-Frequenz erhöht sich an der Tropopause sprunghaft um den typischen [Birner et al., 2002] Faktor 2. Zwischen dem 9. dem 12. Februar 1997 stieg die Periodendauer allerdings bis auf 20 Minuten an. Oberhalb der Tropopause hingegen veränderte sie sich praktisch nicht. Wenn ein unmittelbar unterhalb der Tropopause befindliches Luftpaket vertikal nach oben verschoben wird, stellt es somit ein Hindernis für den darüber verlaufenden Luftstrom dar.

Ebenfalls in Abb. 10.5 gezeigt ist die Scorer-Länge $h_L = \pi/L$ mit L dem Scorer-Parameter. Diese Größe wurde nur für den Bereich zwischen 12 und 22 km Höhe bestimmt. Wenn der Luftstrom in diesem Bereich ein Hindernis überquert und die zur Überquerung nötige Zeitdauer lang gegenüber der Periodendauer einer Schwerschwingung ist (da diese etwa 5 Minuten beträgt, wird bei der herrschenden Windgeschwindigkeit zwischen 20 und 40 m/s in dieser Zeit ein Weg von 6-12 km zurückgelegt) würde sich, wie im Abschnitt 9.4.3 erläutert, oberhalb des Hindernisses eine Wellenstruktur aufbauen, deren vertikale Wellenzahl dem Scorer-Parameter L und deren halbe Wellenlänge der Scorer-Länge h_L entspricht. L wiederum kann laut Gleichung (204) durch den Quotienten N/v_0 angenähert werden (die dargestellten Messwerte wurden nach Gleichung (219) bestimmt, welcher diese Näherung zugrunde liegt). Abb. 10.5 zeigt, dass es gemeinsam mit der Vervierfachung der Brunt-Väisälä-Zeit unmittelbar unterhalb der Tropopause auch zu einer Verringerung der Scorer-Länge um den Faktor 2 oberhalb der Tropopause kam. Beide Ereignisse stehen im Zusammenhang mit der Veränderung der Tropopausenhöhe (siehe Abschnitt 6.1.2). Die Brunt-Väisälä-Frequenz blieb oberhalb der Tropopause allerdings praktisch unverändert, die Halbierung der Scorer-Länge (und damit Verdopplung des Scorer-Parameters L) ist auf eine Halbierung der Windgeschwindigkeiten zurückzuführen. Diese Verringerung der Windgeschwindigkeiten ist in Abb. 6.12 und Abb. 6.13 auf Seite 69 deutlich zu erkennen, lediglich während des Abstiegs der TRIPLE-Gondel wurden ähnlich hohe Windgeschwindigkeiten wie am Vortag (10. Februar) gemessen. Die Scorer-Länge für den TRIPLE-Abstieg von fast 8 km erscheint entsprechend als Ausreißer in Abb. 10.5, während der TRIPLE-Aufstieg einen Wert unter 3 km lieferte. Dieser Minimalwert aller Scorer-Längen liegt immer noch über der Länge von 2 km, welche für die am 11. Februar 1997 angenommene stehende Welle als mittlerer vertikaler Abstand zwischen zwei Knotenpunkten

festgestellt wurde (siehe Abb. 10.1 und Abb. 10.3), allerdings ist nicht auszuschließen, dass die Scorer-Länge kurzzeitig bis auf diesen Wert absank und sich in dem Moment eine Struktur ausbildete. Prinzipiell ist die Ausbildung einer Struktur aber um so wahrscheinlicher, je kürzer die Scorer-Länge ist und je mehr Zeit (relativ zur Brunt-Väisälä-Zeit) damit benötigt wird, um ein Hindernis zu überqueren. Da zudem die Tropopausenhebung und die verringerte Brunt-Väisälä-Zeit unterhalb der Tropopause das Auftreten von Hindernissen an sich (welche damit durch tiefer liegende Luftmassen gebildet werden) befördern, steht die dynamische Struktur des 11. Februar 1997 somit wahrscheinlich in ursächlichem Zusammenhang mit den beschriebenen Veränderungen der Parameter.

11. Zusammenfassung und Ausblick

11.1. Übersicht

Im Rahmen dieser Arbeit wurden sowohl praktische als auch theoretische Arbeiten ausgeführt. Der praktische Teil befasste sich mit den vor und nach einer Messkampagne notwendigen Kalibrationen des ClO/BrO-Ballongeräts sowie des Flugzeuginstruments HALOX. Zudem wurde ein Beitrag zur Entwicklung des HALOX-Geräts geleistet, mit dem Ziel, die BrO-Messung zu verbessern. Zu diesem Zweck wurden auch theoretische Abschätzungen durchgeführt.

Der größte Teil der Arbeit befasste sich jedoch mit der Auswertung der Daten eines Ballonflugs vom 11. Februar 1997 in Kiruna. Es ergab sich dabei eine überraschend einfache Erklärung für das an diesem Tag gemessene ClO-Profil, welche jedoch weitreichende Konsequenzen für die Quantifizierung sowohl der Chloraktivierung und des daraus resultierenden Ozonabbaus insbesondere im Randbereich des Polarwirbels als auch der Transportprozesse über den Wirbelrand hinweg besitzt.

11.2. Das ClO/BrO-Balloninstrument und die Flugzeug-Variante HALOX

Beim Flug des TRIPLE-Ballons am 11. Februar 1997 handelte es sich um den dritten Kampagneneinsatz des ClO/BrO-Balloninstruments des Forschungszentrums Jülich (zum damaligen Zeitpunkt noch ein gemeinsam mit der University of California at Irvine entwickelter Prototyp). Seitdem liefert das Instrument, wie auch baugleiche, heute durch die University of Colorado, Boulder und die Harvard University, Cambridge, Massachusetts (Flugzeuginstrument, [Stimpfle et al., 1999]) betriebene Geräte, routinemäßig hochaufgelöste In-Situ-Messungen von ClO, dem wichtigsten Katalysator des massiven Frühjahrs-Ozonabbaus (Ozonloch), mit Hilfe der CCRF- (Chemical Conversion and Resonance Fluorescence) Methode (siehe Abschnitt 5.1). Seit Ende des Jahres 2001 kommt zudem auch HALOX, eine modifizierte Variante dieses Geräts, auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug „Geophysica“ zum Einsatz. Diese Geräte ermöglichen ebenfalls die Messung von BrO, welche jedoch aus physikalischen Gründen mit größeren Problemen als die ClO-Messung verbunden ist. Im Rahmen dieser Arbeit wurde versucht, die BrO-Messung des HALOX-Geräts durch die Entwicklung eines abgepumpten Kanals und somit die Verringerung der Sauerstoffabsorption des Bromsignals zu verbessern. Wie im Abschnitt 5.4.2 dargestellt wird, brachte dieser Kanal nicht den gewünschten Erfolg hinsichtlich der BrO-Messung, ermöglichte jedoch die Messung des ClO-Dimers ClOOCl sowie des Chlor-Reservoirs Chlornitrat (ClONO₂). Diese Technik kam bei der EUPLEX-Kampagne Anfang des Jahres 2003 erstmals zum Einsatz.

11.3. Messwerte vom 11. Februar 1997 und Chemie-Simulationsrechnungen

Am 11. Februar 1997 wurde in Esmåland bei Kiruna, Nordschweden, der TRIPLE-Ballon gestartet. Der Flug durch den arktischen Polarwirbel über Nordskandinavien dauerte etwa 2,5 Stunden, erreicht wurde eine maximale Höhe von 24,1 km. Der Flugtag sollte sich im Nachhinein als interessant erweisen. Während in den Wochen und Monaten zuvor die arktische untere Stratosphäre ungewöhnlich warm war und der Polarwirbel sich erst relativ spät ausbildete, sank in den letzten 24 Stunden vor dem TRIPLE-Aufstieg die Temperatur erstmals unter die kritische Temperatur T_{NAT} , unterhalb welcher sich feste und flüssige Salpetersäure-haltige Aerosole in großer Zahl ausbilden können und die Reaktionsoberfläche für die Bildung von ClO, der Katalysatoren der Ozonzerstörung, zur Verfügung stellen. Beginnend am 11. Februar 1997 sollte sich der Polarwirbel zum kältesten arktische Polarwirbel der letzten 18 Jahre zuvor entwickeln [Coy et al., 1997].

Das auf dieser Ballongondel befindliche ClO/BrO-Ballongerät maß ein interessantes örtlich hochaufgelöstes ClO-Profil in Form eines Doppelpeaks. Die bei Auf- und Abstieg gemessenen ClO-Profile waren, aufgetragen als Funktion der Höhe, vertikal gegeneinander verschoben (Abb. 6.7 auf Seite 67). Bei Darstellung als Funktion der Potentiellen Temperatur, einer Erhaltungsgröße bei adiabatischen Vorgängen, passten sie jedoch perfekt aufeinander (Abb. 6.8) d.h., die Luftmassen führten Vertikalbewegungen aus und veränderten dabei auch ihre Temperaturen (Abb. 6.9).

Die Aufklärung dieser Struktur stellt die Hauptaufgabe dieser Arbeit dar. Zu diesem Zweck wurden Simulationsrechnungen mittels des Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) durchgeführt, welches am Forschungszentrum Jülich entwickelt wurde (Abschnitt 7.1). Zur Initialisierung dieser Rechnungen konnte auf Messdaten verschiedener chemischer Tracer zurückgegriffen werden, welche durch weitere ebenfalls auf der TRIPLE-Gondel mitgeführte Geräte gemessen wurden. Der Kryosammler BONBON lieferte örtlich geringer aufgelöste Profile von u.a. N₂O und, indirekt (Abschnitt 6.2.7), des Gesamtgehalts an sogenanntem anorganischen oder (für chemische Reaktionen) verfügbaren Chlors (Cl_y). Mittels weitere Messgeräte wurden Profile von Ozon und Wasser mit einer zum ClO-Profil vergleichbaren örtlichen Auflösung erhalten.

Die CLaMS-Simulationen ergaben Folgendes (Abb. 7.10 und Abb. 7.12 auf Seite 94ff.):

- Unter Zugrundelegung synoptischer ECMWF-Temperaturen (durch Fernerkundung gelieferte weltumspannende Temperaturdaten mit entsprechend geringer örtlicher und zeitlicher Auflösung (Daten aller 6 Stunden)) und aller bekannten Tracer-Informationen wurde die Chloraktivierung deutlich unterschätzt. Es konnte gezeigt werden, dass diese Diskrepanz wahrscheinlich nicht auf eine ungenaue Kenntnis der Konzentration an verfügbaren NO-Verbindungen (NO_y), welches auf der TRIPLE-Gondel nicht gemessen wurden, zurückzuführen ist (Abschnitt 7.5.2).
- Wenn die synoptischen Temperaturen hingegen im Modell durch eine doppelte Sinusfunktion (Multiplikation einer Sinusfunktion der Zeit und der Höhe, Gleichung (57)) moduliert werden, ergibt sich eine exzellente Übereinstimmung zwischen gemessener und modellierter Chloraktivierung. Die Parameter dieser Funktion wurden dabei aus den gemessenen Temperaturen abgeschätzt, die beste Anpassung ergab sich bei der Annahme einer vertikale Wellenlänge $\lambda_z = 2\pi/\mu_{zR}$ von 4 km, einer vertikalen Auslenkung von 200 m (und damit einer Temperaturamplitude von 2 K) und wahlweise einer intrinsischen Periodendauer von 2,5 h oder aber einer horizontalen Wellenlänge von 300 km (Abb. 10.3 auf Seite 138). Zusätzliche Mischungsvorgänge mussten zumindest zur Erklärung des ClO-Profils nicht angenommen werden. Allerdings wies das gemessene Ozonprofil Peaks von bis zu 4 ppmv auf, welche sich gerade an den Positionen der lokalen Minima des ClO-Profils befanden (Abb. 6.7 auf Seite 67) und nicht durch chemische Prozesse erklärt werden können.

Die Ausbildung einer stehenden Welle entlang der z-Achse (senkrecht zur Erdoberfläche), wie sie durch Abb. 9.4 auf Seite 112 illustriert wird, stellt damit die wahrscheinlichste Ursache für das beobachtete ClO-Profil dar. ClO besaß somit die Funktion eines Temperatur-Tracers, eines Maßes für die durch die betreffenden Luftmassen erfahrene Minimaltemperatur. Entsprechend wurden Studien zur Dynamik durchgeführt, deren Ergebnisse im nächsten Abschnitt zusammengefasst werden. Weitere Betrachtungen der gemessenen Profile chemischer Tracer sowie der CLaMS-Simulationen erbrachten noch folgende Ergebnisse:

- Mittels der in Abb. 4.3 auf Seite 38 gezeigten Early-Vortex-Korrelation [Tilmes et al., 2003] wurde eine Tracer-Tracer-Studie durchgeführt und aus dem BONBON-N₂O-Profil Ozon-Erwartungswerte berechnet. Ein Vergleich mit den gemessenen Ozonwerten bestätigte, dass, wie aufgrund der meteorologischen Situation erwartet, in den durch die TRIPLE-Gondel durchquerten Luftmassen bislang kein signifikanter chemischer Ozonverlust eingetreten war
- Die Fernerkundungs-Werte für N₂O und Ozon des Satelliten-gestützten Instruments ILAS (Abb. 4.4 auf Seite 40), welche vor dem Eintreten des chemischen Ozonverlusts bei 68°N und damit im Randbereich des Polarwirbels gemessen wurden, zeigen auf bestimmten Theta-Niveaus eine positive N₂O-Ozon-Korrelation innerhalb und negative Korrelation außerhalb des Polarwirbels. Proffitt et al. fanden die selbe Charakteristik bei punktuellen flugzeuggestützten Messungen und nehmen als Erklärung einen fortdauernden diabatischen Abstieg von Luftmassen aus mittleren Breiten in den Polarwirbel hinein an, während der Wirbelrand eine effektive Barriere gegen adiabatichen Transport darstellt [Proffitt et al., 2003]. Die am 11. Februar 1997 auf der TRIPLE-Gondel gemessenen Ozonpeaks können damit ihre Ursache in einem derartigen Mischungsprozess finden. Zudem zeigen die ILAS-Daten, dass die Anwendung der Early-Vortex-Korrelation (Abb. 4.3 auf Seite 38) zur Bestimmung des chemische Ozonverlusts mittels der Tracer-Tracer-Methode im Allgemeinen zu einer Unterschätzung des chemischen Ozonverlusts führen sollte. Einmischungen über den Wirbelrand können damit nicht erklären, warum zahlreiche Arktis-Kampagnen einen um (unter bestimmten meteorologischen Bedingungen) etwa um den Faktor 2 höheren Ozonverlust bestimmten als durch Modelle erwartet (Abschnitt 3.5).
- Die Reverse Domain Filling (RDF) Methode lieferte, angewandt auf den 11. Februar 1997, kein Indiz dafür, dass Mischungsvorgängen, wie sie aufgrund des Ozonprofils angenommen werden müssen, binnen der letzten 10 Tage vor dem TRIPLE-Flug stattfanden (Abschnitt 7.3).

11.4. Studien zur Dynamik

Basis für die Studien zur Dynamik bilden die Werte der Temperatur und des Drucks, welche auf der TRIPLE-Gondel sowie durch verschiedene ebenfalls in Esrange oder in Sodankylä/Finnland gestartete Radiosonden gemessenen wurden, sowie die daraus bestimmten Werte der Dichte und der Potentiellen Temperatur (Theta). Diese Zustandsgrößen zeigen eine exponentielle Abhängigkeit von der mittels GPS (Global Positioning System) und damit unabhängig vom Druck gemessenen Höhe (Abb. 9.1 auf Seite 106). Aus den ermittelten Exponenten lassen sich wichtige Größen wie die Brunt-Väisälä-Frequenz N (Anhang 12.5) berechnen.

Die Theorie adiabaticher Schwingungen, mit besonderem Augenmerk auf eine stehende Welle, wurde im Kapitel 9 ausführlich diskutiert. Es wurde ein Gleichungssystem, basierend aus Bewegungsgleichung, Kontinuitätsgleichung und Adiabatenbeziehung, aufgestellt, und eine lineare Störungstheorie angewandt. Der in Übereinstimmung mit den Messwerten und CLaMS-Simulationen angenommene Ansatz für die Orts- und Zeitabhängigkeit der Zustandsgrößen wird durch Abb. 9.4 auf Seite 112 illustriert. Ein am Bauch der angenommenen stehenden Welle entlang der z -Achse (senkrecht zur Erdoberfläche), d.h. im „Swinging Layer“ befindliches Luftpaket führt Vertikalbewegungen aus. Von Bedeutung ist nun die Feststellung, dass das Druckprofil des 11. Februar 1997 im Gegensatz zum Temperaturprofil keine wellenartigen Störungen aufwies (Abb. 9.1 auf Seite 106). Das vertikal schwingende Luftpaket passt seinen Druck somit stets unmittelbar an die Umgebung an. Dichte und Temperatur verändern sich dabei simultan entsprechend der

Adiabatenbeziehungen (223-225). Die Luft am Knoten der stehenden Welle im „Mixing Layer“ (Abb. 9.4 auf Seite 112) führt keine Vertikalbewegung aus, wird allerdings periodisch durch die darüber und darunter befindlichen Luftmassen komprimiert bzw. dekomprimiert. Da sich aber auch auf dem „Mixing Layer“ der Druck offenbar nicht verändert, wird die Luft periodisch aus diesem Bereich verdrängt bzw. strömt in ihn zurück. Die Luft in diesem Bereich verhält sich somit inkompressibel. Zur mathematischen Beschreibung dieser Ausgleichsbewegung musste, wie im Abschnitt 9.2.3 beschrieben, der Korrekturfluss eingeführt und explizit zur Kontinuitätsgleichung sowie zur vertikalen Bewegungsgleichung hinzugefügt werden.

