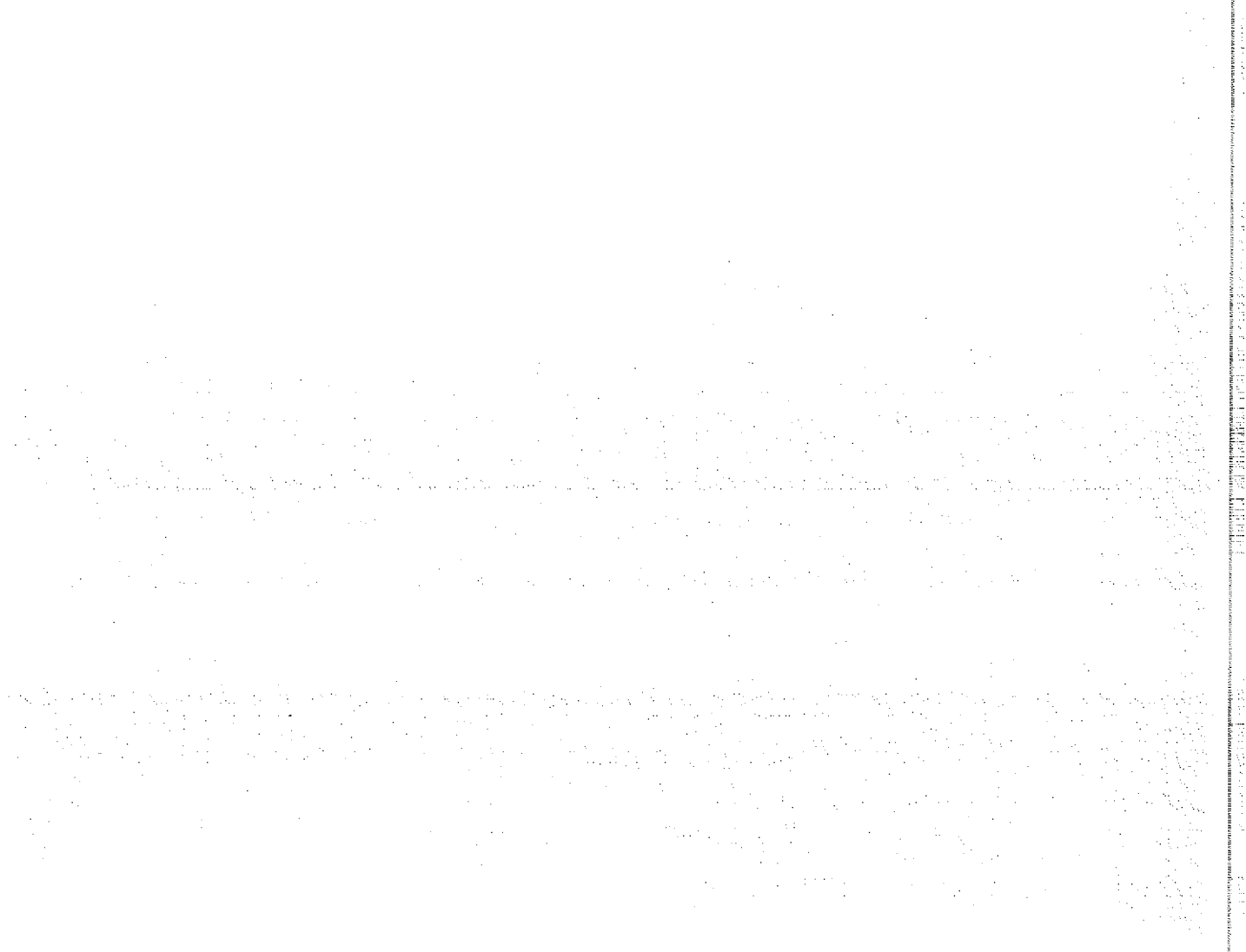




Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 1:
Stratosphärische Chemie

*In-situ-Messung von Wasserdampf
in der unteren Stratosphäre und
im Bereich der Tropopause*

Nils Eicke



In-situ-Messung von Wasserdampf in der unteren Stratosphäre und im Bereich der Tropopause

Nils Eicke

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3714

ISSN 0944-2952

Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 1:

Stratosphärische Chemie Jül-3714

D5 (Diss. Universität Bonn, 1999)

**Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland**

☎ 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

In-situ measurements of water vapour in the lower stratosphere and in the tropopause region

Abstract:

The aim of this thesis was the investigation of dynamical processes in the tropopause region using water vapour measurements. An existing hygrometer for airborne measurements was improved so that it works now more reliable and it is easy to operate. A new hygrometer was developed for balloon-borne measurements.

H₂O was measured during four airborne and two balloon-borne campaigns. The accuracy of measured tropospheric H₂O-water vapour mixing ratios (≥ 40 ppmv) was better than 3% and of measured stratospheric H₂O-water vapour mixing ratios (3-6 ppmv) reached 3-10%.

The result of frequent calibrations performed between two measurement flights is that the quality of measurements was reproduced and that measurements of different campaigns can be compared.

Correlations of H₂O with long lived trace gases, as N₂O and O₃, were used to investigate seasonal and regional differences of H₂O - mixing ratio in the lowermost stratosphere (especially in the mixing layer characterised by air mass intrusions at the local tropopause) and in the tropopause region. In May 1996 this region was wettest (35-58 ppmv) in the vicinity of the mid latitude jet-stream compared to measurements in other seasons and regions.

In the winter the mean measured H₂O mixing ratio at the arctic tropopause was 10-32 ppmv. During some flights only 5-6 ppmv were measured in cold air masses of that region ($\theta \approx 300$ -325K). It was shown that these cold air masses ($T \approx 200$ K) were dried by condensation and sedimentation processes.

Sometimes very dry air masses (H₂O mixing ratios ≤ 4 ppmv) were measured above the tropopause. Condensation and sedimentation processes in these air masses could not be proved at the moment of measurements and some days earlier by trajectories calculation.

Therefore statistics of minimum ECMWF temperatures / saturation water vapour mixing ratios were performed. The result was that minima of 1-4 ppmv are possible between 348 and 380 K potentiell temperature in the subtropics (15-35° N). In mid and high latitudes the minimum saturation water vapour mixing ratio of the statistics was higher than 4 ppmv.

Considering the statistics and not mesoscale dehydration processes in the arctic winter the measured dry air masses could only be dried at the subtropical jet stream where in every season the temperatures are low enough.

In-situ-Messung von Wasserdampf in der unteren Stratosphäre und im Bereich der Tropopause

Kurzzusammenfassung:

Zielsetzung dieser Arbeit war, dynamische Prozesse in der Tropopausenregion anhand von H_2O -Messungen zu untersuchen. Dafür wurde zum einen ein vorhandenes Hygrometer für Flugzeugmessungen weiterentwickelt, so daß die Zuverlässigkeit im Meßeinsatz erhöht wurde und es mittlerweile einfach zu bedienen ist, und zum andern ein Gerät für Ballonmessungen neu entwickelt.

Insgesamt wurden H_2O -Messungen bei vier Flugzeug- und zwei Ballonkampagnen durchgeführt. Die Absolutmeßgenauigkeit troposphärischer H_2O - Mischungsverhältnisse (≥ 40 ppmv) war besser als 3% und die von stratosphärischen (3-6 ppmv) 3-10%. Die zahlreichen Kalibrationen, die jeweils zwischen zwei Meßflügen durchgeführt wurden, zeigten, daß die Qualität der Messungen reproduzierbar ist und somit die Messungen während der verschiedenen Kampagnen vergleichbar sind.

Korrelationen von H_2O mit langlebigen Spurengasen, wie N_2O und O_3 , dienen der Untersuchung von saisonalen und regionalen Unterschieden im H_2O - Mischungsverhältnis in der untersten Stratosphäre (insbesondere in der Mischungsschicht, die durch troposphärische Luftmasseneinträge an der lokalen Tropopause charakterisiert ist) und der Tropopausenregion. Diese Region war im Mai 1996 in der Nähe des Jet-Streams in mittleren Breiten am feuchtesten (35-58 ppmv). In der Tropopausenregion im arktischen Winter ($\theta \approx 300\text{-}325\text{K}$) betrug das H_2O -Mischungsverhältnis bei einzelnen Flügen nur 5-6 ppmv, während im Mittel dort 10-32 ppmv gemessen wurden. Dies konnte durch nachgewiesene Eisteilchenbildungs- und nachfolgende Sedimentationsprozesse in kalten Luftmassen ($T \approx 200\text{ K}$) erklärt werden.

In der untersten Stratosphäre, deutlich oberhalb der Tropopause, wurden teilweise extrem niedrige H_2O - Mischungsverhältnisse (≤ 4 ppmv) gemessen. Die Trockenheit dieser Luftmassen konnte jedoch nicht durch Eisteilchenbildungs- und nachfolgende Sedimentationsprozesse sowohl zum Meßzeitpunkt als auch einige Tage vorher (mit Hilfe von Trajektorienrechnungen) erklärt werden.

Eine Statistik von minimalen ECMWF-Temperaturen / Sättigungswasserdampfmischungsverhältnissen zeigte, daß in den Subtropen ($15\text{-}35^\circ\text{ N}$) in verschiedenen Jahreszeiten im Bereich $348 < \theta \leq 380\text{ K}$ Minima von 1-4 ppmv auftreten können. Außerdem zeigte diese Statistik, daß in mittleren und hohen Breiten im Bereich $340 < \theta \leq 380\text{ K}$ minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse von weniger als 4 ppmv nicht auftreten. Abgesehen von eventuellen mesoskaligen Dehydrierungsprozessen im arktischen Winter in der untersten Stratosphäre aufgrund von Leewellen kann aufgrund der durchgeführten Statistik davon ausgegangen werden, daß die gemessenen niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse ausschließlich durch Dehydrierung am Subtropen-Jet, der zu allen untersuchten Jahreszeiten die erforderlichen niedrigen Temperaturen aufweist, erfolgen kann.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Die untere Atmosphäre: Troposphäre und Stratosphäre	1
1.2	Langlebige Tracer in der Troposphäre und Stratosphäre	3
1.2.1	Wasserdampf	3
1.2.2	N ₂ O	4
1.2.3	O ₃	5
1.2.4	CO, CO ₂ , SF ₆	6
1.3	Globaler Luftmassentransport in der Stratosphäre	6
1.4	Troposphären-Stratosphären Luftmassenaustausch	8
1.5	Aufgabenstellung	10
2	FISH: In-situ-Messung von H₂O	12
2.1	Lyman- α -Photofragmentfluoreszenz	12
2.2	Aufbau des FISH	13
2.2.1	Die Lyman- α -Strahlungsquelle	15
2.2.2	Detektoren	18
2.2.3	Die Fluoreszenzzelle	18
2.2.4	Gesamtwasser / Gasphasenwasser-Meßmodus	19
2.3	Das Ballongerät	20
2.4	Kalibration des Meßinstrumentes	22
2.4.1	Aufbau und Meßgenauigkeit der H ₂ O-Messung des Kalibrierstandes	22
2.4.2	Auswertung der Kalibrationen	26
2.5	Qualität der Daten	31
3	Messungen	36
3.1	Durchgeführte Meßkampagnen	36
3.2	Die STREAM 1996/1997 - Meßkampagnen	37
3.2.1	Ziele und Durchführung der Kampagnen	37
3.3	Die POLSTAR 1997/1998 - Meßkampagnen	39
3.3.1	Ziele und Durchführung der Kampagnen	39
3.4	Die Ballonkampagnen	42
3.4.1	Ziele der Kampagnen	42
3.4.2	Die Instrumente der Triple-Gondel und der Ballon	42
3.4.3	Der Meßflug vom 14.11.1996	43
3.4.4	Der Meßflug vom 11.02.1997	43

4	Korrelationen zwischen verschiedenen Spurengasen	46
4.1	Die Tropopausenregion in mittleren und hohen Breiten	47
4.1.1	H ₂ O-N ₂ O-Korrelationen	48
4.1.2	O ₃ -N ₂ O-Korrelationen	52
4.2	Die Mischungsschicht in der untersten Stratosphäre	54
4.2.1	H ₂ O-N ₂ O-Korrelationen	54
4.2.2	Die maximale Höhe (potentielle Temperatur) der Mischungsschicht	56
4.3	Extrem trockene Luftmassen in der untersten Stratosphäre	57
5	Dehydrierungsprozesse im Bereich $300 \leq \theta \leq 380$ K	62
5.1	Kalte Tropopausenregionen im arktischen Winter	62
5.1.1	Der Flug (970124) am 24.01.1997	64
5.1.2	Die Flüge (970206a/b) am 06.02.1997	67
5.1.3	Der Flug (980121) am 21.01.1998	70
5.1.4	Der Flug (980125) am 25.01.1998	71
5.1.5	Die Flüge (980126a/b) am 26.01.1998	72
5.2	Transport dehydrierter Luft in der Mischungsschicht	75
5.2.1	Der Transferflug (970325) Kiruna → Amsterdam	75
5.2.2	Rückwärtstrajektorien zu einem Filament von dehydrierten Luftmassen	77
5.3	Minimale H ₂ O-Mischungsverhältnisse (<4 ppmv)	79
5.3.1	Übersicht aller gemessenen minimalen H ₂ O-Mischungsverhältnisse	79
5.3.2	Statistik von minimalen Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnissen	80
6	Zusammenfassung	87
A	Detaillierte Berechnung des Fluoreszenzsignals	89
B	Absorption der Lyman-α-Strahlung	91
C	Dokumentation der STREAM 1996/1997 - Messungen	92
C.1	Der Flug (960522)	93
C.2	Der Flug (960523)	94
C.3	Der Flug (960527)	95
C.4	Der Flug (960530)	96
C.5	Der Flug (960531)	97
C.6	Der Flug (960601)	98
C.7	Der Flug (970309)	99
C.8	Der Flug (970314)	100
C.9	Der Flug (970321)	101
C.10	Der Flug (970323)	102

D	Dokumentation der POLSTAR 1997/1998 - Messungen	103
D.1	Der Flug (970128)	103
D.2	Der Flug (970130)	105
D.3	Der Flug (970204)	106
D.4	Die Flüge (980129) und (980201)	107
D.5	Die Flüge (980204a/b)	109

Abbildungsverzeichnis

1.1	Globales Modell der Transportprozesse in der unteren Stratosphäre sowie der Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre nach Holton (1995)	2
1.2	Zonal gemittelter Vertikalschnitt der Verteilung des N_2O - Mischungsverhältnisses im nordhemisphärischen Spätwinter	5
2.1	Aufbau des FISH	13
2.2	Aufbau einer sealed getter Lampe	16
2.3	Aufbau einer Durchflußlampe	16
2.4	Emissionsspektrum der Lyman- α -Strahlungsquelle	17
2.5	Aspirationskoeffizient zur Korrektur des nicht isokinetischen Sammeleffekts des FISH-Einlasses	19
2.6	Gesamtaufbau des Ballonhygrometers	21
2.7	Aufbau des Kalibriersystems	23
2.8	Vergleichsmessungen der Taupunkthygrometer	24
2.9	Ergebnisse der Kalibration am 4.2.1997	27
2.10	Der Kalibrationsparameter C des Cessna/Learjet-FISH und des Falcon-FISH	30
2.11	Autokovarianz des Meßfluges vom 21.03.1997	33
3.1	Vertikalprofil der H_2O -Mischungsverhältnisse der Ballonmessung vom 14.11.1996	43
3.2	Vertikalprofil der $F12$ -, N_2O -, SF_6 - und H_2O -Mischungsverhältnisse der Ballonmessung vom 11.02.1997	44
4.1	Die H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1996-Messungen	48
4.2	Die H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1997-Messungen	49
4.3	Die H_2O - N_2O -Korrelation der POLSTAR 1997-Messungen	50
4.4	Die H_2O - N_2O -Korrelation der POLSTAR 1998-Messungen	51
4.5	O_3 - N_2O -Korrelationen	52
4.6	Gemittelte H_2O - N_2O -Korrelationen	55
4.7	H_2O - θ -Korrelationen	56
4.8	H_2O - O_3 -Korrelation der STREAM 1996-Messungen	58
4.9	H_2O - O_3 -Korrelation der STREAM 1997-Messungen	59
4.10	H_2O - O_3 -Korrelation der POLSTAR 1997-Messungen	60
4.11	H_2O - O_3 -Korrelation der POLSTAR 1998-Messungen	61
5.1	H_2O – O_3 -Korrelationen der POLSTAR-Messungen	63

5.2	Temperaturen der 315 K Isentrope interpoliert aus UKMO-Daten am 24.01.1997 um 12 UTC	64
5.3	Zeitreihen des Fluges 970124	65
5.4	Temperaturen der 320 K Isentrope interpoliert aus UKMO-Daten am 06.02.1997 um 12 UHR (UT)	67
5.5	Zeitreihen des Fluges 970206a	68
5.6	Zeitreihen des Fluges 970206b	69
5.7	Zeitreihen des Fluges 980121	70
5.8	Zeitreihen des Fluges 980125	71
5.9	Zeitreihen des Fluges 980126a	72
5.10	Zeitreihen des Fluges 980126b	73
5.11	Zeitreihen des Fluges 970325	76
5.12	Rückwärtstrajektorien zu dem Flug 970325	78
5.13	minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse im Zeitraum 14.01.-04.02.1998 in den Subtropen 15-35°N	81
5.14	minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse in den Zeiträumen 01.02.-11.02.1997, 03.03.-25.03.1997 in den Subtropen 15-35°N	83
5.15	minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse im Zeitraum 15.05.-02.06.1996 in den Subtropen 15-35°N	84
5.16	minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse im Zeitraum 17.07.-31.07.1995 in den Subtropen 15-35°N	85
C.1	Zeitreihen des Fluges 960522	93
C.2	Zeitreihen des Fluges 960523	94
C.3	Zeitreihen des Fluges 960527	95
C.4	Zeitreihen des Fluges 960530	96
C.5	Zeitreihen des Fluges 960531	97
C.6	Zeitreihen des Fluges 960601	98
C.7	Zeitreihen des Fluges 970309	99
C.8	Zeitreihen des Fluges 970314	100
C.9	Zeitreihen des Fluges 970321	101
C.10	Zeitreihen des Fluges 970323	102
D.1	Zeitreihen des Fluges 970128	104
D.2	Zeitreihen des Fluges 970130	105
D.3	Zeitreihen des Fluges 970204	106
D.4	Zeitreihen des Fluges 980129	107
D.5	Zeitreihen des Fluges 980201	108
D.6	Zeitreihen des Fluges 980204a	109
D.7	Zeitreihen des Fluges 980204b	110

Tabellenverzeichnis

2.1	Messung des Fluoreszenzsignals ($N_g - f_u \cdot N_u$) bei konstantem Druck und Flüssen von $1-5 \frac{\text{Sl}}{\text{min}}$ von trockener Luft	25
2.2	Der für jede Kampagne bestimmte Parameter f_u	28
2.3	Die Parameter f_u und C der Kalibrationen des Ballon-FISH während der ADEOS/ILAS-Kampagne	31
2.4	Präzision (3σ) und Absolutmeßgenauigkeit ('accuracy') der stratosphärischen H_2O -Messungen aller STREAM-Flüge	33
2.5	Präzision (3σ) , 'accuracy' der stratosphärischen H_2O -Messungen aller POLSTAR-Flüge und das Minimum der Untergrundzählrate (Learjet-FISH) a.) des Falcon-FISH, b.) des Learjet-FISH	34
3.1	Die im Laufe dieser Arbeit durchgeführten Kampagnen	36
3.2	Instrumentierung der Citation II während der STREAM-Kampagnen	37
3.3	Fluginformationen zu STREAM 1996/1997	38
3.4	a.) Instrumentierung der Falcon , b.) Instrumentierung des Learjets	40
3.5	Fluginformationen zu den POLSTAR-Messungen	41
4.1	O_3 - und H_2O - Mischungsverhältnisse an der Tropopause	54
5.1	Charakterisierung der Luftmassen in kalten Tropopausenregionen	74
5.2	Die potentielle Temperatur, das H_2O -, das N_2O -, das O_3 - (Flugzeugmessungen), das SF_6 - (Ballonmessung) Mischungsverhältnis und die Flugbezeichnung von Messungen in extrem trockenen Luftmassen	79

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Die untere Atmosphäre: Troposphäre und Stratosphäre

Die der Erdoberfläche nächsten Schichten der Atmosphäre, die direkt spürbar das Leben beeinflussen, sind die Troposphäre (gr. tropos = Wendung) und die Stratosphäre (lat. stratus = geschichtet). An der Obergrenze der Stratosphäre beträgt der Luftdruck weniger als 10 hPa, d.h. mehr als 99% der Gesamtmasse der Luft befindet sich in den unteren beiden Schichten. Der Name der Troposphäre soll andeuten, daß sich in ihr die großen vertikalen Umlagerungen abspielen, die mit allen bemerkenswerten Wetteränderungen verbunden sind, während der Name der Stratosphäre zum Ausdruck bringt, daß dort nahezu kein Vertikaltransport von Luftmassen stattfindet. Die Troposphäre ist gekennzeichnet durch eine Temperaturabnahme nach oben von ca. 4-8 °C/km, im Mittel 6.5 °C/km. Dies ist zwar adiabatisch stabil, jedoch feuchtadiabatisch labil. Nach Holton et al. (1995) kann sich der vertikale Transport von Luft in der Troposphäre aufgrund feuchter Konvektion in den Tropen in wenigen Stunden und barokliner Wirbel-Bewegungen in mittleren Breiten in Tagen ereignen. In den Tropen ist aufgrund der ausgeprägten feuchten Konvektion die obere Grenze (Tropopause) der Troposphäre sehr hoch und kalt. In Abbildung 1.1 ist die Tropopause durch eine dicke Linie gekennzeichnet, die in Äquatornähe in etwa 17 km Höhe auf der 90 hPa Isobare und auf der 380 K Isentrope liegt. Zu den Polen hin nimmt die Tropopausenhöhe ab, auf etwa 8-10 km Höhe.

In der Stratosphäre dauert der vertikale Transport von Luftmassen durch einen ähnlichen Höhenbereich ein Jahr oder in der unteren Stratosphäre noch länger. Dieser Transport muß begleitet sein von Erwärmung oder Abkühlung durch Strahlung. In der Stratosphäre kommt es nicht zu so einer schnellen vertikal sehr ausgedehnten Konvektion, wie es in der Troposphäre der Fall ist, da zum einen die Stratosphäre sehr trocken ist und somit kaum latente Wärme enthält und zum anderen die Stratosphäre stabiler geschichtet ist. Die eigentliche Ursache für den Unterschied in den Zeitskalen zwischen dem Vertikaltransport von troposphärischen und stratosphärischen Luftmassen ist das rapide Anwachsen des O₃-Mischungsverhältnisses und die rapide Abnahme des H₂O-Mischungsverhältnisses direkt über der Tropopause (Holton et al. 1995).

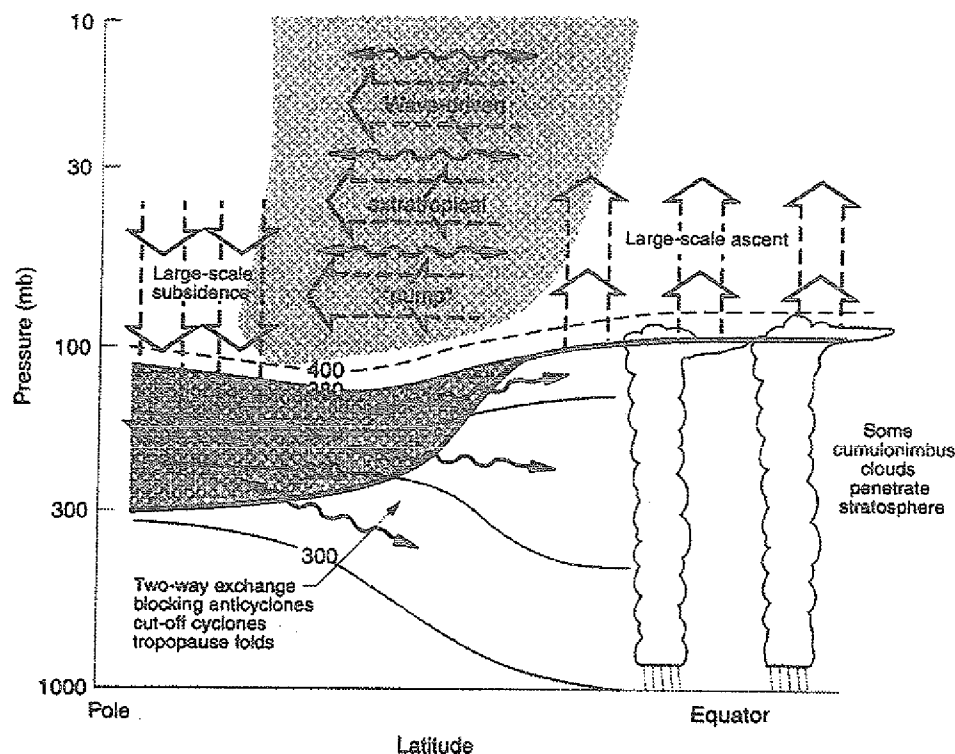


Abbildung 1.1: Globales Modell der Transportprozesse in der unteren Stratosphäre sowie der Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre nach Holton (1995). Die extratropische unterste Stratosphäre (dunkel schraffierter Bereich) wird durch die isentrope Fläche (dünne Linie) bei einer potentiellen Temperatur von 380 K und die extratropische Tropopause (dicke Linie) begrenzt. Oberhalb der potentiellen Temperatur von 380 K schließt die „Overworld“ an. Die Brewer-Dobson-Zirkulation ist durch große, offene Pfeile gekennzeichnet. Geschwungene Pfeile markieren adiabatische Prozesse (aus Holton 1995).

Denn ein ansteigendes Ozonmischungsverhältnis mit der Höhe bewirkt eine zunehmende Absorption von solarer Infrarotstrahlung. Die Temperaturabnahme mit der Höhe ist in der Stratosphäre nicht nur niedriger als an der Tropopause, $2\text{ }^{\circ}\text{C/km}$, sondern in den Tropen oder im Sommer auch in hohen Breiten nimmt die Temperatur dort mit der Höhe sogar zu. Die WMO-Definition für die Tropopause - die niedrigste Höhe, oberhalb welcher in einem Höhenintervall von 2 km die Temperaturabnahme geringer als $2\text{ }^{\circ}\text{C/km}$ ist - ist ziemlich willkürlich gewählt und ist nur begrenzt physikalisch relevant (siehe Highwood and Hoskins 1998).

Außerhalb der Tropen polwärts des 25. Breitengrades kann man alternativ die ± 2 PVU Fläche (+: Nord-, -: Südhemisphäre) als Tropopause (Hoskins 1991) betrach-

ten. Dies ist jedoch eher ein mittlerer Wert; nach Hoskins (1985) variiert die potentielle Vorticity an der außertropischen Tropopause auf der Nordhemisphäre zwischen 1,5 und 4 PVU. Eine Definition der Tropopause durch die konservative Größe der potentiellen Vorticity ist in der Nähe des Äquators unsinnig, da dort die PV-Flächen nahezu senkrecht sind. Dort ist das Temperaturminimum im Vertikalprofil eine sehr zuverlässige Definition für die tropische Tropopause (siehe Highwood and Hoskins 1998), welche etwas oberhalb der durch die WMO definierte Tropopause liegt. Ein zeitlich und zonal mittlerer Wert für die tropische Tropopause ist die 380 K Isentrope.

Der obere Teil der Stratosphäre, wo $\theta \geq 380$ K, wird global als „Overworld“ und der Bereich zwischen 300 K und 380 K als „Middleworld“ bezeichnet (Hoskins 1991). Das charakteristische an der „Middleworld“ ist, daß die Isentropen die Tropopause schneiden, d.h. es gibt einen troposphärischen und einen stratosphärischen (in Abbildung 1.1 der dunkel schraffierte Bereich) Teil der „Middleworld“, welcher auch als unterste Stratosphäre bezeichnet wird. Ein massiver Luftmassentransport in der Stratosphäre ist durch große, offene Pfeile (Brewer Dobson Zirkulation) gekennzeichnet. Geschwungene Pfeile deuten einen isentropen Luftmassenaustausch an. Auf diese Transportprozesse wird im Abschnitt 1.3 näher eingegangen.

1.2 Langlebige Tracer in der Troposphäre und Stratosphäre

Die Verteilung langlebiger Spurengase (Tracer) wird vorwiegend durch Transportprozesse in der Troposphäre und Stratosphäre bestimmt. So können anhand von Tracermessungen Aussagen über Luftmassentransportprozesse gemacht werden. Einige Tracer sollen hier näher beschrieben werden:

1. Wasserdampf, da die Stratosphäre extrem trocken ist und der Wasserdampfgehalt in der oberen Troposphäre sehr variabel ist. Insbesondere an der Tropopause im Sommer in mittleren und hohen Breiten können die Luftmassen ziemlich feucht sein.
2. N_2O , da es in der Troposphäre ein nahezu konstantes Mischungsverhältnis hat und in der Stratosphäre mit zunehmenden vertikalen Abstand von der Tropopause abnimmt. N_2O wird in der Troposphäre produziert und deswegen als „troposphärischer Tracer“ bezeichnet.
3. Ozon, da an der Tropopause und in der untersten Stratosphäre der Vertikalgradient des Ozonmischungsverhältnis im Vergleich zur Meßgenauigkeit ziemlich groß ist. O_3 wird in der Stratosphäre produziert und deswegen als „stratosphärischer Tracer“ bezeichnet.
4. CO , das wie N_2O ein „troposphärischer Tracer“ ist; CO_2 und SF_6 , die sich gut zur Altersbestimmung einer stratosphärischen Luftmasse eignen.

1.2.1 Wasserdampf

Wie schon erwähnt, ist die Stratosphäre sehr trocken. An der tropischen Tropopause und global auf der 380 K Isentrope (in Abbildung 1.1 sind die Isentropen durch die dünnen Linien gekennzeichnet), beträgt das mittlere Mischungsverhältnis etwa 4 ppmv (z.B. Engel et al., 1996: $3,61 \pm 0,28$ ppmv und darin aufgeführte

Literatur, Zöger et al., 1999[2]: $3,9 \pm 1,0$ ppmv) und steigt mit zunehmender Höhe aufgrund der durch intensivere UV-Strahlung verursachten erhöhten Oxidation von Methan zu CO_2 und Wasser auf 6-7 ppmv an (Engel et al., 1996: $6,91 \pm 0,41$ ppmv, Zöger et al., 1999[2]: $7,17 \pm 0,13$ ppmv, Kelly et al., 1990: 6,6-7,6 ppmv, Dessler et al., 1994: $7,6 \pm 0,6$ ppmv). Vereinzelt wurden an der tropischen Tropopause (Mote et al., 1996) oder auch im Winter im antarktischen Polarwirbel (z.B. Kelly et al., 1989; Vömel et al., 1995) Wasserdampfmischungsverhältnisse von weniger als 2,5 ppmv gemessen. In der Troposphäre sind diese sehr variabel. Am höchsten sind sie über warmen Wasseroberflächen in Meeresniveau mit bis zu 50000 ppmv in den Tropen. Mit abnehmender Temperatur sinken die Wasserdampfmischungsverhältnisse, d.h. horizontal zu den Polen hin und vertikal mit zunehmender Höhe. In den Tropen ist die Tropopause sehr hoch, was extrem niedrige Temperaturen und niedrige Wasserdampfmischungsverhältnisse zur Folge hat. Newell und Gould-Stewart (1981) analysierten 100 hPa Isobaren mit dem Ergebnis, daß in einigen Gebieten, im westlichen tropischen Pazifik, von November bis März die Temperaturen niedrig genug waren ($< -82^\circ\text{C}$), um die Luft auf die in der Stratosphäre gemessenen Wasserdampfmischungsverhältnisse gefrierzutrocknen. Die Modellstudien von Mote et al. (1996) zeigen, daß es einen Jahresgang in der zonal gemittelten tropischen Tropopausentemperatur gibt, der positiv mit dem gemessenen Wasserdampfmischungsverhältnis korreliert ist, jedoch sind die zonal gemittelten Tropopausentemperaturen zu hoch, um die extrem trockenen Luftmassen zu erzeugen, die in die Stratosphäre eintreten. Nur die niedrigsten Tropopausentemperaturen auf jedem Breitengrad sind mit den beobachteten Wasserdampfmischungsverhältnissen in der Stratosphäre konsistent.

In mittleren bis hohen Breiten kann die Temperatur an der tiefer liegenden Tropopause (Druckbereich: 200- 450 hPa) ziemlich hoch sein: ca. -75 bis -40°C was Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis und Wasser von ca. 5-70 ppmv zur Folge hat.

1.2.2 N_2O

Das troposphärische N_2O -Mischungsverhältnis ist von etwa 309 ppbv am Anfang dieses Jahrzehntes auf ca. 312,5 ppbv 1996/1997 angestiegen; 1991: $309,3 \pm 0,4$ ppbv (Collins et al., 1996), 1993: 310 ppbv (WMO, 1995), 1994: 311 ppbv (Volk et al., 1997), 1996/1997: 312,7/312,5 ppbv (Bujok, 1998). Der jährliche prozentuale Anstieg des troposphärischen N_2O -Mischungsverhältnisses ist relativ gering im Vergleich zu dem von einigen FCKW's. Aufgrund der schnellen Durchmischung in der Troposphäre ist das N_2O -Mischungsverhältnis in der oberen Troposphäre global nahezu konstant. In der Stratosphäre wird N_2O je nach der höhenabhängigen Intensität der UV-Strahlung dissoziiert, so daß das N_2O -Mischungsverhältnis mit zunehmender Höhe abnimmt. Mit Hilfe des „Mainzer 2-D-Modells“ (Grooß, 1996) können zonal gemittelte Tracermischungsverhältnisse in der Stratosphäre global berechnet werden. Ein zonal gemittelter Vertikalschnitt der N_2O - Mischungsverhältnisse im nordhemisphärischen Spätwinter ist in Abbildung 1.2 dargestellt. Die Tropopause, die obere Grenze der Troposphäre etwas unterhalb der 310 ppbv Fläche in Abbildung 1.2, hat in den Tropen seine Maximalhöhe auf der 380 K Isentrope und

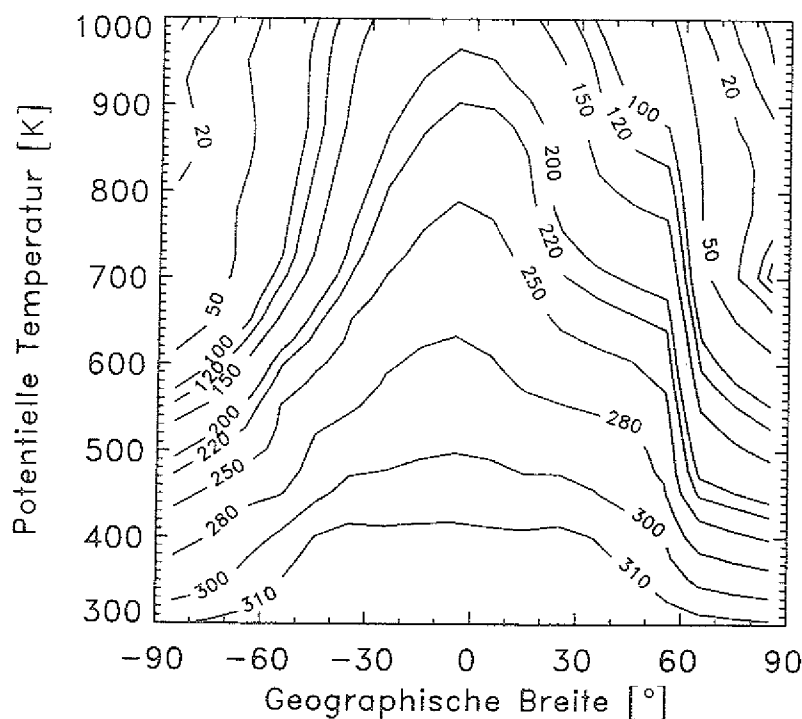


Abbildung 1.2: Zonal gemittelter Vertikalschnitt der Verteilung des N_2O -Mischungsverhältnisses im nordhemisphärischen Spätwinter, berechnet anhand des „Mainzer 2-D-Modells“ (Groß, 1996). Der wiedergegebene Bereich der potentiellen Temperatur von $\theta = 300$ K bis $\theta = 1000$ K überdeckt am Äquator etwa den Höhenbereich vom Boden bis etwa 35 km und an den Polen von der Tropopause in etwa 8 km bis ebenfalls etwa 35 km.

über den Polen seine Minimalhöhe unterhalb der 300 K Isentrope. Auf der Winterhemisphäre treten bei $15^\circ N$ und $60^\circ N$ meridional besonders starke Gradienten im N_2O -Mischungsverhältnis auf Flächen gleicher potentieller Temperatur auf. Diese Breiten stimmen in etwa mit dem äußeren Rand der Tropen und des Polarwirbels überein.

1.2.3 O_3

Ozon wird vorwiegend in der Stratosphäre durch photochemische Reaktionen erzeugt. Zwar wird wegen einer intensiveren UV-Strahlung in der tropischen Stratosphäre dort mehr O_3 produziert als in hohen Breiten, jedoch wird dieses polwärts transportiert, so daß die Gesamtsäule über den Tropen ganzjährig etwa 250 Dobson¹ beträgt und über den Polen von etwa 280 Dobson im Herbst auf mehr als 400 Dob-

¹Dobson ist eine Einheit für die Dicke der Ozonschicht in mm, auf die sie bei Normaldruck komprimiert werden würde

son im Frühjahr ansteigt (Brasseur, 1984). Die unterschiedlichen höhenabhängigen Zeitskalen der Transportvorgänge, O_3 -Produktions- und O_3 -Abbaureaktionen führen zu einem Maximum in der O_3 -Konzentration von etwa $4,3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ in einer Höhe von ca. 24 km (Brasseur, 1984). Je nach Druck und Temperatur entspricht dies einem O_3 -Mischungsverhältnis von 3-5 ppmv. In der Troposphäre ist das O_3 -Mischungsverhältnis nahezu zwei Größenordnungen niedriger. Nach Danielsen (1968) oder Shapiro (1980) variiert das O_3 -Mischungsverhältnis an der Tropopause zwischen 100 und 200 ppbv. Aufgrund des großen Vertikalgradienten im O_3 -Mischungsverhältnis in der untersten Stratosphäre eignen sich gerade Korrelationen von H_2O mit O_3 gut für lokale Untersuchungen (z.B. Kondensations- und Sedimentationsprozesse in extrem kalten Tropopausenregionen).

1.2.4 CO , CO_2 , SF_6

CO wird wie N_2O in der Troposphäre produziert, jedoch beträgt die atmosphärische Lebensdauer nur 0,6 Jahre (Lelieveld, 1997) während die des N_2O 101 ± 11 Jahre (Bujok, 1998) beträgt. CO -Mischungsverhältnisse von etwa 140 ppbv wurden im März 1997 in der arktischen Troposphäre gemessen. Auf den höchsten Flugniveaus, d.h. etwa 162 hPa, wurde in der untersten Stratosphäre ein Minimum von 20 ppbv gemessen (z.B. H. Fischer et al., Manuskript in Vorbereitung). Da die CO -Produktion der Industrie, des Verkehrs und der Haushalte insbesondere auf der Nordhemisphäre jahreszeitlich unterschiedlich ist, ist auch das troposphärische CO -Mischungsverhältnis dort ziemlich variabel.

Aufgrund des hemisphärischen Zyklus der Photosynthese oszilliert auch das troposphärische CO_2 -Mischungsverhältnis jahreszeitlich. Am Boden betragen die Amplituden 1 ppmv in der Süd- und 3-15 ppmv (polwärts zunehmend) in der Nordhemisphäre, wobei eine Phasendifferenz von 6 Monaten zwischen beiden Hemisphären auftritt. Zusätzlich wächst das CO_2 -Mischungsverhältnis jährlich im Durchschnitt um 1,4 ppmv an (siehe Conway, 1994). Im Februar 1996 wurde z.B. in den Tropen zwischen der 350 K und 375 K-Isentrope ein CO_2 -Mischungsverhältnis von 360-361 ppmv gemessen (siehe Boering, 1996). Da das troposphärische CO_2 -Mischungsverhältnis jährlich ansteigt und CO_2 relativ stabil ist, kann das mittlere Alter einer stratosphärischen Luftmasse bestimmt werden, welches als die Zeitdifferenz zwischen dem Meßzeitpunkt in der Stratosphäre und dem Zeitpunkt definiert ist, als das troposphärische Mischungsverhältnis diesem gerade gemessenen stratosphärischen Wert entsprach (Hall, 1993).

SF_6 wird in der Stratosphäre nicht abgebaut (atmosphärische Lebensdauer: 3200 Jahre) und deren Mischungsverhältnis nimmt jährlich zu (1980-1996: von 0,8 auf 3,7 pptv). Von daher eignet sich dieses Spurengas sehr gut, um das Alter einer stratosphärischen Luftmasse zu bestimmen (siehe Harnisch, 1996).

1.3 Globaler Luftmassentransport in der Stratosphäre

Wie N_2O haben auch andere chemische Tracer, wie z.B. O_3 , meridional erhöhte Gradienten im Mischungsverhältnis bei $15^\circ N$ (z.B. Volk et al., 1996) und $60^\circ N$ (z.B.

Schmidt et al. 1991) auf der Winterhemisphäre. Offensichtlich findet ein horizontaler Transport in der mittleren Stratosphäre durch den äußeren Rand der Tropen und des Polarwirbels nahezu nicht statt, und der in Abbildung 1.2 dargestellte Vertikalschnitt des N_2O -Mischungsverhältnis wird durch einen massiven Aufwärtstransport in den Tropen, sogar oberhalb der 1000 K Isentrope oder 35 km Höhe, durch einen horizontalen Transport zum Polargebiet im oberen Teil der „Overworld“ und durch einen ausgeprägten Abwärtstransport im Polargebiet auf der Winterhemisphäre bis hinunter in die Troposphäre verursacht (in Abbildung 1.1 durch die großen offenen Pfeile gekennzeichnet), so daß die Gesamtmasse in der Stratosphäre erhalten bleibt. In begrenztem Ausmaß findet auf niedrigen Niveaus in der Stratosphäre zwischen der 380 K und 440 K Isentrope (Strahan et al., 1998) ein Luftmassentransport von niederen in hohe Breiten statt. Von Rosenlof et al. (1997) wird der Bereich zwischen 380 K und 450 K als „tropically controlled transition region“ bezeichnet und der Bereich oberhalb von 450 K als „Overworld“.

Der maximale Aufwärtstransport in den Tropen ereignet sich im nordhemisphärischen Winter und ist ungefähr doppelt so groß wie der minimale Aufwärtstransport von tropischen Luftmassen im nordhemisphärischen Sommer (z.B. Rosenlof, 1995). Tropische Messungen des Gesamt ozons zeigen einen entsprechenden Jahreszyklus mit einem Minimum während des nordhemisphärischen Winters (Shiotani, 1992; Shiotani and Hasebe, 1994). Ein verstärkter Vertikaltransport von troposphärischen Luftmassen in die tropische Stratosphäre reduziert das Gesamt ozon in der tropischen Stratosphäre.

In verschiedenen Veröffentlichungen (z.B. Reid and Gage, 1981) wird der Jahreszyklus in der Vertikalgeschwindigkeit durch eine Jahresvariation im Aufwärtsquellen in der troposphärischen Hadley Zelle erklärt. Die maximale Temperatur in der unteren tropischen Stratosphäre im Juli - August (eine höhere tropische Tropopausentemperatur erklärt man durch eine reduzierte feuchte Konvektion in der Troposphäre), läßt sich durch minimale Meeresoberflächentemperaturen in den Tropen zu dieser Zeit erklären. Jedoch tritt die minimale Temperatur in der unteren tropischen Stratosphäre im Dezember - Januar und nicht im April auf, wenn die Meeresoberflächentemperaturen in den Tropen maximal sind (Rosenlof, 1995).

Eine alternative Erklärung ist, daß dieser gesamte Transportprozeß durch eine extratropische Pumpe in der oberen Stratosphäre und unteren Mesosphäre aufrecht erhalten wird. Diese Pumpe wird angetrieben durch bestimmte Wirbelbewegungen, die durch brechende Rossby-Wellen erzeugt werden (z.B. Holton et al., 1995). Die Stärke dieser wellenkontrollierten Brewer-Dobson-Zirkulation fluktuiert jahreszeitlich mit einem Maximum im Januar. Unterstützt wird diese Erklärung durch kompensierende Temperaturänderungen in den Tropen und denen in hohen Breiten. Die Abstiegsraten im Polarwirbel sind im nordhemisphärischen Winter größer als im südhemisphärischen Winter. Die Temperaturen sind daher im Polarwirbel im nordhemisphärischen Winter höher (Rosenlof, 1995). Aufgrund der verstärkten Brewer-Dobson-Zirkulation im Januar ist außerdem das Maximum der Temperatur in der Stratosphäre gemittelt polwärts von 45° im südhemisphärischen Sommer beinahe 3° höher als im nordhemisphärischen Sommer. Eine Luftmasse, die in die tropische Stratosphäre bei etwa 100 hPa eingetreten ist, benötigt 3,9 Jahre bis sie die 100 hPa Isobare über der Antarktis in umgekehrter Richtung passiert, während dieser Trans-

portprozess auf der Nordhemisphäre 3,24 Jahre dauert. Der langsame meridionale Transport im südhemisphärischen Winter und die zusätzliche Erwärmung im südhemisphärischen Sommer, aufgrund dessen die Luftmassen höher steigen als auf der Nordhemisphäre, verlangsamen den Transportprozeß auf der Südhemisphäre (Rosenlof, 1995).

1.4 Troposphären-Stratosphären Luftmassenaustausch

Wie schon erwähnt, findet der Troposphären-Stratosphären Luftmassenaustausch fast ausschließlich als Eintrag von troposphärischer Luft in die Stratosphäre in den Tropen und als Eintrag von stratosphärischer Luft in die Troposphäre in mittleren und polaren Breiten statt. Da die Aufwärtsbewegung tropischer Luftmassen adiabatische Kühlung verursacht in einer statistisch stabilen Umgebung, produziert der jährliche Zyklus im außertropischen Pumpen auch einen jährlichen Zyklus in der tropischen Temperatur nahe des 100 hPa Niveaus, mit den niedrigsten Temperaturen im nördlichen Winter und den höchsten Temperaturen im nördlichen Sommer (Holton et al., 1995).

Die Temperaturen sind so niedrig an der tropischen Tropopause, daß dort durch Bilden von Eisteilchen und nachfolgender Sedimentation die Luftmassen mehr im Januar/Februar und weniger im Juli/August dehydriert werden. Nach Mote et al. (1996) ist das H_2O -Mischungsverhältnis der in den Tropen das ganze Jahr über aufsteigenden Luftmassen durch die Temperatur an der Tropopause bestimmt und demnach der jahreszeitliche Zyklus der tropischen Tropopausentemperatur im Vertikalprofil des H_2O -Mischungsverhältnisses, wie in einem „atmospheric tape recorder“, in der tropischen Stratosphäre gespeichert. So wird z.B. eine Luftmasse, die im Januar bei etwa 100 hPa die tropische Tropopause passiert hat, im Oktober auf der 46 hPa Isobare als Minimum im Vertikalprofil des H_2O -Mischungsverhältnisses nachgewiesen. Dieses Minimum wird als Hygropause bezeichnet. Diese Hygropause wurde auch in mittleren Breiten auf der Süd- und Nordhemisphäre zur gleichen Zeit beobachtet (McCormick et al., 1993), wofür ein schneller horizontaler Transport zwischen 380 und 440 K von den Tropen zu den Polen hin die wahrscheinlichste Erklärung ist. Dieser Transport ist ein Grund für die gemessene feuchtere „tropically controlled transition region“ ($380 < \theta < 450$ K) in mittleren Breiten auf der Nordhemisphäre als auf der Südhemisphäre nach Rosenlof (1997); denn, wenn die tropischen Tropopausentemperaturen im nordhemisphärischen Sommer am höchsten sind, ist der Aufwärtstransport durch die tropische Tropopause nördlich des Äquators lokalisiert. So wird mehr feuchte Luft nach Norden als nach Süden transportiert.

Boering et al. (1996) haben Vertikalprofile von CO_2 -Messungen in der „Overworld“ untersucht. Sie haben die saisonale Variation, die in der Troposphäre auftritt, in diesen Vertikalprofilen wiederentdeckt und durch einen kontinuierlichen Eintrag von troposphärischen Luftmassen in die tropische Stratosphäre erklärt. Allerdings ist es schwierig mit dieser Hypothese die Trockenheit der Stratosphäre zu erklären. Denn die zeitlich und zonal gemittelten Temperaturen der tropischen Tropopause führen zu einem im Vergleich zum mittleren H_2O -Mischungsverhältnis in der „Overworld“ deutlich höherem Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis

über Eis (siehe Unterabschnitt 1.2.1). Demnach sollte der tropische Eintrag lokal und temporär erfolgen. Newell and Gould-Stewart (1981) behaupten, daß der Luftmasseneintrag in die tropische Stratosphäre ausschließlich da stattfindet, wo die Tropopause besonders kalt sei; von November bis März sei dies über dem westlichen tropischen Pazifik, dem nördlichen Australien, Indonesien und Malaysia der Fall und von Mai bis September über Indien und der Bucht von Bengalen. Diese Gebiete stimmen jeweils mit den troposphärischen Hauptwärmequellen überein.

Highwood und Hoskins (1998) haben auf ähnliche Weise herausgefunden, daß in den Monaten Dezember-Februar die Temperaturen der 100 hPa Isobare in den Tropen über dem westlichen und mittleren Pazifik so niedrig sind, daß das Sättigungsmischungsverhältnis von Wasserdampf über Eis 3 ppmv ist. In den Monaten Juni-August wurde das Indische Monsungebiet als das Gebiet mit den niedrigsten Temperaturen auf der 100 hPa Isobare bestimmt, wobei dort das Sättigungsmischungsverhältnis von Wasserdampf über Eis 9 ppmv wäre. Man müßte untersuchen, ob eine entsprechende Statistik der Tropopausentemperaturen mit dem Minimum im Temperaturprofil als Definition der Tropopause zu einem niedrigeren Sättigungsmischungsverhältnis von Wasserdampf über Eis führen würde. Tuck et al. (1993) sind auch der Ansicht, daß die niedrigen Wasserdampfmischungsverhältnisse von etwa 3,1 ppmv in der unteren Stratosphäre durch Dehydrierung von troposphärischen Luftmassen an der kalten Tropopause über dem westlichen Pazifik von November bis Mai verursacht werden, jedoch könne die extrem trockene untere Stratosphäre auf der Südhemisphäre von Juni bis September, wenn die tropischen Tropopausentemperaturen viel höher seien, nur durch Mischung mit aus dem antarktischen Polarwirbel abgelösten dehydrierten Luftmassen erklärt werden.

Hingegen ist Danielsen (1982) der Meinung, daß der Eintrag von troposphärischen Luftmassen in die Stratosphäre sich in Cumulonimbus Wolken ereignet, die in den Tropen häufig bis in die Stratosphäre (ca. 17 km) hineinragen. Die turbulente Durchmischung in der Wolke, die Abkühlung an der Oberseite der Wolke und Sedimentationsprozesse verursachen extrem niedrige Temperaturen und entsprechend niedrige Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis.

Neben dem beschriebenen Transportprozeß, der sich über die gesamte Stratosphäre erstreckt, findet ein vergleichsweise sehr reduzierter Luftmassenaustausch zwischen der außertropischen Troposphäre und der untersten Stratosphäre (in der „Middleworld“) statt. Dessler (1995) hat aus Wasserdampfmessungen, den dazu berechneten Sättigungstemperaturen und den Tropopausentemperaturen auf der jeweiligen Isentrope in der „Middleworld“ abgeschätzt, in welchem Verhältnis die Luft in der untersten Stratosphäre auf bestimmten Isentropen sich aus Luftmassen zusammensetzt, die zum einen gemäß der Brewer-Dobson-Zirkulation durch die tropische Tropopause und zum anderen durch isentropen Transport aus niederen Breiten in die Stratosphäre gelangt sind.

Am unteren Rand der untersten Stratosphäre, wo die Tropopause die Isentropen schneidet, kann Stratosphären-Troposphären Austausch auftreten, insbesondere in Gebieten mit extremen Gradienten der Tropopausenhöhe, die durch adiabatische Wirbelbewegungen extrem im Breitengrad verschoben werden. Schließlich folgen nicht konservative Prozesse wie schichtweise 2D-turbulente Mischung und kleinskalige turbulente Mischung (Holton et al., 1995).

Vaughan und Timmis (1998) haben in mittleren Breiten anhand von Ozon- und Aerosolmessungen troposphärische Luftmassen in der untersten Stratosphäre im Bereich der 360-380 K Isentropen nachgewiesen. Trajektorienrechnungen haben gezeigt, daß diese Luftmassen subtropischen Ursprungs gewesen sind und sich vom Subtropen-Jet abgelöst haben, als dieser sich über Nordamerika ziemlich weit nach Norden verschoben hat. Letztendlich vermischten diese in der Stratosphäre isolierten troposphärischen Luftmassen sich allmählich mit den stratosphärischen.

Hintsä et al. (1998) haben anhand von H_2O -Korrelationen mit N_2O und O_3 in der untersten Stratosphäre (352-370 K) in mittleren Breiten gemessene Luftmassen als solche identifiziert, die durch Mischung mit troposphärischen Luftmassen entstanden sind. Darüber hinaus haben CO_2 -Korrelationen mit N_2O und O_3 und Trajektorienrechnungen ergeben, daß dieser troposphärische Luftmasseneintrag jeweils in mittleren Breiten in einem Gebiet mit einer extremen Änderung der Tropopausenhöhe geschah, wobei in einem Fall die troposphärischen Luftmassen subtropischen Ursprungs waren und im anderen Fall aus mittleren Breiten stammten. Horizontale Mischung kann besonders signifikant in der untersten Stratosphäre während des Auftretens von sogenannten „Blocking“ Ereignissen sein, wenn meridionale Bewegungen verstärkt sind. Somit kann der Austausch zwischen der Troposphäre und der untersten Stratosphäre signifikant schneller sein als der Austausch zwischen der „Overworld“ und der untersten Stratosphäre.

Schon Brewer (1949) hat aus dem nahezu konstanten Helium Mischungsverhältnis in der untersten Stratosphäre geschlossen, daß dort turbulente Mischung stattfindet, insbesondere in der Nähe des Jetstreams in mittleren Breiten, wo oberhalb der Tropopause eine extreme Windscherung von sehr hohen Windgeschwindigkeiten an der Tropopause zu relativ niedrigen Windgeschwindigkeiten in größeren Höhen auftritt. Die trotzdem sehr niedrigen Wasserdampfmischungsverhältnisse in der untersten Stratosphäre erklärt Brewer mit einem global relativ niedrigen Eintrag von feuchten troposphärischen Luftmassen in mittleren und hohen Breiten im Vergleich zu dem großskaligen Absinken von trockenen stratosphärischen Luftmassen.

1.5 Aufgabenstellung

Ziel dieser Arbeit ist, dynamische Prozesse in der Tropopausenregion anhand von H_2O -Messungen zu untersuchen. Bei Beginn der Arbeiten existierte ein einsatzfähiges am Institut entwickeltes Fluoreszenz-Hygrometer für Flugzeugmessungen, das sowohl für Messungen in der Stratosphäre als auch für Messungen in der Troposphäre geeignet ist. Im Verlauf dieser Arbeit wurden mehrere Modifikationen des Hygrometers vorgenommen, um sowohl die Meßgenauigkeit als auch die Zuverlässigkeit im Meßeinsatz zu erhöhen. Für den Einsatz bei Ballonmessungen wurde ein neues Hygrometer entwickelt, das grundsätzlich ähnlich aufgebaut ist wie das Flugzeuggerät, jedoch für Ballonmessungen notwendige zusätzliche Komponenten enthält. Das Kalibrationsverfahren für das Ballongerät wurde gegenüber dem des Flugzeuggerätes wegen der Druckabhängigkeit der Fluoreszenzmessung bei niedrigen Drücken geändert. Schließlich wurden noch Programme zur Kalibrationsauswertung entwickelt, mit denen das Auswerten sowohl weniger zeitaufwendig als auch genauer ist als mit den bereits vorhandenen.

Insgesamt wurden bei vier Flugzeugkampagnen und zwei Ballonkampagnen die Wasserdampfmessungen vorbereitet und erfolgreich durchgeführt. Die Auswertung aller Messungen wurde mit zum Teil selbst erstellten Programmen vorgenommen. Viele unterschiedliche wissenschaftliche Ziele wurden bei den durchgeführten Kampagnen verfolgt. In dieser Arbeit ist das Schwerpunktthema: Vergleich (Korrelationen) von Wasserdampfmessungen mit anderen Tracern (N_2O , O_3), sowie ihre jahreszeitliche und regionale Variation.