Die sich aus dem Gleichungssystem für den speziellen Fall einer unmittelbaren Druckanpassung ergebenden Gleichungen (Abschnitt 9.3.7) erlauben, die horizontale Wellenlänge λ bzw. die horizontale Wellenzahl $\mu=2\pi/\lambda$ zu berechnen, welche auf Basis der vorhandenen Daten nicht direkt gemessen werden kann (Tab. 10.1). Je nachdem, welche Gleichung zur Berechnung verwendet wurde, unterschieden sich die Ergebnisse dabei um etwa eine Größenordnung. Als Ursache der Diskrepanz wird vermutet, dass die beim Aufstellen der für den „Swinging Layer“ zutreffenden horizontalen Bewegungsgleichung angenommenen Näherungen die Realität nicht korrekt beschreiben, während die mittels der vertikalen Bewegungsgleichung unter Berücksichtigung des Korrekturflusses ermittelte Wellenlänge von etwa 110 km der Realität nahe kommt. Letztere Gleichung führt dabei auf die Näherungsformel $(\sigma/\mu)^2=(N/\mu_{zR})^2$ (180), welche in dieser Form auch durch Andrews, Holton und Leovy unter anderen Voraussetzungen (Rechnung auf Druckniveaus, Annahme inkompressibler Luftpakete, Behandlung laufender Wellen) erhalten wurde ([Andrews et al., 1987], siehe dazu auch die Abschnitte 8.2 und 9.2.2). Diese Übereinstimmung ist kein Zufall, da sich im Bereich des „Mixing Layer“ und damit des Korrekturflusses die Luftpakete tatsächlich inkompressibel verhalten. Da sie keine Vertikalbewegung ausführen, verändert sich ihr Druck und unter adiabatischen Bedingungen auch ihre Dichte nicht. Es lässt sich zudem abschätzen, dass die Amplituden des Korrekturflusses die Amplituden des Gradientenflusses (der horizontalen Ausgleichsbewegungen im Bereich des „Swinging Layer“) um etwa den Faktor 5 übersteigen (siehe Abschnitt 9.3.8), womit das Verhalten der Gesamtstruktur durch den Korrekturfluss bestimmt wird

Die Einführung des Korrekturflusses beinhaltet einen wichtige Aspekt. Da die Theta-Niveaus der „Mixing Layer“ horizontal verlaufen, sich aber aufgrund der unmittelbaren Druckanpassung kein horizontaler Druckgradient ausbildet, ist die genaue Ausrichtung des Korrekturflusses in der x-y-Ebene (parallel zur Erdoberfläche) durch das Gleichungssystem nicht vorgegeben. Die Bewegungsvorgänge auf den „Mixing Layer“ können somit unter Umständen chaotisch ablaufen, und Einmischungen auf diesen Höhenniveaus werden prinzipiell begünstigt. Deshalb wurde die Bezeichnung „Mixing Layer“ gewählt. Auf den „Swinging Layers“ sollten die mit der Dichteänderung verbundenen horizontalen Ausgleichsbewegungen dem Druckgradient folgen und damit eher geordnet verlaufen. Damit passt sich auch die beobachtete Ozonstruktur (Abb. 6.7 auf Seite 67), welche nur durch Mischungsvorgänge erklärt werden kann, in das Gesamt-Beobachtungsbild ein. Die am 11. Februar 1997 beobachtete Wellenstruktur besaß somit zwei Funktionen: Zum einen sorgte sie dafür, dass es auf den „Swinging Layers“ zu einer wesentlich höheren Chloraktivierung kam als aufgrund der synoptischen Temperaturen erwartet. Entsprechend sollte auf diesen Niveaus nach dem 11. Februar 1997 auch ein erhöhter chemischer Ozonverlust stattgefunden haben. Zum anderen wirkte die Wellenstruktur wahrscheinlich als Pumpe und sorgte auf den „Mixing Layers“ für ein Einströmen ozonreicher Luft in den Polarwirbel, welche damit in den folgenden Tagen aber ebenfalls chemischen Abbaureaktionen unterliegen konnten.

Zur Entstehung einer stehenden Welle wurden im Abschnitt 9.4 mehrere Ansätze diskutiert, die Überlagerung einer aufwärts und einer abwärts laufenden Welle, die Anregung von Turbulenzen infolge von Windscherung sowie die Induzierung einer Wellenstruktur aufgrund des Überquerens eines Hindernisses durch den Luftstrom. Letzterer Ansatz, die Ausbildung der Struktur nach Überquerens eines Hindernisses, liefert mit dem Scorer-Parameter L eine messbare Größe, welche der theoretisch zu erwartenden vertikalen Wellenzahl entspricht. In den letzten drei Tagen vor dem TRIPLE-Flug sank der Wert π/L (die halbe Wellenlänge) von 6-7 km auf 3 km, um in den Tagen danach wieder anzusteigen (Abb. 10.5 auf Seite 143). Auch der minimale gemessene Wert lag damit noch über 2 km, der angenommenen halben vertikalen Wellenlänge der stehenden Welle, es ist jedoch nicht ausgeschlossen, dass kurzzeitig auch dieser niedrige Wert erreicht wurde. Diese Verringerung von π/L stand im Zusammenhang mit einer zeitweiligen Anhebung der Tropopause und der darüberliegenden Theta-Niveaus und ging einher mit einer ebenso zeitweiligen Absenkung der Temperatur, einer Verringerung der Windgeschwindigkeit und einem Drehen des Windes in der unteren Stratosphäre. In der darunterliegenden Troposphäre wurden eine zeitweilige Verringerung der Brunt-Väisälä-Frequenz und damit eine Destabilisierung der Luftschichtung im Bereich knapp unterhalb der Tropopause beobachtet (Abb. 10.5 auf Seite 143). Am 10. Februar 1997 wurden zudem Windspitzen von 40 m/s zwischen 5 und 10 km Höhe gemessen, und unmittelbar über der Tropopause bildete sich eine deutliche Temperaturinversion aus (Abb. 6.10 und Abb. 6.11 auf Seite 68f). Insgesamt herrschten damit Bedingungen, welche eine Strukturbildung in der unteren Stratosphäre aufgrund eines inner-atmosphärischen Prozesses begünstigen. Die überwiegende Anzahl von Schwerewellen in der arktischen Stratosphäre werden zwar durch die Topographie induziert [Yoshiki et al., 2000], d.h. sie bilden sich unter bestimmten Bedingungen, wenn der Luftstrom ein Gebirge überquert (im konkreten Fall das Skandinavische Gebirge). Derartige sogenannte orographische Leewellen wurden allerdings um den 11. Februar 1997 weder erwartet noch beobachtet (Abschnitt 6.1.2).

11.5. Konsequenzen

Die vorgeschlagene simultane Erklärung für die am 11. Februar 1997 beobachteten Profile von ClO, Temperatur, Druck und Ozon wirft einige Fragen auf:

- Wie häufig und unter welchen Umständen tritt ein Wellenereignis, wie es in dieser Arbeit diskutiert wurde, auf? Besteht ein Zusammenhang zwischen örtlicher Ausdehnung, Amplitude oder Dauer eines solchen Ereignisses und meteorologischen Parametern (z. B. Brunt-Väisälä-Frequenz N , Scorer-Parameter L , Richardson-Zahl Ri , Tropopausenhöhe, Mächtigkeit der Temperaturinversion über der Tropopause), welche sich aus synoptischen Temperaturdaten (ECMWF) ablesen lassen?
- In wieweit sorgt es für die Erhöhung des chemischen Ozonverlust infolge der periodischen Verringerung der Temperaturen und damit erhöhter Chloraktivierung? Für diesen Ozonverlust lässt sich allerdings eine Obergrenze angeben, welche dann erreicht wird, wenn das verfügbare Chlor (Cl_2) komplett aktiviert wurde. Für die Erklärung der im Abschnitt 3.5 beschriebenen Diskrepanzen zwischen beobachtetem und tatsächlichem Ozonabbau würde selbst eine 100%ige Aktivierung nicht ausreichen.
- Welchen quantitativen Einfluss hat es auf Transportprozesse über den Rand des Polarwirbels? Die Vorgänge im „Mixing Layer“ können aufgrund der geringen Zeit- und Ortsauflösung der meteorologischen Input-Daten (ECMWF, UKMO etc.) nicht durch ein Chemie-Transport-Modell wie CLaMS simuliert werden, womit dieses Modell Mischungsprozesse im Wirbelrandbereich unterschätzen sollte. Proffitt et al. zeigten in einer Studie, auf welche im Abschnitt 4.5 näher eingegangen wurde, dass der Rand des Nordpolarwirbels offenbar durchlässiger ist als vielfach angenommen und der Polarwirbel

sich somit eher mit einem Durchflussreaktor als einem geschlossenen Reaktor vergleichen lässt [Proffitt et al., 2003]. Eine filamentierte Ozonstruktur, wie sie am 11. Februar 1997 beobachtet wurde (Abb. 6.15 auf Seite 72), war für den Randbereich des Nordpolarwirbels Anfang 1997 durchaus typisch (Abschnitt 6.1.1, [Hansen & Chipperfield, 1999]).

- Welchen Einfluss hat es auf Ausmaß und Ablauf von Wolkenbildungen? Ein Eindiffundieren von Kondensationskeimen aus dem „Mixing Layer“ in den periodisch kälteren „Swinging Layer“ könnte den in den Abschnitten 3.2 und 3.4 beschriebenen Salzstreuer- oder NAT-Rock-Prozess [Dhaniyala et al., 2002, Fueglistaler et al., 2002a, Fueglistaler et al., 2002b] auslösen.
- Besteht ein Zusammenhang mit den sogenannten Sandwich-Wolken ([Shibata et al., 1999a, Shibata et al., 1999b])? Wie im Abschnitt 6.2.11 erläutert, stellen derartige Wolken (Schicht aus Flüssigaerosolen, flankiert an der Ober- und Unterseite von je einer Schicht fester Wolkenteilchen) im Allgemeinen ein interessantes Untersuchungsobjekt hinsichtlich der Unterschiede von Reaktionskonstanten an festen und flüssigen Partikeln dar und verdienen deshalb Aufmerksamkeit.

Diese Arbeit zeigt jedoch auch messtechnische Probleme auf. Wenn der TRIPLE-Ballon, wie die Ballon-Radiosonden, ausschließlich meteorologische Daten und ausschließlich während des Aufstiegs gemessen hätte, hätte man die beobachteten Temperatur- und Windprofile (Abb. 8.3 und Abb. 8.4) wahrscheinlich als laufende Welle eingestuft. Sofern die im Abschnitt 8.1 aufgeführten Koinzidenzen, welche zu einer anderen Einschätzung führten, nicht auf einem Zufall beruhen, ergibt sich als Konsequenz, dass eine isolierte Betrachtung von Ballon-Radiosonden-Aufstiegsmessungen, wie sie einem Großteil der Studien zur Wellenproblematik zugrunde liegt, gegebenenfalls zu falschen Schlussfolgerungen führen kann. Auch Joseph et al. warnen vor derartigen Fehleinschätzungen ([Joseph et al., 2003], siehe Abschnitt 9.4.3.).

Ballonmessungen besitzen den Nachteil, dass interessante Objekte (z. B. Wolken) nicht gezielt angefliegen werden können. Wegen der Bindung an bestimmte Startplätze kann auch der hochinteressante Randbereich des Polarwirbels nur unter günstigen Umständen, wie am 11. Februar 1997, erreicht werden. Untersuchungen des Wirbelrandbereich mit Passagen durch den Rand sind ebenfalls nicht möglich. Deswegen werden vermehrt die Höhenforschungsflugzeuge M-55 „Geophysica“ (Russland) und ER-2 (USA) eingesetzt. Wegen der hohen Fluggeschwindigkeit weisen die Messungen jedoch eine geringe Ortsauflösung und eine größere Fehlerquote z.B. aufgrund der Bildung von Turbulenzen im Messkanal (siehe Abschnitt 5.4.1) auf. Dies gilt besonders für Steig- oder Sinkflug, so dass Messungen bevorzugt entlang horizontaler Flugbahnen durchgeführt werden. Ein Messflug am 11. Februar 1997 über Kiruna auf dem 490-K –Niveau hätte aber zu anderen Ergebnissen geführt als ein Flug auf dem 470- oder 510-K-Niveau (siehe z. B. Abb. 6.8 auf Seite 67). Die Untersuchungen zum 11. Februar 1997 sowie die in Abb. 9.4 auf Seite 112 dargestellte Interpretation ("Swinging Layer" und "Mixing Layers") unterstreichen die Notwendigkeit der Kenntnis des Vertikalprofils von Temperatur, Druck, Dichte und Potentieller Temperatur. Ideales Messinstrument dafür wären Ballon- oder Fallschirmsonden oder aber unbemannte Kleinstflugzeugsonden [Insitu, 2002], welche vom Forschungsflugzeug aus gestartet werden. Zudem können einige der Aufgaben der Höhenforschungsflugzeuge M-55 und ER-2, insbesondere die Untersuchung orographischer Leewellen, gegebenenfalls auch effektiver und kostengünstiger durch langsamer fliegende bemannte Segelflugzeuge übernommen werden [Carter et al., 2003, MWP, 2003].

12. Anhang

12.1. Ideales Gas und adiabatische Zustandsänderungen

Luft kann näherungsweise als ein ideales Gas angesehen werden. Entsprechend gilt die ideale Gasgleichung

$$P = \rho \frac{R}{M} T \quad (222)$$

mit R der allgemeinen Gaskonstante, M der molaren Masse von Luft und P , ρ und T den Zustandsgrößen Druck, Dichte und Temperatur. Unter einer trockenadiabatischen Zustandsänderung versteht man einen Prozess, welcher reversibel abläuft und bei welchem zudem die Änderungen von Aggregatzuständen keine Rolle spielt, siehe Abschnitt 2.1. Bei trockenadiabatischen Zustandsänderungen eines idealen Gases gelten folgende Zusammenhänge zwischen den Zustandsgrößen:

$$P\rho^{-\kappa} = \text{const} \quad (223)$$

$$\rho T^{\frac{1}{1-\kappa}} = \text{const} \quad (224)$$

$$TP^{-\left(1-\frac{1}{\kappa}\right)} = \text{const} \quad (225)$$

mit κ dem Adiabatenkoeffizient, dem Quotienten aus den spezifischen Wärmekapazitäten (d.h. der Wärmemenge, welche erforderlich ist, um 1 kg eines Stoffes um 1 K zu erwärmen) für isobare und für isochore Zustandsänderungen. Bei isobaren Zustandsänderungen bleibt der Druck erhalten. Bei einer Temperaturerhöhung muss der erwärmte Stoff somit Volumenarbeit leisten, und es ist eine größere Wärmemenge erforderlich als bei isochoren, unter Volumenerhalt ablaufenden Zustandsänderungen. Für trockene Luft gilt $\kappa=1,4$.

Auf Basis von Gleichung (225) ist die Potentielle Temperatur Θ (Theta) definiert (Gleichung (1) im Abschnitt 2.1). Wenn eine Zerlegung von Temperatur, Druck und Dichte in Mittelwert und Störungen vorgenommen wird nach dem Muster

$$P_{\text{total}} = P_0 + P = P_s e^{-\alpha z_0} + P \quad (226)$$

$$\rho_{\text{total}} = \rho_0 + \rho = \rho_s e^{-\delta z_0} + \rho \quad (227)$$

$$T_{\text{total}} = T_0 + T = T_s e^{-\beta z_0} + T \quad (228)$$

ergeben sich aus (224-225) folgende Beziehungen zwischen den Störungstermen.

$$P = P_0 \left\{ \left(\frac{T_0}{T_0 + T} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} - 1 \right\} = P_s e^{-\alpha z_0} \left\{ \left(1 + \frac{T}{T_s} e^{\beta z_0} \right)^{\frac{1-\kappa}{\kappa}} - 1 \right\} \quad (229)$$

$$\rho = \rho_0 \left\{ \left(\frac{T_0}{T_0 + T} \right)^{\frac{1}{1-\kappa}} - 1 \right\} = \rho_s e^{-\delta z_0} \left\{ \left(1 + \frac{T}{T_s} e^{\beta z_0} \right)^{\frac{1}{\kappa-1}} - 1 \right\} \quad (230)$$

12.2. Die Potentielle Vortizität

Die physikalische Größe Potentielle Vortizität (**P**otential **V**orticity), oder Potentielle Wirbelstärke, im Folgenden auch kurz als PV bezeichnet, entsteht aus der Kombination von drei Erhaltungssätzen: die Erhaltung des Drehimpulses, der Masse und der Energie. Diese werden auf Wirbel in der Atmosphäre angewendet. Für eine exakte Herleitung sei z. B. auf [Roedel, 1994] verwiesen, das Prinzip kann jedoch einfach anhand eines zylinderförmigen Luftwirbels, dessen Zylinderachse in vertikaler Richtung verläuft, demonstriert werden.