Kapitel 2

FISH: In-situ-Messung von H₂O

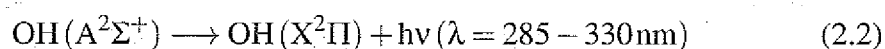
Zu Beginn dieser Arbeit existierte für H₂O-Messungen ein einsatzfähiges Instrument, Fast In-situ Stratospheric Hygrometer (FISH: siehe Zöger 1996, 1999[1]), das auf einem Flugzeug (Cessna Citation) integriert werden konnte. Die Meßmethode bei diesem Instrument ist die Photofragmentfluoreszenz, mit welcher H₂O über einen großen dynamischen Bereich, von mehreren hundert ppmv in der oberen Troposphäre bis zu einigen ppmv in der Stratosphäre, gemessen werden kann. Die zeitliche Auflösung der Messungen des FISH ist 1 Sekunde bei einer Meßgenauigkeit von etwa 5%. Dagegen können Lyman- α -Absorptionsmeßgeräte aufgrund einer höheren Nachweisgrenze nur in der Troposphäre hinreichend genau messen. Taupunktspiegel, welche auch über einen großen dynamischen Bereich messen können, haben eine zeitliche Auflösung von etwa 100 s (Engel, 1996) bei einer Meßgenauigkeit von weniger als 10% von stratosphärischen Wasserdampf-mischungsverhältnissen (Vömel, 1995). Tunable Diode Laser sind aufgrund einer hohen Meßgenauigkeit und einer hohen zeitlichen Auflösung besonders gut geeignet für Messungen in der Stratosphäre, jedoch sinkt die Meßgenauigkeit mit zunehmenden Druck (etwa 10% bei 200 hPa, siehe May 1998). Mit optischen Fernerkundungsverfahren, auf der Basis von Emissions- und Absorptionsmessungen, werden Messungen von Flugzeugen, Ballonen und global von Satelliten durchgeführt, jedoch mit eingeschränkter räumlicher und zeitlicher Auflösung.

2.1 Lyman- α -Photofragmentfluoreszenz

Die Methode zum Messen von H₂O in der Stratosphäre durch Lyman - α - Photofragmentfluoreszenz wurde von Kley und Stone (1978) und Bertaux und Delannoy (1978) entwickelt. H₂O-Moleküle werden durch kurzwellige VUV-Strahlung ($\lambda < 137$ nm) photolysiert.



Die elektronisch angeregten OH-Moleküle gehen entweder durch Emission von Fluoreszenzstrahlung ($\lambda = 285\text{-}330$ nm) oder durch Stöße mit Luftmolekülen (M) in den Grundzustand über.



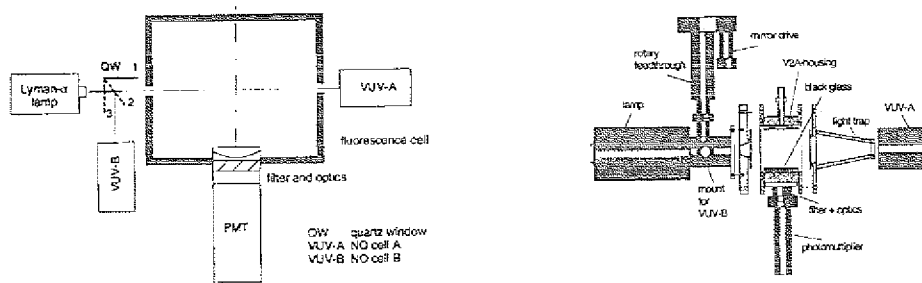
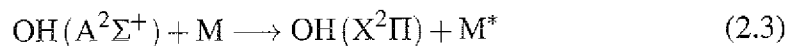


Abbildung 2.1: Aufbau des FISH: a.) (links) schematisch b.) (rechts) 1:10 Verkleinerung des bei STREAM1996 eingesetzten Gerätes.



Bei nicht zu niedrigen Drücken ($p > 25 \text{ hPa}$) ist die Wahrscheinlichkeit S_Q für Reaktion (2.3) sehr viel größer als die Wahrscheinlichkeit A_F für Reaktion (2.2). D.h. nach sehr kurzer Zeit, die durch die reziproke strahlungslose Übergangswahrscheinlichkeit $\frac{1}{S_Q}$ bestimmt ist, sind schon sämtliche angeregten OH-Moleküle in den Grundzustand übergegangen, wobei nur ein sehr kleiner Teil davon, nämlich $\frac{A_F}{A_F + S_Q}$, Fluoreszenzphotonen emittiert hat, denn die mittlere spontane Lebensdauer für die angeregten OH-Moleküle, $\frac{1}{A_F}$, ist in Abwesenheit von stoßenden Luftmolekülen erheblich länger. Da die strahlungslose Übergangswahrscheinlichkeit proportional zur Luftteilchendichte ist ($k_Q \cdot [\text{Luft}]$), wird letztlich ein zur Luftteilchendichte umgekehrt proportionaler Anteil der angeregten OH-Moleküle durch Emission von Fluoreszenzstrahlung ($\lambda = 285\text{-}330 \text{ nm}$) in den Grundzustand übergehen. Die Theorie zur Photofragmentfluoreszenz wird detailliert im Anhang A zu Ende geführt. Schließlich erhält man für die Anzahl der detektierten Photonen

$$N_{\text{Ph}} = \frac{1}{C} \cdot N_{\text{VUV}} \cdot \left(\frac{A_F}{k_Q \cdot [\text{Luft}]} + 1 \right)^{-1} \cdot \frac{[\text{H}_2\text{O}]}{[\text{Luft}]} \quad (2.4)$$

Dabei sind $[\text{H}_2\text{O}]$ und $[\text{Luft}]$ die Teilchendichten von H_2O und der Luft. N_{VUV} ist die Zahl der VUVB-Photonen im Fluoreszenzvolumen. Der Faktor C in Gleichung (2.4) faßt die aus der Literatur bekannten molekularen Koeffizienten, sowie die instrumentspezifischen Größen zusammen. Wenn C eine Konstante ist, dann ist die Zahl der detektierten Fluoreszenzphotonen proportional zu N_{VUV} und zum H_2O -Mischungsverhältnis $[\text{H}_2\text{O}]/[\text{Luft}]$ für Messungen in der Troposphäre und untersten Stratosphäre, da dort $A_F \ll k_Q \cdot [\text{Luft}]$ ist. Bei Messungen in Luftmassen mit sehr geringer Dichte gilt $A_F \ll k_Q \cdot [\text{Luft}]$ nicht mehr, und $\frac{A_F}{k_Q \cdot [\text{Luft}]} + 1$ ist druckabhängig.

2.2 Aufbau des FISH

FISH ist geschlossen aufgebaut, um das Instrument unempfindlich gegenüber Sonnenstrahlung zu machen, welche die Fluoreszenzstrahlung bei weitem übertreffen

würde. Der Kern von FISH ist die Fluoreszenzzelle mit der Lyman- α -Strahlungsquelle, dem Photomultiplier (PM) mit Filter und projizierender Optik, zwei VUV-Detektoren (NO-Ionisationszellen) und ein bewegliches Quarzfenster (Abbildung 2.1a, b). Das Quarzfenster, welches transparent ist für Wellenlängen im Bereich der Fluoreszenz, jedoch nicht transparent für VUV-Strahlung, wird durch einen Schrittmotor bewegt, der innerhalb von Millisekunden eine vorgegebene Position anfährt. Während eines Meßzyklus von 12 s wird jeweils 1 s zehn mal mit dem Quarzfenster in Position 1 und je einmal in Position 2 und 3 gemessen (siehe Abbildung 2.1a).

1. Es wird sowohl die VUV-Strahlung hinter der Fluoreszenzzelle mit der NO-Zelle A als auch längerwellige Strahlung (das Fluoreszenzsignal und die Untergrundstrahlung der Lyman- α -Strahlungsquelle mit der Wellenlänge $\lambda \approx 310$ nm) mit dem PM gemessen. Die Dunkelzählrate des PM beträgt etwa 3% der Untergrundzählrate und ist vernachlässigbar.
2. Das Quarzfenster, im 45° Winkel zur Strahlung der Lyman- α -Strahlungsquelle positioniert, reflektiert die VUV-Strahlung auf die NO-Zelle B, die im gleichen Abstand von der Lyman- α -Strahlungsquelle angebracht ist wie das Fluoreszenzvolumen.
3. Die Strahlung der Lyman- α -Strahlungsquelle trifft senkrecht auf das Quarzfenster. Die kurzwellige Strahlung wird reflektiert und von der langwelligen UV-Strahlung ($\lambda \approx 310$ nm) wird etwa 90% transmittiert.

Der langwellige Anteil der von der Lampe emittierten UV-Strahlung wird mit dem Photomultiplier als Untergrundzählrate N_u gemessen (Quarzfenster in Position 3); man erhält mit Hilfe der Gesamtzählrate N_g (Fluoreszenzsignal + Untergrundsignal; Quarzfenster in Position 1) das Fluoreszenzsignal: $N_g - f_u \cdot N_u$, wobei f_u ein Faktor ist, der die Transmission des Quarzfensters für 310 nm UV-Strahlung berücksichtigt und experimentell bestimmt wird. Da die H_2O -Photolyserate proportional zur Intensität der Lyman- α -Strahlung in der Fluoreszenzzelle ist und somit auch das Fluoreszenzsignal proportional zur Intensität der Lyman- α -Strahlung in der Fluoreszenzzelle ist, wird eine von der Intensität der Lyman- α -Strahlung in der Fluoreszenzzelle unabhängige relative Zählrate definiert:

$$N_r = \frac{N_g - f_u \cdot N_u}{I_B} \quad (2.5)$$

I_B ist die mit der NO-Zelle B gemessene Intensität der Lyman- α -Strahlung im gleichen Abstand zur Lyman- α -Strahlungsquelle wie der Mittelpunkt des Fluoreszenzvolumens. Aus Gleichung (2.4) folgt:

$$N_r = \frac{1}{C} \cdot \left(\frac{A_F}{k_Q \cdot [Luft]} + 1 \right)^{-1} \cdot \mu_{H_2O} \quad (2.6)$$

mit dem H_2O -Mischungsverhältnis $\mu_{H_2O} = \frac{[H_2O]}{[Luft]}$. Die Parameter C und f_u werden durch eine Kalibration des FISH bestimmt (Kapitel 2.4).

Mit der NO-Zelle A (Abbildung 2.1a) wird die Absorption der Lyman- α -Strahlung in Luft mit ausreichend hohem H_2O -Mischungsverhältnis gemessen; diese Messung war ursprünglich für eine Kalibration des Hygrometer während des Fluges

vorgesehen. Diese Kalibration ist jedoch aufgrund der Unsicherheit in der Kenntnis des Absorptionsquerschnittes von Wasser $\sigma_{\text{H}_2\text{O}}$ und des druckabhängigen Absorptionsquerschnittes von Sauerstoff σ_{O_2} für Lyman- α -Strahlung ziemlich ungenau gegenüber der in Abschnitt 2.4 beschriebenen Laborkalibration. Deshalb ist solch eine Kalibration nur dann sinnvoll, wenn z.B. bei der Landung des Ballongerätes einzelne Komponenten des FISH zerstört werden und nach dem Flug im Labor keine Kalibration unter den Bedingungen möglich ist, wie sie vor dem Flug herrschten. Im Anhang B wird das Messen von H_2O -Mischungsverhältnissen durch die Absorptionsmessung von Lyman- α -Strahlung beschrieben, da bei einigen Flügen die Intensitätsmessung der Lyman- α -Strahlung mit der NO-Zelle B aufgrund ungenau angefahrener Winkelpositionen des Quarzfensters fehlerhaft war und mit Hilfe der Messung der Intensität der Lyman- α -Strahlung 11 cm hinter dem Mittelpunkt der Fluoreszenzzelle mit der NO-Zelle A, der Absorption von Lyman- α -Strahlung nach dem Beerschen Gesetz und numerischer Verfahren die Intensität der Lyman- α -Strahlung im Mittelpunkt der Fluoreszenzzelle berechnet werden mußte.

2.2.1 Die Lyman- α -Strahlungsquelle

Die Lyman- α -Strahlungsquelle, eine Niederdruckgasentladungslampe (Druck: ca. 3-8 hPa) durch Hochfrequenz (ca. 140 MHz) angeregt, wird am Institut hergestellt (Woyke, 1994) und basiert auf einer Technik, die der von Dieke und Cunningham (1952) ähnlich ist. Sie besteht aus einem luftdicht verschlossenen Glaskolben (Abbildung 2.2), in welchem sich eine Zirkon-Kobalt Legierung befindet, die den Wasserstoff bindet und aus der im Betrieb durch Heizen, da der Wasserstoffpartialdruck von der Temperatur des ZrCo abhängt, Wasserstoff (ca. 6 Pa) freigesetzt wird. Als Buffergas wird Ar mit einem Druck von 8 hPa zugegeben. Vom HF-Sender wird mit einer Einstrahlung von 15 W die Gasentladung im Lampenkörper aufrecht erhalten und ein Photonenfluß von einigen 10^{14} Photonen $\cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ erreicht (Zöger et al., 1999[1]). Im Prototyp selektierte ein Sauerstofffilter direkt hinter der damals verwendeten kommerziellen Lampe die Lyman- α -Strahlung aus deren Emissionsspektrum (Mörschel et al. 1991). Aufgrund der spektralen Reinheit der am Institut entwickelten Lampe im VUV-Bereich (Abbildung 2.4) ist ein Sauerstofffilter nun überflüssig. Ein MgF_2 -Kristall wird als Fenster verwendet, der im Gegensatz zu Glas für VUV-Strahlung durchlässig ist.

Eine Verminderung der MgF_2 -Fenster Transmission begrenzt die Lebensdauer der geschlossenen (sealed getter) Lampen auf einige 10 Stunden Betriebsdauer (siehe Zöger 1996). Die Intensität nimmt in den ersten 10 Stunden exponentiell ab und in den nächsten 20 Stunden auf niedrigem Niveau kaum noch. Die Untersuchung eines benutzten Fensters mittels Röntgenstrahl-Photoelektronenspektroskopie (XPS) läßt eine Verunreinigung mit SiO und C erkennen. Das Silizium wird vermutlich im Betriebszustand der Lampe durch Ionenbombardement des Plasmas aus dem aus Pyrexglas gefertigten Glaskolben herausgelöst. Der Kohlenstoff könnte aus Pumpenölrückständen der Vorvakuumpumpe des Lampenbefüllstandes stammen.

Aufgrund der geringen Lebensdauer der sealed getter Lampe und des hohen Auf-

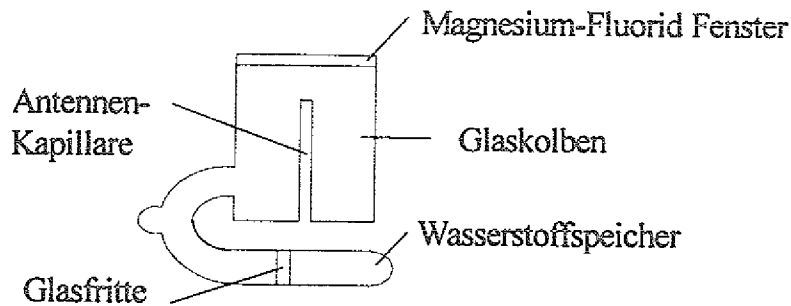


Abbildung 2.2: Aufbau einer sealed getter Lampe.

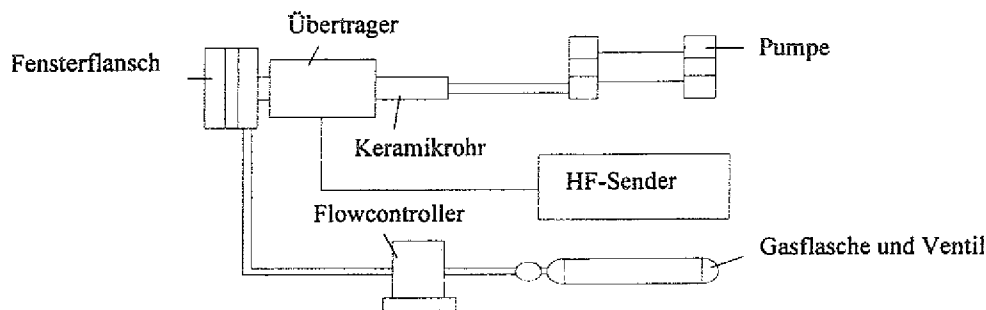


Abbildung 2.3: Aufbau einer Durchflußlampe.

wandes der Herstellung einer Lampe wurde für das Flugzeuggerät im Laufe dieser Arbeit eine Lampe entwickelt, deren Lebensdauer prinzipiell nicht begrenzt ist. Bei dieser Lampe (siehe Tuitjer 1997), die mit einem Ar/H_2 -Gemisch (1% H_2) im Durchfluß betrieben wird, wird das MgF_2 -Fenster vor Verunreinigungen, die durch Wechselwirkungen des Plasmas mit der Lampenwand (Keramik) entstehen, durch eine Kapillarplatte geschützt, die für die erzeugte Lyman- α -Strahlung durchlässig ist (siehe Abbildung 2.3). Eine Pumpe an dem der Kapillarplatte gegenüberliegenden Ende der Lampe stellt die niedrigen Druckverhältnisse im Keramikrohr her, die für die Gasentladung notwendig sind. Mit Hilfe eines Gasflußreglers wird der Fluß durch die Lampe auf $2 \text{ Sml}/\text{min}^{-1}$ eingestellt, was einen Druck von 3.5-5.5 hPa im Keramikrohr verursacht. Durch diesen Aufbau erhöht sich zum einen die Lebensdauer des MgF_2 -Fensters im Betriebszustand auf etwa 200 Stunden und zum anderen ist der Tausch eines MgF_2 -Fensters nicht aufwendig. Somit kann das gleiche MgF_2 -Fenster mindestens während einer gesamten Flugzeugkampagne (ca. 8 Flüge, ca. 9 Kalibrationen und Tests) eingesetzt werden. Die spektralen Eigenschaf-

¹ 1 Sml ist die Masse an Luft, die bei Standarddruck und-temperatur ein Volumen von 0,001 Liter einnimmt

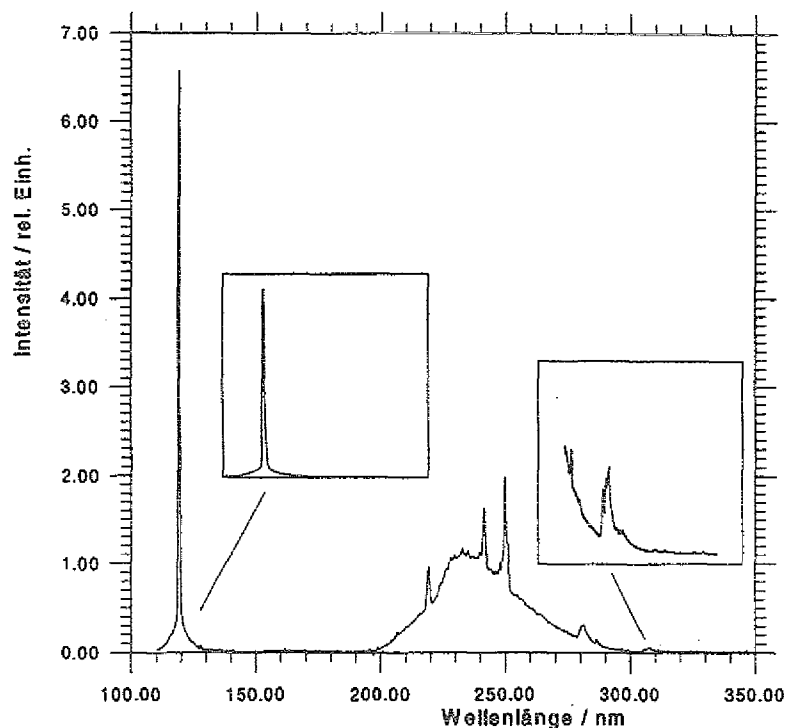


Abbildung 2.4: *Emissionsspektrum der Lyman- α -Strahlungsquelle.*

ten sind ähnlich wie bei der sealed getter Lampe, so daß das Flugzeug-Hygrometer, das jedes Jahr während einer Flugzeugkampagne bei etwa 8 Flügen mißt, mit der Durchflußlampe betrieben wird.

Die emittierte Strahlung der Durchflußlampe hat jedoch einen sehr kleinen Strahlkegel. Dies hat keinen Einfluß auf die Messungen der Gesamtzählrate und Untergrundzählrate (Quarzfenster in den Positionen 1 und 3, siehe Abschnitt 2.2), die ziemlich unempfindlich sind gegen kleine Variationen um den vorgegebenen Winkel zur Einstrahlrichtung, denn entweder befindet sich das Quarzfenster völlig außerhalb der Lyman- α -Strahlung (Position 1) oder das Licht der Lyman - α - Strahlungsquelle fällt senkrecht auf das Quarzfenster (Position 3). Dagegen ist die VUV-Messung mit der NO-Zelle B und dem Quarzfenster in Position 2 sehr empfindlich gegen kleine Variation um den Winkel von 45° zur Lyman- α -Strahlung. Da nach dem Ersetzen einer sealed getter Lampe durch eine Durchflußlampe teilweise relative Fehler in der VUV-Messung mit der NO-Zelle B von 20% auftraten, wurde das Steuerprogramm des Schrittmotors für die VUV-Messung mit der NO-Zelle B modifiziert. Innerhalb einer Sekunde werden mit dem Schrittmotor statt nur der Position 2 nun 256 Position angefahren, wobei ein Winkelbereich von $43-47^\circ$ durchgescannt wird und jeweils mit der NO-Zelle B innerhalb von knapp 4 ms VUV

gemessen wird. Gespeichert wird letztendlich der maximale Wert. Durch diese Modifikation hat sich der relative Fehler der VUV-Messung mit der NO-Zelle B auf etwa 1% reduziert.

Das Ballon-Hygrometer wird weiterhin mit der sealed getter Lampe betrieben, wegen des niedrigeren Gewichtes und einfacheren in Betriebnehmens der Lampe über Telekomando.

2.2.2 Detektoren

Zur Fluoreszenzmessung wird ein Photomultiplier (PM) als Photonenzähler benutzt. Jedes Gerät ist mit einer Hamamatsu Photonenzählereinheit (Nr. H6240 mit PM Nr. R4220) ausgerüstet, welches für eine Dunkelzählrate von maximal 30 cts/s selektiert ist. Ein Interferenzfilter (Abbildung 2.1a) zwischen dem PM und dem Fluoreszenzvolumen, welches für 310 nm Licht durchlässig ist mit einer Bandbreite von 12 nm und einer Transmission von 80%, beschränkt die Detektionsempfindlichkeit auf das spektrale Intervall der Fluoreszenz.

Die Lyman- α -Strahlung wird mit Ionisationszellen, die mit NO gefüllt sind, gemessen (NO-Zelle A und NO-Zelle B in Abbildung 2.1). Um NO zu ionisieren, wird kurzwelliges UV-Licht ($\lambda \leq 134$ nm) benötigt. Da in diesem Wellenlängenbereich im Spektrum der Strahlungsquelle nur die Lyman- α Linie existiert (Abbildung 2.4), sind NO-Zellen ideale Detektoren zur Messung der Lyman- α -Strahlung.

2.2.3 Die Fluoreszenzzelle

Die Fluoreszenzzelle (siehe Zöger, 1996) ist ähnlich konstruiert wie die, die von Kelly et al. (1989) entwickelt wurden. Sie besteht aus einem aus Schwarzglas (Schott NG1) gefertigten Würfel (Abbildung 2.1a) mit drei kreisrunden Öffnungen; eine für den Photomultiplier mit Optik und zwei für den Durchfluß mit Luft und für die Lyman- α -Strahlung. Schwarzglasoberflächen absorbieren fast völlig das aus der Strahlungsquelle emittierte Streulicht im Wellenlängenbereich der Fluoreszenz ($\lambda \approx 285$ -330 nm). Der Würfel ist in einem elektropolierten vakuumdichten Edelstahlgehäuse mit Abstandshaltern so angebracht, daß die einzelnen Flächen an den Kanten etwa 0.2 mm voneinander entfernt sind, um H_2O -Kontamination durch Totvolumina zu vermeiden. Um die Austauschzeit eines Fluoreszenzvolumens an Luft möglichst gering zu halten, ist die Kantenlänge des Würfels auf 50 mm minimiert worden. Bei Flugzeugmessungen in der Tropopausenregion mit Flüssen von mehr als 1 Sl/min^2 wird die Luft in der Zelle in etwa einer Sekunde ausgetauscht. Empirische Tests und Retracinganalysen haben ergeben, daß das Untergrundsignal in solch einem Schwarzglaswürfel niedrig genug ist.

Der Lufteinlaß der Zelle ist ein $\frac{1}{2}$ " Rohr, das direkt an dem Kegel angebracht ist, an dessen Spitze die NO-Zelle A montiert ist (Abbildung 2.1b). Der $\frac{1}{2}$ " Auslaß ist direkt vor der NO-Zelle B platziert. Somit wird die gesamte Zelle bis nahe an die Detektoren heran mit frischer Luft gespült und Totvolumina vermieden.

²1 Sl ist die Masse an Luft, die bei Standarddruck und-temperatur ein Volumen von 1 Liter einnimmt

2.2.4 Gesamtwasser / Gasphasenwasser-Meßmodus

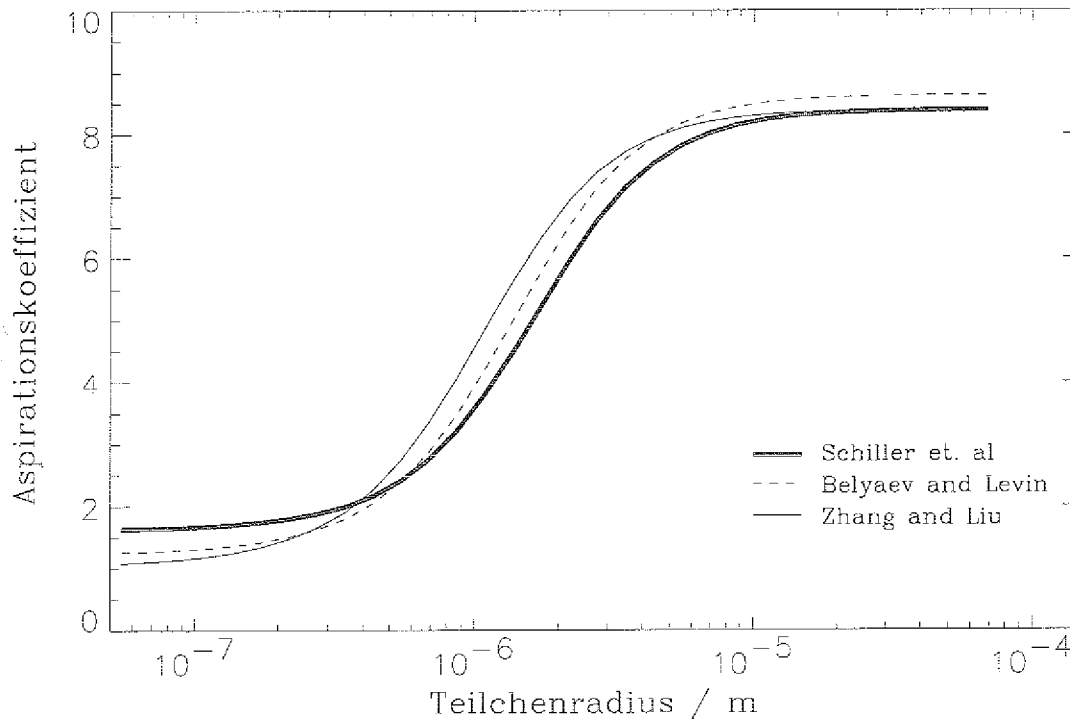


Abbildung 2.5: Aspirationskoeffizient zur Korrektur des nicht isokinetischen Sammel-effekts des FISH-Einlasses, bestimmt für kompressible Fluide mit Hilfe eines Softwarepaketes (Schiller, 1999) im Vergleich zu Berechnungen für den inkompressiblen Fall.