Der Drehimpuls ist definiert als Produkt aus Trägheitsmoment J und Rotationsfrequenz bzw. Winkelgeschwindigkeit ω , sein Erhaltungssatz lautet somit allgemein

$$0 = \frac{d}{dt}(J\omega) = \omega \frac{d}{dt}J + J \frac{d}{dt}\omega \quad (231)$$

Das Trägheitsmoment J eines Zylinders, welcher um seine Achse rotiert, beträgt

$$J = \frac{1}{2}mr^2 \quad (232)$$

mit m der Masse des Zylinders und r seinem Radius. Dieser Ausdruck kann mit der Druckdifferenz zwischen der Unter- und der Oberseite des Wirbels verknüpft werden. Diese Differenz muss durch die Schwerkraft kompensiert werden, d.h. es gilt

$$\pi r^2 \Delta P = mg \quad (233)$$

woraus folgt

$$J = \frac{m^2 g}{2\pi \Delta P} \quad (234)$$

und damit

$$\frac{1}{J} \frac{d}{dt}J + \frac{1}{\omega} \frac{d}{dt}\omega = -\frac{1}{\Delta P} \frac{d}{dt}\Delta P + \frac{1}{\omega} \frac{d}{dt}\omega = 0 \quad (235)$$

Die Beziehung (235) wird unter der Voraussetzung erhalten, dass die Masse des Zylinders keiner zeitlichen Veränderung unterliegt. Damit geht auch die Erhaltung der Masse des Luftwirbels in die Definition der PV ein.

Im Folgenden soll die Winkelgeschwindigkeit ω noch durch die sogenannte absolute Vortizität eines Wirbels ersetzt werden. Die Wirbelstärke ζ eines Wirbels in der horizontalen x-y-Ebene ist definiert als die z-Komponente des Rotors des Geschwindigkeitsfeldes. Bei der Darstellung des Rotationsoperators in Zylinderkoordinaten tritt nur eine Geschwindigkeitskomponente tangential zur Kreisbahn der Teilchen auf, und es ergibt sich

$$\zeta = \text{rot}_z \vec{v} = \left(\frac{\partial v_y}{\partial x} - \frac{\partial v_x}{\partial y} \right) \hat{e}_z = \frac{1}{r} \frac{\partial(r v_\phi)}{\partial r} \hat{e}_z = \frac{1}{r} \frac{\partial(r^2 \omega_0)}{\partial r} = 2\omega_0 \quad (236)$$

Bei dem Drehimpuls J , und entsprechend auch den Größen ζ und ω , soll es sich per Definition um eingeprägte Größen handeln, d.h. bei der Betrachtung atmosphärischer Wirbel muss die Corioliskraft explizit berücksichtigt werden. Die absolute Wirbelstärke oder Vortizität η ist damit definiert als

$$\eta = 2\omega_0 + 2\Omega \sin \Phi = \zeta + f = 2\omega \quad (237)$$

mit Φ dem Breitengrad und Ω der Frequenz der Erdumdrehung. Sofern der Coriolisparameter f über die Rotation des Geschwindigkeitsfeldes ζ dominiert, muss η genau wie f auf der Nordhalbkugel positive und auf der Südhalbkugel negative Werte annehmen. Mit zunehmender geographischer Breite wächst der Betrag von η . In Beziehung (235) kann nun 2ω durch η ersetzt werden und man erhält

$$0 = -\frac{\eta}{(\Delta P)^2} \frac{d}{dt} \Delta P + \frac{1}{\Delta P} \frac{d}{dt} \eta = \frac{d}{dt} \frac{\eta}{\Delta P} = \frac{d}{dt} Z_R \quad (238)$$

Die Größe Z_R stellt damit eine Erhaltungsgröße dar. Sie wird als die Rossbysche Potentielle Vortizität bezeichnet, da sie von Rossby zuerst in dieser Form dargestellt wurde. Gegenwärtig (wie auch in dieser Arbeit) wird jedoch zumeist eine andere, auf Ertel zurückgehende Definition verwendet [Ertel, 1942]. Diese Definition lässt sich einfach aus der Rossbyschen Formulierung ableiten. Dazu wird angenommen, dass die vertikalen Begrenzungen des Luftwirbels nahe genug beieinander liegen, um einen linearen Zusammenhang zwischen Höhe z und Potentieller Temperatur Θ (Theta) anzunehmen

$$\Delta \Theta = \Theta_s - \Theta_1 = (z_2 - z_1) \frac{d\Theta}{dz} = \text{const} \quad (239)$$

Da mit der Rotation des Luftwirbels kein Wärmeaustausch mit der Umgebung einhergehen soll, d.h. es handelt sich um eine adiabatische Bewegung, bleibt die Theta-Differenz somit erhalten, während sich die vertikale Ausdehnung des Wirbels ändern kann. Diese Beziehung kann nun (unter Ersetzen der Masse durch das Produkt aus Dichte, Fläche und Höhe) mit Gleichung (233) und damit mit der Druckdifferenz verknüpft werden.

$$\Delta P = \rho(z_2 - z_1)g = \text{const} \rho \left(\frac{d\Theta}{dz} \right)^{-1} \quad (240)$$

woraus sich aus Einsetzen in Gleichung (238) eine weitere Erhaltungsgröße ergibt

$$Z_E = \frac{\eta}{\rho} \frac{d\Theta}{dz} \quad (241)$$

Die Größe Z_E wird mit vollem Namen als Ertelsche Potentielle Vortizität bezeichnet. In dieser Arbeit ist mit Potentieller Vortizität oder PV stets die Ertelsche Definition gemeint. Als Einheit ergibt sich $\text{m}^2\text{K}/(\text{kg}\cdot\text{s})$, wobei $10^{-6}\text{m}^2\text{K}/(\text{kg}\cdot\text{s})$ gewöhnlich mit PVU (Potential Vorticity Unit) abgekürzt wird.

Die Bedeutung der PV, nach beiden Definitionen, kann leicht aus den Gleichungen (238) bzw. (241) abgelesen werden: Wenn sich der Vertikalabstand zwischen zwei Theta-Niveaus oder aber die Druckdifferenz zwischen der Unter- und der Oberseite des Wirbels verringert, müssen sich entsprechend auch der Betrag der absoluten Wirbelstärke η und damit auch die eingeprägte Winkelgeschwindigkeit ω verringern. Das Trägheitsmoment J nimmt nach Gleichung (231) entsprechend zu, und der Luftwirbel dehnt sich laut Gleichung (232) entsprechend in der Horizontalebene aus.

12.3. Druck und Dichte einer statischen isothermen Atmosphäre

Unter der Annahme einer isothermen Atmosphäre, d.h. einer höhenunabhängigen Temperatur T_s , lassen sich für den Druck und die Dichte leicht Formeln für ihre Vertikalverteilung herleiten. Das Kräftegleichgewicht in der Atmosphäre lautet

$$dF = g dM \quad (242)$$

mit dM der Masse einer Kugelschale der Atmosphäre, g der Fallbeschleunigung und dF der kompensierenden Kraft. Nun gilt

$$F = 4\pi(R_{\text{Erde}} + z_0)^2 P_0 \quad (243)$$

und (mit Hilfe der idealen Gasgleichung (222))

$$dM = 4\pi\rho_0 g(R_{\text{Erde}} + z_0)^2 dz_0 = 4\pi \frac{P_0}{T_s} \frac{M}{R} g(R_{\text{Erde}} + z_0)^2 dz_0 \quad (244)$$

mit P_0 dem Druck und ρ_0 der Dichte der Luft, g der Fallbeschleunigung, R_{Erde} dem Erdradius, z_0 der Höhe über der Erdoberfläche, R der allgemeinen Gaskonstante und M der molaren Masse von Luft. Gleichsetzen liefert die Differentialgleichung

$$\frac{1}{P_0(R_{\text{Erde}} + z_0)^2} \frac{d\{P_0(R_{\text{Erde}} + z_0)^2\}}{dz_0} = \frac{1}{T_s} \frac{M}{R} g \quad (245)$$

welche gelöst wird durch

$$P_0 = P_s \frac{(R_{\text{Erde}} + z_s)^2}{(R_{\text{Erde}} + z_0)^2} e^{-\frac{1}{T_s} \frac{M}{R} g(z_0 - z_s)} \quad (246)$$

Dabei handelt es sich um die barometrische Höhenformel. In dieser Formel taucht ein Korrekturfaktor auf, welcher aus der Zunahme der Fläche einer Kugelschale der Atmosphäre mit zunehmender Höhe resultiert und z. B. bei der Ermittlung des erwarteten langjährigen mittleren Drucks an einer Wetterstation im Gebirge eine Rolle spielt [Mewes, 2002]. In dieser Arbeit, welche Prozesse in der realen Atmosphäre behandelt, wurde das Vertikalprofil des mittleren Drucks wie auch aller anderen Zustandsgrößen jedoch nicht exakt hergeleitet, sondern aus einer Anpassung gewonnen. Dieser Korrekturfaktor, dessen Einfluss auf die Anpassung sehr gering ist, kann damit vernachlässigt werden, d.h. es wird zur Vereinfachung angenommen, dass auf einem bestimmten Punkt in der Atmosphäre oder auf der Erdoberfläche kein Luftkegel lastet, sondern eine Luftsäule mit höhenunabhängigem Durchmesser. Das Kräftegleichgewicht (242) und die barometrische Höhenformel (246) vereinfachen sich damit sowie mit Beziehung (259) zwischen Temperatur und Schallgeschwindigkeit c zu den aus der Literatur bekannten Ausdrücken

$$dP_0 = -g\rho_0 dz_0 \quad (247)$$

$$P_0 = P_s e^{-\frac{1}{T_s} \frac{M}{R} g(z_0 - z_s)} = P_s e^{-\frac{\kappa g}{c^2} (z_0 - z_s)} \quad (248)$$

Zur Ermittlung der Vertikalverteilung der Dichte, ebenfalls für eine isotherme Atmosphäre, wird davon ausgegangen, dass die Anzahl Teilchen, welche sich in einer Kugelschale der

Atmosphäre befinden, alle die selbe Energie E besitzen. Der Boltzmannsche Satz liefert nun das Verhältnis der Teilchenzahl N_0 einer Kugelschale zur Teilchenzahl N_S einer Vergleichskugelschale der selben Dicke, und damit auch das Verhältnis von deren Massen $\rho_0 V_0$ und $\rho_S V_S$.

$$\frac{N_0}{N_S} = e^{-\frac{E_0 - E_S}{kT_S}} = \frac{\rho_0}{\rho_S} \frac{V_0}{V_S} = \frac{\rho_0}{\rho_S} \frac{(R_{\text{Erde}} + z_0)^2}{(R_{\text{Erde}} + z_S)^2} \quad (249)$$

woraus folgt

$$\rho_0 = \rho_S \frac{(R_{\text{Erde}} + z_S)^2}{(R_{\text{Erde}} + z_0)^2} e^{-\frac{E_0 - E_S}{kT_S}} \quad (250)$$

Nach der idealen Gasgleichung (222) müssen die Exponenten der Gleichungen (246) und (250) einander entsprechen, d.h. es muss gelten

$$\frac{E_0 - E_S}{k} = \frac{M}{R} g(z_0 - z_S) = \frac{M}{kN_A} g(z_0 - z_S) = \frac{m}{k} g(z_0 - z_S) \quad (251)$$

mit $R = kN_A$ der allgemeinen Gaskonstante, k der Boltzmann-Konstante, N_A der Avogadro'schen Zahl, d.h. der Anzahl von Teilchen in einem Mol, und M der molaren Masse. m bezeichnet demzufolge die Masse eines Luftteilchens, und bei E_0 handelt es sich um seine Potentielle Energie auf der Höhe z_0 .

Auch in der Vertikalverteilung der Dichte taucht der Kugelflächen-Korrekturfaktor auf. Wenn er vernachlässigt wird, vereinfacht sich die Vertikalverteilung der Dichte zu

$$\rho_0 = \rho_S e^{-\frac{E_0 - E_S}{kT_S}} = \rho_S e^{-\frac{\kappa g}{c^2}(z_0 - z_S)} = \rho_S e^{-\delta(z_0 - z_S)} \quad (252)$$

12.4. Schallwellen

Unter reinen Schallwellen versteht man per Definition Wellen, welche sich in einem homogen verteilten, in Ruhe befindlichen und kräftefreien Gas ausbreiten. Aus dem Gleichungssystem (101-104) müssen damit alle Terme der Schwer- und Corioliskraft sowie alle Glieder, welche die Grundgeschwindigkeit v_0 oder den Dichteexponenten δ (welcher die Höhenabhängigkeit der Dichte beschreibt) enthalten, eliminiert werden. Auch der Korrekturfluss v_C taucht nicht auf. Der Zeitableitungs-Operator d_0/dt , welcher in Gleichung (78) definiert wurde, vereinfacht sich zur partiellen Zeitableitung. Man erhält

$$\rho_0 \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \nabla P = 0 \quad (253)$$

$$\frac{\partial P}{\partial t} + \kappa P_0 \nabla \vec{v} = 0 \quad (254)$$

Letztere Gleichung wird noch einmal nach der Zeit abgeleitet

$$\frac{\partial^2 P}{\partial t^2} + \kappa P_0 \nabla \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = 0 \quad (255)$$

Mittels Gleichung (253), der idealen Gasgleichung (222) und den oben beschriebenen Voraussetzungen für reine Schallwellen ergibt sich

$$\frac{\partial^2 P}{\partial t^2} - \kappa \frac{R}{M} T_0 \nabla^2 P = 0 \quad (256)$$

Diese Gleichung entspricht dem Typ einer harmonischen Wellengleichung, sie wird durch folgenden Ansatz erfüllt

$$P = P_a e^{i(\mu_x x + \mu_y y + \mu_z z - \omega t)} \quad (257)$$

mit μ der Wellenzahl und ω der Frequenz der beschriebenen Welle. Ein Einfügen dieses Ansatzes ergibt die Schallgeschwindigkeit

$$c = \sqrt{\frac{\omega^2}{\mu^2}} = \sqrt{\kappa \frac{R}{M} T_0} \quad (258)$$

Diese hängt damit nur von der Zusammensetzung der Luft und der Temperatur ab. Bei einer Temperatur von 0°C beträgt die Schallgeschwindigkeit 332 m/s.

Die ideale Gasgleichung (222) kann nun auch umgeschrieben werden zu

$$\frac{P_0}{\rho_0} = \frac{R}{M} T_0 = \frac{c^2}{\kappa} \quad (259)$$

Wenn nun die Dichte ρ_0 durch das Druckgleichgewicht der statischen Atmosphäre (75) ersetzt wird, ergibt sich die Beziehung

$$\frac{1}{P_0} \frac{\partial P_0}{\partial z} = -\frac{\kappa g}{c^2} \quad (260)$$

was der Gleichung (66), in welcher der Parameter c zunächst ad hoc eingeführt wurde, entspricht. Im Fall einer isothermen Atmosphäre und damit höhenunabhängigen Schallgeschwindigkeit gilt damit

$$P_0 = P_s e^{-\frac{\kappa g}{c^2} z} \quad (261)$$

12.5. Schwereoszillationen und die Brunt-Väisälä-Frequenz

Eine Schwereoszillation wird dadurch erzeugt, dass ein Luftpaket vertikal aus seiner Ruhelage ausgelenkt wird. Es sei angenommen, dass, wie am 11. Februar 1997 beobachtet (Abb. 9.1 auf Seite 106) dieses Luftpaket sich unmittelbar und adiabatisch an seinen Umgebungsdruck anpasst. Simultan mit dem Druck verändern sich auch Dichte und Temperatur entsprechend der Adiabatenbeziehungen (223) und (225). Die Dichte entspricht jetzt aber im Allgemeinen nicht mehr der Dichte der Umgebung, das ausgelenkte Luftpaket erfährt somit eine aus Schwerkraft und Auftriebskraft resultierende Kraft entweder in Richtung oder entgegen der Auslenkung. In ersterem Fall spricht man von einer labilen Schichtung der Luft, da die resultierende Kraft zu einer Verstärkung der Auslenkung führt und das Luftpaket irreversibel vom Ausgangsort hinwegführt. In letzterem Fall spricht man von einer stabilen Schichtung, da das Luftpaket in Richtung seiner Ausgangsposition

zurückgedrängt wird. Auch der Sonderfall der indifferenten Schichtung, bei welcher die resultierende Kraft gleich Null ist und das Luftpaket somit nach der Auslenkung an seinem neuen Ort verbleibt, ist möglich.

P_0 , T_0 und ρ_0 bezeichnen die ungestörten Werte der Zustandsgrößen auf einer bestimmten Höhe z_0 . Man nimmt nun an, dass ein Luftpaket, welches sich im Gleichgewichtszustand auf dieser Höhe z_0 befindet, um die Differenz s vertikal ausgelenkt wurde. Im Moment der Beobachtung auf der Höhe z_0+s besitzt die Dichte dieses Luftpakets somit den Wert $\rho_0+\rho$. Entsprechendes gilt für die Temperatur und den Druck. Der Druck ist aber nach der Auslenkung mit dem Umgebungsdruck P_{umg} identisch, welcher den für die Höhe z_0+s geltenden ungestörten Druckwert repräsentiert. Nach der idealen Gasgleichung (222) gilt somit

$$P_0 + P = P_{\text{umg}} = \frac{R}{M}(\rho_0 + \rho)(T_0 + T) = \frac{R}{M}\rho_{\text{umg}}T_{\text{umg}} \quad (262)$$

mit

$$\rho_{\text{umg}} = \rho_s e^{-\delta(z_0+s)} = \rho_0 e^{-\delta s} \quad (263)$$

und

$$P_{\text{umg}} = P_s e^{-\frac{\kappa g}{c^2}(z_0+s)} = P_0 e^{-\frac{\kappa g}{c^2}s} \quad (264)$$

Für die Druckstörung P folgt damit unter Berücksichtigung des Kräftegleichgewichts der statischen Atmosphäre (75)

$$P = P_{\text{umg}} - P_0 = -\frac{\kappa g}{c^2}P_0 s = \frac{\partial P_0}{\partial z_0}s = -\rho_0 g s \quad (265)$$

Die Vertikalbewegung des betrachteten Luftpakets soll ausschließlich durch die Differenz zwischen Schwer- und Auftriebskraft bewirkt werden, d.h. zusätzliche Kraftterme aufgrund des Verdrängens von Umgebungsluft, wie sie im Abschnitt 9.2.3 diskutiert wurden, sollen außer Acht gelassen werden. Die Bewegungsgleichung lautet damit

$$m \frac{\partial^2 s}{\partial t^2} + (m - \rho_{\text{umg}}V)g = 0 \quad (266)$$

mit s der vertikalen Auslenkung, m der Masse und V dem Volumen der Luftmasse. Daraus folgt

$$(\rho_0 + \rho) \frac{\partial^2 s}{\partial t^2} + (\rho_0 + \rho - \rho_{\text{umg}})g = 0 \quad (267)$$

Um diese Gleichung zu lösen, muss nun auf die Adiabatenbeziehungen zurückgegriffen werden. Nach der Beziehung (223) gilt

$$\rho_0 + \rho = \rho_0 \left(\frac{P_0 + P}{P_0} \right)^{\frac{1}{\kappa}} = \rho_0 \left(\frac{P_{\text{umg}}}{P_0} \right)^{\frac{1}{\kappa}} = \rho_0 e^{-\frac{g}{c^2}s} \quad (268)$$

und damit

$$\rho_0 + \rho - \rho_{\text{umg}} = \rho_0 \left(e^{\frac{-g}{c^2}s} - e^{-\delta s} \right) \approx \rho_0 \left(\delta - \frac{g}{c^2} \right) s \quad (269)$$

womit die Bewegungsgleichung (267) unter Vernachlässigung eines Störungsterms 2. Ordnung umgeschrieben werden kann zu

$$\rho_0 \frac{\partial^2 s}{\partial t^2} + \rho_0 \left(\delta g - \frac{g^2}{c^2} \right) s = 0 \quad (270)$$

Diese Gleichung entspricht der Gleichung eines harmonischen Oszillators, sie wird gelöst durch den Ansatz

$$s = s_a e^{i \sqrt{\delta g - \frac{g^2}{c^2}} t} = s_a e^{i N t} \quad (271)$$

Die Bewegungsgleichung (267) kann aber auch wie folgt gelöst werden: Man nimmt an, dass in dem Bereich, in welchen das Luftpaket verschoben wurde, ein linearer Temperaturgradient γ vorliegt. Damit lässt sich schreiben

$$T_{\text{umg}} = T_0 - \gamma s \quad (272)$$

Wie üblich ist der Temperaturgradient γ damit so definiert, dass er bei mit wachsender Höhe abnehmender Temperatur, d.h. unter troposphärischen Bedingungen (abgesehen von Inversionswetterlagen) ein positives Vorzeichen erhält. Die Temperatur des Luftpakets selbst ist nun aber im Allgemeinen nicht mit T_0 identisch, für sie gilt vielmehr

$$T_0 + T = T_0 - \Gamma s \quad (273)$$

Bei Γ handelt es sich um den adiabatischen Temperaturgradienten, welcher später hergeleitet wird. Die Bewegungsgleichung (267) kann nun mit Hilfe der Gleichungen (262), (272) und (273) umgeschrieben werden zu

$$\frac{1}{g} \frac{\partial^2 s}{\partial t^2} = \frac{T_0 + T}{T_{\text{umg}}} - 1 = \left(\frac{\gamma - \Gamma}{T_{\text{alt}} - \gamma z} \right) s = \left(\frac{\gamma - \Gamma}{T_{\text{umg}}} \right) s \quad (274)$$

Ein Einsetzen des Ansatzes (271) in diese Gleichung liefert

$$N^2(z_0 + s) = g \frac{\Gamma - \gamma}{T_{\text{umg}}} \quad (275)$$

und somit

$$N^2(z_0) = g \frac{\Gamma - \gamma}{T_0} \quad (276)$$

Aus Gleichung (276) lässt sich ablesen: Ist der wahre Temperaturgradient γ kleiner als der adiabatische Temperaturgradient Γ , d.h. ändert sich die Umgebungstemperatur langsamer als

die Temperatur des Luftpakets (welches damit beim Aufstieg zu kalt für die Umgebung wird und deshalb wieder absinken muss, für den Abstieg gilt entsprechendes) wird N^2 positiv. Die Wurzel ergibt eine Schwingungsfrequenz, die sogenannte Brunt-Väisälä-Frequenz N . Je kleiner der wahre Temperaturgradient γ , um so größer ist N , d.h. um so schneller kehrt das Luftpaket in seine Gleichgewichtslage zurück und um so stabiler ist somit die Schichtung der Luftmassen. Besonders stabil wird sie in der Stratosphäre, wo der wahre Temperaturgradient γ negativ wird. Im umgekehrten Fall, wenn γ größer als Γ ist, wird N^2 negativ, und N damit imaginär. Es liegt der Fall einer labilen Schichtung vor. Ein Einsetzen in Gleichung (46) ergibt, dass selbst eine geringfügige initiale Auslenkung des Luftpakets bewirkt, dass der Abstand des Luftpakets vom Ausgangsort mit der Zeit exponentiell wächst und sich das Luftpaket irreversibel von seinem Ausgangsort entfernt. Je stärker die Temperatur mit der Höhe abfällt, um so wahrscheinlicher ist das Umkippen einer schwach stabilen Schichtung in eine labile Schichtung, welche zu einer Durchmischung und Neuschichtung der Atmosphäre führt. Aus diesem Grund ist die Troposphäre gut durchmischt, während in der Stratosphäre Transportprozesse überwiegend horizontal verlaufen. Aber auch in der bodennahen Atmosphäre treten hin und wieder negative Temperaturgradienten (d.h. ein Anwachsen der Temperatur mit der Höhe) auf, die sogenannten Inversionswetterlagen, welche dazu führen, dass sich die bodennahe Luft nicht mit den darüberliegenden Luftschichten vermischen kann. Der Fall der indifferenten Schichtung tritt ein, wenn wahrer Temperaturgradient γ und adiabatischer Temperaturgradient Γ identisch sind und die vertikale Position des Luftpakets nach der Auslenkung entsprechend konstant bleibt.

Der adiabatische Temperaturgradient Γ kann mit der Potentiellen Temperatur θ in Verbindung gebracht werden. Man leitet die Gleichung (1) nach der Höhe z_0 ab.

$$\frac{1}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z_0} = \frac{1}{T_0} \frac{\partial T_0}{\partial z_0} - \left(1 - \frac{1}{\kappa}\right) \frac{1}{P_0} \frac{\partial P_0}{\partial z_0} \quad (277)$$

Bei einer adiabatischen Höhenänderung der Luftmasse muss per Definition die Ableitung von θ verschwinden, und bei der Höhenableitung der Temperatur handelt es sich in diesem Fall ebenfalls per Definition um den adiabatischen Temperaturgradient Γ , bzw. genauer um seinen negativen Wert, da Γ für einen Temperaturabfall mit zunehmender Höhe als positiv definiert wird. Es gilt somit

$$\Gamma = \left(\frac{1}{\kappa} - 1\right) \frac{T_0}{P_0} \frac{\partial P_0}{\partial z_0} \quad (278)$$

Mit dem Druckgleichgewicht (75) und der idealen Gasgleichung (222) folgt daraus

$$\Gamma = \left(1 - \frac{1}{\kappa}\right) \frac{M}{R} g = 9,8 \frac{\text{K}}{\text{km}} \quad (279)$$

Wenn die Temperatur auf einem Kilometer Höhe stärker abfällt als 9,8 K, tritt eine labile Schichtung ein. Es handelt sich hierbei um die Bergwanderer-Faustregel, dass aller hundert Meter Höhe die Temperatur um maximal 1 K abnehmen kann (Bergwanderer sollten allerdings den Unterschied zwischen tatsächlicher und gefühlter Temperatur bedenken).

Gleichung (277) lässt sich nun unter Berücksichtigung von (272) und (278) umschreiben zu

$$\frac{1}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z_0} = \frac{1}{T_0} \left(\Gamma + \frac{\partial T_0}{\partial z_0} \right) = \frac{1}{T_0} (\Gamma - \gamma) \quad (280)$$

und für die Brunt-Väisälä-Frequenz ergibt sich aus Gleichung (276)

$$N^2 = \frac{g}{\Theta} \frac{\partial \Theta}{\partial z_0} \quad (281)$$

Dies entspricht Gleichung (68), in welcher der Parameter N zunächst ad hoc eingeführt wurde. Laut Gleichung (68), wie auch laut Gleichung (270), gilt zudem

$$N^2 = g\delta - \frac{g^2}{c^2} \quad (282)$$

womit der Zusammenhang zwischen der Brunt-Väisälä-Frequenz N , dem Dichteexponenten δ und der Schallgeschwindigkeit c hergestellt ist.

12.6. Doppler-Effekt

Die Frequenzverschiebung infolge des Doppler-Effekts lautet allgemein:

$$f_{\text{Empfänger}} = f_{\text{Sender}} \frac{c_{\text{Phase}} - v_{\text{Empfänger}}}{c_{\text{Phase}} - v_{\text{Sender}}} \quad (283)$$

Bei der Anwendung auf atmosphärischen Schwingungen müssen nun zwei Fälle unterschieden werden.

1. Die Wellen bewegen sich mit dem Medium, der Luft. Der Sender ist damit (relativ zum Medium) ruhend und der Empfänger bewegt. Eine Bewegung der Luft mit der Geschwindigkeit v_0 ist somit gleichbedeutend mit der Bewegung des Empfängers mit der Geschwindigkeit $-v_0$. Die Frequenz des Senders entspricht der Frequenz σ (per Definition gemessen durch einen mit den Luftmassen mitreisenden Beobachter) und die Frequenz des Empfängers mit der Frequenz ω (per Definition gemessen durch auf der Erde ruhenden Beobachter). Damit kann Gleichung (283) umgeschrieben werden zu

$$\omega = \sigma \left(\frac{c_{\text{Phase}} + v_0}{c_{\text{Phase}}} \right) = \sigma \left(1 + \frac{v_0}{c_{\text{Phase}}} \right) \quad (284)$$

2. Die Wellen entstehen durch das Überströmen von stationären oder sich bewegenden Hindernissen. Alle Luftpakete eines Höhenniveaus benutzen relativ zum Hindernis gesehen den selben Weg. Diese Welle ist für einen Beobachter, welcher sich relativ zum Hindernis in Ruhe befindet, stationär. Damit wird ω , die von einem relativ zur Erdoberfläche ruhenden Beobachter gespürte Frequenz, zur Frequenz des Senders (wenn das Hindernis auf der Erdoberfläche ruht, verschwindet sie völlig) und σ , die durch den mit den Luftmassen sich mitbewegenden Beobachter gespürte Frequenz, zur Frequenz des Empfängers. Nun ruht der Empfänger (relativ zum Medium), während sich der Sender mit der Geschwindigkeit $-v_0$ bewegt. Einsetzen in Gleichung (283) ergibt ebenfalls den Ausdruck (284).

Aus Gleichung (284) folgt

$$\sigma = \omega - v_0 \frac{\sigma}{c_{\text{Phase}}} = \omega - v_0 \mu_x \quad (285)$$

12.7. Herleitung des Scorer-Parameters

Es soll eine Lösung gefunden werden für den Fall, dass der Luftstrom ein Hindernis überquert. Im Unterschied zu den übrigen Berechnungen zur Wellenproblematik wird die Bewegung im x-y-z-Koordinatensystem betrachtet. Mit dem Index „umg“ versehene Größen bezeichnen die Gleichgewichts-Zustandsgrößen auf den verschiedenen Höhenniveaus, welche ausschließlich von der Höhe abhängen. Mit dem Index 0 versehene Größen bezeichnen die Umgebungsgrößen auf einem ausgewählten Höhenniveau, s bezeichnet die vertikale Auslenkung relativ zu diesem Niveau. Für die Gesamtdichte gilt damit

$$\rho_{\text{akt}} = \rho_{\text{umg}} + \rho = \rho_0 e^{-\delta s} + \rho \quad (286)$$

ρ und s stellen dabei Störungsterme dar. An einem Hindernis soll der horizontale, in x-Richtung verlaufende Luftstrom in die vertikale Richtung umgelenkt werden. Für einen relativ zu diesem Hindernis ruhenden Beobachter sollen keine zeitlichen Änderungen der Flüsse stattfinden. Die totale Zeitableitung entspricht damit der partiellen Ortsableitung in Richtung des Grundstroms v_0 (welcher als höhenunabhängig angenommen werden soll), d.h. in x-Richtung.

$$\frac{d}{dt} = v_{x,\text{gesamt}} \frac{\partial}{\partial x} = v_0 \frac{\partial}{\partial x} + v_x \frac{\partial}{\partial x} \quad (287)$$

Die Bewegungsgleichung in x-Richtung lautet damit unter Vernachlässigung der Corioliskraft

$$\rho_{\text{akt}} \frac{dv_x}{dt} \approx \rho_{\text{umg}} v_0 \frac{\partial v_x}{\partial x} = -\frac{\partial P}{\partial x}, \quad (288)$$

Die Dichte soll auf einem bestimmten Höhenniveau allerdings konstant bleiben, die Kontinuität wird durch eine Ablenkung des Luftstroms aus der x- in die z-Richtung gewahrt.. P stellt damit, analog zum im Abschnitt 9.2.3 eingeführten Korrekturdruck, einen Kraftterm dar, welcher das Bremsen des Luftstroms in x-Richtung und das Beschleunigen in z-Richtung bewirkt. Die Kontinuitätsgleichung (84) vereinfacht sich zu

$$\rho_{\text{akt}} \frac{\partial v_x}{\partial x} + \rho_{\text{akt}} \frac{\partial v_z}{\partial z} + v_z \frac{\partial \rho_{\text{akt}}}{\partial z} = -\frac{1}{v_0} \frac{\partial P}{\partial x} + \rho_{\text{akt}} \frac{\partial v_z}{\partial z} - \delta \rho_{\text{akt}} v_z = 0 \quad (289)$$

In y-Richtung (d.h. parallel zur Erdoberfläche und senkrecht zum Grundstrom) soll kein Fluss entstehen. Die Bewegungsgleichung in z-Richtung lautet unter Vernachlässigung von Störungstermen 2. Ordnung und unter Verwendung von Beziehung (75)

$$\rho_{\text{akt}} \frac{dv_z}{dt} \approx \rho_{\text{umg}} v_0 \frac{\partial v_z}{\partial x} = -\frac{\partial P}{\partial z} - \frac{\partial P_{\text{umg}}}{\partial z} - \rho_{\text{akt}} g = -\frac{\partial P}{\partial z} - (\rho_{\text{akt}} - \rho_{\text{umg}}) g \quad (290)$$

Es wird auch in diesem Abschnitt angenommen, dass sich der Druck der vertikal ausgelenkten Luftpakete adiabatisch an den Umgebungsdruck des betreffenden Höhenniveaus anpasst. Es gilt damit nach Gleichung (268) und (269)

$$\rho_{\text{akt}} = \rho_0 \left(\frac{P_{\text{umg}}}{P_0} \right)^{\frac{1}{\kappa}} = \rho_0 e^{-\frac{g}{c^2} s} = \rho_{\text{umg}} e^{\left(\delta - \frac{g}{c^2} \right) s} \quad (291)$$

und

$$\rho_{\text{akt}} - \rho_{\text{umg}} = \rho_{\text{umg}} \left(\delta - \frac{g}{c^2} \right) s = \rho_{\text{umg}} \frac{N^2}{g} s \quad (292)$$