Je nach Richtung des Einlasses (in oder gegen die Flugrichtung) kann das gesamte (Gasphase, Tropfen und Eis) H_2O -Mischungsverhältnis oder nur der Anteil, der sich in der Gasphase befindet, gemessen werden. Das etwa 1,5 m lange $\frac{1}{2}$ " Rohr zwischen dem Einlaß und dem Hygrometer wird auf etwa 60°C geheizt, um eine Kontamination zu verhindern. Auf diese Weise verdampfen auch sämtliche Tropfen und Eispartikel in diesem Rohr. Allerdings ist die Luft, die in den Einlaß gelangt, je nach dem Verhältnis der Anströmgeschwindigkeit außerhalb des Flugzeugs zur Strömungsgeschwindigkeit im Einlaß mit Eispartikel angereichert, wenn welche vorhanden sind (siehe Schiller, 1999). Zur Bestimmung dieses Aspirationskoeffizienten A wurden am Institut Fluid-dynamische Rechnungen mit Hilfe eines kommerziellen Softwarepaketes (CFX, ASC Ltd., Kanada) für die Strömung und die Partikeltrajektorien durchgeführt. In Abbildung 2.5 ist der Aspirationskoeffizient für ein kompressibles Fluid als eine Funktion des Partikelradius geplottet. Zum Vergleich sind auch zwei andere Näherungen für inkompressible Fluide dargestellt (Belyaev and Levin, 1974; Zhang and Liu, 1989). Für Partikel mit dem Radius $r > 0,5 \mu\text{m}$ stimmen die drei Näherungen mit einer Genauigkeit von $\pm 15\%$ überein.

Wenn man zu jedem Zeitpunkt die Größenverteilung der Partikel kennt, die einen meßbaren Anteil des gesamten H_2O -Mischungsverhältnisses enthalten (dies sind

nach Schiller, 1999 Partikel mit einem Radius von wenigstens $4 \mu m$), kann dieser Aspirationskoeffizient relativ genau bestimmt werden und somit auch das gesamte H_2O -Mischungsverhältnis (Gas- und Partikelphase), das folgendermaßen berechnet wird

$$H_2O_{\text{gesamt}} = \frac{H_2O_{\text{gemessen}} - H_2O_{\text{gas}}}{A} + H_2O_{\text{gas}}. \quad (2.7)$$

Nimmt man an, daß H_2O_{gas} in einer Eiswolke im thermodynamischen Gleichgewicht mit Eis ist, kann H_2O_{gas} aus dem Sättigungswasserdampfdruck, der sich mit Hilfe der empirischen Gleichung von Marti und Mauersberger (1993) berechnen läßt, bestimmt werden. Kennt man die Größenverteilung der nachweisbaren Partikel mit $r > 4 \mu m$ nicht, kann ein optimaler Wert A_{opt} verwendet werden, z.B. der Aspirationskoeffizient von Partikel mit dem Radius $r = 6 \mu m$. Der Fehler des Aspirationskoeffizienten beträgt dann aufgrund des Abflachens der Kurve für größere Teilchen (siehe Abbildung 2.5) im Bereich $4 < r < 10 \mu m$ maximal 30%. Die führt bei Messungen in Wolken zu einem Fehler für H_2O_{gesamt} von $< 25\%$ (Schiller, 1999).

Bei den meisten Flügen waren keine Partikel in der ziemlich trockenen und warmen Tropopausenregion vorhanden, jedoch bei den Flügen am 24.01/06.02.1997 und 21/25/26.01.1998 war die Luft dort teilweise so kalt, daß das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis kleiner als das gemessene H_2O - Mischungsverhältnis war, was nur durch Eispartikel erklärt werden kann. Für diese Flüge sind die Aspirationskoeffizienten berechnet worden. Je nach Luftdruck, Anströmgeschwindigkeit und der Strömungsgeschwindigkeit im Einlaß lagen sie für Partikel mit einem Radius von $4-10 \mu m$ im Bereich 6,3-8,3. In Kapitel 5.1 werden diese Flüge diskutiert und auf die Aspirationskoeffizienten jeweils eingegangen.

2.3 Das Ballongerät

Das Ballon-Hygrometer besitzt zusätzliche Komponenten. Alle Komponenten sind in einem druckdichten Aluminium-Behälter (Abbildung 2.6: 75 cm Durchmesser und 85 cm Höhe) montiert.

FISH-Messungen von einem Ballon aus werden während des langsamen Abstiegs ($2-5 \frac{m}{s}$) durchgeführt. H_2O -Messungen während des Aufstiegs sind kontaminiert durch verdampfendes Wasser, das von der in der Troposphäre angefeuchteten Ballonhülle stammt, die 120 m über der Nutzlast liegt. Zum Beispiel wurde während des Jungfernfluges des Prototyps während des Aufstiegs eine Kontamination von bis zu 50 ppmv beobachtet (Mörschel et al., 1991; Mörschel, 1992). Mit zwei Ventilen, am Einlaß und am Auslaß (siehe Abbildung 2.6), kann das Eindringen von Außenluft in die Fluoreszenzzelle verhindert werden. Vor einem Ballonstart wird das Instrument mit trockenem Stickstoff oder synthetischer Luft gespült. Dies verhindert, daß an den Innenwänden des Instrumentes Wasser kondensiert, und ermöglicht, die Messungen sofort nach Erreichen der Maximalhöhe zu starten.

Ein Eaton 18042 Turbolader (TYP: A 111 096 00 99 KZ), der durch einen Bautz AC-Servomotor (Typ: M404B-00101) angetrieben wird, sorgt für einen ausreichen-

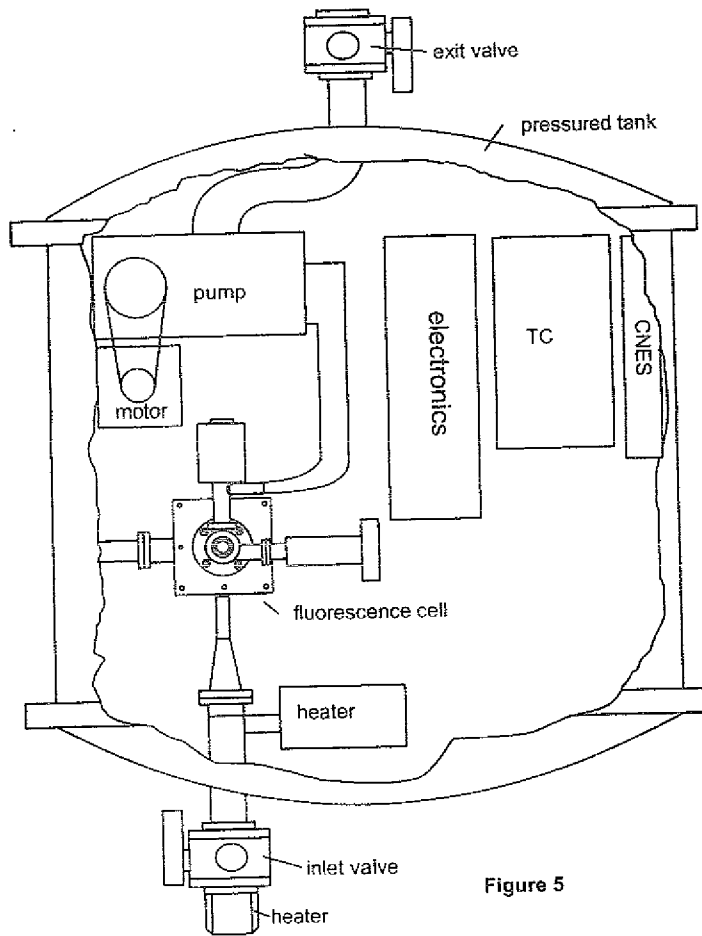


Figure 5

Abbildung 2.6: Gesamtaufbau des Ballonhygrometers.

den Luftfluß durch das Instrument, so daß Kontaminationseffekte vernachlässigt werden können. Während des Fluges wird die Drehzahl dieser Pumpe dem Umgebungsdruck angepaßt, was einen quasi konstanten Massenfluß von wenigstens $5 \frac{\text{Sl}}{\text{min}}$ zuläßt. Der Durchmesser des Einlaßrohres wird von 40 mm auf das $\frac{1}{2}$ "-System der Fluoreszenzzelle durch einen Diffuser reduziert. Eine zusätzliche Biegung um 90° im $\frac{1}{2}$ "-System verhindert, daß an Luftmolekülen gestreutes Sonnenlicht signifikant das mit dem Photomultiplier gemessene Fluoreszenzsignal verfälscht. Der gesamte Einlaß bis zur Fluoreszenzzelle ist aus elektropoliertem Edelstahl gefertigt und wird vor und während des Fluges auf etwa 80°C aufgeheizt, um Kondensation an den inneren Wänden zu verhindern.

Da der Ballon Höhen erreicht, wo der Außendruck ziemlich niedrig ist, bis zu 1 hPa hinunter, ist $\frac{A_F}{k_Q \cdot [\text{Luft}]} + 1$ in Gleichung (2.4) druckabhängig. Um die Teilchendichte von Luft [Luft] in der Fluoreszenzzelle sehr genau zu bestimmen, werden Temperatur und Druck in der Fluoreszenzzelle gemessen, wobei dafür ein im Be-

reich 1000-1 hPa präziser Drucksensor (Paro Scientific) verwendet wird. Der wichtigste Unterschied zu dem Prototyp ist, daß das 40 mm von innen vergoldete Strömungssystem vom Einlaß über die Fluoreszenzelle und einer Pumpe zum Auslaß (siehe Mörschel et al., 1991) ersetzt wurde durch einen Einlaß aus von innen elektropoliertem Edelstahl, ein Strömungssystem dessen Querschnitt von dem Einlaß (40 mm) zur Fluoreszenzzelle ($1/2''$) hin reduziert wird, eine aus Schwarzglasplatten zusammengesetzte Fluoreszenzzelle und schließlich eine leistungsfähigere Pumpe, die bei dem durch den geringeren Strömungsquerschnitt verursachten höheren Strömungswiderstand den notwendigen Durchfluß erzeugt. Diese Änderungen reduzierten die Untergrundzählrate um 1-2 Größenordnungen und verbesserten das Signal-zu-Rauschverhältnis so, daß nun nicht mehr über einen ziemlich langen Zeitraum gemittelt werden muß, um den relativen Fehler im H_2O - Mischungsverhältnis auf etwa 10% zu vermindern.

2.4 Kalibration des Meßinstrumentes

Durch eine Kalibration des FISH werden die Kalibrationsfaktoren f_u und C der Gleichungen (2.5) und (2.6) bestimmt. Um zu erkennen, ob sich einzelne Komponenten und damit die Kalibrationsfaktoren mit der Zeit verändern, wird das Gerät zwischen zwei Meßflügen mit einem am Institut entwickelten Kalibrierstand im Labor kalibriert.

2.4.1 Aufbau und Meßgenauigkeit der H_2O -Messung des Kalibrierstandes

Der Kalibrierstand (Abbildung 2.7) wird mit synthetischer Luft aus einer Druckflasche gespült, die gewöhnlich ein H_2O -Mischungsverhältnis von 1-5 ppmv hat. Von diesem trockenen Luftstrom wird ein Teil ($0-500 \text{ Sml/min}^3$ von 8 Sl/min) abgezweigt und in einem temperaturstabilisierten H_2O -Befeuchter (siehe Abbildung 2.7) bis zur Sättigung befeuchtet. H_2O -Mischungsverhältnisse von etwa 1-300 ppmv werden mit Hilfe zweier Massenflußregler, FC1 für die trockene Luft und FC2 für die befeuchtete Luft, dynamisch eingestellt. An dem Punkt, wo die beiden Flüsse wieder zusammengeführt werden, wird der Druck elektronisch auf 2000 hPa geregelt. Hier wird das H_2O -Mischungsverhältnis mit Hilfe eines kommerziellen Taupunkthygrometers (General Eastern 1311 DRX) bestimmt. Der Druck wird nahe am Hygrometer mit einem temperaturstabilisierten Baratron gemessen. Die Genauigkeit der Taupunktbestimmung beträgt neu kalibriert 0,1 K (Herstellerangaben; diese sind auf einen PTB-Standard zurückzuführen), was einen Fehler von 3% in der Berechnung des H_2O -Partialdruckes bei einer Temperatur von 210 K entspricht.

Bauer (1996) hat im März 1996 vor der STREAM Kampagne einen zweiten Kalibrierstand aufgebaut und Vergleichsmessungen zwischen dem neu kalibrierten Taupunkthygrometer 2 und dem älteren des Kalibrierstandes 1 durchgeführt. Die absolute Abweichung in der Frostpunkttemperatur und die relative Abweichung im

³ 1 Sml ist die Masse an Luft, die bei Standarddruck und -temperatur ein Volumen von 1 ml einnimmt.

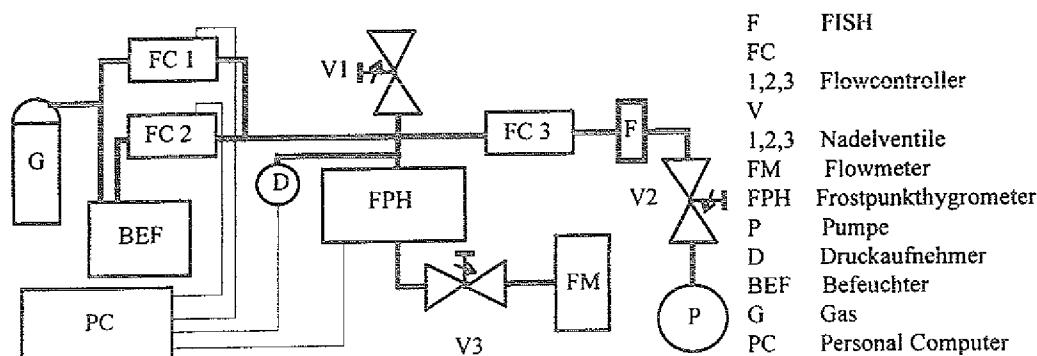


Abbildung 2.7: Aufbau des Kalibriersystems.

H₂O-Mischungsverhältnis der Messungen des Taupunktspiegels 1 von der des Taupunktspiegels 2 ist in Abbildung 2.8a durch Dreiecke und Quadrate dargestellt. Von den mit dem Taupunktspiegel 2 gemessenen Frostpunkttemperaturen im Bereich 200-230 K wichen die mit dem Taupunktspiegel 1 gemessenen Frostpunkttemperaturen teilweise um mehr als + 0,2 K ab (dargestellt durch Dreiecke in Abbildung 2.8a). Eine maximale Abweichung von 0,48 K trat bei einer Frostpunkttemperatur von etwa 210 K auf. Dies entspricht einem H₂O-Mischungsverhältnis von 4 ppmv (obere Abszisse in Abbildung 2.8) bei einem Druck von 2000 hPa. Dieser Vergleich zeigt, daß die Genauigkeit des älteren Taupunktspiegels 1 sich mit der Zeit gegenüber der vom Hersteller angegebenen Genauigkeit etwas verschlechtert hat. Ein zusätzlicher Fehler von 1% in der Druckmessung ergibt schließlich einen Fehler in der Berechnung des H₂O-Mischungsverhältnisses von maximal $\pm 4\%$ für das Taupunkthygrometer des Kalibrierstandes 2 und von -4 bis +10% für das Taupunkthygrometer 1 zu Anfang dieser Arbeit.

Im Dezember 1997 wurde erneut eine Vergleichsmessung der Taupunktspiegel beider Kalibrierstände untereinander als auch mit einem im September 1997 kalibrierten dritten Taupunktspiegel durchgeführt. Die Abweichungen in der Frostpunkttemperatur und im H₂O-Mischungsverhältnis der Messungen der Taupunktspiegel 1 und 2 von denen des Taupunktspiegels 3 ist in Abbildung 2.8b dargestellt. Von den Taupunkthygrometern 1 und 2 wurden nun gerade in sehr trockener Luft deutlich höhere Frostpunkte gemessen als mit dem gerade kalibrierten Taupunktspiegel 3: Die bei einer mit dem Taupunktspiegel 3 gemessenen Frostpunkttemperatur von weniger als 202 K, was einem H₂O-Mischungsverhältnis von < 1 ppmv entspricht, gemessene Abweichung war beim Taupunktspiegel 2 5,1 K und beim Taupunktspiegel 1 2,1 K (dargestellt in Abbildung 2.8b durch $\square$ und $*$). Dies entspricht relativen Abweichungen im H₂O-Mischungsverhältnis von 112 % und 37% (dargestellt durch $\triangle$ und $\times$ in Abbildung 2.8b). Erst oberhalb von etwa 228 K, d.h. bei H₂O-Mischungsverhältnissen von mehr als 40 ppmv entsprach die Meßgenauigkeit den Herstellerangaben von 0,1 K.

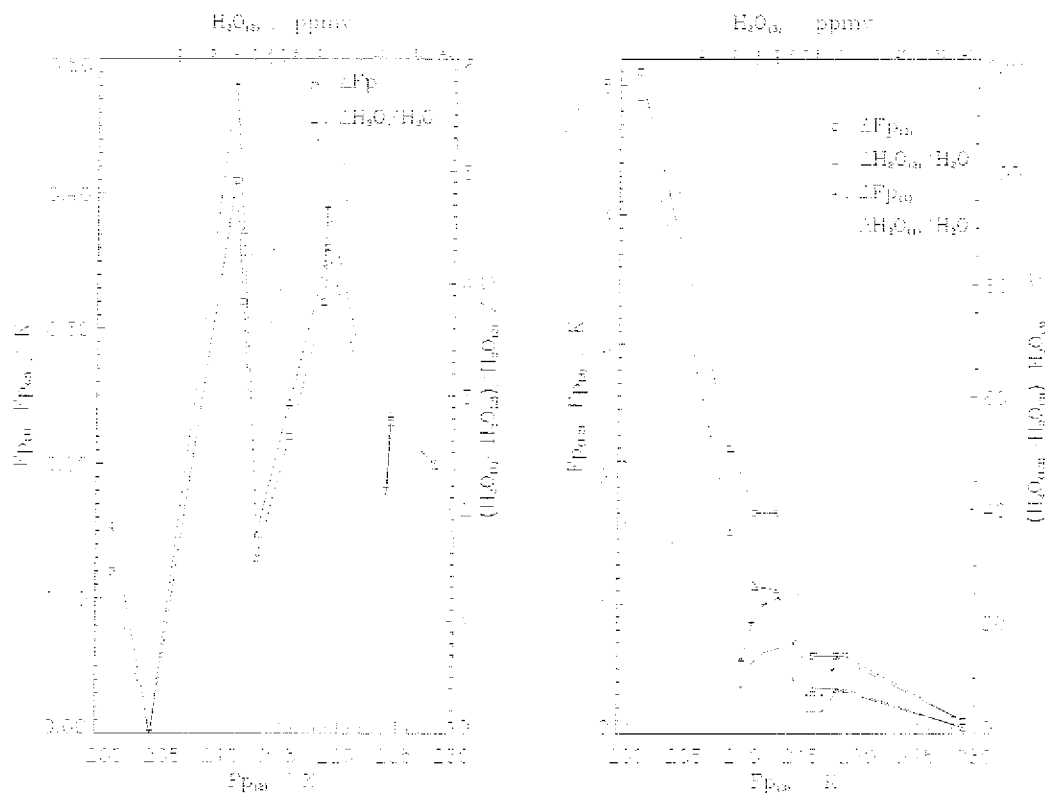


Abbildung 2.8: Vergleichsmessungen der Taupunkthygrometer: Die Differenz im Frostpunkt und die relative Abweichung des H_2O -Mischungsverhältnisses a.) (links) des Taupunkthygrometers 1 zum neueren Taupunkthygrometer 2 im März 1996 und b.) (rechts) der Taupunkthygrometer 1 und 2 zum gerade kalibrierten Taupunkthygrometer 3 im Dezember 1997.

Der Einlaß des FISH wird über einen Massenflußregler an den Kalibrierstand angeschlossen (FC3 in Abbildung 2.7). Am Auslaß ist ein Ventil und eine Pumpe angebracht. Bei einem mit dem FC3 eingestellten Fluß von 5 Sl/min läßt sich mit dem Ventil der Druck in der Fluoreszenzzelle zwischen 1000 und 60 hPa einstellen. Bei Kalibrationen des Flugzeuggerätes wird dieser Druck in 4 Stufen zwischen 500 und 200 hPa eingestellt, da bei Flugzeugmessungen der Druck in der Fluoreszenzzelle etwa in diesem Bereich liegt.

Bei Ballonmessungen kann der Druck in der Fluoreszenzzelle weniger als 10 hPa betragen. Um bei einer Kalibration zu überprüfen, ob bei niedrigen Drücken das Fluoreszenzsignal druckabhängig ist, wie es in Abschnitt 2.1 theoretisch beschrieben wurde, müßte man auch Meßpunkte bei etwa 10 hPa aufnehmen. Mit der vorhandenen Membranpumpe könnte der Druck in der Fluoreszenzzelle auf 15 hPa reduziert werden, wenn man den Fluß auf 1 $\frac{\text{Sl}}{\text{min}}$ vermindert. Wenn dann jedoch mit trockener Luft (1-5 ppmv H_2O -Mischungsverhältnis) gespült wird, ist eine signifikante Kontamination von verdampfendem H_2O von eventuell feuchten Innenwänden zu beobachten. Dies zeigt eine Testmessung mit einer leistungsfähigen SOGEVAC-Pumpe (Typ: SV 300, Nennsaugvermögen 280 m^3/h), deren Ergebnis

P / hPa	Fluß / $\frac{\text{Sl}}{\text{min}}$	N_g / Hz	N_u / Hz
13,5	5	1500	500
13,5	4	1550	500
13,5	3	1700	500
13,5	2	2050	500
13,5	1	3000	500

Tabelle 2.1: Messung des Fluoreszenzsignals ($N_g - f_u \cdot N_u$) bei konstantem Druck und Flüssen von 1-5 $\frac{\text{Sl}}{\text{min}}$ von trockener Luft.

in Tabelle 2.1 dargestellt ist.

Verminderte man den Fluß von 5 auf 4 Sl/min bei einem Druck von 13,5 hPa in der Fluoreszenzzelle erhöhte sich die Gesamtzählrate von 1500 auf 1550. Mit $f_u = 1.1$ entspricht dies einer Änderung des Fluoreszenzsignals um $50/(1500-550)=5,3\%$. Bei einem Fluß von 1 Sl/min würde sich das Fluoreszenzsignal sogar um $1500/(1500-550)=158\%$ erhöhen. Demnach ist bei einem Druck von 13,5 hPa in der Fluoreszenzzelle und einem Fluß von weniger als 5 Sl/min von trockener Luft (1-5 ppmv H_2O -Mischungsverhältnis) Kontamination von verdampfenden H_2O von eventuell feuchten Innenwänden signifikant.

Dagegen wäre in einem feuchten Luftstrom, der ein Fluoreszenzsignal von mehr als 75000 Hz erzeugt, eine Kontamination bei niedrigen Flüssen nicht signifikant. Bei einem Fluß von 1 Sl/min würde sich das Fluoreszenzsignal gerade um $1500/75000 = 2,0\%$ erhöhen. Deshalb wird im Anschluß einer Kalibration des Ballonhygrometers, die bei einem Druck von 80 hPa und einem Fluß von 7 Sl/min und 6 verschiedenen H_2O - Mischungsverhältnissen zwischen 0 und 200 ppmv durchgeführt wird, die Druckabhängigkeit des Fluoreszenzsignals in Luft mit einem H_2O -Mischungsverhältnis von 200 ppmv bei Drücken zwischen 15 und 400 hpa gemessen.

Die Steuerung der Massenflußregler, die Zeitvorgaben für jeden Kalibrationspunkt und das Auslesen und Speichern der Meßwerte der einzelnen Komponenten des Kalibrierstandes wird von einem PC übernommen. Anfangs wird das Kalibriersystem mit trockener synthetischer Luft für 1,5 bis 2 Stunden (manchmal sind auch 3 Stunden notwendig) gespült. Dieser ziemlich lange Zeitraum ist zum einen dadurch bestimmt, daß zu Anfang im Kalibriersystem Kondenswasser vorhanden sein kann, das langsam ausgast, als auch dadurch, daß die Regeleinheit des Taupunkthygrometer sehr lange braucht, um den Frostpunkt von sehr trockener Luft (1-5 ppmv H_2O -Mischungsverhältnis) bei einer gewünschten Meßgenauigkeit von 0,1 K zu bestimmen. Mit diesem niedrigsten Mischungsverhältnis wird die Kalibration gestartet und danach schrittweise erhöht. Das Flugzeuggerät wird bei Drücken von 200, 300, 400 und 500 hpa in der Fluoreszenzzelle zu jedem Mischungsverhältnis kalibriert. Bei sechs verschiedenen Mischungsverhältnissen sind dies insgesamt 24 Meßpunkte, wofür etwa 5 Stunden benötigt werden.

2.4.2 Auswertung der Kalibrationen

Aus den 24 Meßpunkten einer Kalibration werden mit Hilfe der IDL regress-Routine die Parameter C und f_u aus den Gleichungen (2.5) und (2.6) bestimmt (IDL: Interactiv Data Language, siehe <http://www.astro.washington.edu/deutsch/idl/html-help/index.html/>; aus den Gleichungen (2.5) und (2.6) ergibt sich für die 24 Meßpunkte ($i=1...24$) folgender linearer Zusammenhang: $y_i = const + a \cdot x_i$ mit $y_i = \left(\frac{N_g \cdot \left(\frac{A_F}{I_Q \cdot [Luft]} + 1 \right)}{I_B \cdot \mu_{H_2O}} \right)_i$, $x_i = \left(\frac{N_u \cdot \left(\frac{A_F}{I_Q \cdot [Luft]} + 1 \right)}{I_B \cdot \mu_{H_2O}} \right)_i$, $a = f_u$, $const = \frac{1}{C}$, alle Meßpunkte werden gleich gewichtet, so daß die lineare Regression nach dem im Bronstein (1980, Kapitel 5.2.4.1) beschriebenen Prinzip berechnet wird). In Abbildung 2.9a sind als Beispiel die Meßwerte der Kalibration vom 4.2.1997 und die daraus erhaltene Regressionsgerade eingezeichnet. Die Messung bei unterschiedlichen Drücken ist durch unterschiedliche Symbole gekennzeichnet. Auf der Abszisse ist das vom Kalibrierstand gemessene H_2O -Mischungsverhältnis aufgetragen. Die auf der horizontalen Achse aufgetragene relative Zählrate wurde mit dem von der regress-Routine berechneten f_u und den vom FISH gemessenen Größen nach Gleichung (2.5) berechnet. Der Parameter C gibt die Steigung der Regressionsgeraden wieder.

Bei einigen Kalibrationen wurden unrealistische Werte für den Parameter f_u berechnet, z.B. 0,8 statt eines Wertes von etwa 1,1, welcher sich aus dem Transmissionsvermögen des Quarzfensters für UV-Licht der Wellenlänge 310 nm von $\approx 90\%$ theoretisch abschätzen läßt. Da große relative Meßfehler bei niedrigen H_2O -Mischungsverhältnissen absolut klein sind, weichen sie nicht sichtbar von der Regressionsgeraden ab und geben keinen Hinweis auf ungenaue Meßwerte bei der Kalibration.

Aus diesem Grunde wurde ein grafisches Verfahren zur Bestimmung von f_u und C entwickelt, das anschaulich zeigt, welche Meßwerte der Kalibration ungenau sind. Dabei wird zu jedem Kalibrationspunkt für vorgegebene f_u -Werte von 0.5 bis 1.5 in Schritten von 0.01 mit Hilfe der Gleichungen (2.5) und (2.6) der Parameter C berechnet. Im Idealfall schneiden sich die so erhaltenen Kurven in einem Punkt, wie es bei der Kalibration am 4.2.1997 der Fall ist (Abbildung 2.9b). Wenn unrealistische f_u -Werte von z.B. 0,8 von der IDL regress-Routine berechnet wurden, dann schneiden in der grafischen Kalibrationauswertung die Kurven mit der größten Steigung (das sind die Kalibrationspunkte zum geringsten H_2O -Mischungsverhältnis bei vier verschiedenen Drücken) die Geraden (das sind die Kalibrationspunkte zu den hohen H_2O -Mischungsverhältnissen) bei etwa $f_u = 0.8$ und dem dazugehörigen Parameter C . Aufgrund eines von dem Kalibrierstand erhöht gemessenen H_2O -Mischungsverhältnisses gegenüber dem realen H_2O -Mischungsverhältnis würde gerade bei sehr trockener Luft, wenn der Unterschied zwischen der gemessenen Gesamtzählrate N_g und der Untergrundzählrate N_u sehr klein ist, nach den Gleichungen (2.5) und (2.6) ein unrealistisch niedriges f_u berechnet werden.