Diese Beziehung wird nun in die z-Bewegungsgleichung (290) eingesetzt

$$\rho_{\text{umg}} v_0 \frac{\partial v_z}{\partial x} = - \frac{\partial P}{\partial z} - \rho_{\text{umg}} N^2 s \quad (293)$$

Diese Gleichung kann nun nochmals total nach der Zeit abgeleitet werden. Dabei ist zu beachten, dass die Vertikalgeschwindigkeit v_z gerade die Zeitableitung der Vertikalauslenkung s darstellt. Auch die zweite Zeitableitung wird wieder durch eine Ableitung nach x ersetzt, welche mit der Ableitung nach z vertauschbar ist.

$$\rho_{\text{umg}} v_0^2 \frac{\partial^2 v_z}{\partial x^2} = - v_0 \frac{\partial}{\partial z} \frac{\partial P}{\partial x} - \rho_{\text{umg}} N^2 v_z \quad (294)$$

Die erhaltene Ableitung von P nach x kann nun durch die x-Bewegungsgleichung (288) ersetzt werden.

$$\frac{\partial^2 v_z}{\partial x^2} + \frac{N^2}{v_0^2} v_z = - \frac{1}{\rho_{\text{umg}}} \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho_{\text{umg}} \frac{\partial v_z}{\partial z} - \delta \rho_{\text{umg}} v_z \right) = - \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} + 2\delta \frac{\partial v_z}{\partial z} - \delta^2 v_z \quad (295)$$

Dieses Ergebnis kann einfacher formuliert werden, wenn man definiert

$$\hat{v}_z = v_z e^{-\delta z} \quad (296)$$

Daraus folgt

$$\frac{\partial \hat{v}_z}{\partial z} = \left(-\delta v_z + \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) e^{-\delta z} \quad (297)$$

und

$$\frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial z^2} = \left(\delta^2 v_z - 2\delta \frac{\partial v_z}{\partial z} + \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} \right) e^{-\delta z} \quad (298)$$

und somit

$$\frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \hat{v}_z}{\partial z^2} + L^2 \hat{v}_z = 0 \quad (299)$$

Diese Gleichung definiert den Scorer-Parameter L , für welchen unter den gegebenen Annahmen (N und v_0 sind höhenunabhängig) gilt

$$L^2 = \frac{N^2}{v_0^2} \quad (300)$$

13. Liste der in dieser Arbeit verwendeten Symbole

Die im Folgenden aufgeführten Symbole werden in den Kapiteln 8ff verwendet, eventuelle Abweichungen in der Bedeutung werden an der entsprechenden Stelle erläutert.

c	Schallgeschwindigkeit
d_0/dt	Operator $\frac{d_0}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + v_0 \frac{\partial}{\partial x}$ (siehe Seite 108)
f_c	Kosinusfunktion, $f_c = \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)$ (siehe Seite 114)
f_{cx}	Kosinusfunktion, $f_{cx} = \cos(\mu_x x + \mu_y y - \omega t + \psi_x)$ (siehe Seite 114)
f_s, f_{sx}	Sinusfunktionen, $f_s = \sin(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)$ etc.
f_t, f_{tx}	Tangensfunktion, $f_t = \tan(\mu_x x + \mu_y y - \omega t)$ etc.
g	Schwerebeschleunigung, $=9,81 \text{ m/s}^2$
k	Boltzmann-Konstante, $=1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$
L	Scorer-Parameter (siehe Seite 131ff und 161ff)
M	molare Masse
N	Brunt-Väisälä-Frequenz (siehe Seite 156ff)
N_A	Avogadro-Zahl, $=6 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
P	Druckstörung (siehe Seite 104)
P_0	Druck-Mittelwert (ebenda)
P_C	Korrekturdruck (siehe Seite 110ff)
R	Ideale Gaskonstante, $R=k N_A$
Ri	Richardson-Zahl (siehe Seite 130ff)
s	Vertikalauslenkung (siehe Seite 104)
t	Zeit
T	Temperaturstörung (siehe Seite 104)
T_0	Temperatur-Mittelwert (ebenda)
v_0	Grundstrom oder mittlere Windgeschwindigkeit, nur in x-Richtung (siehe Seite 104)
v	Geschwindigkeitsstörung in der x-y-Ebene (s S. 104), Gradientenfluss (s S. 110ff)
v_a	Amplitude der jeweiligen Komponente des Gradientenflusses
v_C	Korrekturfluss (besitzt nur Komponenten in der x-y-Ebene, siehe Seite 110ff)
v_{Ca}	Amplitude des Korrekturflusses
$v_{x,y}$	Komponente von v in x- bzw. y-Richtung (siehe Seite 104) !in Abb. 8.2 bis Abb. 8.4 (Seite 102) Bezeichnung für die Westwind- bzw. Südwind-Geschwindigkeit
v_z	Störung der Geschwindigkeit in z-Richtung (s S. 104)

z_0	Gleichgewichtshöhe (s S. 104)
α	Exponent des mittleren Drucks P_0 , $\alpha=\kappa g/c^2$ (siehe Seite 69 und 135ff)
β	Exponent der mittleren Temperatur T_0 (siehe Seite 69 und 135ff)
γ	wahrer linearer Temperaturgradient (siehe Seite 156ff)
Γ	adiabatischer Temperaturgradient, $\approx 9,8$ K/km (ebenda)
δ	Exponent der mittleren Dichte ρ_0 (siehe Seite 69 und 135ff)
η	absolute Wirbelstärke oder Vortizität (siehe Seite 152ff)
Θ	Potentielle Temperatur (siehe Seite 11)
κ	Adiabatenkoeffizient, $\approx 1,4$ für trockene Luft
λ	Wellenlänge
μ	Wellenzahl in der x-y-Ebene
μ_x	x-Komponente von μ , $\mu_x=2\pi/\lambda_x$
μ_z	komplexe vertikale Wellenzahl
μ_{zR}	Realteil der vertikalen Wellenzahl, $\mu_{zR}=2\pi/\lambda_z$
μ_{zI}	Imaginärteil der vertikalen Wellenzahl, Bedeutung siehe Seite 114
ρ	Dichtestörung (siehe Seite 104)
ρ_0	Dichte-Mittelwert (ebenda)
ρ_s	Dichte-Mittelwert für $z_0=0$ (ebenda)
σ	intrinsische Frequenz, durch einen mit dem Luftpaket mitreisenden Beobachter gemessen
Φ	Breitengrad
$\varphi_{x,y,z}$	Phasenverschiebung der jeweiligen Geschwindigkeitskomponente zur Oszillation des Drucks entlang der z-Achse (Ansätze. 106-109, siehe Seite 114ff.)
$\psi_{x,y,z}$	Phasenverschiebung der jeweiligen Geschwindigkeitskomponente zur Oszillation des Drucks entlang der x- bzw. t-Achse (Ansätze 106-109) bzw. allgemein (Ansätze 112-115), siehe Seite 114ff.
Ω	Frequenz der Erdumdrehung
∇	Nabla-Operator, $\nabla = \frac{\partial}{\partial x} \hat{i} + \frac{\partial}{\partial y} \hat{j} + \frac{\partial}{\partial z} \hat{k}$
∇_0	Nabla-Operator, $\nabla_0 = \frac{\partial}{\partial x} \hat{i} + \frac{\partial}{\partial y} \hat{j} + \frac{\partial}{\partial z_0} \hat{k}$

14. Quellenverzeichnis

Lehrbücher und Sammelwerke wurden mit * gekennzeichnet.

- [Alexander et al., 2001] Alexander, B., M.K. Vollmer, T. Jackson, R.F. Weiss and M.H. Thiemens, Stratospheric CO₂ isotopic anomalies and SF₆ and CFC tracer concentrations in the Arctic polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 4103-4106, 2001.
- [Allen et al., 2003] Allen, D. R., R. M. Bevilacqua, G. E. Nedoluha, C. E. Randall, and G. L. Manney, Unusual stratospheric transport and mixing during the 2002 Antarctic winter, *Geophys. Res. Lett.*, 30(12), 1599, doi:10.1029/2003GL017117, 2003.
- [Anderson et al., 1991] Anderson, J.G., D.W. Toohey, and W.H. Brune, Free radicals within the Antarctic vortex: the role of CFCs in the Antarctic ozone loss, *Science*, 251, 39-46, 1991
- *[Andrews et al., 1987] Andrews, David G., James R. Holton, and Conway B. Leovy, *Middle atmosphere dynamics*, Orlando : Academic Press, 1987
- [Assmann, 1902] Aßmann, Richard, Über die Existenz eines wärmeren Luftstromes in der Höhe von 10 bis 15 km. *Sitzungsberichte der Königlich Preußischen Akademie der Wissenschaften zu Berlin, Sitzung der physikalisch-mathematischen Klasse vom 1. Mai 1902*, XXIV, 1-10, 1902.
- [Avallone, 1993] Avallone, Linnea M., In-situ measurements of ClO and implications for the chemistry of inorganic chlorine in the lower stratosphere, Ph.D. Thesis, Harvard University, Cambridge, MA, 1993.
- [Avallone et al., 2001] Avallone, Linnea M. ; Toohey, Darin W. 2001, Tests of halogen photochemistry using in situ measurements of ClO and BrO in the lower polar stratosphere, *J. Geophys. Res.* Vol. 106, No. D10, p. 10,411, 2001
- [Bates & Nicolet, 1950] Bates, D.R., and M. Nicolet, Atmospheric hydrogen, *Publ. Astron. Soc. Pac.*, 62, 106-110, 1950.
- [Becker et al., 1998] Becker, G., et al., Ozone loss rates in the Arctic stratosphere in the winter 1991/92: Model calculations compared with Match results, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 4325-4328, 1998.
- [Becker, 1999] Becker, G., Modell-Studien zur Chemie der arktischen Stratosphäre : simulierte Ozonverlusten im Vergleich zu Ergebnissen der Matchanalysen, *Berichte des Forschungszentrums Jülich*; 3655, 1999.
- [Bethan et al., 1996] Bethan, S., G. Vaughan, and S. J. Reid, A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 122, 929-944, 1996.
- [Birner et al., 2002] Birner, T., A. Dörnbrack, and U. Schumann, How sharp is the tropopause at midlatitudes?, *Geophys. Res. Lett.*, 29(14), 1700, doi:10.1029/2002GL015142, 2002.
- [Bloss et al., 2001] William J. Bloss, Scott L. Nikolaisen, Ross J. Salawitch, Randall R. Friedl, and Stanley P. Sander, Kinetics of the ClO Self-Reaction and 210 nm Absorption Cross Section of the ClO Dimer, *J. Phys. Chem. A*, 105 (50), 11226 - 11239, 2001.
- [Bobrowski et al., 2003] N. Bobrowski, G. Hönninger, B. Galle and U. Platt, Detection of bromine monoxide in a volcanic plume, *Nature* 423, 273-276; doi:10.1038/nature01625, 2003.

- [Bogdan et al., 2003] Bogdan, A., M. J. Molina, M. Kulmala, A. R. MacKenzie, and A. Laaksonen, Study of finely divided aqueous systems as an aid to understanding the formation mechanism of polar stratospheric clouds: Case of $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ and $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ systems, *J. Geophys. Res.*, 108(D10), 4302, doi:10.1029/2002JD002605, 2003
- *[Brasseur & Solomon, 1984] Brasseur, G., and S. Solomon, *Aeronomy of the middle atmosphere : chemistry and physics of the stratosphere and mesosphere*, Dordrecht Boston : D. Reidel Pub. Co., 1984.
- [Breitbart et al., 1998] Breitbart, E.W., R. Greinert und B. Volkmer, Gefährdung durch verstärkte UV-Strahlung, in: J.L. Lozan, H. Graßl und P. Hupfer (Hrsg.), *Warnsignal Klima: wissenschaftliche Fakten*, Hamburg: Wissenschaftliche Auswertungen, 1998
- [Brewer, 1949] Brewer, A.W., Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapor distributions in the Stratosphere, *Q.J.R. Meteorol. Soc.* 75, 351-363, 1949.
- [Brune et al., 1985] Brune, W. H., E.M. Weinstock, M.J. Schwab, R.M. Stimpfle and J. G. Anderson, Stratospheric ClO, In-situ detection with a new approach, *Geophys. Res. Lett.*, 12, No. 7, pages 441-444, 1985.
- [Bujok, 1998] Bujok, O., In-situ-Mesung langlebiger Spurengase in der untersten Stratosphäre: Entwicklung und Anwendung einer flugzeuggestützten gaschromatographischen Nachweismethode, *Berichte des Forschungszentrums Jülich*; 3517, 1998.
- [Camy-Peyret, 1995a] Camy-Peyret, C., Balloon-borne Fourier transform spectroscopy for measurements of atmospheric trace gases, *Spectrochim. Acta*, 51A, 1143–1152, 1995.
- [Camy-Peyret et al., 1995b] Camy-Peyret, C., et al., The LPMA balloon-borne FTIR Spectrometer for remote sensing of atmospheric constituents, 12th ESA Symposium on European rocket and balloon programmes and related research, ESA Publications SP370, 323-328, 1995.
- [Camy-Peyret et al., 1997] Camy-Peyret, C., S. Payan, P. Jeseck, and T. Hawat, Measurements of stratospheric HCl and HF in the Arctic Vortex during the ILAS Validation Campaign in February 1997, in: *Polar stratospheric ozone 1997, Proceedings of the fourth European symposium*, Schliersee/Bavaria, 22 to 26 September 1997
- [Carroll et al., 1989] Carroll, M. A., R. W. Sanders, S. Solomon, and A. L. Schmeltekopf, Visible and near-ultraviolet spectroscopy at McMurdo station, Antarctica, 6, *Observations of BrO*, *J. Geophys. Res.*, 94, 16,633, 1989.
- [Carslaw et al., 1994] Carslaw, K.S., B.P. Luo, S.L. Clegg, T. Peter, P. Brimblecombe, and P.J. Crutzen, Stratospheric aerosol growth and HNO_3 gas phase depletion from coupled HNO_3 and water uptake by liquid particles, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2479-2482, 1994
- [Carslaw et al., 1995] Carslaw, K. S., B. P. Luo, and T. Peter, An analytical expression for the composition of aqueous $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ stratospheric aerosols including gas phase removal of HNO_3 , *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1877–1880, 1995
- [Carter et al., 2003] Carter, Elizabeth J., E. H. Teets , J. Robinson, and S. N. Goates, The International Perlan Project: Soaring Stratospheric Mountain Waves In New Zealand, 7th International Conference on Southern Hemisphere Meteorology and

- Oceanography, American Meteorological Society, Wellington, New Zealand, 24-28 March 2003 (ams.confex.com/ams/7ICSHMO/7ICSHMO/abstracts/60161.htm)
- [Chane-Ming et al., 2002] Chane-Ming, F., G. Roff, L. Robert, and J. Leveau, Gravity wave characteristics over Tromelin Island during the passage of cyclone Hudah, *Geophys. Res. Lett.*, 29(6), 1094, doi:10.1029/2001GL013286, 2002.
- [Chipperfield & Pyle, 1998] Chipperfield, M. P., and Pyle, J. A., Model sensitivity studies of Arctic ozone depletion, *J. Geophys. Res.* Vol. 103 , No. D21 , p. 28,389 (98JD01960), 1998.
- [Coy et al., 1997] L. Coy, E.R. Nash, and P.A. Newman, Meteorology of the polar vortex: Spring 1997, *Geophysical Research Letters*, Volume 24, Issue 22, Pages 2693-2696, 1997
- [Crutzen, 1970] Crutzen, P.J., The influence of nitrogen oxide on the atmospheric ozone content, *Q.J.R. Meteorol. Soc.* 96, 320-327, 1970.
- *[Curtis & Sweetenham, 1987] Curtis, A. R. und W. P. Sweetenham, Facsimile/Chekmatt User's Manual, Computer Science and Systems Division, Harwell Laboratory, Oxford, 135 pp, 1987.
- [Daniel et al., 1999] J.S. Daniel, S. Solomon, R.W. Portmann, R.R. Garcia, Stratospheric ozone destruction: The importance of bromine relative to chlorine, *J. Geophys. Res. D: Atmospheres*, Volume 104, Issue D19, Pages 23871-23880, 1999
- [Danielsen, 1968] Danielsen, E.F., Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 25, 502-518, 1968.
- [Danielsen, 1990] Danielsen, E.F., In defense of Ertel's potential vorticity and its general application as a meteorological tracer, *J. Atmos. Sci.*, 47, 2013-2020, 1990.
- [Deniel et al., 1998] Deniel, C., et al., Arctic chemical ozone depletion during the 1994-1995 winter from POAM II observations and the REPROBUS 3D model, *J. Geophys. Res.*, 103, 19,231-19,244, 1998.
- [Dhaniyala et al., 2002] Dhaniyala, S., K. A. McKinney, and P. O. Wennberg, Lee-wave clouds and denitrification of the polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 29(9), 1322, doi:10.1029/2001GL013900, 2002.
- [Dobson, 1956] Dobson, G.M.B., origin and distribution of polyatomic molecules in the atmosphere, *Proc. R. Soc. London Ser. A*, 236, 187-193, 1956.
- [Dörnbrack, 2001] Andreas Dörnbrack, Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) Oberpfaffenhofen, persönliche Mitteilung
- [Dörnbrack et al., 2002] Dörnbrack, A., T. Birner, A. Fix, H. Flentje, A. Meister, H. Schmid, E V. Browell, and M. J. Mahoney, Evidence for inertia gravity waves forming polar stratospheric clouds over Scandinavia, *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 8287, doi:10.1029/2001JD000452, 2002.
- [Douglass et al., 1995] Douglass, A. R. ; Schoeberl, M. R. ; Stolarski, R. S. ; Waters, J. W. ; Russell, J. M., III ; Roche, A. E. ; Massie, S. T., Interhemispheric differences in springtime production of HCl and ClONO₂ in the polar vortices, *J. Geophys. Res.* Vol. 100 , No. D7 , p. 13,967-13,978, 1995.
- [Drdla & Schoeberl, 2002] Drdla, K., and M. R. Schoeberl, Microphysical modeling of the 1999–2000 Arctic winter, 2, Chlorine activation and ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, 107, 8319, doi:10.1029/2001JD001159, 2002.