Von dem Kalibrierstand wird das H_2O -Mischungsverhältnis in sehr trockener Luft ungenau gemessen, wenn für die Regeleinheit des Taupunkthygrometers die vorgegebene Zeit nicht ausreicht, einen stabilen Wert anzufahren. Diese notwendige Regelzeit kann zum Beispiel vom Wasserdampfgehalt der synthetischen Luft

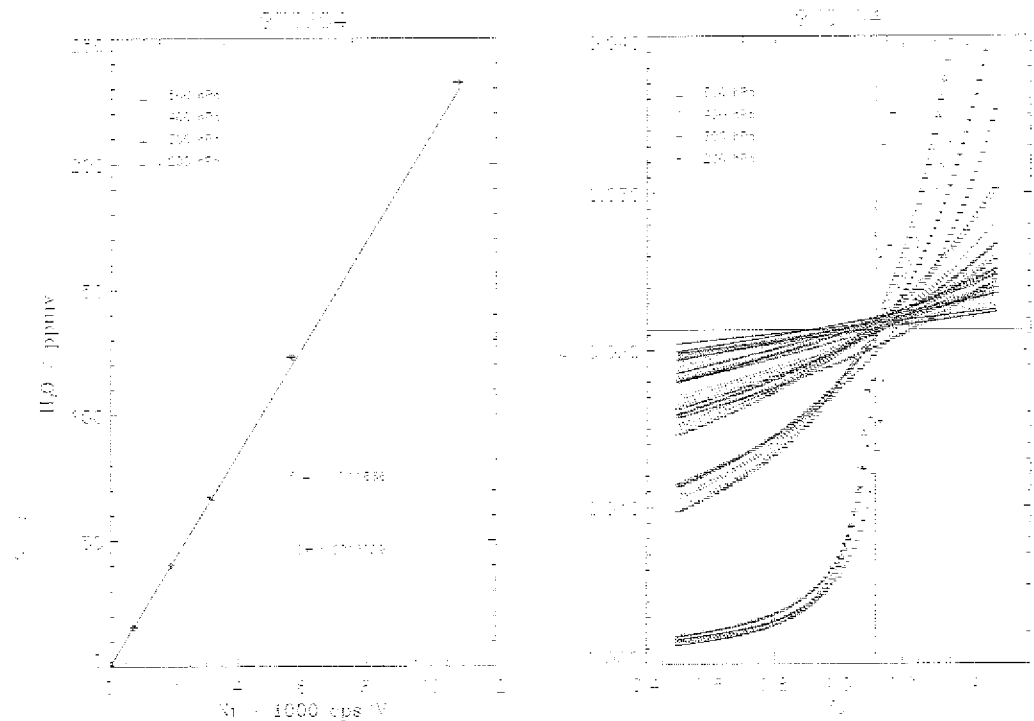


Abbildung 2.9: Ergebnisse der Kalibration am 4.2.1997: a.) (links) Die einzelnen Meßpunkte der Kalibration sind durch verschiedene Symbole, je nach Druck in der Fluoreszenzzelle, dargestellt. Das H_2O -Mischungsverhältnis, das mit dem Kalibrierstand gemessen wurde, ist auf der Abszisse aufgetragen, die relative Zählrate auf der Ordinate. Die Parameter f_u und C wurden mit der IDL regress-Routine (IDL: Interactiv Data Language, siehe <http://www.astro.washington.edu/deutsch/idl/htmlhelp/index.html>) aus den Meßwerten der Kalibration berechnet und die daraus resultierende Regressionsgerade eingezeichnet. b.) (rechts) Hier werden die Parameter f_u und C grafisch bestimmt: Für alle Meßwerte zu jedem Kalibrationspunkt ($\mu_{H_2O}, N_g, N_u, I_B$) wird nach den Gleichungen (2.5) und (2.6) zu vorgegebenen f_u Werten der Parameter C berechnet. Die tatsächlichen Parameter f_u und C erhält man aus dem Schnittpunkt der Kurven.

abhängen, mit welcher der Kalibrierstand gespült wird, oder vom Wassergehalt in den Leitungen des Kalibrierstandes zu Beginn der Kalibration, insbesondere zwischen dem Massenflußregler FC2 (Abbildung 2.7) und dem Knotenpunkt, wo die Teilflüsse wieder vereinigt werden; denn dieses Teilstück wird beim ersten Kalibrationspunkt nicht gespült.

Der Parameter f_u wird nun aus der Kalibration bestimmt, bei der sichergestellt ist, daß die Zeit ausreichte, um den Frostpunkt in sehr trockener Luft mit dem Taupunkthygrometer zu bestimmen. Diese Bedingung ist dann erfüllt, wenn es je einen Parameter f_u und C gibt, bei denen die Gleichungen (2.5) und (2.6) für alle 24 Meßpunkte gelten. Da während einer Kampagne das Quarzfenster im Hygrometer nicht ausgetauscht wurde, sollte der Parameter f_u sich auch nicht in dieser Zeit geändert haben. Das Ergebnis dieser Bestimmung des Parameters f_u ist in Tabelle 2.2 aufgeführt. Sowohl beim Falcon-FISH als auch beim Citation/Learjet-FISH bleibt der Parameter über den gesamten Zeitraum nahezu unverändert. Die Zunahme des ab-

Kampagne	Gerät	Kalibration	f_u
STREAM1996	Citation/Learjet	14.05.1996	$1,11 \pm 0,02$
POLSTAR1997	Falcon	04.02.1997	$1,12 \pm 0,04$
STREAM1997	Citation/Learjet	10.03.1997	$1,10 \pm 0,06$
POLSTAR1998	Citation/Learjet	31.01.1998	$1,12 \pm 0,10$
POLSTAR1998	Falcon	26.02.1998	$1,12 \pm 0,10$

Tabelle 2.2: Der für jede Kampagne bestimmte Parameter f_u .

soluten Fehlers wird im folgenden erklärt.

Man muß nämlich berücksichtigen, daß selbst bei den Kalibrationen, bei denen sichergestellt ist, daß die Meßzeit zur Frostpunktbestimmung ausreichend war, f_u aufgrund eines systematischen Meßfehlers des Taupunkthygrometers fehlerhaft sein kann. Der mittlere Standardfehler des Parameters f_u berechnet sich nach der Fehlerfortpflanzungstheorie von Gauß aus den Gleichungen (2.5) und (2.6):

$$\frac{\Delta f_u}{f_u} = \pm \frac{\mu_{H_2O} I_B}{C \cdot N_g - \mu_{H_2O} I_B} \sqrt{\left(\frac{\Delta \mu_{H_2O}}{\mu_{H_2O}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta C}{C} \right)^2} \quad (2.8)$$

oder

$$\frac{\Delta f_u}{f_u} = \pm \left(\frac{N_g}{f_u N_u} - 1 \right) \sqrt{\left(\frac{\Delta \mu_{H_2O}}{\mu_{H_2O}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta C}{C} \right)^2} \quad (2.9)$$

$\frac{\Delta C}{C}$ ist durch den relativen Fehler von μ_{H_2O} bei großen Werten bestimmt. Wenn $\mu_{H_2O} > 30 \text{ ppmv}$, dann sinkt dieser Fehler unter 3% nach Abbildung 2.8. In sehr trockener Luft kann $\Delta \mu_{H_2O} / \mu_{H_2O}$ ziemlich groß werden. Betrachtet man nur den Kalibrierstand 1, dann sind für $\mu_{H_2O} < 4 \text{ ppmv}$ beim Taupunkthygrometervergleich im März 1996 (Bauer, 1996) Fehler von 0 bis 6% möglich und beim Vergleich im Dezember 1997 Fehler von etwa 15% bei $\mu_{H_2O} \approx 5 \text{ ppmv}$ und bis 37% bei $\mu_{H_2O} \approx 0,5 \text{ ppmv}$ möglich. Diese Werte setzt man als Fehler für $\Delta \mu_{H_2O} / \mu_{H_2O}$ in Gleichung (2.8) oder (2.9) ein und 3% als Fehler für $\frac{\Delta C}{C}$. Damit $\Delta f_u / f_u$ nicht überschätzt wird, müssen für deren Berechnung in Gleichung (2.9) N_g und N_u aus Kalibrationspunkten von sehr trockener Luft eingesetzt werden (ca. 1 ppmv). Die mittleren Standardfehler des Parameters f_u sind dann nach oben hin abgeschätzt: 2% im Mai 1996, 4% im Januar 1997 (POLSTAR 1997), 6% im März 1997 und 10% im Januar 1998.

Der mittlere Standardfehler der H_2O -Daten der Meßflüge wird auch nach der Fehlerfortpflanzungstheorie von Gauß aus den Gleichungen (2.5) und (2.6) berechnet:

$$\frac{\Delta \mu_{H_2O}}{\mu_{H_2O}} = \pm \sqrt{\left(\frac{\Delta f_u}{f_u} \right)^2 \left(\frac{N_g}{f_u N_u} - 1 \right)^{-2} + \left(\frac{\Delta C}{C} \right)^2} \quad (2.10)$$

Da der mittlere Standardfehler des Parameters f_u die Absolutgenauigkeit der H_2O -Messungen während der Flüge umso mehr beeinflusst je trockener die Luft ist (dann wird $\left(\frac{N_g}{f_u N_u} - 1 \right)$ ziemlich klein), erhält man eine kalibrationsabhängige Genauigkeit (accuracy), die vom H_2O -Mischungsverhältnis abhängt. Bei Messungen beider Hygrometer während der POLSTAR 1998-Kampagne in den trockensten

Luftmassen war der Wert von $\left(\frac{N_g}{f_u N_u} - 1\right) > 1,5$, so daß $\Delta\mu_{\text{H}_2\text{O}}/\mu_{\text{H}_2\text{O}} < 7,3\%$ sein sollte, obwohl $\Delta f_u/f_u = 10\%$ nach oben hin abgeschätzt ist.

Der Parameter C ist in Abbildung 2.10 für jede Kalibration des Cessna/Learjet-FISH (a) und des Falcon-FISH (b) dargestellt. Bei dem Cessna/Learjet-FISH wurde zwischen den zwei STREAM-Kampagnen der Photomultiplier, die Optik und die Fluoreszenzzelle (siehe Abbildung 2.1) durch neue ersetzt, die zu einer sprunghaften Abnahme des Parameters C von Kalibration 15 zu Kalibration 16 führten. Außerdem kann sich die Empfindlichkeit der Ionisationszelle VUV-B (siehe Abbildung 2.1) mit der Zeit vermindern, so daß dann die Änderung des Parameters C innerhalb von 9 Monaten, wie zwischen der STREAM 1997 und POLSTAR 1998-Kampagne relativ groß sein kann.

Während der STREAM 1996 Kampagne (Abbildung 2.10a) hatte der Parameter C anfangs (Kalibration 1-6) einen abnehmenden Trend von 112 bis $81 \cdot 10^{-4}$, was auf mechanische Ursachen des Spiegelantriebs (zunehmender Reibungswiderstand) zurückzuführen war. Nachdem diese Ursachen beseitigt wurden, variierte der Parameter C zwischen 93 und $112 \cdot 10^{-4}$ (Kalibration 7-15).

Bei der folgenden STREAM 1997-Kampagne wurde das Hygrometer anfangs (Kalibration 16-18) mit einer Durchflußlampe betrieben. Da während des Fluges am 14.03.1997 der HF-Sender der Durchflußlampe teilweise das Photomultiplier-signal störte und anschließend im Labor trotz Einbau einiger Entstörfilter und verbesserter provisorischer Abschirmung des Photomultipliers erneute HF-Störungen des Photomultipliers nicht ausgeschlossen werden konnten, wurden bis zum Ende der Kampagne sealed getter-Lampen verwendet. Der Parameter C variierte zwischen 71 bis $79 \cdot 10^{-4}$, während er anfangs relativ konstant bei $83-85 \cdot 10^{-4}$ lag. Daß der Parameter C etwas größer war (ca. $84 \cdot 10^{-4}$), wenn das Hygrometer mit der Durchflußlampe betrieben wurde, liegt daran, daß dann die Strahlung stärker gebündelt war und so vollständig die Ionisationszelle VUV-B (Abbildung 2.1a) bei der Intensitätsmessung traf. Die Strahlung der sealed getter-Lampe hat einen relativ großen Querschnitt im Vergleich zum Querschnitt der Ionisationzelle, so daß nicht der gesamte Teil der Strahlung auf die Ionisationszelle trifft. Den kleineren Wert von etwa $75 \cdot 10^{-4}$ als Parameter C kann man sich auf diese Weise anhand der Gleichungen (2.5) und (2.6) erklären. Warum der Parameter C so stark schwankte, wenn das Hygrometer mit sealed getter-Lampen betrieben wurde, ist noch nicht geklärt. Ein plausibler Grund könnte sein, daß die Intensität der von den Lampen emittierten Lyman- α -Strahlung räumlich etwas variiert, d.h. daß das Verhältnis der auf die Ionisationszelle VUV-B treffenden Strahlung zu der emittierten Strahlung sowohl von Lampe zu Lampe etwas unterschiedlich sein kann als auch sich mit zunehmender Betriebsdauer, die bei der sealed getter-Lampe aufgrund der schnellen Intensitätsabnahme auf einen Flug und zwei Kalibrationen begrenzt ist, verändern kann.

Während der POLSTAR 1998-Kampagne variierte bei den Kalibrationen 25, 28 und 30-32 der Parameter C zwischen 58 und $61 \cdot 10^{-4}$. Die Kalibrationen 26, 27 und 29 ergaben 69 bzw. $64 \cdot 10^{-4}$ als Parameter C. Am 30.01 (vor der Kalibration 30) wurde festgestellt, daß bei zu hohen Temperaturen die mit dem Photomultiplier gemessenen Photonen nur teilweise von der Zählerkarte gezählt wurden. Eine Aus-

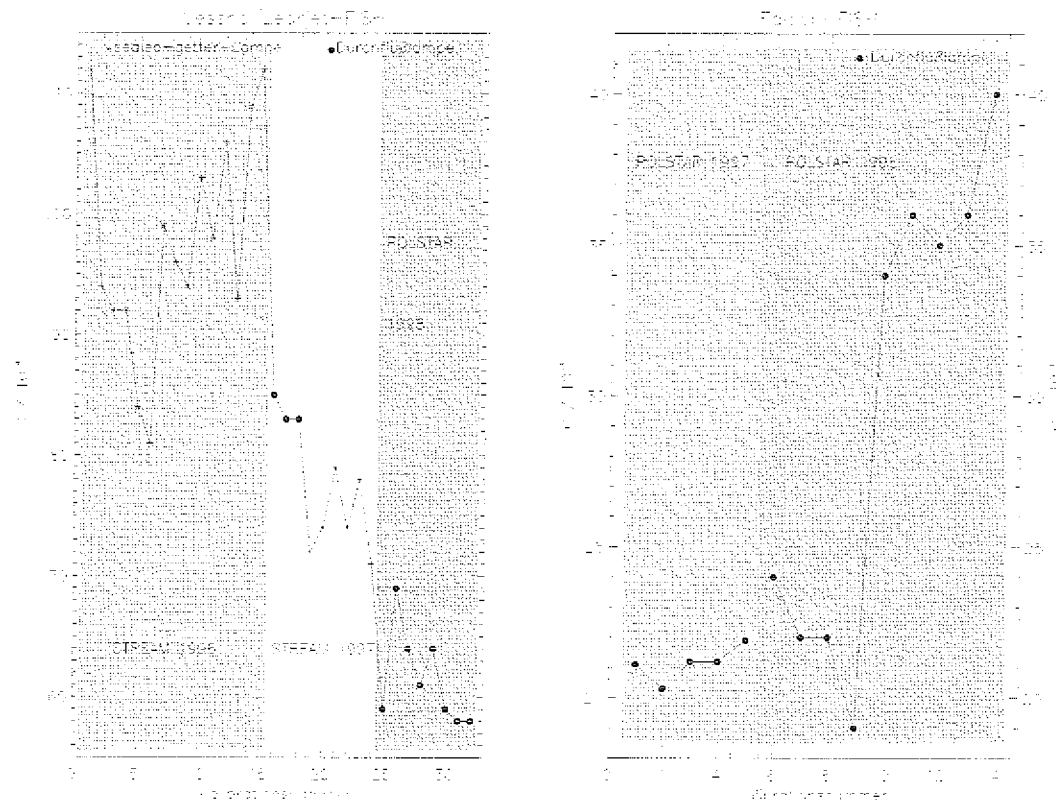


Abbildung 2.10: Der Kalibrationsparameter C: a.) (links) des Cessna/Learjet-FISH: Die Kampagnenzeiträume sind durch unterschiedliche Grautöne gekennzeichnet, Kalibrationen wurden teilweise mit der Durchflußlampe $\bullet$ oder mit sealed getter Lampen $*$ (die entsprechenden Lampennummern zu den Kalibrationen 1-15 waren: 42(1,2), 41(3,4), 57(5,6), 53(7), 58(8,9), 62(10,11), 61(12,13), 64(14,15) und zu den Kalibrationen 19-24 waren: 104(19,20), 107(21,22), 108(23,24)) durchgeführt b.) (rechts) des Falcon-FISH: Die linke Abszisse ($C / 10^{-3}$) gilt für die POLSTAR 1997-Kalibrationen und die rechte Abszisse ($C / 10^{-4}$) für die POLSTAR 1998-Kalibrationen.

wertung der an mehreren Stellen im FISH gemessenen Temperaturen ergab, daß gerade an den Tagen, als die Kalibrationen einen Parameter C von $58-61 \cdot 10^{-4}$ ergaben, die Temperatur im Labor so niedrig war, daß die Zählerkarte offensichtlich einwandfrei funktionierte.

Im Falcon-Fish war bei allen Messungen eine Durchflußlampe eingebaut. Der Parameter C (Abbildung 2.10b) variierte bei den Kalibrationen 1-5 zwischen 20 und $22 \cdot 10^{-3}$ und bei den Kalibrationen 10-13 zwischen 34 und $36 \cdot 10^{-4}$. Am 26.01.1998 (vor der Kalibration 10) ist das Quarzfenster (QW in Abbildung 2.1a) vom Spiegelantrieb abgefallen. Wahrscheinlich hat das Quarzfenster schon vorher kontinuierlich seine Stellung verändert (Kalibration 6-9), wodurch direkt die Intensitätsmessung und der Parameter C beeinflusst wurde. Nachdem das Quarzfenster neu geklebt wurde, hat sich bei der Intensitätsmessung die Winkelposition zur einfallenden Strahlung verändert und somit auch der Parameter C. Die letzte Kalibration (14) wurde mit einem schlecht abgestimmten HF-Schwingkreis (im Übertra-

Tag	12.01.1997	03.03.1997
Lampe	106	106
$C/10^{-4}$	31	30
f_u	1.5 ± 0.06	1.5 ± 0.06

Tabelle 2.3: Die Parameter f_u und C der Kalibrationen des Ballon-FISH während der ADEOS/ILAS-Kampagne.

ger angebracht, siehe Abbildung 2.3) durchgeführt, in dem ein Kondensator defekt war, denn zu Beginn des Fluges am 25.01.1998 schlug ein Kondensator des HF-Schwingkreises durch und vor dem Ende der Kampagne war unter diesen Bedingungen keine Kalibration durchgeführt worden.

Nachdem die Durchflußlampe soweit verbesserte wurde, daß nun der HF-Sender weder den Photomultiplier stört, wie es während des STREAM 1997-Fluges am 14.03.1997 der Fall war, noch den Massenflußregler der Durchflußlampe (Abbildung 2.3), wodurch sogar ein Zünden der Lampe direkt vor dem POLSTAR 1997-Flug am 01.02.1997 verhindert wurde, hat der Einsatz der Durchflußlampe im Flugzeug-FISH einige Vorteile gegenüber dem Einsatz der sealed getter-Lampe. Neben den im Abschnitt 2.2.1 beschriebenen Vorteilen bezüglich der Lebensdauer und des Herstellungsaufwandes war außerdem die Variation des Parameters C signifikant geringer, wenn das Hygrometer mit der Durchflußlampe betrieben wurde. Eine weitere Reduzierung dieser Variation im Parameter C auf weniger als 3% ist aufgrund der begrenzten Meßgenauigkeit des Taupunkthygrometers im Kalibrierstand (siehe Abschnitt 2.4.1) nicht möglich. Nach den Kalibrationsergebnissen zu urteilen, müßte je eine Kalibration des Flugzeug-Hygrometers vor und nach einer Kampagne ausreichen. Trotzdem sollte zur Sicherheit nach jedem Flug zumindest eine etwa einstündige Kurzkalibration (3 Wasserdampfmischungsverhältnisse) durchgeführt werden, um durch einzelne Komponenten des Hygrometers, wie durch die Ionisationszelle oder durch den Spiegel, hervorgerufene Änderungen des Parameters C zu erkennen.

Die Ergebnisse der Kalibrationen des Ballonhygrometers während der ADEOS / ILAS-Kampagne sind in Tabelle 2.3 aufgeführt. Der Unterschied zwischen der Kalibration vor dem Flug und nach dem Flug im Parameter C war bei der verwendeten Lampe relativ gering. Trotzdem wurde bei der Bestimmung der Absolutmeßgenauigkeit der FISH-Messungen der relative Fehler von C wegen der begrenzten Absolutmeßgenauigkeit des Taupunkthygrometers durch $\pm 3\%$ abgeschätzt.

2.5 Qualität der Daten

Die Präzision der ausgewerteten H_2O -Daten jeden Fluges wird direkt aus den Daten des jeweiligen Fluges bestimmt. Dies wird mit Hilfe einer Autokorrelationsrechnung der H_2O -Zeitreihen durchgeführt. Die Korrelation einer Variablen mit sich selbst, d.h. der Grad der gemeinsamen Variation zwischen einer Variablen zur Zeit

t und der gleichen Variablen zur Zeit $t + L$, wobei L die Zeitverschiebung ist, wird als Autokorrelation bezeichnet. Eine regelmäßige Variation kann durch ein physikalisches Phänomen, wie z.B. Wirbel hervorgerufen sein (siehe Stull, 1988). Ein zufälliger Prozeß ohne regelmäßig wiederkehrende Strukturen, wie z.B. zufällige Meßfehler eines Gerätes oder das Zählen von Fluoreszenzphotonen, führt dagegen dazu, daß eine Variable mit sich selbst (verschoben um das Zeitintervall L) nicht korreliert ist.

Die Kovarianz zweier Meßgrößen ist definiert durch:

$$\text{kovar}(A, B) \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} (A_i - \bar{A})(B_i - \bar{B}) \quad (2.11)$$

und die Varianz einer Meßgröße durch:

$$\sigma_A^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} (A_i - \bar{A})^2 \quad (2.12)$$

wobei A_i und B_i die Meßwerte zu den Zeitpunkten t_i von insgesamt N Werten und $\bar{A}, \bar{B}$ die arithmetischen Mittel der Meßgrößen A und B sind.

Die Varianz des unkorrelierten Anteils ($\tilde{A}$) einer Meßgröße $A = \tilde{A} + \bar{A}$ ist gegeben durch:

$$\sigma_{\tilde{A}}^2 = \text{kovar}(\tilde{A} + \bar{A}, \tilde{A} + \bar{A}) - \text{kovar}(\tilde{A} + \bar{A}, \tilde{A}_j + \bar{A}_j) \quad (2.13)$$

wobei $\tilde{A}$ der aufgrund eines physikalischen Phänomens autokorrelierte Anteil der Meßgröße A ist. Gleichung (2.13) erhält man, indem die Größe B in Gleichung (2.11) durch die Größe A mit der Zeitverschiebung $L = j\Delta t$ ersetzt wird. Exakt stimmt Gleichung (2.13) nur, wenn $(\tilde{A}_i - \tilde{A}_{i+j}) \approx \text{const}$, d.h. daß $(\tilde{A})$ mit sich selbst zur Zeit $t + j\Delta t$ korreliert ist. Dies bedeutet für die H₂O-Messungen, daß die Präzision nur in Zeitintervallen bestimmt werden kann, in denen Wasserdampfmessungen nicht durch mesoskalige oder großskalige Strukturen beeinflusst sind.

Als Beispiel ist die Autokovarianz der H₂O-Messung vom 21.3.1997 in Abbildung 2.11 geplottet. Da dieser Flug fast komplett in trockenen stratosphärischen Luftmassen durchgeführt wurde, wo keine mesoskaligen oder großskaligen Strukturen im H₂O-Mischungsverhältnis auftraten, konnte ein Zeitintervall von 9000 s (45000-54000 UTC) ausgewertet werden. Das mittlere H₂O-Mischungsverhältnis betrug in diesem Zeitraum 4,6 ppmv. Die Varianz des unkorrelierten Anteils (d.h. das Rauschen) der H₂O-Messungen, dargestellt durch den Peak zur Zeitverschiebung $\Delta t = 0$ s, ist als ΔR gekennzeichnet.

Eine Übersicht der Präzision (3σ) der stratosphärischen Messungen jedes STREAM-Meßfluges ist in Tabelle 2.4 gegeben. Für die meisten Flüge beträgt sie 0,15-0,70 ppmv. Das mittlere H₂O-Mischungsverhältnis des jeweils ausgewerteten Zeitintervalls ist als $\overline{\text{H}_2\text{O}}$ bezeichnet. Am 23.05.1996 und am 14.03.1997 war die Präzision relativ schlecht, da aufgrund einer fehlenden Fluoreszenzmessung die H₂O-Mischungsverhältnisse aus den Absorptionsmessungen der Lyman- α -Strahlung berechnet wurden.

Die Absolutmeßgenauigkeit der H₂O-Messungen während der Meßflüge ist zunächst durch die Kalibration des FISH mit dem Taupunkthygrometer bestimmt, d.h. sie

21.03.1997

Autokovarianz

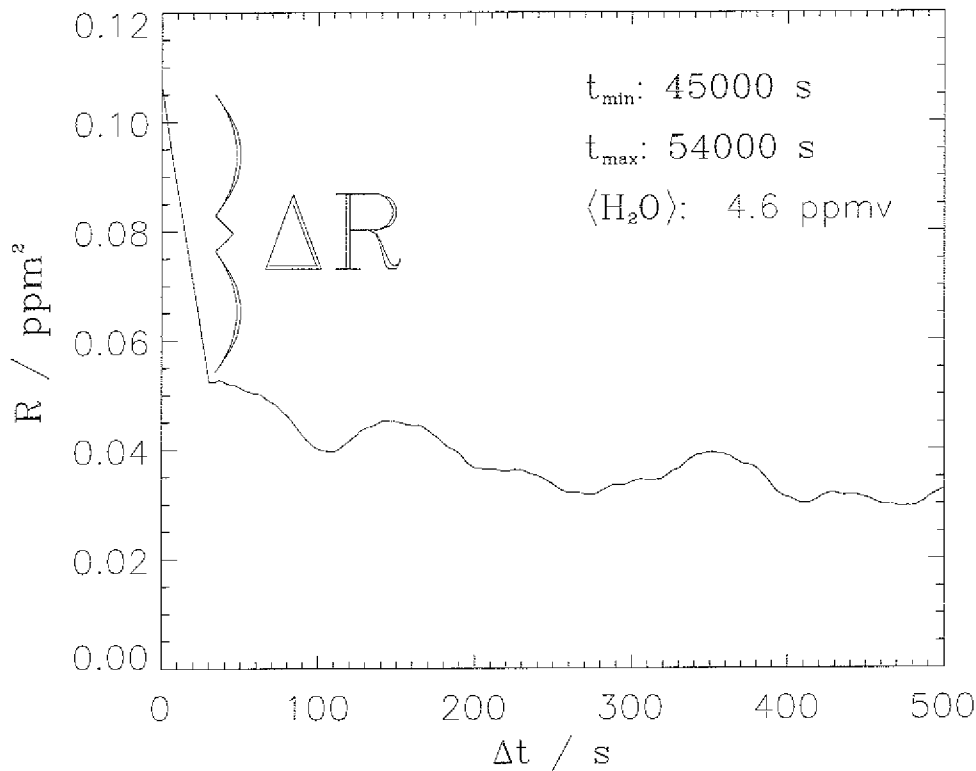


Abbildung 2.11: Autokovarianz des Meßfluges vom 21.03.1997.

hängt von der Genauigkeit der berechneten Kalibrationsparameter C und f_u (Gleichung (2.10) in Kapitel 2.4.2) ab. Sie beträgt maximal 3% in Luftmassen mit einem höheren Mischungsverhältnis als 40 ppmv (siehe Abbildung 2.8). In sehr trockenen Luftmassen wird die Absolutmeßgenauigkeit der H_2O -Messungen sehr durch die Genauigkeit des berechneten Kalibrationsparameter f_u bestimmt, so daß sie in diesen schlechter als 3% sein kann. In Tabelle 2.4 ist deshalb die Absolutmeßgenauigkeit (accuracy) von H_2O -Messungen in möglichst trockenen Luftmassen angegeben. Sie beträgt 3,2-5,4%, mit Ausnahme des Fluges am 21.03.1997, als ein Spannungsausfall kurz vor dem Start zu einer deutlich niedrigeren Strahlungsintensität der Lyman- α -Strahlungsquelle während des Fluges führte.

Flug	H_2O	3σ	accuracy
960522	3,2 ppmv	0,60 ppmv	5,4%
960523	27 ppmv	9,0 ppmv	-
960527	4,7 ppmv	0,56 ppmv	3,8%
960530	3,7 ppmv	0,43 ppmv	3,5%
960531	3,8 ppmv	0,40 ppmv	4,0%
960601	4,0 ppmv	0,36 ppmv	3,2%
970309	4,3 ppmv	0,15 ppmv	4,0%
970314	5,5 ppmv	3,1 ppmv	-
970321	4,6 ppmv	0,70 ppmv	11%
970323	4,3 ppmv	0,16 ppmv	4,2%
970325	5,0 ppmv	0,49 ppmv	4,2%

Tabelle 2.4: Präzision (3σ) und Absolutmeßgenauigkeit ('accuracy') der stratosphärischen H_2O -Messungen aller STREAM-Flüge.

Die Meßgenauigkeit aller POLSTAR-Messungen ist in Tabelle 2.5 (a.) Falcon, b.) Learjet) aufgelistet. Sie ist jeweils für möglichst niedrige H_2O -Mischungsverhältnisse berechnet worden, wenn oberhalb der Tropopause geflogen wurde, denn dort ist zum einen eine hohe Meßgenauigkeit von Bedeutung und zum anderen ist in der Troposphäre sowohl die Präzision (theoretisch berechnet) als auch die 'accuracy' ohnehin besser als 3%.

a.) Falcon

Flug	H_2O	3σ	accuracy
970124a	4,9 ppmv	0,31 ppmv	5,9 %
970128a	3,4 ppmv	0,31 ppmv	8,1 %
970130a	4,0 ppmv	0,38 ppmv	8,1 %
970204a	3,3 ppmv	0,42 ppmv	5,1 %
970206a	7,5 ppmv	0,57 ppmv	6,5 %
970206b	6,0 ppmv	0,60 ppmv	6,4 %
980119a	5,3 ppmv	0,19 ppmv	7,1 %
980121a	6,1 ppmv	0,54 ppmv	4,9 %
980125a	9,0 ppmv	0,60 ppmv	11/6,0 %
980126a	5,3 ppmv	0,12 ppmv	4,5 %
980126b	4,8 ppmv	0,08 ppmv	4,9 %
980129a	4,3 ppmv	0,12 ppmv	6,2 %
980201a	4,4 ppmv	0,13 ppmv	5,6 %
980204a	5,3 ppmv	0,27 ppmv	6,4 %
980204b	28 ppmv	1,7 ppmv	10/5,5 %

b.) Learjet

Flug	H_2O	3σ	accuracy	Min(N_u), Bemerkung
980119a	5,8 ppmv	0,27 ppmv	7,3 %	25 Hz, Temperaturprobleme
980121a	6,0/13,0 ppmv	0,68/15 ppmv	5,2 %	20 Hz, Temperaturprobleme
980125a	10,0 ppmv	0,50 ppmv	6,2 %	425 Hz
980126a	5,7/9,3 ppmv	0,27/2,7 ppmv	6,3 %	30 Hz, Temperaturprobleme
980126b	5,5 ppmv	0,41 ppmv	5,8 %	80 Hz, Temperaturprobleme
980129a	4,2/4,5 ppmv	0,22/0,49 ppmv	7,3 %	200 Hz, Temperaturprobleme
980201a	7,4 ppmv	0,25 ppmv	5,0 %	460 Hz
980204a	11 ppmv	0,73 ppmv	3,9 %	470 Hz

Tabelle 2.5: Präzision (3σ), 'accuracy' der stratosphärischen H_2O -Messungen aller POLSTAR-Flüge und das Minimum der Untergrundzählrate (Learjet-FISH) a.) des Falcon-FISH, b.) des Learjet-FISH.

Die Präzision betrug in trockenen Luftmassen ($H_2O < 10$ ppmv) 0,08-0,60 ppmv und die Absolutmeßgenauigkeit war in trockenen Luftmassen besser als 8,1% (Tabelle 2.5a). Am 25.01.1998 ist kurz vor Beginn des Fluges ein Kondensator des Übertragers (siehe Abbildung 2.3) im Falcon-FISH durchgeschlagen, was die Gasentladung der Lampe so veränderte, daß ein extrem hoher Anteil an Untergrundstrahlung (im Bereich) von 310 nm emittiert wurde. Während des Fluges sank dieser

Anteil kontinuierlich, so daß sich die Absolutmeßgenauigkeit von maximal 11% auf 6% verbesserte. Beim Transferflug von Shannon nach Oberpfaffenhofen (980204b) wurde dies wieder beobachtet, wobei hier wohl ein Fluten der Durchflußlampe mit Kabinenluft während des Aufenthaltes in Shannon die Ursache war.

Die Absolutmeßgenauigkeit der H_2O -Messungen mit dem Learjet-FISH betrug in trockenen Luftmassen 3,9-7,3% und die Präzision war in diesen Luftmassen meistens besser 0,73 ppmv. Bei einigen Flügen hat das Learjet-Hygrometer extrem niedrige Zählraten im Untergrundsignal und im Gesamtsignal (Untergrund + Fluoreszenz) gemessen. Die Ursache dafür war, daß die Zählerkarte des Learjet-FISH für das Photomultipliersignal bei zu hohen Temperaturen nur einen Teil der Pulse des Photomultipliersignals zählte. Wie groß dieser Anteil ist, erhält man aus dem Verhältnis der gemessenen Untergrundzählrate zu der erwarteten Untergrundzählrate. Diese sollte etwa der am Anfang eines Fluges gemessenen Untergrundzählrate entsprechen, da die Temperatur in der Kabine am Anfang eines Fluges noch so niedrig war, daß die Zählerkarte richtig gemessen hat. Jedoch ist diese Annahme etwas unsicher, da sich die Emission von UV-Strahlung der Durchflußlampe im Bereich von 310 nm während des Betriebes noch verringern kann. Aufgrund dessen kann die aus der Genauigkeit der Kalibrationsparameter berechnete 'accuracy' bei den Messungen, bei denen Temperaturprobleme auftraten, durchaus höher sein. Da die Präzision auch durch die erniedrigten Zählraten beeinflusst werden kann, sind in Tabelle 2.5 für diese Flüge teilweise zwei Werte für die Präzision der H_2O -Daten angegeben; der erste Wert wurde aus Messungen zu Anfang des Fluges berechnet und der zweite Wert aus Messungen am Ende des Fluges.

Kapitel 3

Messungen

3.1 Durchgeführte Meßkampagnen

Meßkampagnen, bei denen das Hygrometer gemessen hat, sind mit Angabe des Einsatzgebietes, der Transfer- und Meßflüge und des Trägers in zeitlicher Reihenfolge in Tabelle 3.1 aufgelistet. Von den vier Flugzeugkampagnen fanden zwei im Winter, eine zu Beginn des Frühlings in der Arktis und eine im Spätfrühling in mittleren Breiten statt. Für die Flugzeugmessungen wurden drei verschiedene Flugzeuge eingesetzt, deren maximale Flugzeit etwa 3,5 Stunden bei einer Geschwindigkeit von etwa 200 m/s beträgt und deren maximale Flughöhe jeweils bei etwa 13 km bzw. 162 hPa liegt, also hoch genug für Messungen in der Tropopausenregion und der unterste Stratosphäre mittlerer und hoher Breiten. Bei einigen Transferflügen (19.5.1996, 6.2.1997, 3/25.3.1997, 19.1/4.2.1998) und allen Meßflügen, bis auf den am 1.2.1997, als vom Sender der Durchflußlampe emittierte HF-Strahlung ein Zünden der Lampe kurz vor dem Start verhinderte, hat FISH gemessen. Das Hauptziel aller durchgeführten Flugzeugkampagnen war im Hinblick auf diese Arbeit das Bestimmen von Tracerkorrelationen in der untersten Stratosphäre wobei für diese Arbeit Korrelationen von H_2O mit dem troposphärischen Spurengas N_2O und mit dem stratosphärischen Spurengas O_3 (siehe Kapitel 1.2) wichtig sind, um saisonale bzw. regionale Unterschiede des Wasserdampfgehaltes in der Tropopausenregion zu studieren.

Kampagne	Ort	Transfer- und Meßflüge	Träger
STREAM 1996	Irland	19/22/23/27/30/31.5, 1/2.6	Flugzeug
CHORUS 1996	Spanien	14.11	Ballon
POLSTAR 1997	Nordschweden	20/24/28/30.1, 1/4/6.2	Flugzeug
ADEOS/ILAS 1997	Nordschweden	11.2	Ballon
STREAM 1997	Nordschweden	3/9/14/21/23/25.03	Flugzeug
POLSTAR 1998	Nordschweden	19/21/25/26/29.1, 1/4.2	Flugzeug

Tabelle 3.1: Die im Laufe dieser Arbeit durchgeführten Kampagnen.

3.2 Die STREAM 1996/1997 - Meßkampagnen

3.2.1 Ziele und Durchführung der Kampagnen

Das EU-Projekt Stratosphere and Troposphere Experiment by Aircraft Measurements (STREAM) verfolgte die Ziele, den Luftmassenaustausch zwischen der Troposphäre und Stratosphäre und den südwärts gerichteten Transport ozonarmer Luftmassen aus dem arktischen Polarwirbel in mittlere Breiten zu untersuchen. Zur Verfolgung dieser Ziele wurde im Mai 1996 eine Kampagne in der Nähe des mittleren Breiten-Jets in Irland und eine weitere Kampagne im März 1997 in der Nähe des arktischen Polarwirbels durchgeführt.

Vor Beginn der Meßflüge wurden die einzelnen Instrumente verschiedener an dem Projekt beteiligter Gruppen in eine Cessna Citation II, ein Forschungsflugzeug der Technischen Universität Delft und des Nationalen Luft- und Raumfahrtzentrums (Niederlande), in Amsterdam eingebaut. Im Mai 1996 wurden vor dem Überführungsflug am 19.5 nach Shannon (52,4°N; 8,6°W), während einer zweiwöchigen Einbauphase, die üblichen Sicherheitstests und EMV-Tests (ElektroMagnetische Verträglichkeit) durchgeführt und einige Instrumente, darunter FISH, neu integriert. 1997 wurden die Geräte vor dem Überführungsflug am 3.3 nach Kiruna (67,9°N; 21,1°E) innerhalb einer Woche integriert.

Instrument	Meßgröße	Referenz
Massenspektrometer	SO ₂ , HNO ₃ , Aceton, Acetonitril	Schneider, 1999
Chemilumineszenzmonitor	NO _y	Fischer, 1997
Diodenlaserspektrometer (TDL)	CO, N ₂ O	Wienhold, 1998
In-situ-Gaschromatograph	N ₂ O, CFC-12, CFC-11	Bujok, 1998
Luftprobensammler	Kohlenwasserstoffe (KW) halogenierte KW	Universität Utrecht
Chemilumineszenzmonitor	O ₃	Bregman, 1995
FISH	H ₂ O	Zöger, 1999[1]
Partikelzähler	Gesamtpartikelzahl (d > 6 nm; d > 15 nm)	Schröder, 1997

Tabelle 3.2: Instrumentierung der Citation II während der STREAM-Kampagnen.

Die Instrumentierung (siehe Tabelle 3.2) bestand aus zwei Chemilumineszenzmonitoren zur Messung von Ozon und NO_y, einem Luftprobensammler zur Messung von Kohlenwasserstoffen, einem Diodenlaserspektrometer (TDLAS) zur Messung von CO und N₂O, einem Massenspektrometer zur Messung von HNO₃ und Aceton, einem Partikelzähler zur Messung der Gesamtpartikelzahl mit einem Durchmes-

ser von $d > 6$ nm und $d > 15$ nm, einem In-situ-Gaschromatograph zur Messung von N_2O , CFC-12 und CFC-11 und dem Fluoreszenzhygrometer (FISH). Bis auf das TDLAS und dem Luftprobensammler während der STREAM 1996 Kampagne haben alle Geräte bei beiden Kampagnen gemessen. Meteorologische Daten, wie Luftdruck, Lufttemperatur, Windgeschwindigkeit, Windrichtung sowie die geographische Breite und Länge wurden vom Bordcomputer aufgezeichnet. Um die einzelnen Meßflüge zu planen, war ein Wissenschaftler des Königlich-Niederländischen Meteorologischen Institut (KMNI) vor Ort.

STREAM 1996		
Flug	Ziel	Flugniveaus
960514	Testflug Amsterdam	238, 196, 178 hPa
960519	Transferflug Amsterdam→Shannon	329, 238, 329 hPa
960522	Tropopausenbruch ($54^\circ N 13^\circ W \rightarrow 53^\circ N 12,3^\circ W$, θ : $310 \rightarrow 323$ K)	428, 315, 262, 217, 178 hPa
960523	Tropopausentrog ($53 \rightarrow 57^\circ N$, $9^\circ W$, θ : $323 \rightarrow 297$ K)	428, 315, 239, 187 hPa
960527	Tropopausenfaltung ($52^\circ N 10^\circ W \rightarrow 53,4^\circ N 8^\circ W$, θ : $340 \rightarrow 313$ K)	410, 315, 262, 197 hPa
960530	Tropopausenbruch ($53^\circ N$, $4 \rightarrow 14^\circ W$, θ : $345 \rightarrow 310$ K)	315, 250, 178 hPa
960531	Tropopausentrog	428, 376, 315, 262, 216, 187 hPa
960601	Stratosphärenflug in Polarluft	239, 197 hPa
960603	Transferflug Shannon→Amsterdam	keine Messungen
STREAM 1997		
Flug	Ziel	Flugniveaus
970303	Transferflug Amsterdam→Kiruna	376, 262, 197 hPa
970309	Tropopausenbruch ($20^\circ E 69 \rightarrow 71^\circ N$, θ : $323 \rightarrow 297$ K)	301, 239, 187 hPa
970314	Stratosphärenflug (isentrop) in Arktikluft	320, 345 K
970321	Stratosphärenflug in Arktikluft	187, 169 hPa
970323	Stratosphärenflug (isentrop) in Arktikluft	328 K, 340 K
970325	Transferflug Kiruna→Amsterdam	197 hPa

Tabelle 3.3: *STREAM 1996/1997 Fluginformationen; die Bezeichnung der Flüge setzt sich zusammen aus: Jahr(yy), Monat(mm), Tag(dd), Flugnummer(a/b).*

Eine Zusammenstellung der einzelnen Flüge hinsichtlich der Ziele und Flugniveaus ist in Tabelle 3.3 gegeben. Während der STREAM 1996-Kampagne wurden fünf Flüge in Regionen durchgeführt, in denen ein ziemlich ausgeprägter Gradient in der Tropopausenhöhe auftrat. Teilweise verformte sich die Tropopause im Vertikalschnitt, senkrecht zum Polarfront-Jetstream, zu einem Trog (23/31.05.1996) oder sogar zu einer Faltung (27.05.1996). Am 30.05.1996 war dieser Gradient maximal; Isentropen von 310 bis 345 k schnitten die Tropopause im Polarfront-Jetstream über einer Distanz von etwa 600 km. Bei den anderen vier Meßflügen im Polarfront-Jetstream blieb die Tropopause unterhalb der 340 K Isentrope. Für den Flug am 31.05.1996 liegt keine detaillierte meteorologische Analyse vor, da bei diesem Flug der Bordcomputer ausfiel und eine meteorologische Interpretation aufgrund nicht

gemessener fehlender meteorologischer Größen nicht möglich ist. Nach der Vorhersage soll sich der horizontale Gradient in der Tropopausenhöhe gegenüber dem Vortag stark abgeschwächt haben und die Tropopause im Vertikalschnitt zu einem Trog verformt haben. Am 01.06.1996 wurde zum Vergleich ein Flug in großer Entfernung zur Polarfront in Polarluft zwischen der 340 und 365 K Isentrope durchgeführt.

Bei der STREAM 1997 Kampagne wurden 3 Flüge (14/21/23.03.1997) in Luftmassen arktischen Ursprungs (nach 120-Stunden-Trajektorienrechnungen) durchgeführt. Zu Beginn des Transferflug am 25.03.97 wurde noch vor Erreichen des 197 hPa-Niveaus auch in Luftmassen arktischen Ursprungs geflogen (nach 120-Stunden-Trajektorienrechnungen waren es die gleichen Luftmassen wie am 23.03.97, die am 21.03.1997 in der Nähe des Nordpols ein Gebiet mit einem ausgeprägten Gradienten in der Tropopausenhöhe passiert haben).

Am 09.03.1997 wurde ein Flug im Polarfront-Jetstream durchgeführt. Die Tropopause blieb jedoch am 09.03.1997 im Operationsgebiet im Vergleich zu den Flügen am 27/30.05.1996 relativ niedrig mit $\theta \leq 323$ K.

3.3 Die POLSTAR 1997/1998 - Meßkampagnen

3.3.1 Ziele und Durchführung der Kampagnen

Das Polar Stratospheric Aerosol Experiment (POLSTAR), ein BMBF-Projekt, wurde durchgeführt, um Eigenschaften und Bildungsprozesse von Aerosolen (Zusammensetzung, Phase, Form) zu messen und um vertikale Umverteilungen von Spurengasen durch Aerosolsedimentation zu studieren, insbesondere Denitrifizierung / Renitrifizierung und Dehydrierung / Rehydrierung. Einsatzgebiet war Nordschweden, da dort im Winter in der Nähe der Tropopause extrem kalte Regionen auftreten können, in denen sehr zahlreich große Eisteilchen ($d > 4 \mu\text{m}$) gebildet werden. Während 1997 nur eine Falcon E von der Deutschen Forschungsanstalt für Luft und Raumfahrt (DLR) für die Meßflüge zur Verfügung stand, konnte 1998 zusätzlich mit einem Learjet von der Gesellschaft für Flugziel-Darstellung (GFD) mit weiteren Instrumenten im Formationsflug gemessen werden. Im November vor jeder Meßkampagne fand eine einwöchige Testkampagne mit der Falcon in Oberpfaffenhofen (bei München) und dem Learjet in Hohn (bei Rendsburg) statt.

Die Instrumentierung beider Flugzeuge ist in Tabelle 3.4 angegeben. In Vorwärtsrichtung wurde jeweils der Gesamtgehalt von NO_y , H_2O , HNO_3 , H_2SO_4 und NH_3 gemessen, d.h. der Anteil in der Gasphase und der Anteil in den Partikeln, der im Einlaßsystem verdampft (siehe Kapitel 2.2.4). Zur genauen Bestimmung der einzelnen Anteile wurde zusätzlich NO_y , H_2O und HNO_3 in Rückwärtsrichtung gemessen, d.h. nur der Anteil in der Gasphase.

Unentbehrlich zur genauen Analyse und Interpretation der in Tabelle 3.4 aufgelisteten Meßgrößen sind die vom Flugzeug aus gemessenen Größen, wie Druck, Temperatur, Wind, geographische Länge und Breite.

Außerdem waren noch Instrumente zur Aerosolkonzentrations- und Aerosolgrößenverteilungsmessung integriert. Gemessene Spurengase, die nicht von Partikeln aufgenommen werden, waren N_2O , CO , CH_4 und O_3 .

a.) Falcon

Instrument	Meßgröße	Referenz
NO _y -Meßsystem	(NO _y) _V , (NO _y) _R	Feigl, 1998
HAAMAS-CIMS	HNO ₃ , SO ₂	Schneider, 1999
TDLAS	N ₂ O, CO, CH ₄	Wienhold, 1998
FISH	(H ₂ O) _V	Zöger, 1999[1]
UV-Photometer	O ₃	Schlager, 1997
MASP	Aerosolgrößenverteilung, Brechungsindex, Sphärizität (0,2-20 µm)	Kuhn, 1998
Kondensations- kernzähler	CN - Gesamtkonz. (5 nm - 2 µm)	Universität Mainz

b.) Learjet

Instrument	Meßgröße	Referenz
HAAMAS-VACA	(H ₂ SO ₄) _{AE} , (HNO ₃) _{AE} (NH ₃) _{AE} , SO ₂	MPI-Heidelberg
FISH	(H ₂ O) _R	Zöger, 1999[1]
UV-Photometer	O ₃	MPI-Mainz, FZ-Jülich
FSSP 300	Aerosolgrößenverteilung (0,4-23 µm)	Baumgardner, 1992
HACOPAC	CN - Größenverteilung (5 nm - 10 µm, 6 Kanäle)	Universität Mainz

Tabelle 3.4: a.) Instrumentierung der Falcon (HAAMAS: High Altitude Aircraft-Based Mass Spectrometer, CIMS: Chemical Ionisation Mass Spectrometry, TDLAS: Tunable Diode Laser Absorption Spectrometer, FISH: Fast In-Situ Stratospheric Hygrometer, MASP: Multi-Angle Aerosol Spectrometer Probe), b.) Instrumentierung des Learjets (HACOPAC: High Altitude Condensation and Aerosol Counter, FSSP: Forward Scattering Spectrometer Probe, VACA: Volatile Aerosol Component Analysis).

Eine Zusammenstellung der einzelnen Flüge hinsichtlich der Ziele und Flugniveaus ist in Tabelle 3.5 gegeben. Während der POLSTAR 1997-Kampagne wurden 2 Flüge (970124a / 970206a) in sehr kalten Tropopausenregionen durchgeführt. Am 24.01.1997 wurde versucht, den Rand des Gebietes mit den niedrigsten vorhergesagten Temperaturen bei 73°N16°E auf dem 197 hPa-Niveau parallel zum Wind quasi Lagrange zu durchfliegen. Bei einem echten Lagrange-Flug müßte auch θ konstant sein. Das gemessene Temperaturminimum betrug am 24.01.1997 196 K

POLSTAR 1997		
Flug	Ziel	Flugniveaus
970120a	Transferflug München→Kiruna	keine Messungen
970124a	Kaltgebiet: 200 hPa, 72-82°N0-16°E	197, 179, 170 hPa
970128a	Leewellen über Skandinavien	486, 410, 220, 179 hPa
970130a	Tracerkorrelationen	197, 447, 179 hPa
970201a	Leewellen bei Kaltbedingungen	200, 180, 215, 230 hPa
970204a	ADEOS/ILAS Validierung	262, 188, 179 hPa
970206a	Kaltgebiet: 240 hPa, 74-77°N10-15°W	239 hPa
970206b	Transferflug Kiruna→München	239, 217, 330 hPa
POLSTAR 1998		
Flug	Ziel	Flugniveaus
980119a	Transferflug München→Kiruna	240, 220 hPa(Falcon)
	Transferflug Rendsburg→Kiruna	(Learjet)
980121a	Kaltgebiet: 200 hPa, 63-66°N10-15°E	197, 162 hPa
980125a	Leewellen bei Kaltbedingungen	197, 179, 162, 179 hPa
980126a	Leewellen bei Kaltbedingungen	197, 179 hPa
980126b	Leewellen bei Kaltbedingungen	179 hPa
980129a	Tracerkorrelationen	197, 410, 179, 163 hPa
980201a	Tracerkorrelationen	197, 410, 177, 162 hPa
980204a	Transferflug Kiruna→Shannon	238, 262 hPa (Falcon)
	Transferflug Kiruna→Rendsburg	200, 300, 165, 150 hPa (Learjet)
980204b	Transferflug Shannon→München	262 hPa (Falcon)

Tabelle 3.5: Fluginformationen; die Bezeichnung der Flüge setzt sich zusammen aus: Jahr(yy), Monat(mm), Tag(dd), Flugnummer(a/b).

und am 06.02.1997 74°N10°W 198 K. Während des Transferfluges Kiruna-München, ebenfalls am 06.02.1997, wurden relativ kalte Luftmassen über Ostdeutschland auf dem 217 hPa Niveau oberhalb des Warmluftsektors eines Frontensystems durchflogen, das gerade Mitteleuropa in östlicher Richtung passierte. Die Flüge 970128a und 970201a wurden überwiegend parallel zum Wind und senkrecht zum norwegischen Gebirge über Nordskandinavien durchgeführt, um Leewellen in verschiedenen Höhen zu untersuchen. Der Flug 970130a in Richtung Spitzbergen diente der Untersuchung von Korrelationen zwischen verschiedenen Spurengasen in der arktischen untersten Stratosphäre. Um Fernerkundungsspurengasmessungen des ILAS-Experimentes auf dem Satelliten ADEOS zu validieren, wurde am 04.02.1997 ein Meßflug etwa 10° Längengrade westlich von Kiruna parallel zu Nordskandinavien durchgeführt.

Während der POLSTAR 1998-Kampagne wurden 4 Flüge in sehr kalten Tropopausenregionen durchgeführt. Am 21.01.1998 befand sich dieses Kaltgebiet westlich von Skandinavien und am 25/26.01.1998 direkt über Skandinavien, wobei dort aufgrund hoher Windgeschwindigkeiten senkrecht zum norwegischen Gebirge Leewellen auftraten. Zur Untersuchung von Korrelationen zwischen verschiedenen Spu-

rengasen wurden die Flüge 980129a und 980201a in Richtung Spitzbergen durchgeführt. Der Transferflug von Kiruna nach München wurde mit Zwischenlandung in Shannon durchgeführt, um Stickoxidemissionen im transatlantischen Flugkorridor zu messen.

3.4 Die Ballonkampagnen

3.4.1 Ziele der Kampagnen

Im Rahmen des Chemie der Ozon-Reduktion der unteren Stratosphäre (CHORUS) - Projekts wurde im November 1996 in Spanien eine Ballonkampagne durchgeführt. Eine weitere Ballonkampagne wurde im Februar 1997 in Nordschweden durchgeführt, um Fernerkundungs-Spurengasmessungen eines Satelliten (ILAS) zu validieren. Ein weiteres Ziel dieser Ballonflüge war, das Chlorbudget und ozonzerstörende Prozesse in der unteren Stratosphäre mittlerer Breiten mit denen in hohen Breiten im Polarwirbel zu vergleichen. Das Höhenprofil des Gesamtwasserstoffbudgets konnte mit Hilfe der H_2O , CH_4 und H_2 Messungen bestimmt werden (z.B. Engel, 1996; Schiller, 1996; Zöger, 1999[2]), so daß saisonale Variationen des Wasserdampfeintrags in die tropische Stratosphäre quantifizierbar sind.

3.4.2 Die Instrumente der Triple-Gondel und der Ballon

Eine bei früheren Kampagnen für 2 Hauptexperimente konzipierte Doppel-Gondel mit hexagonalem Grundriß je Zelle wurde für eine aus drei Hauptinstrumenten bestehende Nutzlast erweitert. Die anderen zwei Hauptinstrumente neben dem FISH waren ein Kryosammler (Schmidt, 1987) und ein In - situ - Halogenoxid - Fluoreszenzmeßgerät (Toohey, 1993; Woyke, 1998). Die während des Fluges gesammelten Luftproben wurden später im Labor mittels Gaschromatographie analysiert, d.h. es wurden die Mischungsverhältnisse von N_2O , F11, F12, F113, CH_4 , CCl_4 , F140, CH_3Cl , F22, SF_6 und H_2 bestimmt. Der aktinische Fluß, d.h. der für photochemische Prozesse relevante Anteil des Sonnenlichts, wurde mit einem Photometer gemessen (siehe Schiller, 1994). Außerdem war noch eine Ozonsonde in der Gondel montiert. Während der ILAS/ADEOS Kampagne wurden die Aerosolkonzentrationen von Partikeln mit einem Mindestradius von (0,15; 0,19; 0,30; 0,38; 0,50; 0,62; 0,75; 1,08; 1,25; 1,58; 2,00 μm) gemessen (siehe Hofmann and Deshler, 1991).

Der Ballon, der aus einer 15 bis 25 μm starken Polyethylenfolie besteht und mit Wasserstoff gefüllt wird, kann sich je nach der erreichten Höhe auf ein Volumen von mehreren hunderttausend Kubikmetern ausdehnen. Nach unten hin ist der Ballon offen, damit dieser bei zu starker Ausdehnung in großen Höhen nicht platzt. An der Oberseite ist ein Steuerventil angebracht, um durch kontrolliertes Ablassen von Wasserstoff einen langsamen Abstieg (2-5m/s) durchzuführen.