- [Engel et al., 1996] Engel, A., C. Schiller, U. Schmidt, R. Borchers, H. Ovarlez, and J. Ovarlez, The total hydrogen budget in the Arctic winter stratosphere during the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment, *J. Geophys. Res.*, 101, 14495-14503, 1996.
- [Engel et al., 2001] Engel, A., M. Strunk, M. Müller, H.-P. Haase, C. Poss, L. Ingeborg, and U. Schmidt, Temporal development of total chlorine in the high-latitude stratosphere based on reference distributions of mean age derived from CO₂ and SF₆, *J. Geophys. Res.*, 107(D12), 4136, doi:10.1029/2001JD000584, 2002.
- [Ertel, 1942] Ertel, H., Ein neuer hydrodynamischer Wirbelsatz, *Meteorol. Z.*, 59, 271-281, 1942.
- [Fahey et al., 2001] Fahey, D.W., et al., The Detection of Large HNO₃-Containing Particles in the Winter Arctic Stratosphere, *Science*, February 9; 291: 1026-1031, 2001.
- [Fairlie et al., 1997] Fairlie, T.D., R.B. Pierce, W.L. Grose, G. Lingenfelter, M. Loewenstein, and J.R. Podolske, Lagrangian forecasting during ASHOE/MAESA: Analysis of predictive skills for analysed and reverse-domain-filled potential vorticity, *J. Geophys. Res.*, 102, 13169-13182, 1997.
- [Farman et al., 1985] Farman, J., B.G. Gardiner, and J.D. Shanklin, Large losses of total ozone in Antarctic reveal seasonal ClO_x/No_x interaction, *Nature*, 315, 207-210, 1985.
- [Flentje & Kiemle, 2003] Flentje, H., and C. Kiemle, Erosion and mixing of filaments in the arctic lower stratosphere revealed by airborne lidar measurements, *J. Geophys. Res.*, 108(D8), 4232, doi:10.1029/2002JD002168, 2003.
- [Forster & Kestler, 1998] Forster, R.M., und P. Kestler, Flora und Fauna unter einer verstärkten UV-B Strahlung, in: J.L. Lozan, H. Graßl und P. Hupfer (Hrsg.), Warnsignal Klima: wissenschaftliche Fakten, Hamburg: Wissenschaftliche Auswertungen, 1998
- [Fueglistaler et al., 2002a] Fueglistaler, S., et al., NAT-rock Formation By Mother Clouds: A Microphysical Model Study, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2, 93–98, 2002.
- [Fueglistaler et al., 2002b] Fueglistaler, S., B. P. Luo, S. Buss, H. Wernli, C. Voigt, M. Müller, R. Neuber, C. A. Hostetler, L. R. Poole, H. Flentje, D. W. Fahey, M. J. Northway, and Th. Peter, Large NAT particle formation by mother clouds: Analysis of SOLVE/THESEO-2000 observations, *Geophys. Res. Lett.*, 29(12), 1610, doi:10.1029/2001GL014548, 2002.
- [Gernandt, 1987] Gernandt, H., The vertical ozone distribution above the GDR-research base, Antarctica in 1985, *Geophys. Res. Lett.*, 14(1), 84-86, 1987.
- *[Gerndt, 2001] Gerndt, R., Zerstörung des stratosphärischen Ozons, http://region.hagen.de/OZON/ozon_i.htm, letzte Änderung 23.09.2001
- *[Graedel & Crutzen, 1994] Graedel, T.E. und P. Crutzen, Chemie der Atmosphäre: Bedeutung für Klima und Umwelt, Heidelberg : Spektrum Akademischer Verl. , 1994
- [Grooß, 1996] Grooß, Jens-Uwe, Modelling of Stratospheric Chemistry based on HALOE/UARS Satellite Data, Aachen: Shaker, 1996. Zugl.: Mainz, Univ., Diss., 1996.
- [Hamill et al., 1997] Hamill, P., E.J. Jensen, P.B. Russell, and J.J. Baumann, The life cycle of stratospheric aerosol particles, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 78, 1395-1410.

- [Hansen et al., 1997] Hansen, G., et al., Evidence of substantial O₃ depletion in winter 1995/96 over Norway, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 799–802, 1997.
- [Hansen & Chipperfield, 1999] Georg Hansen, Martyn P. Chipperfield, Ozone depletion at the edge of the Arctic polar vortex 1996/1997, *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, Volume 104, Issue D01, 1999, Pages 1837-1845
- [Hanson & Mauersberger, 1988] Hanson, D., and K. Mauersberger, Vapor Pressures of HNO₃/H₂O Solutions at Low Temperatures, *J. Phys. Chem. A.*, 92, 6167, 1988
- [Hapke, 1991] Thomas Hapke, Ozon in Wissenschaft, Umwelt und Bibliothek, Ausstellung der Universitätsbibliothek der TU Hamburg-Harburg, www.tu-harburg.de/b/hapke/ozon.html, 1991
- [Hartmann et al., 1989] Hartmann, D.L., L.E. Heidt, M. Loewenstein, J.R. Podolske, J. Vedder, W.L. Starr, and S.E. Strahan, Transport into the south polar vortex in early spring, *J. Geophys. Res.*, 94, 16779-16795, 1989.
- [Hofmann et al., 1987] Hofmann, D.J., J.W. Harder, S.R. Rolf and J.M. Rosen, Balloonborne observations of the temporal development and vertical structure of the antarctic ozone hole in 1986, *Nature*, 326, 59-62, 1987.
- [Holton et al., 1995] James R. Holton, Peter H. Haynes, Michael E. McIntyre, Anne R. Douglas, Richard B. Bood, Leonhard Pfister, Stratosphere-Troposphere Exchange, *Reviews of Geophysics*, 33, 4, pages 403-439, November 1995
- *[Horváth et al., 1985] Horváth, M., L. Bilitzky and J. Hüttner, Ozone, Budapest: Akadémiai Kiadó 1985.
- [Hoskins, 1991] Hoskins, B.J., Towards a PV-theta-view of the general circulation, *Tellus, Ser. A*, 43, 27-35, 1991.
- [Insitu, 2002] Insitugroup Aerosonde, <http://www.insitugroup.net/Pages/aerosonde.html>, 2002
- *[Jakobi, 1988] Jakobi, H. W.: Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW): Verwendung und Vermeidungsalternativen. Berlin: Erich Schmidt, 1988.
- [Jones & Shanklin, 1996] Jones, A.E., and J.D. Shanklin, Continued decline of total ozone over Halley, Antarctica since 1985, *Nature*, 384, 444-447, 1996.
- [Joseph et al., 2003] Joseph, B., A. Mahalov, B. Nicolaenko, and K. L. Tse, High resolution DNS of jet stream generated tropopausal turbulence, *Geophys. Res. Lett.*, 30(10), 1525, doi:10.1029/2003GL017252, 2003.
- [JPL, 2003] Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies, Evaluation Number 14, JPL Publication 02-25, NASA, Jet Propulsion Lab., California Institute of Technology, Pasadena, February 1, 2003.
- [Jukes & McIntyre, 1987] Jukes, M.N., and M.E. McIntyre, A high resolution one-layer model of breaking planetary waves in the stratosphere, *Nature*, 328, 590-596, 1987.
- [Junge et al., 1961] Junge, C.E., C.W. Chagnon and J.E. Manson, Stratospheric aerosols, *Journal of Meteorology*, 18, 81-108.
- [Kahlbaum, 1900] Justus von Liebig und Christian Friedrich Schoenbein : Briefwechsel 1853 - 1868 / hrsg. von Georg W.A. Kahlbaum. Leipzig Barth, 1900.
- [Kanzawa et al., 1997] Kanzawa, H., C. Camy-Peyret, Y. Kondo, and N. Papineau, Implementation and first scientific results of the ILAS Validation Balloon Campaign, Ed. B. Kaldeich-Schuermann (editor), *Proceedings of the 13th ESA symposium on*

European rocket and balloon programmes & related research, Oland, Sweden, 26-29 May 1997, ESA SP-397

- [Kanzawa et al., 2002] Kanzawa, H., et al., Validation and data characteristics of water vapor profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with the version 5.20 algorithm, *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 8217, doi:10.1029/2001JD000881, 2002.
- [Khosrawy, 2001] Khosrawy, F., Modellierung der Bildung und des Wachstums von $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ Aerosolen in der Stratosphäre und oberen Troposphäre, Berichte des Forschungszentrums Jülich 3884, 2001
- [Kivi et al., 2001] Kivi, Rigel; Kyrö, Esko; Dörnbrack, Andreas; Birner, Thomas, Observations of vertically thick polar stratospheric clouds and record low temperature in the Arctic vortex, *Geophys. Res. Lett.* Vol. 28, No. 19, p. 3661 (2001GL013187), 2001.
- [Knudsen et al., 2002] Knudsen, B. M., J.-P. Pommereau, A. Garnier, M. Nunes-Pinharanda, L. Denis, P. Newman, G. Letrenne, and M. Durand, Accuracy of analyzed stratospheric temperatures in the winter Arctic vortex from infrared Montgolfier long-duration balloon flights 2. Results, *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 10.1029/2001JD001329, 2002.
- [Kondo et al., 1999] Kondo, Y. et al., $\text{NO}_y\text{-N}_2\text{O}$ correlation observed inside the Arctic vortex in February 1997: Dynamical and chemical effects, *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, Volume 104, Issue D7, Pages 8215-8224, 1999
- [Koop et al., 1995] Koop, T. ; Biermann, U. M. ; Raber, W. ; Luo, B. P. ; Crutzen, P. J. ; Peter, T., Do stratospheric aerosol droplets freeze above the ice frost point?, *Geophys. Res. Lett.* Vol. 22 , No. 8 , p. 917-920 (95GL00814), 1995
- [Larsen et al., 2002] Larsen, N., et al., Microphysical mesoscale simulations of polar stratospheric cloud formation constrained by in situ measurements of chemical and optical cloud properties, *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 8301, doi:10.1029/2001JD000999, 2002.
- [Lary et al., 1995] Lary, D.J., M. P. Chipperfield, J.A. Pyle, W.A. Norton, and L.P. Riishojgaard, Three-dimensional tracer initialisation and general diagnostics using equivalent PV latitude -potential-temperature coordinates, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 121, 187-210, 1995.
- [Lary et al., 1996a] Lary, D.J., M.P. Chipperfield, and R. Toumi, Heterogeneous atmospheric bromine chemistry, *J. Geophys. Res.*, 101, 1489-1504, 1996.
- [Lary, 1996b] Lary, D.J., Gas phase atmospheric bromine chemistry, *J. Geophys. Res.*, 101, 1505-1516, 1996.
- [Lauscher, 1984] Lauscher, F.,: Ozonbeobachtungen in Wien von 1853 bis 1981. Zusammenhänge zwischen Ozon und Wetterlagen. Arbeiten an der Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik, Heft 60, Wien 1984
- [Lee et al., 2003] Lee, K.-M., J. H. Park, Y. Kim, W. Choi, H.-K. Cho, S. T. Massie, Y. Sasano, and T. Yokota, Properties of polar stratospheric clouds observed by ILAS in early 1997, *J. Geophys. Res.*, 108(D7), 4228, doi:10.1029/2002JD002854, 2003.
- [Lee-Taylor et al., 2001] Lee-Taylor, J. M., G. P. Brasseur, and Y. Yokouchi, A preliminary three-dimensional global model study of atmospheric methyl chloride distributions, *J. Geophys. Res.*, 106, 34,221–34,233, 2001.

- [Lefèvre et al., 1998], Lefèvre, F., Figarol, F., Carslaw, K. S., and Peter, T., The 1997 Arctic ozone depletion quantified from three-dimensional model simulations, *Geophys. Res. Lett.* Vol. 25 , No. 13 , p. 2425 (98GL51812), 1998.
- [Li et al., 2002] Li, S., E. C. Cordero, D. J. Karoly, Transport out of the Antarctic polar vortex from a three-dimensional transport model, *J. Geophys. Res.*, 107(D11), 4132, doi:10.1029/2001JD000508, 2002.
- [Luce et al., 2002] Luce, H., S. Fukao, F. Dalaudier, and M. Crochet, Strong mixing events observed near the tropopause with the MU radar and high-resolution balloon techniques, *J. Atmos. Sci.*, 59, 2885-2896, 2002.
- [Madronich, 1997], Madronich, S., UV-B radiation and Its Effects on the Biosphere, in: Brasseur, G. P. (Hrsg.), *The stratosphere and its role in the climate system NATO ASI series I: Global environmental change*, Vol. 54, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1997
- [Mangini et al., 2001] Mangini, A., M. Christl, C. Strobl, N. Frank: Is There a Link between Galactic Cosmic Ray Fluxes and Earth's Climate?, European Union of Geosciences, EUG XI Strasbourg – France, April 8 – April 12, Symposium CC05: Glacial-Interglacial Cycles–Records, Models, and Mechanisms; Program p. 120, 2001
- [Mann et al., 2002] G. W. Mann, S. Davies, K. S. Carslaw, and M. P. Chipperfield, Factors controlling Arctic denitrification in cold winters of the 1990s, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2, 2557-2586, 2002
- [Manney et al., 1994] Manney, G.L., et al., Chemical depletion of ozone in the Arctic lower stratosphere during winter 1992-93, *Nature*, 370, 429-434, 1994.
- [Manney et al., 1997] G.L. Manney, L. Froidevaux, M.L. Santee, R.W. Zurek and J.W. Waters, MLS observations of Arctic ozone loss in 1996-97, *Geophysical Research Letters*, Volume 24, Issue 22, 1997, Pages 2697-2700, 1997
- [Markham et al., 1990] Markham, K.R., A. Franke, D.R. Given and P. Brownsey, Historical Antarctic ozone level trends from herbarium specimen flavonoids, *Bulletin de Liaison Groupe Polyphenols*, XV Conference Proceedings, 230.235, 1990
- [Marti & Mauersberger, 1993] Marti, J., and K. Mauersberger, A Survey and New Measurements of Ice Vapor Pressure at Temperatures between 170 and 250 K, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 363, 1993
- *[Maxeiner & Miersch, 1998] Maxeiner, D. und M. Miersch, *Lexikon der Öko-Irrtümer*, Frankfurt/Main: Eichborn 1998
- [McElroy et al., 1986] McElroy, M.B., Salawitch, R.J., Wofsy, S.C., Logan, J.A., Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine, *Nature*, 321, 759, 1986
- [McKenna et al., 2002a] McKenna, D. S., P. Konopka, J.-U. Groö, G. Günther, R. Müller, R. Spang, D. Offermann, and Y. Orsolini, A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 1. Formulation of advection and mixing, *J. Geophys. Res.*, 107(D16), 4309, doi:10.1029/2000JD000114, 2002.
- [McKenna et al., 2002b] McKenna, D., J.-U. Groö, G. Günther, P. Konopka, and R. Müller, A new Chemical lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS), 2. Formulation of chemistry scheme and initialization, *J. Geophys. Res.*, 107, ACH 4-1-14, 2002.