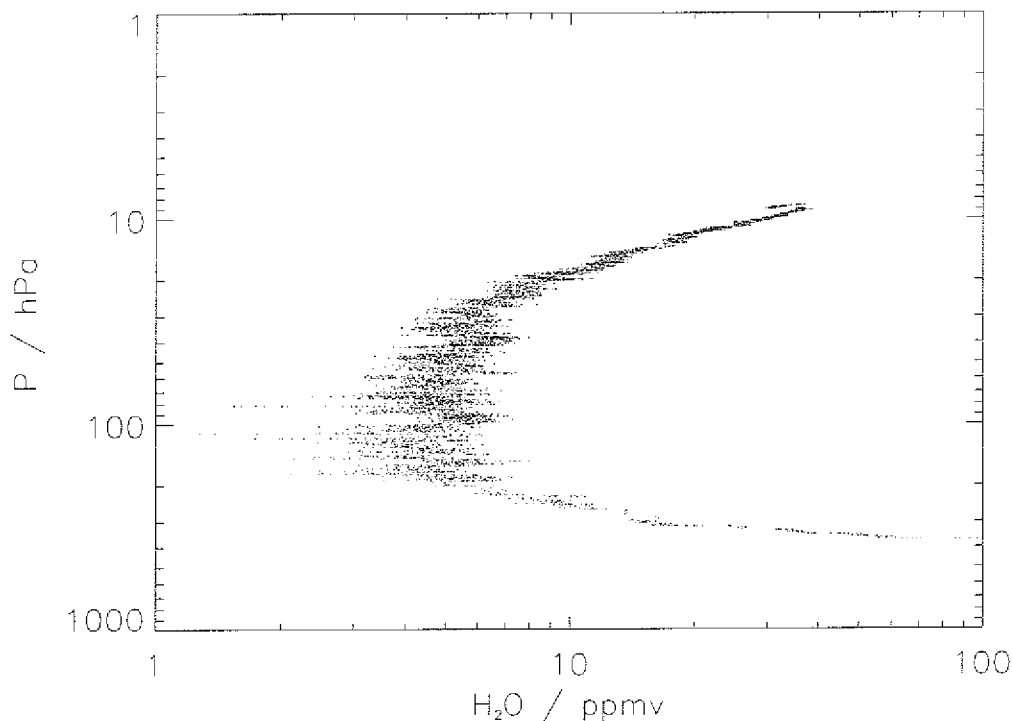


Abbildung 3.1: Vertikalprofil der H_2O -Mischungsverhältnisse der Ballonmessung vom 14.11.1996.

3.4.3 Der Meßflug vom 14.11.1996

Das am 14.11.1996 gemessene Vertikalprofil der H_2O -Mischungsverhältnisse ist in Abbildung 3.1 dargestellt. H_2O -Mischungsverhältnisse von 6-40 ppmv zu Beginn des Abstiegs, bei einem Außendruck von etwa 25-9 hPa, wurden durch verdampfendes Eis verursacht, das sich auf den Innenwänden der Fluoreszenzzelle aufgrund starker Abkühlung während des Aufstiegs gebildet hatte.

An der Variation der logarithmisch aufgetragenen H_2O -Mischungsverhältnisse bei Meßwerten unterhalb von 10 ppmv erkennt man eine relativ schlechte Meßgenauigkeit. Die Präzision (3σ) von 10 s-Mittel in Luftmassen mit einem mittleren H_2O -Mischungsverhältnis von 5,3 ppmv betrug 1,3 ppmv. Die Ursache dafür war ein hohes Untergrundsignal, welches ein niedriges Signal-zu-Rauschverhältnis in trockenen nicht kontaminierten Luftmassen hervorrief. Die kalibrationsbedingte Meßgenauigkeit (accuracy) betrug 7,0%. Letzendlich kann man diesen Flug nur als technischen Testflug des neuen Ballonhygrometers betrachten, zumal die Proben des Kryosammlers undicht waren und nicht analysiert werden konnten.

3.4.4 Der Meßflug vom 11.02.1997

Vor der nächsten Kampagne wurde eine zusätzliche Heizung am FISH („light trap“ in Abbildung 2.1b) angebracht, damit bei zukünftigen Flügen die Edelstahlwände

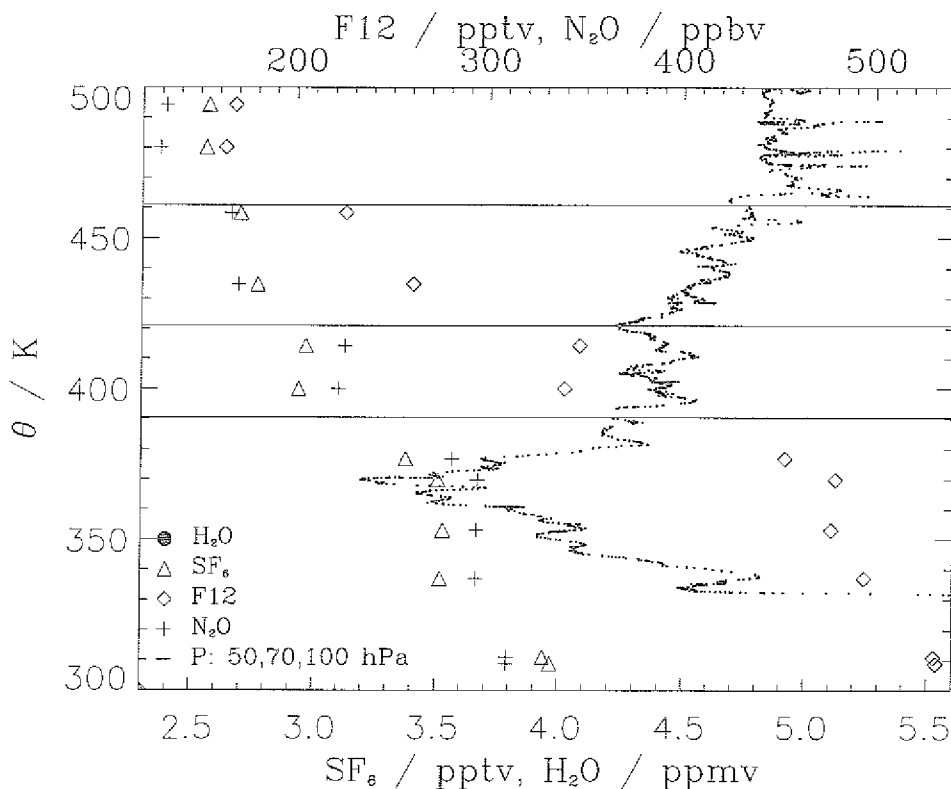


Abbildung 3.2: Vertikalprofil der F12-, N₂O-, SF₆- und H₂O-Mischungsverhältnisse der Ballonmessung vom 11.02.1997.

von innen her nicht wieder vereisen. Außerdem wurde das Manipulatorteil (in Abbildung 2.1b zwischen der Lampe und der Fluoreszenzzelle angebracht) von innen her mehrere Male nachgeschwärzt, so daß selbst millimetergroße Lücken im schwarzen Anstrich verschwanden. Dadurch wurde eine Reflexion von 310 nm - Strahlung der Lampe an den Innenwänden völlig unterbunden und das mit dem Photomultiplier gemessene Untergrundsignal auf ein Drittel im Vergleich zu früheren Messungen reduziert.

Notwendig waren wieder günstige Startbedingungen und Trajektorien, nach denen ein möglichst langer Flug vorausberechnet wurde. Die wichtigste Randbedingung war, daß zu der Zeit, als vom Ballon aus während des Abstiegs gemessen wurde, auch das ILAS-Experiment des ADEOS Satelliten über Nordskandinavien gemessen hat. Nach der meteorologischen Analyse fand der Flug teilweise am Rand des Polarwirbels statt. Diesmal haben alle Instrumente während des Fluges entlang des 68. Breitengrades von Kiruna (21°E) bis Nordost-Finland (27°E) gute Messungen erzielt. Die Präzision (3σ) von 10 s-Mittel betrug 0,27 ppmv in Luftmassen mit einem mittleren H₂O-Mischungsverhältnis von 4,6 ppmv. Die kalibrationsbedingte Meßgenauigkeit (accuracy) betrug 4,3%.

Ein Vertikalprofil der F12-, N₂O-, SF₆-Mischungsverhältnisse (gewonnen aus den Analysen der Proben des Kryosammlers) und der H₂O-Mischungsverhältnisse ist in Abbildung 3.2 dargestellt.

Zwei Ergebnisse dieses Fluges, auf die in den beiden folgenden Kapitel nicht näher eingegangen wird, waren:

- Spurengasmessungen des ILAS-Experimentes auf dem ADEOS-Satelliten in der unteren und mittleren Stratosphäre am 11.02.1997 über Nordskandinavien sind durch die Ballonmessungen validiert worden (z.B. Schiller et al., Manuskript in Vorbereitung).
- Die „Spikes“ in dem H_2O -Vertikalprofil in Abbildung 3.2 zwischen der 450 und 500 K-Isentrope sind wahrscheinlich auf Kontamination zurückzuführen. Untersuchungen von H_2O -Kontamination und artifizierter Teilchenbildung werden von Schiller et al. (Manuskript in Vorbereitung) mit Hilfe der Partikel-Messungen durchgeführt.

Kapitel 4

Korrelationen zwischen verschiedenen Spurengasen

Im folgenden werden Korrelationen zwischen verschiedenen Spurengasen von Messungen in der untersten Stratosphäre bis hinunter zur oberen Troposphäre gezeigt. Nach Plumb and Ko (1992) sind zwei Spurengase korreliert, wenn die lokale atmosphärische Lebensdauer dieser Spurengase größer ist als horizontale Transport-Zeitskalen. Die Korrelation ist sogar linear, wenn die lokale atmosphärische Lebensdauer dieser Spurengase größer ist als vertikale Transport-Zeitskalen. Das H_2O -Mischungsverhältnis kann in der Tropopausenregion durch Eisteilchenbildungs- und Sedimentationsprozesse bestimmt sein, so daß in diesen Fällen die lokale atmosphärische Lebensdauer niedriger ist als Transport-Zeitskalen in horizontaler oder vertikaler Richtung.

Im Gegensatz zur tropischen Tropopause, die relativ hoch liegt (ca. 17 km) und sehr kalt ist und deshalb Eisteilchenbildungs- und Sedimentationsprozesse dort auftreten, ist die Tropopause in mittleren und hohen Breiten ziemlich niedrig und warm. Aufgrund der dadurch an der Tropopause in mittleren und hohen Breiten recht großen auftretenden Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis und aufgrund horizontaler Transportprozesse ist das H_2O -Mischungsverhältnis dort sehr variabel.

Dessler et al. (1995) haben an der Tropopause im Mai 1993 11-40 ppmv bei 37°N 122°W gemessen. Weiter nördlich erhielten Murphy et al. (1990) bei 59°N 6°E einen Median von 25 ppmv im Januar 1989. Pan (1997) errechnete aus Satellitenmessungen über der Nordhemisphäre einen Mittelwert von 45 ppmv im Sommer 1989 und 15 ppmv im Winter 1989/1990. Während verschiedener Flüge im Oktober / November 1977 und 1978 wurden 15-30 ppmv H_2O an der Tropopause in mittleren Breiten über Europa gemessen (siehe Foot, 1984). Regional kann das H_2O -Mischungsverhältnis auch in der arktischen Tropopausenregion im Winter durch Kondensation und nachfolgende Sedimentationsprozesse bestimmt sein, so wie es von Kelly et al. (1989) im antarktischen Polarwirbel beobachtet wurde. Murphy et al. (1990) haben gezeigt, daß bei Messungen an der Tropopause über Stavanger im Winter 1988/1989 das H_2O -Mischungsverhältnis teilweise extrem niedrig war im Vergleich zu dem Wert, den man nach dem gemessenen O_3 -Mischungsverhältnis erwarten würde. In diesen Situationen stimmte das Sättigungswasserdampfmi-

schungsverhältnis über Eis mit dem gemessenen H_2O -Mischungsverhältnis überein.

Von Wasserdampf- und Ozonmessungen in der Tropopausenregion über Westeuropa und dem Nordatlantik gibt es einen ausführlichen Datensatz (MOZAIC Measurements of Ozone by Airbus In-Service Aircraft, Helten 1998), der von Linienflugzeugen A340 aufgenommen wurde. Aufgrund der verwendeten Meßgeräte werden jedoch nur H_2O -Mischungsverhältnisse von mehr als 20 ppmv relativ genau gemessen.

In der untersten Stratosphäre im Bereich 352-370 K haben Hintsa et al. (1998) gemessen (siehe Kapitel 1.4).

Umfassend wurden H_2O -Mischungsverhältnisse in der „Overworld“ von Fernerkundungsinstrumenten verschiedener Satelliten gemessen, wie dem limb infrared monitor of the stratosphere (LIMS) auf NIMBUS 7 (Gille and Russel, 1984; Remsberg, 1984), dem Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II (SAGE II) auf ERBS (McCormik, 1993; Rind, 1993), dem Microwave Limb Sounder (MLS, Barath 1993) und dem Halogen Occultation Experiment (HALOE) auf UARS (Russel, 1993; Harries, 1996). Von Satelliten aus wird zwar global und über einen längeren Zeitraum gemessen, jedoch ist die Höhenauflösung der Messungen mit etwa 2 km deutlich schlechter als bei In-situ-Messungen und die Meßgenauigkeit wird mit abnehmender Höhe geringer.

Wenig Daten gibt es von der Oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Pan et al. (1997) haben SAGE II-Messungen des Bereiches 300-100 hPa ausgewertet. Die Meßgenauigkeit der Wasserdampfdaten dieses Höhenbereiches wird auf 20% geschätzt. Read (1998) hat H_2O -Messungen des MLS-Experimentes vom Upper Atmosphere Research Satellite (UARS) zwischen dem 464 und 146 hPa-Niveau von September 1991 bis Oktober 1994 ausgewertet.

Dagegen erstrecken sich die während dieser Arbeit durchgeführten Wasserdampfmessungen von der oberen Troposphäre, in der das H_2O -Mischungsverhältnis einige hundert ppmv betragen kann, bis in die unterste Stratosphäre, deutlich oberhalb der Tropopausenregion, wo ein H_2O -Mischungsverhältnis von etwa 3-6 ppmv gemessen wird. Dieser Höhenbereich wird in diesem Kapitel anhand von Korrelationen abschnittsweise untersucht, d.h. in der Tropopausenregion, in der Mischungsschicht und in der trockenen untersten Stratosphäre.

4.1 Die Tropopausenregion in mittleren und hohen Breiten

Neben den in Kapitel 1 vorgestellten meteorologischen Definitionen der Tropopause kann die Tropopause auch anhand von Spurengasmessungen identifiziert werden. Denn die Tropopause ist die Grenze zwischen der stabil geschichteten Stratosphäre mit nahezu keinem vertikalen Luftmassenaustausch, d.h. mit höhenabhängigen Spurengasmischungsverhältnissen, und der vertikal gut durchmischten Troposphäre mit nahezu höhenunabhängigen Spurengasmischungsverhältnissen. Da N_2O ein konstantes Mischungsverhältnis in der Troposphäre hat und mit zunehmender Höhe in der Stratosphäre abnimmt, eignet es sich sehr gut, um H_2O - und O_3 -Mischungsverhältnisse an der Tropopause zu bestimmen.

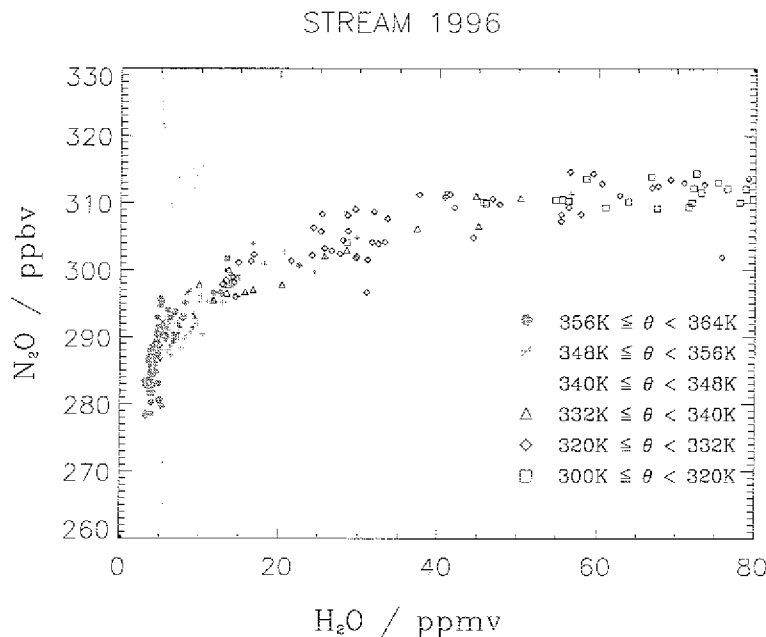


Abbildung 4.1: Die H_2O - N_2O Korrelation der STREAM 1996-Messungen. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch unterschiedliche graue und schwarze Symbole.

4.1.1 H_2O - N_2O -Korrelationen

Das mittlere troposphärische N_2O -Mischungsverhältnis für die hier vorgestellten Messungen beträgt 312,5 ppbv (siehe Kapitel 1.2.2). In den folgenden Abbildungen (4.1-4.4) ist dieses Mischungsverhältnis durch ein grau gefärbtes Intervall eingrahmt, welches die Präzision der hier verwendeten N_2O -Messungen widerspiegelt. Bei den N_2O -Messungen des In-situ Gaschromatographen (GHOST, Bujok 1998) während der STREAM-Kampagnen war die Präzision besser als bei den N_2O -Messungen des Tunable Diode Laser Spectrometer (TDLAS, Wienhold 1998) während der Kampagnen 1997/1998; dies wird durch ein schmaleres grau gefärbtes Intervall um das troposphärische N_2O -Mischungsverhältnis angedeutet. In Abbildung 4.1 ist die H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1996-Kampagne dargestellt. Auf der Abszisse ist das N_2O -Mischungsverhältnis im Bereich von 260 ppbv bis 330 ppbv aufgetragen. H_2O ist auf der horizontalen Achse im Bereich von 0-80 ppmv aufgetragen. Der von 3,5 bis 5,5 ppmv grau markierte Bereich soll stratosphärische H_2O -Mischungsverhältnisse kennzeichnen. Höhere H_2O - Mischungsverhältnisse, die der Mischungsschicht bzw. der Tropopausenregion zuzuordnen sind, sind auf diese Weise leicht zu erkennen. Die potentielle Temperatur der Luftmassen, in denen gemessen wurde, ist durch verschiedene graue und schwarze Symbole gekennzeichnet.

In der Abbildung 4.1 liegen sämtliche Datenpunkte mit weniger als 35 ppmv H_2O -Mischungsverhältnis außerhalb des um das troposphärische N_2O - Mischungsverhältnis grau ausgefüllten Intervalles; dies ist ein Indiz für Messungen oberhalb der Tropopause. Datenpunkte mit einem H_2O -Mischungsverhältnis von mehr als 59 ppmv streuen um den troposphärischen N_2O -Wert innerhalb des grauen Intervalles,

was ein Hinweis auf troposphärische Luftmassen ist. Als Ergebnis erhält man, daß das H_2O -Mischungsverhältnis bei den Messungen im Mai 1996 an der Tropopause in mittleren Breiten bei Irland zwischen 35 und 59 ppmv variierte. Die potentielle Temperatur betrug dort überwiegend 300-332 K und in Einzelfällen bis zu 364 K.

STREAM 1997

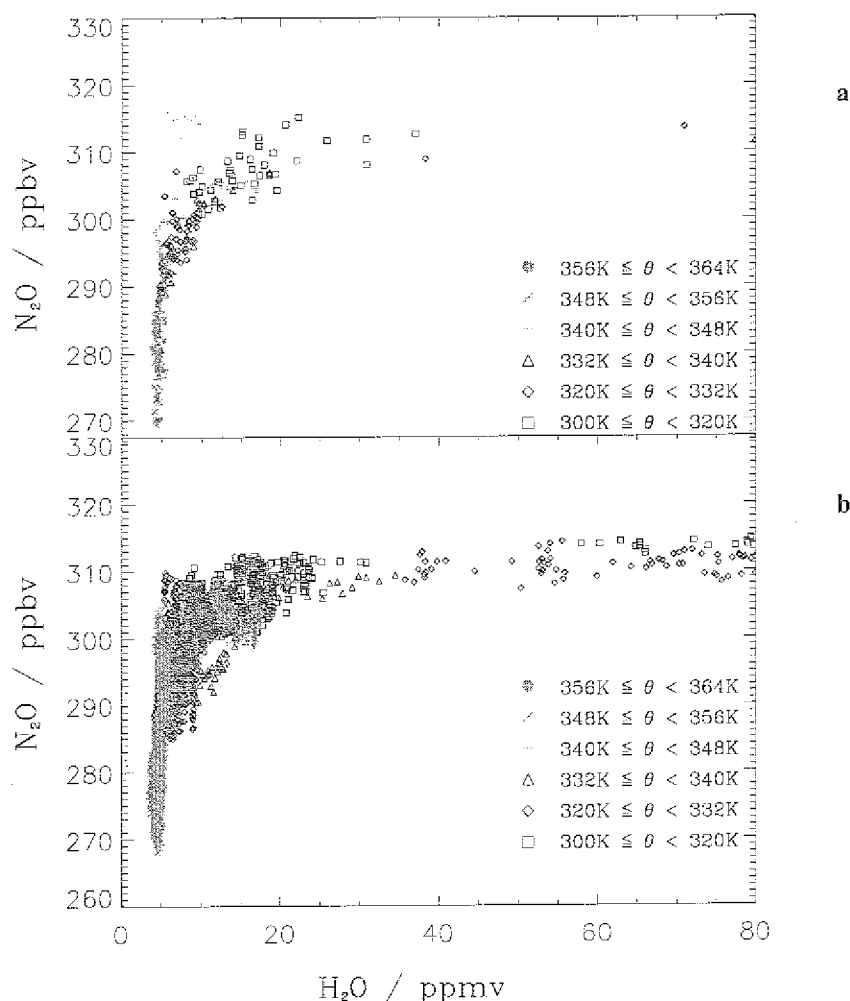


Abbildung 4.2: Die H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1997-Messungen a.) N_2O -Messungen des GHOST b.) N_2O -Messungen des TDLAS. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch unterschiedliche graue und schwarze Symbole.

Die H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1997-Messungen ist in Abbildung 4.2 (a.) N_2O -Messungen vom GHOST und (b.) N_2O -Messungen vom TDLAS dargestellt. Die Analyse der Abbildung 4.2a auf die gleiche Art, wie sie mit Abbildung 4.1 durchgeführt wurde, ergibt an der arktischen Tropopause ein H_2O -Mischungsverhältnis von 15-32 ppmv im März 1997. Dies ist etwa 20 ppmv weniger als im Mai 1996 in mittleren Breiten gemessen wurde. In Abbildung 4.2b ist die Abschätzung richtig, daß alle Datenpunkte, die außerhalb des grau markierten Intervalls (307-318 ppbv N_2O -Mischungsverhältnis) liegen, oberhalb der Tropopause gemessen wurden, jedoch ist aufgrund der schlechteren Präzision der TDLAS-Messungen eine eindeutige Höhenzuordnung im Bezug zur Tropopause

von Luftmassen mit einem N_2O -Mischungsverhältnis von 307-312,5 ppbv schwierig. Deshalb soll in Abbildung 4.2b der Datenpunkt mit dem niedrigsten H_2O -Mischungsverhältnis und einem N_2O -Mischungsverhältnis von wenigstens 312,5 ppbv das minimale H_2O -Mischungsverhältnis an der Tropopause bestimmen. Als rein troposphärisch können die Datenpunkte identifiziert werden, die um den troposphärischen N_2O -Wert innerhalb des grauen Intervalls streuen. Als Ergebnis erhält man, daß das H_2O -Mischungsverhältnis an der arktischen Tropopause im März 1997 nach Abbildung 4.2b etwa 14-30 ppmv betrug.

Die potentielle Temperatur war bei diesen Messungen an der Tropopause meist niedriger als 320 K. Nur während des Transferfluges Kiruna - Amsterdam war die potentielle Temperatur an der Tropopause mit 320-332 K etwas höher.

POLSTAR 1997

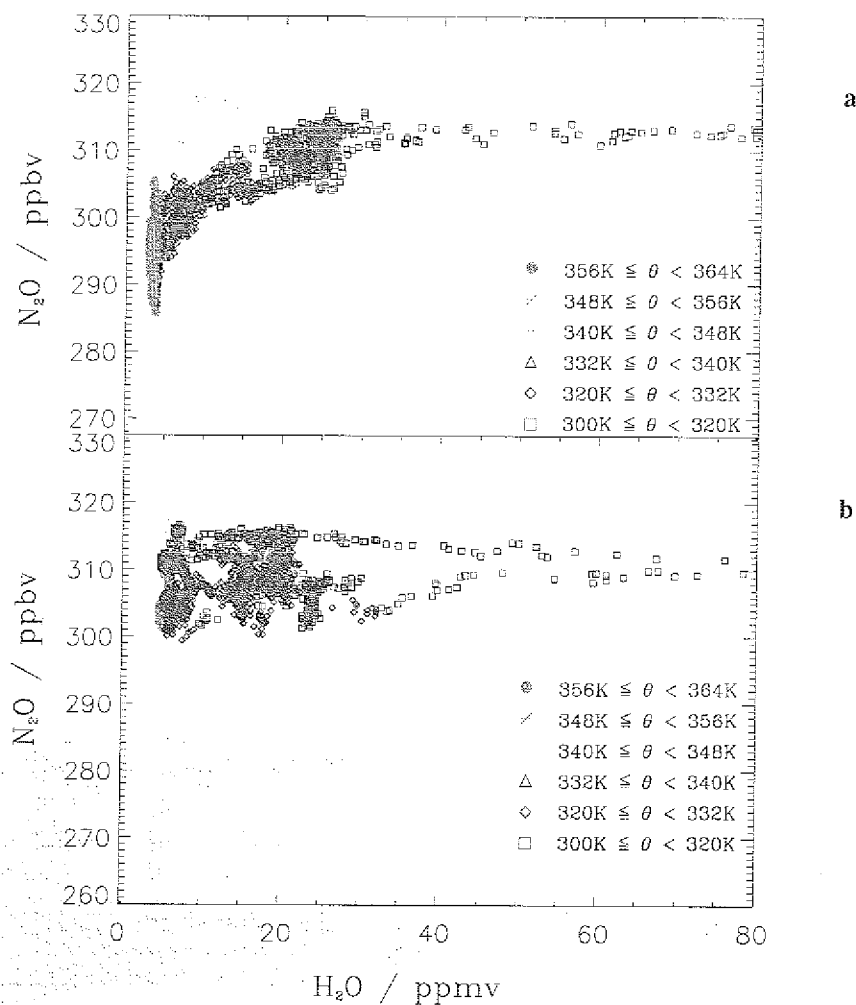


Abbildung 4.3: Die H_2O - N_2O -Korrelation der POLSTAR 1997-Messungen a.) 28.01 / 04.02.1997 b.) 24.01 / 06.02.1997. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch unterschiedliche graue und schwarze Symbole.

Die H_2O - N_2O -Korrelationen der Messungen im Januar 1997 und 1998, jeweils in der Arktis, werden in den Abbildungen 4.3 und 4.4 gezeigt. Hier wurde N_2O nur vom TDLAS gemessen. Im Januar 1997 betrug das H_2O -Mischungsverhältnis

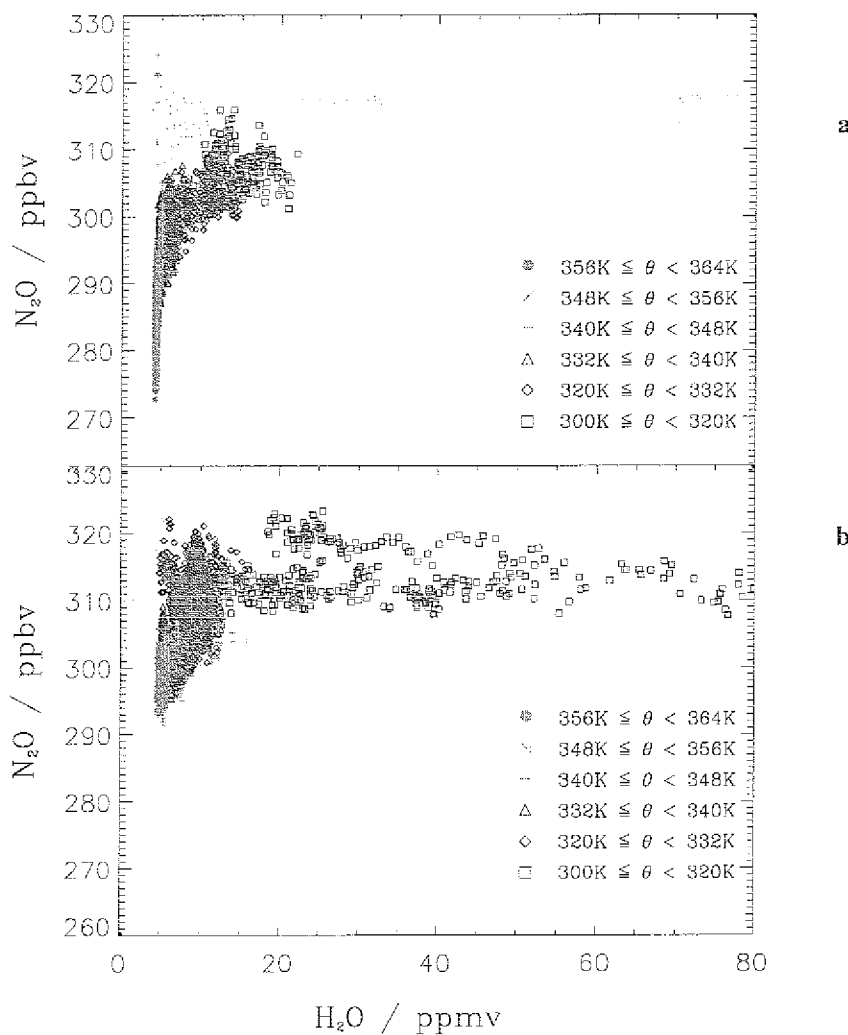


Abbildung 4.4: Die H_2O - N_2O -Korrelation der POLSTAR 1998-Messungen a.) 29.01 / 01.02.1998 b.) 25 / 26.01.1998. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch unterschiedliche graue und schwarze Symbole.

an der arktischen Tropopause etwa 17-30 ppmv (Abbildungen 4.3a) und im Januar 1998 etwa 10-22 ppmv (Abbildungen 4.4a).