- [Medvedev & Klaassen, 2003] Medvedev, A. S., and G. P. Klaassen, Thermal effects of saturating gravity waves in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 4040, doi:10.1029/2002JD002504, 2003.
- [Mewes, 2002] Mewes, Frank, Vortrag im Rahmen des meteorologisch-geophysikalischen Kolloquiums am Institut für Meteorologie und Geophysik der Universität Wien am 11.6.2002
- [Michelsen et al., 1998] Michelsen, H.-A., G.L. Manney, M.R. Gonsion, and R. Zander, Correlations of Stratospheric abundances of NO_y, O₃, N₂O and CH₄ derived from ATMOS measurements, *J. Geophys. Res.*, 103, 28347-28359, 1998.
- [Molina & Rowland, 1974] Molina, M. J. and Rowland, F.S., Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalysed destruction of ozone, *Nature* 249, 810-812, 1974
- [Molina & Molina, 1987] Molina, L.T., and Molina, M.J., Production of Cl₂O₂ from the Self-Reaction of the ClO Radical, *J. Phys. Chem.* 91, 433-436, 1987
- [Montzka et al., 1996] Montzka, S.A., J.H. Butler, R.C. Myers, T.M. Thompson, T.H. Swanson, A.D. Clarke, L.T. Lock, and J.W. Elkins, Decline in the tropospheric abundance of halogen from halocarbons: Implications for stratospheric ozone depletion, *Science*, 272, 1318-1322, 1996.
- [Morcrette, 1991] Morcrette, J.-J., Radiation and cloud radiative properties in the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts forecasting system, *J. Geophys. Res.*, 96, 9121-9132, 1991.
- [Morley, 1999] Morley, J.R., Kältemittel-Geschichtlicher Abriss, in: KI Luft- und Kältetechnik- C.F. Müller Verlag, Hüthig GmbH Heidelberg, Ausgabe 10/1999 (Nachdruck auf www.friosol.ch/pdf/geschichtemorley.pdf)
- [Müller et al., 1996] Müller, R., P.J. Crutzen, J.-U. Groö, C. Brühl, J.M. Russel, and F. Tuck, Chlorine activation and ozone depletion in the Arctic vortex: Observations by the Halogen occultation Experiment on the Upper Atmosphere research Satellite, *J. Geophys. Res.*, 101, 12531-12554, 1996.
- [Müller et al., 1997] R. Müller, J.-U. Groö, D.S. McKenna, P.J. Crutzen, C. Brühl, J.M. Russell III, A.F. Tuck, HALOE observations of the vertical structure of chemical ozone depletion in the Arctic vortex during winter and early spring 1996-1997, *Geophysical Research Letters*, Volume 24, Issue 22, 1997, Pages 2717-2720
- [Müller et al., 1998] Müller, M. A. Engel and U. Schmidt, observations of vertical profiles for long lived trace gases in the arctic vortex during the ADEOS/ILAS validation campaign, *Proceedings of the 4th European Symposium on Polar Stratospheric Ozone*, Schliersee, Bavaria, 22 - 26 September 1997. 366-169, Editors: N.R.P. Harris, I. Kilbane-Dawe and G. Amanatidis, Air pollution research report 66 of the European Commission 1998.
- [Müller et al., 2001] Müller, R., U. Schmidt, A. Engel, D.S. McKenna, and M.H. Proffitt, The O₃-N₂O relation from balloon-borne observations as a measure of Arctic ozone loss in 1991/92, *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 127, 1389-1412, 2001.
- [MWP, 2003] Mountain Wave Project, www.mountain-wave-project.de, 2003.
- [NASA, 2002] The NASA Balloon Program Office, www.wff.nasa.gov/~code820

- [Nakajima et al., 2002] Nakajima, H., et al., Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) in orbit, *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 8213, doi:10.1029/2001JD001439, 2002
- [Nash et al., 1996] Eric R. Nash, Paul A. Newman, Joan E. Rosenfield and Mark R. Schoeberl, An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *Journal of Geophysical Research*, Volume 101, No. D5, Pages 6845-6853, April 27, 1996
- [Newman et al., 1996] Newman, P.A., L.R. Lait, M.R. Schoeberl, M. Seablom, L. Coy, R. Rood, R. Swinbank, M. Proffitt, M. Loewenstein, J.R. Podolske, J.W. Elkins, C.R. Webster, R.D. May, D.W. Fahey, G.S. Dutton and K.R. Chan, Measurements of polar vortex air in the midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, 101, 12879-12891, 1996.
- [Newman et al., 1997] P.A. Newman, J.F. Gleason, R.D. McPeters and R.S. Stolarski, Anomalously low ozone over the Arctic, *Geophysical Research Letters*, Volume 24, Issue 22, 1997, Pages 2689-2692
- [NILU, 2002] The QUOBI Project <http://www.nilu.no/quobi>, 2002.
- [Norton, 2003] Norton, W. A., Sensitivity of northern hemisphere surface climate to simulation of the stratospheric polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 30(12), 1627, doi:10.1029/2003GL016958, 2003.
- [Olsen et al., 2001] Olsen, S. C. ; McLinden, C. A. ; Prather, M. J., Stratospheric N₂O-NO_y system: Testing uncertainties in a three-dimensional framework, *J. Geophys. Res.* Vol. 106 , No. D22 , 28,771-28784, 2001
- [Pan, 2003] Dr. Laura Pan, NCAR, Boulder, Seminarvortrag am ICG-I, 3. April 2003.
- [Payan et al., 1998] Payan, S. ; Camy-Peyret, C. ; Jeseck, P. ; Hawat, T. ; Durry, G. ; Lefèvre, F., First direct simultaneous HCl and ClONO₂ profile measurements in the Arctic vortex, *Geophys. Res. Lett.* Vol. 25 , No. 14 , p. 2663 (98GL01933), 1998.
- [Peter, 1997] Peter, T., Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds, *Annual Reviews of Physical Chemistry*, 48, 785-822.
- *[Pichler, 1986] Pichler , Helmut, *Dynamik der Atmosphäre*, 2., überarbeitete Auflage, Mannheim: Bibliographisches Institut , 1986
- [Plumb & Ko, 1992] Plumb, R. A., and M.K.W. Ko, Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents, *J. Geophys. Res.*, 97, 10145-10156, 1992.
- [Pommereau et al., 2002] Pommereau, J.-P., A. Garnier, B. M. Knudsen, G. Letrenne, M. Durand, M. Nunes-Pinharanda, L. Denis, F. Vial, A. Hertzog, and F. Cairo, Accuracy of analyzed stratospheric temperatures in the winter Arctic vortex from infrared Montgolfier long-duration balloon flights 1. Measurements, *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 8260, doi:10.1029/2001JD001379, 2002.
- [Proffitt et al., 1989a] Proffitt, M.H., D.W. Fahey, K.K. Kelly and A.F. Tuck, High latitude ozone loss outside the Antarctic ozone hole, *Nature*, 342, 233-237, 1989a.
- [Proffitt et al., 1989b] Proffitt, M.H., K.K. Kelly, J.A. Powell, B.L. Gary, M. Loewenstein, J.R. Podolske, and K.R. Chan, Evidence for diabatic cooling and poleward transport within and around the 1987 Antarctic ozone hole, *J. Geophys. Res.*, 94, 16,797-16814, 1989b.

- [Proffitt et al., 1992] Proffitt, M.H., S. Solomon, and M. Loewenstein, Comparison of 2-D model simulations of ozone and nitrous oxide at high altitudes with stratospheric measurements, *J. Geophys. Res.*, 97, 939-944, 1992.
- [Proffitt et al., 1993] Proffitt, M.H., K. Aikin, J.J. Margitan, M. Loewenstein, J.R. Podolske, A. Weaver, K.R. Chan, H. Fast, and J.W. Elkins, Ozone loss inside the northern polar vortex during the 1991-1992 winter, *Science*, 261, 1150-1154, 1993.
- [Proffitt et al., 2003] Proffitt, M. H., K. Aikin, A., F. Tuck, J. J. Margitan, C. R. Webster, G. C. Toon, and J. W. Elkins, Seasonally averaged ozone and nitrous oxide in the Northern Hemisphere lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4110, 10.1029/2002JD002657, 2003.
- [Pundt et al., 2002] Pundt, I., J.-P. Pommereau, M. P. Chipperfield, M. Van Roozendaal, and F. Goutail, Climatology of the stratospheric BrO vertical distribution by balloon-borne UV-visible spectrometry, *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 4806, doi:10.1029/2002JD002230, 2002.
- [Randel et al., 1993] Randel, W.J., J.C. Gille, A.E. Roche, J.B. Kumer, J-L- Mergenthaler, J-W. Waters, E.F. Fishbin, and W.A. Lahoz, Stratospheric transport from the tropics to middle latitudes by planetary-wave mixing, *Nature*, 365, 533-535, 1993.
- [Rex et al., 1998] Rex, M. et al, In situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/92: a Lagrangian Approach, *J. Geophys. Res.*, 103, 5843-5853
- [Rex et al., 1999] Rex, M. et al, Chemical ozone loss in the Arctic winter 1994/95 as determined by the Match technique, *J. Atmos. Chem.*, 32, 1-34. 1999.
- [Rex et al., 2003] Rex, M., R. J. Salawitch, M. L. Santee, J. W. Waters, K. Hoppel, and R. Bevilacqua, On the unexplained stratospheric ozone losses during cold Arctic Januaries, *Geophys. Res. Lett.*, 30(1), 1008, doi:10.1029/2002GL016008, 2003.
- [Reichardt et al., 1999] J. Reichardt, A. Behrendt, R. Baumgart, C. Weitkamp, Koordinierte Feldmessungen zum Einfluss von Leewellen auf Wolkenfelder in der polaren Stratosphäre, GKSS 99/E/43, GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH, 1999
- [Rinsland et al., 2003] Rinsland, C. P., et al., Long-term trends of inorganic chlorine from ground-based infrared solar spectra: Past increases and evidence for stabilization, *J. Geophys. Res.*, 108(D8), 4252, doi:10.1029/2002JD003001, 2003.
- *[Roedel, 1994] Roedel, Walter, *Physik unserer Umwelt: die Atmosphäre*, 2., überarb. u. akt. Aufl., Berlin : Springer, 1994
- [Rosenfield & Schoeberl, 2001] Rosenfield, Joan E. ; Schoeberl, Mark R., On the origin of polar vortex air, *J. Geophys. Res.* Vol. 106, No. D24, p. 33,485, 2001
- [Roumeau et al., 2000] S. Roumeau, P. Brémaud, E. Riviére, S. Baldy and J.L. Baray, Tropical cirrus clouds: a possible sink for ozone, *Geophys. Res. Lett.*, Volume 27, Issue 15, Pages 2233-2236, 2000.
- [Russell et al., 1993] Russell, J.M., L.L. Gordley, J.H. Park, S.E. Drayson, A.F. Tuck, J.E. Harries, R.J. Cicerone, P.J. Crutzen, and J.E. Frederick, The Halogen Occultation Experiment, *J. Geophys. Res.*, 98, 10777-10797, 1993.
- [Russell et al., 1996] Russell, J.M., M. Luo, R.J. Cicerone, and L.E. Deaver, Satellite confirmation of the dominance of chlorofluorocarbons in the global stratospheric chlorine budget A, *Nature*, 379, 526-529, 1996

- [Saathoff et al., 2001] H. Saathoff, K.-H. Naumann, N. Riemer, S. Kamm, O. Möhler, U. Schurath, H. Vogel and B. Vogel, The loss of NO₂, HNO₃, NO₃/N₂O₅ and HO₂/HOONO₂ on soot aerosol: A chamber and modeling study, *Geophys. Research Lett.* 28, , No. 10 , p. 1957, 2001
- [Santee et al., 1997] Santee, M.L., G.L. Manney, L. Froidevaux, R.W. Zurek, and J.W. Waters, MLS observations of ClO and HNO₃ in the 1996-97 Arctic polar vortex, *Geophys. Res. Lett.*, Volume 24, Issue 22, 1997, Pages 2713-2716, 1997
- [Sasano et al., 1999] Sasano, Y., M. Suzuki, T. Yokota, and H. Kanazawa, Improved limb atmospheric spectrometer (ILAS) for stratospheric ozone layer measurements by solar occultation technique, *Geophys., Res. Lett.*, 26, 197-200, 1999.
- [Schauffler et al., 2003] Schauffler, S. M., E. L. Atlas, S. G. Donnelly, A. Andrews, S. A. Montzka, J. W. Elkins, D. F. Hurst, P. A. Romashkin, G. S. Dutton, and V. Stroud, Chlorine budget and partitioning during the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III Ozone Loss and Validation Experiment (SOLVE), *J. Geophys. Res.*, 108(D5), 4173, doi:10.1029/2001JD002040, 2003.
- [Schiller et al., 2001a] Schiller, C., T. Deshler, P. Thomas, Contamination-induced particle production during balloon flights: Origin for unexpected ice particle observations in the Arctic?, *Geophys. Res. Lett.* Vol. 28 , No. 17 , p. 3247, 2001
- [Schiller et al., 2001b] C. Schiller, R. Bauer, T. Deshler, A. Dörnbrack, J. Elkins, A. Engel, H. Flentje, N. Larsen, I. Levin, M. Müller, S. Oltmans, H. Ovarlez, J. Ovarlez, J. Schreiner, F. Stroh, C. Voigt, H. Vömel, Dehydration in the Arctic Stratosphere during the THESEO2000/SOLVE campaigns, *J. Geophys. Res.* 107 (D20), 8293, 2002.
- [Schmidt et al., 1987] Schmidt, U., et al., Intercomparison of balloon-borne cryogenic whole air samplers during the MAP/GLOBUS campaign, *Planet. Space Sci.*, 35, 647-656, 1987.
- *[Schmidt, 1988] Schmidt, Manfred: Von Christian Friedrich Schönbein bis zum Ozonloch, Ein Abriss der Geschichte der Ozonforschung, Katlenburg-Lindau: Max-Planck-Institut für Aeronomie 1988
- [Schoeberl & Hartmann, 1991] Schoeberl, M.R., and D.L. Hartmann, The dynamics of the stratospheric polar vortex and its relation to springtime ozone depletion, *Science*, 251, 46-52, 1991
- [Schoeberl et al., 1992] Schoeberl, M.R., L.R. Lait, P.R. Newman, and J.E. Rosenfield, The structure of the polar vortex, *J. Geophys. Res.*, 97, 7859-7882, 1992.
- [Schulz, 2001] Schulz, A., Bestimmung des Ozonabbaus in der arktischen und subarktischen Stratosphäre, Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung, 387/2001
- [Scorer, 1949] Scorer, R.S.: Theory of Waves in the Lee of Mountains. *Q.J.R. Met. Soc.* 75, 41 (1949)
- *[Seinfeld & Pandis, 1998] Seinfeld, J.H. und S.N. Pandis, Atmospheric chemistry and physics, John Wiley & Sons, New York, 1998
- [Sheridan, 2000] Sheridan, Vivian, Freon-Kältemittel: Die Geschichte einer Ära, in: Die Kälte & Klimatechnik : KK ; offizielles Organ des Bundesinnungsverbandes des Deutschen Kälteanlagenbauerhandwerks, Stuttgart: Gentner. www.diekaelte.de, Ausgaben 10/99-2/00

- [Shibata et al., 1999a] Shibata, Takashi; Shiraishi, Kouichi; Adachi, Hiroshi; Iwasaka, Yasunobu; Fujiwara, Motowo, On the lidar-observed sandwich structure of polar stratospheric clouds (PSCs) 1. Implications for the mixing state of the PSC particles, *J. Geophys. Res.* Vol. 104 , No. D17 , p. 21,603 (1999JD900333), 1999.
- [Shibata et al., 1999b] Shibata, Takashi, On the lidar-observed sandwich structure of polar stratospheric clouds (PSCs) 2. Numerical simulations of externally mixed PSC particles, *J. Geophys. Res.* Vol. 104 , No. D17 , p. 21,613 (1999JD900331), 1999.
- [Sinnhuber et al., 2003] Sinnhuber, B.-M., M. Weber, A. Amankwah, and J. P. Burrows, Total ozone during the unusual Antarctic winter of 2002, *Geophys. Res. Lett.*, 30(11), 1580, doi:10.1029/2002GL016798, 2003.
- [Shibata et al., 2003] Shibata, T., K. Sato, H. Kobayashi, M. Yabuki, and M. Shiobara, Antarctic polar stratospheric clouds under temperature perturbation by nonorographic inertia gravity waves observed by micropulse lidar at Syowa Station, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4105, doi:10.1029/2002JD002713, 2003.
- [Smith ,1979] Smith, R.B., The influence of Mountains on the Atmosphere. *Advances in Geophysics*, Vol. 21, p. 87, Academic Press, New York – London – Toronto – Sydney – San Francisco, 1979.
- [Solomon et al., 1986a] Solomon, S., J.T. Kiehl, R.R. Garcia, and W. Grose, Tracer transport by the diabatic circulation deduced from satellite observations, *J. Atmos. Sci.*, 43, 1603-1617, 1986.
- [Solomon et al., 1986b] Solomon, S, Garcia, R.R., Rowland, F.S., Wuebbles, D.J., On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, 321, 755-758, 1986
- [Solomon et al., 1994] Solomon, S., R.R. Garcia, and A.R. Ravishankara, On the role of iodine in ozone depletion, *J. Geophys. Res.* 99, 20491-20499 1994
- [Solomon, 1999] S. Solomon, Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Reviews of Geophysics*, 37, 3, pages 275-316, November 1999
- [Solomon et al., 2000] Solomon, Philip ; Barrett, James ; Connor, Brian ; Zoonematkermani, Saeid ; Parrish, Alan ; Lee, Adrian ; Pyle, John ; Chipperfield, Martyn, Seasonal observations of chlorine monoxide in the stratosphere over Antarctica during the 1996-1998 ozone holes and comparison with the SLIMCAT three-dimensional model, *J. Geophys. Res.* Vol. 105 , No. D23 , p. 28,979 (2000JD900457), 2000.
- [Stebel, 2001] Kerstin Stebel, Swedish Institute of Space Physics, Kiruna/Schweden, persönliche Mitteilung.
- [Stimpfle et al., 1999] Stimpfle, R. M. ; Cohen, R. C. ; Bonne, G. P. ; Voss, P. B. ; Perkins, K. K. ; Koch, L. C. ; Anderson, J. G. ; Perkins, K. K. ; Salawitch, R. J. ; Lloyd, S. A. ; Gao, R. S. ; Del Negro, L. A. ; Keim, E. R. ; Bui, T. P., The coupling of ClONO₂, ClO, and NO₂ in the lower stratosphere from in situ observations using the NASA ER-2 aircraft, *J. Geophys. Res.* Vol. 104 , No. D21 , p. 26,705 (1999JD900288), 1999
- [Stohl et al., 2000] Stohl, A., N. Spichtinger-Rakowsky, P. Bonasoni, H. Feldmann, M. Memmesheimer, H. E. Scheel, T. Trikl, S. Hübener, W. Ringer, M. Mandl, The influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations, *Atmospheric Environment* 34 (2000) 1323-1345
- [Stohl et al., 2003] Stohl, A., et al., Stratosphere-troposphere exchange: A review, and what we have learned from STACCATO, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8516, doi:10.1029/2002JD002490, 2003.

- [Stolarski & Cicerone, 1974] Stolarski, R.S., and R.J. Cicerone, Stratospheric chlorine: A possible sink for ozone, *Can. J. Chem.*, 52, 1610-1615, 1974.
- [Stroh et al., 1997] Stroh, F., T. Woyke, D. Toohey, A. Engel, and T. Deshler, In-situ measurements of halogen oxides in the mid-latitude and arctic stratosphere in 1996/97, in: *Polar stratospheric ozone 1997, Proceedings of the fourth European symposium, Schliersee/Bavaria, 22 to 26 September 1997*
- [Strunk et al., 2000] Strunk, M., A. Engel, U. Schmidt, C.M. Volk, T. Wetter, I. Levin and H. Glatzel-Mattheier, CO₂ and SF₆ as stratospheric age tracers: consistency and the effect of mesospheric loss, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 341-344, 2000.
- [Sugita et al., 1998] Sugita, T., Y. Kondo, H. Nakajima, U. Schmidt, A. Engel, H. oelhaf, G. Wetzel, and P.A. Newman, Denitrification observed inside the Arctic vortex in February 1995, *Journal of Geophys. Res.*, Volume 103, Issue 16, Pages 16221-16233, 1998
- [Sutton et al., 1994] Sutton, R.T., H. Maclean, R. Swinbank, A. O'Neill, and F.W. Taylor, high-resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using Lagrangian trajectory calculations, *J. Atmos. Sci.*, 51, 2995-3005, 1994.
- [Suzuki et al., 1995] Suzuki, M.A., A. Matsuzaki, T. Ishigaki, N. Kimura, N. Araki, T. Yokota, and Y. Sasano, ILAS, the improved limb atmospheric spectrometer, on the advanced earth observing satellite, *IEICE TRANS. Commun.*, E78-B, 12, 1560-1570, 1995.
- [Tabazadeh et al., 1994] Tabazadeh, A., R.P. Turco, K. Drdla, M.Z. Jacobson, and O.B. Toon, A study of type I polar stratospheric cloud formation, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1619-1622, 1994
- [Teisserenc de Bort, 1902] Teisserenc de Bort, Léon, Variations de la température de l'air libre dans la zone comprise entre 8 km et 13 km d'altitude, *Comptes Rendus de l'Acad. Sci. Paris*, 134, 987-989, 1902.
- [Tevini, 1994], Tevini, M., Physiological changes in plants related to UV-B radiation. An overview, in: Biggs, R.H. and Joyner, M.E.B. (Hrsg.), *Stratospheric ozone depletion / UVB radiation in the biosphere*, NATO ASI series I: Global environmental change, Vol. 18, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1994
- [Thornton et al., 2003] Thornton, B. F., D. W. Toohey, L. M. Avallone, H. Harder, M. Martinez, J. B. Simpas, W. H. Brune, and M. A. Avery, In situ observations of ClO near the winter polar tropopause, *J. Geophys. Res.*, 108(D8), 8333, doi:10.1029/2002JD002839, 2003.
- [Tilmes et al., 2003] Tilmes, S., R. Müller, J.-U. Groöf, D. S. McKenna, J. M. Russell III, and Y. Sasano, Calculation of chemical ozone loss in the Arctic winter 1996–1997 using ozone-tracer correlations: Comparison of Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and Halogen Occultation Experiment (HALOE) results, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 4045, doi:10.1029/2002JD002213, 2003.
- [Tolbert & Toon, 2001] Tolbert, M.A., and O.B. Toon, Solving the PSC Mystery, *Science (in Perspectives)* April 6; 292, 61-63, 2001.
- [Tsias et al., 1999] Tsias, A., M. Wirth, K. S. Carslaw, J. Biele, H. Mehrstens, J. Reichardt, C. Wedekind, V. Weiß, W. Renger, R. Neuber, U. von Zahn, B. Stein, V. Santacesaria, L. Stefanutti, F. Fieli, J. Bacmeister and T. Peter, Aircraft lidar observations of an

- enhanced type Ia polar stratospheric clouds during APE-POLECAT, *J. Geophys. Res. D: Atmospheres*, Volume 104, Issue D19, Pages 23961-23969, 1999
- [Tuck et al., 1995] Tuck, A.F., K.K. Kelly, C.R. Webster, M. Loewenstein, R.M. Stimpfle, M.H. Proffitt, and K.R. Chan, Airborne chemistry and dynamics at the edge of the 1994 Antarctic vortex, *J. Chem. Soc. Farad. Trans.*, 91, 3063-3071, 1995
- [Turco et al., 1982] Turco, R.P., R.C. Whitten, and O.B. Toon, Stratospheric aerosols: Observation and theory, *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 20, 233-279.
- [Turnipseed et al., 1997] Turnipseed, A.A., M.K. Gilles, J.B. Burkholder, and A.R. Ravishankara, Kinetics of the IO radical: 1, Reaction of IO with ClO, *J. Phys. Chem. A*, 101, 5517-5525, 1997
- [van den Broek et al., 2000] van den Broek, M. M. P. ; Bregman, A. ; Lelieveld, J., Model study of stratospheric chlorine activation and ozone loss during the 1996/1997 winter, *J. Geophys. Res.* Vol. 105 , No. D23 , p. 28,961 (2000JD900294), 2000
- [Vogel, 1998] Vogel, Bärbel, Herstellung und Kalibration von VUV-Strahlungsquellen zum Einsatz in einem ballongetragenen In-situ-Halogenoxid-Meßgerät, Diplomarbeit, Universität Köln, 1998
- [Voigt et al., 2000] Voigt, Christiane, et al., Nitric Acid Trihydrate (NAT) in Polar Stratospheric Clouds, *Science*, December 1; 290: 1756-1758, 2000.
- [Vömel et al., 2001] Vömel, H. ; Toohey, D. W. ; Deshler, T. ; Kröger, C., Sunset observations of ClO in the arctic polar vortex and implications for ozone loss, *Geophys. Res. Lett.* Vol. 28 , No. 22 , p. 4183, 2001
- [Walterscheid & Hecht, 2003] Walterscheid, R. L., and J. H. Hecht, A reexamination of evanescent acoustic-gravity waves: Special properties and aeronomical significance, *J. Geophys. Res.*, 108(D11), 4340, doi:10.1029/2002JD002421, 2003.
- [Webster et al., 1993] C.R. Webster, R.D. May, D.W. Toohey, L.M. Avallone, J.G. Anderson, P. Newman, L. Lait, M.R. Schoeberl, J.W. Elkins, K.R. Chan, Chlorine Chemistry on Polar Stratospheric Cloud Particles in the Arctic Winter, *Science* 261: 1130-1133, 1993.
- [Volz & Kley, 1988] Volz, A., and D. Kley, Ozone Measurements in the 19th Century: An Evaluation of the Montsouris Series, *Nature*, 332, 240-242, 1988
- [von der Gathen et al., 1995] von der Gathen, P. et al, Observational evidence for chemical ozone depletion over the Arctic in winter 1991-92, *Nature*, 375, 131-134, 1995.
- [Wennberg et al., 1997] Wennberg, P.O., J.W. Brault, T.F. Hanisco, R.J. Salavitch, and G.H. Mount, Atmospheric column abundance of IO: Implications for stratospheric ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, 102, 8887-8898, 1997.
- [Wernli & Buss, 2003] Wernli, H., und S. Buss, Institut für Atmosphäre und Klima, Eidgenössische Technische Hochschule Zürich, persönliche Kommunikation
- [Whitten et al., 1980] Whitten, R.C., O.B. Toon, and R.P. Turco, The stratospheric aerosol layer: Processes, models, observations, and simulations, *Pageoph*, 118, 86-127.
- [Wittrock et al., 2000] F. Wittrock, R. Müller, A. Richter, H. Bovensmann and J.P. Burrows, Measurements of Iodine monoxide (IO) above Spitsbergen, *Geophys. Res. Lett.*, Volume 27, Issue 10, Pages 1471-1474, 2000.
- *[WMO, 1986] WMO, Atmospheric Ozone: 1985, Report No. 16, Geneva, 1986.

- *[WMO, 1990] WMO, Scientific assessment of ozone depletion: 1989, Report No. 20, Geneva, 1990.
- *[WMO, 1995] WMO, Scientific assessment of ozone depletion: 1994, Report No. 37, Geneva, 1995.
- *[WMO, 1999] WMO, Scientific assessment of ozone depletion: 1998, Report No. 44, Geneva, 1999.
- *[WMO, 2003] WMO, Scientific assessment of ozone depletion: 2002, Report No. 47, Geneva, 2003.
- [Woyke, 1998] Woyke, Thomas, In-Situ Messung von Halogenoxiden in der polaren Stratosphäre: Untersuchungen zur Ozonchemie im Winter 1994/95, Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3559, 1998
- [Wu & Dessler, 2001] J. Wu and A.E.Dessler, Comparisons between measurements and models of Antarctic ozone loss, *J. Geophys. Res.*, 106, 3195–3202, 2001.
- [Yokota et al., 2002] Yokota, T., H. Nakajima, T. Sugita, H. Tsubaki, Y. Itou, M. Kaji, M. Suzuki, H. Kanzawa, J. H. Park, and Y. Sasano, Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) data retrieval algorithm for Version 5.20 gas profile products, *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 8216, doi:10.1029/2001JD000628, 2002.
- [Yoshiki et al., 2000] Yoshiki, M., and K. Sato, A statistical study of gravity waves in the polar regions based on operational radiosonde data, *J. Geophys. Res.*, 105, 17,995–18,011, 2000.
- [Yung et al., 1991] Yung, W.B. DeMore, and J.P. Pinto, Isotopic exchange between carbon dioxide and ozone via O(1D) in the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 18, 13-16, 1991.
- [Yung et al., 1997] Yung, Y.L., A.Y.T. Lee, F.W. Iron, W.B. DeMore, and J. Wen, Carbon dioxide in the atmosphere: Isotopic exchange with ozone and its use as a tracer in the middle atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 102, 10857-10866, 1997.
- [Zander et al., 1996], Zander, R., E. Mahieu, M.R. Gunson, M.C. Abrams, A.Y. Chang, M. Abbas, C. Aelig, A. Engel, A. Goldman, F.W. Iron, N. Kämpfer, H.A. Michelsen, M.J. Newchurch, C.P. Rinsland, R.J. Salawitch, G.P. Stiller, and G.C. Toon, The 1994 northern midlatitude budget of stratospheric chlorine derived from ATMOS/ATLAS-3 observation, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2357-2360, 1996.
- [Zellner et al., 1992] Zellner, R., D. Hauptmann, and I. Rosner, N₂O formation on the reactive collisional quenching of NO₃* and NO₂* by N₂, *Ber. Bunsen-Ges., Phys. Chem* 96, 385-390, 1992.
- [Zhong & Haigh, 1995] Zhong, W., and J. D. Haigh, Improved broadband emissivity parameterization for water vapor cooling rate calculations, *J. Atmos. Sci.*, 52, 124–138, 1995.
- [Zipf & Prasad, 1998] Zipf, E.C., and S.S. Prasad, Experimental evidence that excited ozone is a source of nitrous oxide, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 4333-4336, 1998.
- *[Zoebl & Kruschik, 1982] Zoebl, H. und Kruschik, J., Strömung durch Rohre und Ventile : Tabellen und Berechnungsverfahren zur Dimensionierung von Rohrleitungssystemen, 2., neubearb. Aufl., Wien : Springer, 1982

Danksagung

Diese Dissertation wurde am Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG) I–Stratosphäre – durchgeführt. Ich bedanke mich zunächst bei Herrn Prof. Dr. Klaus Wandelt, Rheinische Friedrichs-Wilhelm-Universität Bonn, und Herrn Prof. Dr. Martin Riese, Bergische Universität Wuppertal und Direktor des ICG I–Stratosphäre, welche die Aufgabe des 1. und 2. Referenten übernahmen. Mein Dank gilt aber auch dem ausgeschiedenen Direktor des ICG I, Herrn Prof. Daniel McKenna, und dem zeitweiligen kommissarischen Leiter, Herrn Dr. Cornelius Schiller, welche mir die Arbeitsaufnahme am ICG I und die Durchführung der Doktorarbeit ermöglichten.

Am ICG I war ich in der Arbeitsgruppe „Halogenradikale“ tätig. Ich bedanke mich deshalb bei dem Leiter dieser Gruppe, Dr. Fred Strohm für die Betreuung meiner Arbeit und auch für den Stress, welchen er auf sich nimmt, um großartige wissenschaftliche Projekte wie HALOX oder die durch ihn koordinierte europäische EUPLEX-Kampagne im Frühjahr 2003 auf die Beine zu stellen. Bedanken möchte ich mich auch bei den anderen wissenschaftlichen Mitarbeitern dieser Abteilung, Dr. Marc von Hobe, Dr. Bärbel Vogel und Serhiy Hrechanyy, für die allzeit gute Zusammenarbeit. HALOX wäre aber nicht möglich geworden ohne die Unterstützung der technischen Mitarbeiter des Instituts, Armin Afchine, Jochen Barthel, Reimar Bauer, Markus Boremski, Axel Schönfeld, Nicole Spelten und Vicheith Tan. Ebenso essentiell waren die Mitarbeiter der Firma ENVISCOPE, Frankfurt/M, insbesondere Harald Franke, und des russischen „Myasishchev Design Bureau“, welche unter nicht immer einfachen Bedingungen die Integration des HALOX-Geräts in das ehemalige Spionage- und heutige Forschungsflugzeug M-55 „Geophysica“ vornahmen.

Im Rahmen meiner Arbeit führte ich auch viele Computersimulationen mit dem Jülicher Modell CLaMS durch. Ich bedanke mich deshalb auch bei den Mitarbeitern der Theorie-Arbeitsgruppe, insbesondere Herrn Dr. Gebhard Günther, Herrn Dr. Jens-Uwe Groö, Herrn Dr. Paul Konopka und Herrn Dr. Rolf Müller, welche mich in die Geheimnisse von CLaMS einwiesen und mir auch sonst zu theoretischen Fragen viele hilfreiche Hinweise gaben. In dem Zusammenhang bedanke ich mich auch bei Reimar Bauer, Verena Cals und Nicole Thomas, welche dafür sorgten, dass die Computer möglichst das tun, was sie sollen.

Bedanken möchte ich mich bei Dr. Peter Preuß von unserem Institut und bei Dr. Andreas Dörnbrack, Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) Oberpfaffenhofen. Diskussionen mit ihnen über atmosphärische Wellen und Dynamik lieferten wertvolle Beiträge zu meiner Arbeit.

Mein Dank gilt aber auch allen anderen nicht genannten Mitarbeitern des ICG I.

Unbekannterweise muss ich mich bei all jenen bedanken, welche außer den bereits genannten Personen zum Gelingen des TRIPLE-Flugs vom 11. Februar 1997, mehr als drei Jahre vor Beginn meiner Tätigkeit am Forschungszentrum Jülich, und allen außerdem in dieser Arbeit erwähnten Messungen beitrugen. In dem Zusammenhang danke ich, ebenso unbekannterweise, Dr. Thomas Woyke, welcher vor seinem Verlassen des Forschungszentrums noch einige grundlegende Betrachtungen zur ClO-Messung des 11. Februar 1997 angestellt hatte.

Schließlich bedanke ich mich bei meiner Frau Fatima Ousty für ihr Verständnis für spätes Heimkommen, für trotzdem leckeres Abendessen und für ihre Geduld während längerer Kampagnen-Abwesenheit.

Forschungszentrum Jülich
in der Helmholtz-Gemeinschaft



Jül-4108
Januar 2004
ISSN 0944-2952