Messungen in kalten Tropopausenregionen, am 24.1/06.02.1997, 21/25/26.01.1998 sind separat in den Abbildungen 4.3b und 4.4b dargestellt, denn die dort aufgetretenen dehydrierten Luftmassen verursachten eine sehr starke Abweichung von der mittleren N_2O - H_2O -Korrelation in der arktischen Tropopausenregion.

Die potentielle Temperatur blieb bei den in den Abbildungen 4.3a und 4.4a gezeigten Messungen an der Tropopause unterhalb von 320 K, vereinzelt traten auch Werte zwischen 320 und 332 K auf. Bei den Messungen in kalten Tropopausenregionen betrug θ während der POLSTAR 1997-Kampagne zum großen Teil 320-332 K und während der POLSTAR 1998-Kampagne teilweise bis zu 340 K.

4.1.2 O_3 - N_2O -Korrelationen

Wie in Kapitel 1.2.3 erwähnt, können die O_3 -Mischungsverhältnisse in der untersten Stratosphäre saisonal und regional ziemlich unterschiedlich sein (nach Danielson, 1968 oder Shapiro, 1980 variiert das O_3 -Mischungsverhältnis an der Tropopause zwischen 100 und 200 ppbv). Deshalb ist es sinnvoll, zunächst anhand von O_3 - N_2O -Korrelationen die O_3 -Mischungsverhältnisse einer Meßkampagne, d.h. in einer bestimmten Region und Jahreszeit, in der untersten Stratosphäre zu quantifizieren.

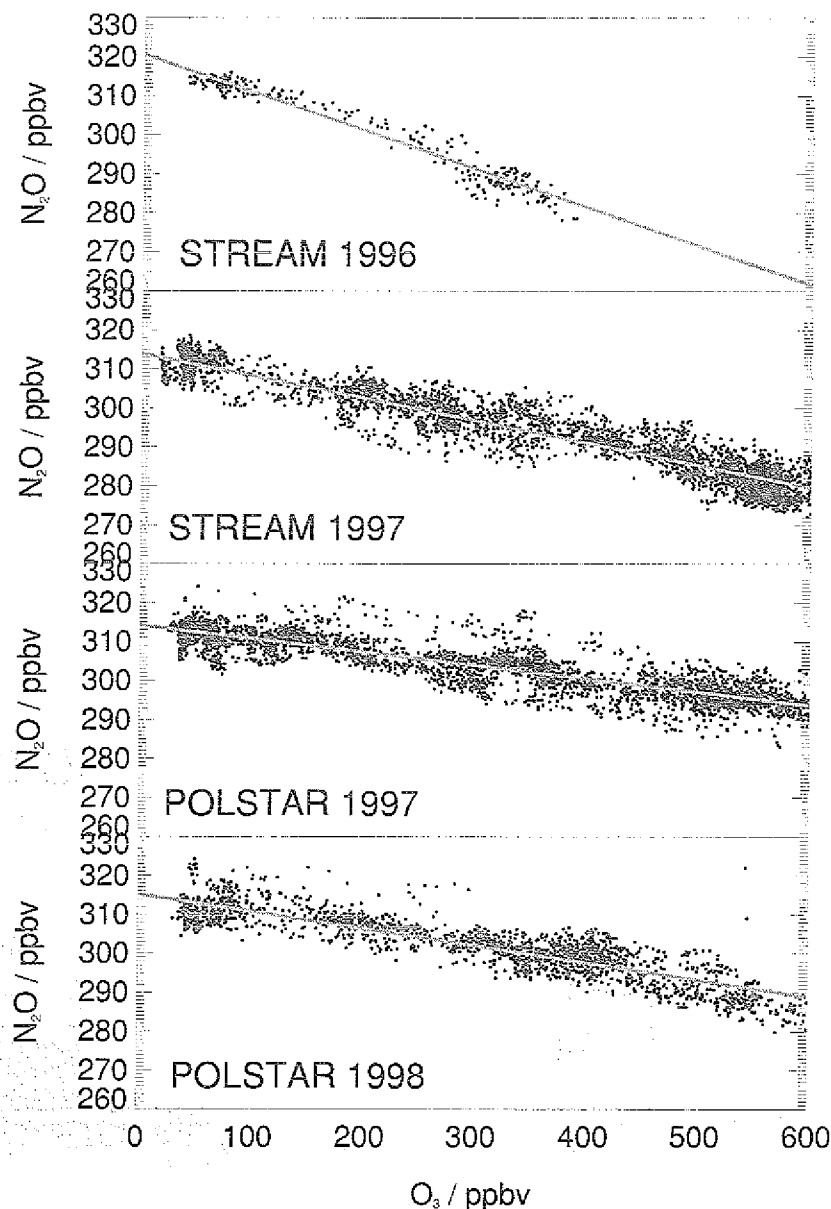


Abbildung 4.5: O_3 - N_2O -Korrelationen von 4 verschiedenen Kampagnen (STREAM 1996, STREAM 1997, POLSTAR 1997, POLSTAR 1998).

In Abbildung 4.5 sind O_3 - N_2O -Korrelationen von Messungen 4 verschiedener Kampagnen (STREAM 1996, STREAM 1997, POLSTAR 1997, POLSTAR 1998) dargestellt. Berücksichtigt wurden alle Meßflüge, von denen sowohl O_3 - als auch

N₂O-Daten guter Qualität vorliegen (d.h. hohe Meßgenauigkeit und keine Häufung von Funktionsausfällen der Instrumente während des Fluges).

Die in jedem Plot grau eingezeichnete Regressionsgerade, wurde mit der IDL-REGRESS-Routine berechnet (IDL: Interactiv Data Language, siehe <http://www.astro.washington.edu/deutsch/idl/htmlhelp/index.html>); es wurde folgender linearer Zusammenhang gefittet: $y_i = \text{const} + a \cdot x_i$ mit $y_i = N_2O_i$, $x_i = O_3_i$, alle Meßpunkte ($i=1\dots$) wurden gleich gewichtet, so daß die lineare Regression nach dem im Bronstein (1980, Kapitel 5.2.4.1) beschriebenen Prinzip berechnet wurde). Die Regressionsgeraden der Messungen aller 4 Kampagnen lauten:

$$\text{POLSTAR 1997: } N_2O = -\frac{1}{29,2 \pm 0,4} \cdot O_3 + 314,2 \text{ ppbv} \quad (4.1)$$

$$\text{POLSTAR 1998: } N_2O = -\frac{1}{22,1 \pm 0,4} \cdot O_3 + 315,9 \text{ ppbv} \quad (4.2)$$

$$\text{STREAM 1997: } N_2O = -\frac{1}{17,5 \pm 0,1} \cdot O_3 + 313,9 \text{ ppbv} \quad (4.3)$$

$$\text{STREAM 1996: } N_2O = -\frac{1}{10,2 \pm 0,2} \cdot O_3 + 320,6 \text{ ppbv} \quad (4.4)$$

Die POLSTAR 1997-Messungen zeigen die größte Änderung des O₃-Mischungsverhältnisses, d.h. wenn das N₂O-Mischungsverhältnis um 1 ppbv sinkt, nimmt das O₃-Mischungsverhältnis um 29 ppbv zu.

Wie bereits erwähnt sind nach Plum and Ko (1992) Korrelationen zwischen verschiedenen Spurengasen linear, wenn die lokalen Lebensdauern dieser Spurengase größer sind als die Zeitkonstante für vertikale Transportprozesse. Für N₂O beträgt die lokale Lebensdauer in Höhen unterhalb von 20 km mehr als 100 Jahre und von O_x mehr als 1 Jahr (z.B. Brasseur and Solomon, 1984). Die Zeitkonstante für vertikale Transportprozesse ist in diesem Höhenbereich kleiner als 1 Jahr. Die unterschiedlichen Steigungen der Regressionsgeraden hängen letztendlich von den lokalen Lebensdauern von Ozon und N₂O in der untersten Stratosphäre ab (Plum and Ko, 1992). In der untersten Stratosphäre hoher Breiten ist z.B. die lokale Lebensdauer von Ozon im Winter mehr als eine Größenordnung größer als im Sommer (aufgrund der zu diesem Zeitpunkt geringeren UV-Strahlungsintensität).

Die STREAM-Messungen fanden 1996 im Mai in mittleren Breiten und 1997 im März in hohen Breiten statt. Die POLSTAR-Messungen fanden jeweils Ende Januar in hohen Breiten statt. Als mittlere O₃-Mischungsverhältnisse an einer chemisch definierten Tropopause, an der das N₂O-Mischungsverhältnis 312,5 ppbv beträgt (siehe Kapitel 1.2.2), erhält man nach den Gleichung 4.1-4.4: 82,6±1,6 ppbv (STREAM 1996), 24,5±0,1 ppbv (STREAM 1997), 49,6±0,7 ppbv (POLSTAR 1997) und 75,1±1,4 ppbv (POLSTAR 1998).

Bei allen Messungen lag das O₃-Mischungsverhältnis an der Tropopause unterhalb dem von Danielsen (1968) und Shapiro (1980) angegebenen Bereich von 100-200 ppbv (Kapitel 1.2.3). Bujok (1998) erhält für die STREAM 1996-Messungen ein O₃-Mischungsverhältnis von 90 ppbv an der Tropopause. Bregman (1995) hat

für STREAM-Messungen im Februar 1993 in der Arktis ein O_3 -Mischungsverhältnis von 60 ppbv in der freien Troposphäre bestimmt.

In Tabelle 4.1 sind die in diesem Abschnitt bestimmten O_3 - und H_2O - Mischungsverhältnisse an der Tropopause aus Messungen von vier verschiedenen Flugzeugkampagnen aufgelistet. Die unterschiedlichen O_3 -Mischungsverhältnisse an der Tropopause können durch saisonale Unterschiede im troposphärischen O_3 - Mischungsverhältnis mitverursacht worden sein, denn die gemessenen minimalen O_3 - Mischungsverhältnisse betrugen während der STREAM 1996-Kampagne 40 ppbv, während der STREAM 1997-Kampagne 15 ppbv, während der POLSTAR 1997-Kampagne 30 ppbv und während der POLSTAR 1998-Kampagne 35 ppbv (siehe Abbildung 4.5). Die Gründe für die relativ niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse von 10-32 ppmv an der arktischen Tropopause von Januar bis März im Vergleich zu 35-59 ppmv in mittleren Breiten im Mai sind zum einen die niedrigeren mittleren Temperaturen und relativ häufig auftretenden Dehydrierungsereignisse an der arktischen Tropopause im Winter und zum anderen eine erhöhte vertikale turbulente Durchmischung in der relativ feuchten oberen Troposphäre am Jet-Stream in mittleren Breiten.

Kampagne	O_3 / ppbv	H_2O / ppmv
STREAM 1996	$82,6 \pm 1,6$	35-59
STREAM 1997	$24,5 \pm 0,1$	14-32
POLSTAR 1997	$49,6 \pm 0,7$	17-30
POLSTAR 1998	$75,1 \pm 1,4$	10-22

Tabelle 4.1: Während vier verschiedener Flugzeugkampagnen gemessene O_3 - und H_2O -Mischungsverhältnisse an der Tropopause.

4.2 Die Mischungsschicht in der untersten Stratosphäre

Mischung kann z.B. horizontal auf Flächen gleicher potentieller Temperatur in Gebieten mit einem extremen Gradienten der Tropopausenhöhe in meridionaler Richtung zwischen stratosphärischen und troposphärischen Luftmassen erfolgen. Zwar ist die Strömung im Mittel zonal, jedoch treten in solchen Gebieten extreme horizontale Windscherungen auf, die zweidimensionale Turbulenz und bei vertikaler Windscherung in nahezu neutral geschichteteten Luftmassen auch dreidimensionale Turbulenz verursachen können (siehe Reiter, 1975). Selbst wenn troposphärische Luft nur zu einem sehr geringen Anteil in stratosphärische Luftmassen eingemischt wird, macht sich dies im H_2O -Mischungsverhältnis als leichte Erhöhung gegenüber den stratosphärischen Werten von ca. 3-6 ppmv bemerkbar (siehe Bujok, 1998).

4.2.1 H_2O - N_2O -Korrelationen

Diese Mischungsschicht ist in mittleren Breiten im Mai feuchter als im Winter in der Arktis, was man daran erkennt, daß oberhalb der Tropopause in Luftmas-

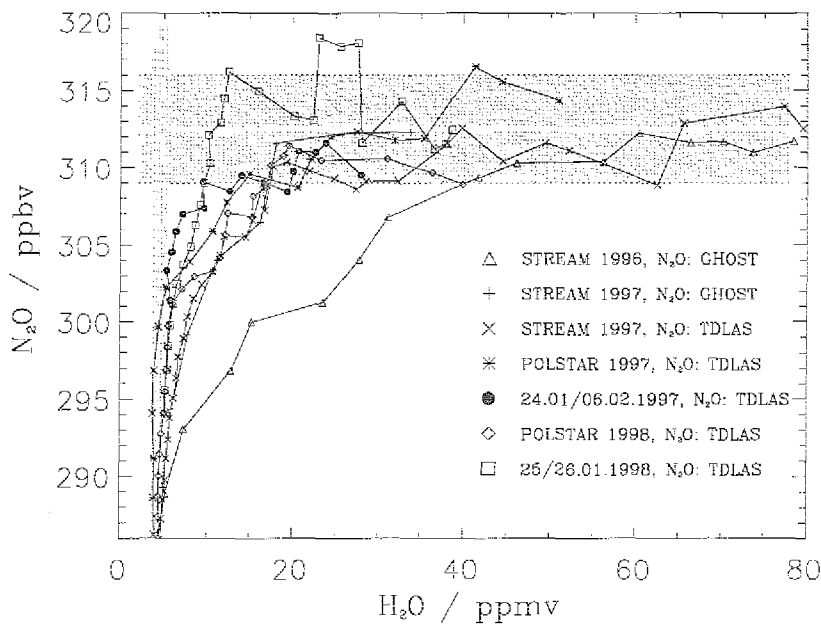


Abbildung 4.6: Gemittelte H_2O - N_2O -Korrelationen während der verschiedenen Kampagnen; bei STREAM 1997 wurde N_2O vom GHOST und vom TDLAS gemessen.

sen mit einem N_2O -Mischungsverhältnis von 287-309 ppbv das gemessene H_2O -Mischungsverhältnis bei den STREAM 1996 - Messungen (Abbildung 4.1) höher war als bei allen anderen Messungen (Abbildungen 4.2-4). Alle Messungen sind in Abbildung 4.6 als gemittelte H_2O - N_2O -Korrelationen zusammengefasst. Bei den POLSTAR-Kampagnen wird zwischen Flügen in Kaltgebieten und den anderen Flügen unterschieden.

Datenpunkte der Mischungsschicht befinden sich in Abbildung 4.6 rechts des vertikalen grauen Balkens, der stratosphärische H_2O - Mischungsverhältnisse kennzeichnet, und unterhalb des horizontalen grauen Balkens, der troposphärische N_2O -Mischungsverhältnisse kennzeichnet. Die mittlere H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1996 - Messungen, dargestellt durch Dreiecke, weicht in der Mischungsschicht deutlich von den mittleren Korrelationen der anderen Messungen ab. Nach den STREAM 1996-Daten war die Mischungsschicht nach oben durch ein minimales N_2O -Mischungsverhältnis von etwa 290 ppbv und nach unten durch ein maximales H_2O - Mischungsverhältnis von etwa 40 ppmv begrenzt. Bei den STREAM 1997-Messungen war dieser Bereich durch ein N_2O -Mischungsverhältnis von etwa 295 ppbv und ein H_2O -Mischungsverhältnis von etwa 16 ppmv begrenzt, unabhängig davon, ob N_2O vom GHOST(+) oder vom TDLAS ($\times$) gemessen wurde. Das mittlere H_2O - Mischungsverhältnis der POLSTAR-Messungen an der Grenze der Mischungsschicht zur Tropopause war etwa so groß wie das der STREAM 1997-Messungen (* POLSTAR 1997: 14 ppmv, $\diamond$ POLSTAR 1998: 16 ppmv). Im Grenzbereich zur „freien Stratosphäre“ war das minimale N_2O -Mischungsverhältnis der Mischungsschicht mit etwa 302 ppbv etwas höher als bei den STREAM 1997-Messungen (295 ppbv). Bei Meßflügen, die zum Teil in sehr kalten Tropopausenregionen (* 24.01/06.02.1997, $\square$ 25/26.01.1998) durchgeführt wurden, be-

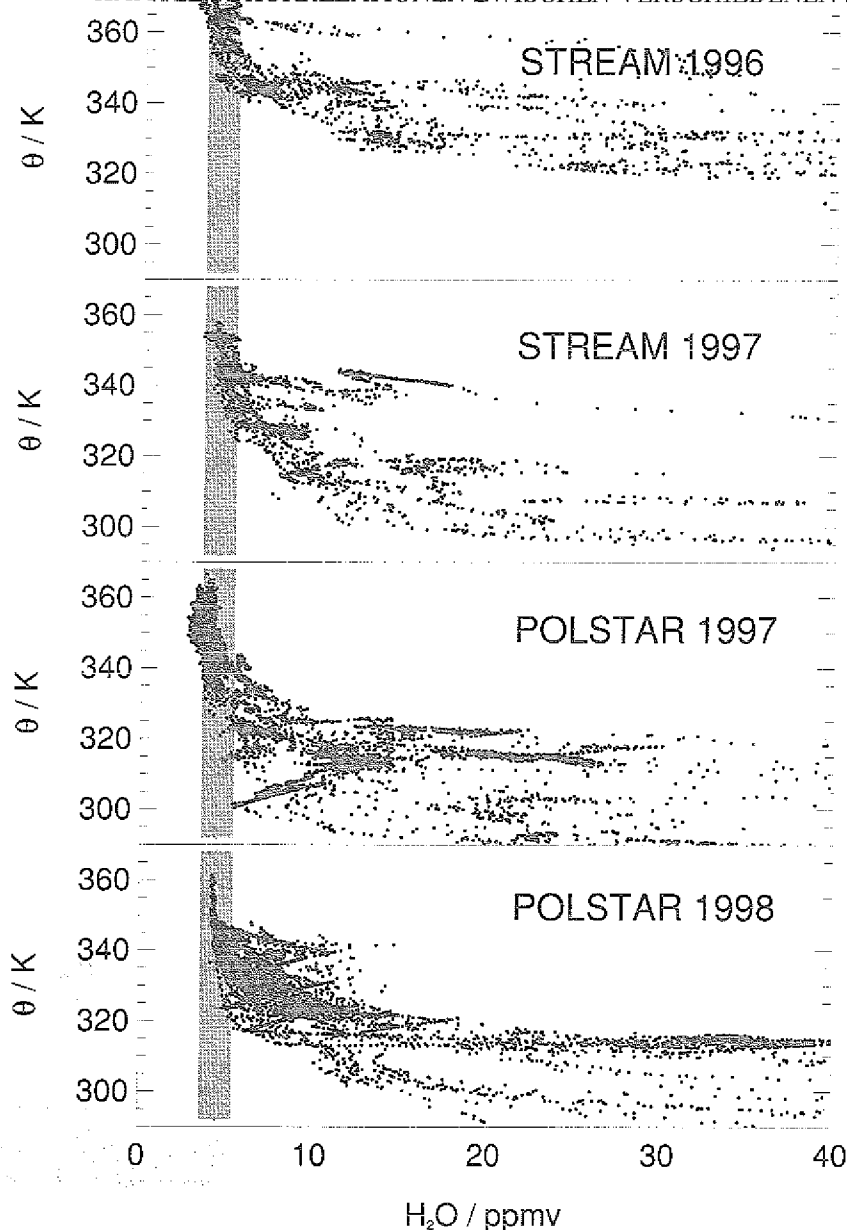


Abbildung 4.7: H_2O - θ -Korrelationen der durchgeführten Flugzeugmessungen (STREAM 1996, STREAM 1997, POLSTAR 1997, POLSTAR 1998).

trug das mittlere H_2O -Mischungsverhältnis an der unteren Grenze der Mischungsschicht zur Tropopause etwa 10 ppmv.

4.2.2 Die maximale Höhe (potentielle Temperatur) der Mischungsschicht

Die Höhe der Mischungsschicht bzw. die maximale potentielle Temperatur in dieser könnte lokal durch die maximale potentielle Temperatur in der oberen Troposphäre an Tropopausenbrüchen oder -faltungen, z.B. am mittleren Breiten Jet bestimmt sein, wo eine isentrope turbulente Einmischung von troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre auftritt. Da das H_2O -Mischungsverhältnis in der Troposphäre meistens ziemlich hoch ist, sollten diese vermischten Luftmassen in der untersten Stratosphäre nachgewiesen werden, selbst wenn der Anteil von troposphärischer Luft in diesen sehr gering ist. Nur wenn die Luftmassen der oberen Troposphäre

am Jet-Stream in mittleren Breiten oder über der Arktikfront sehr kalt sind, kann Kondensation und nachfolgende Sedimentation das H_2O -Mischungsverhältnis dieser Luftmassen soweit reduzieren, daß sie durch Einmischung in die unterste Stratosphäre keine Erhöhung im H_2O -Mischungsverhältnis hervorrufen.

In Abbildung 4.7 sind die potentiellen Temperaturen gegen die H_2O - Mischungsverhältnisse für alle Flugzeugmessungen aufgetragen. Der Bereich von 3,5 bis 5,5 ppmv im H_2O -Mischungsverhältnis, der grau markiert ist, soll stratosphärische H_2O - Mischungsverhältnisse andeuten. Luftmassen mit einem höheren H_2O - Mischungsverhältnis können der Mischungsschicht bzw. der Tropopausenregion zugeordnet werden. Demnach reichte die Mischungsschicht nach den STREAM 1996-Messungen bis 364 K, nach den STREAM 1997-Messungen bis 346 K, nach den POLSTAR 1997-Messungen bis 344 K und nach den POLSTAR 1998-Messungen bis 347 K. Berücksichtigt man, daß die Präzision der in Abbildung 4.7 dargestellten H_2O -Messungen teilweise 0,7 ppmv (siehe Tabelle 2.4, 2.5) betrug, könnte der maximale Wert der potentiellen Temperatur in der Mischungsschicht sich um etwa ± 1 K ändern.

Der relativ große Unterschied in der maximalen potentiellen Temperatur in der Mischungsschicht zwischen Messungen im Mai (14.05-01.06.1996) und den Messungen von Januar-März (24.01-6.02.1997, 03-25.3.1997, 19.01-04.02.1998) könnte dadurch erklärt werden, daß isentrope Einmischung von troposphärischer Luft zwischen der 347 K und 364 K-Isentrope in die unterste Stratosphäre der Nordhemisphäre im Mai auftritt und von Januar bis März nicht. Modellstudien von Chen (1995) auf der 350 K-Isentrope zeigen, daß am Subtropen-Jet eine relativ starke Einmischung von troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre der Nordhemisphäre vom 1. Juni bis 31. August stattfindet. Dagegen trete solch eine Einmischung vom 1. Dezember bis 28. Februar nahezu nicht auf. Außerdem ist es wahrscheinlicher, daß subtropische Luftmassen bis in mittlere Breiten transportiert werden als in hohe Breiten, so daß der regionale Unterschied in der maximalen potentiellen Temperatur in der Mischungsschicht allein dadurch erklärt werden könnte.

4.3 Extrem trockene Luftmassen in der untersten Stratosphäre

Oberhalb der Mischungsschicht, d.h. $\theta \geq 347$ K von Januar-März und $\theta \geq 364$ K im Mai (siehe Abbildung 4.7), wurden stratosphärische quasi-höhenunabhängige H_2O -Mischungsverhältnisse gemessen. Teilweise waren die Minima im H_2O - Mischungsverhältnis dort extrem niedrig, vereinzelt auch unterhalb der 348 K-Isentrope.

In den folgenden Ausführungen werden nicht H_2O - N_2O - Korrelationen verwendet, da zum einen nicht für alle Flüge N_2O -Daten vorliegen und zum anderen entweder die zeitliche Auflösung der N_2O -Messungen ziemlich niedrig ist (GHOST) oder die Meßpräzision der N_2O -Messungen im Vergleich zum vertikalen Gradienten der N_2O -Mischungsverhältnisse in der untersten Stratosphäre ziemlich schlecht ist (TDLAS).

In den Abbildungen 4.8 bis 4.11 sind H_2O - O_3 -Korrelationen der durchgeführten Flugzeugkampagnen dargestellt, wobei verschiedene Symbole unterschiedli-

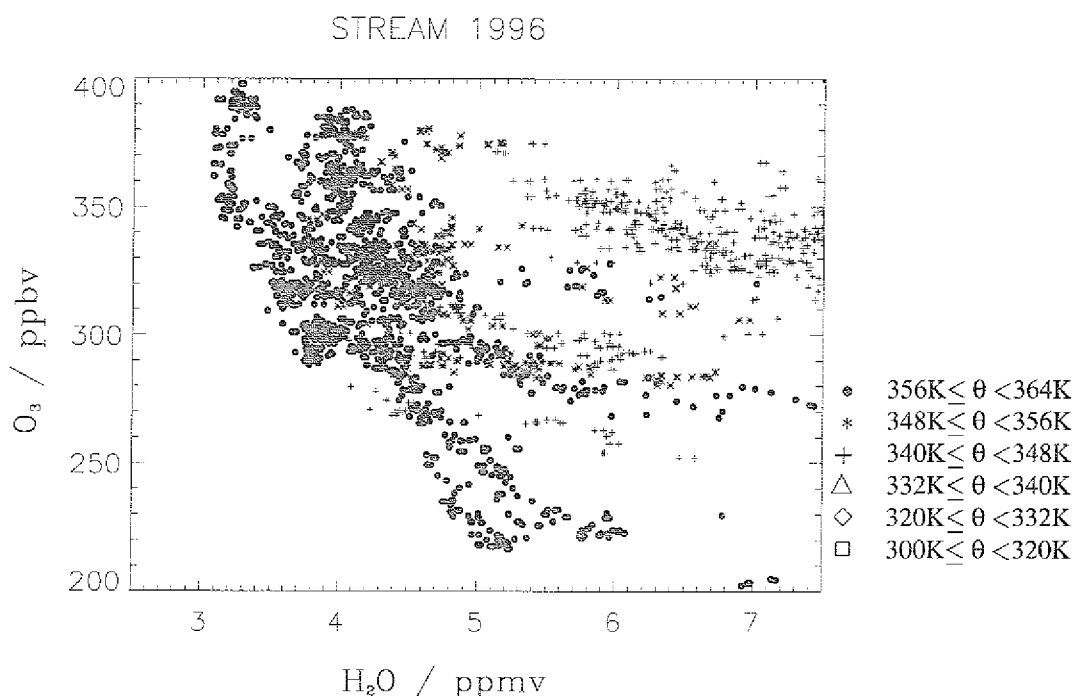


Abbildung 4.8: Die H_2O - O_3 -Korrelation der STREAM 1996-Messungen. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch verschiedene Symbole.

chen Bereichen in der potentiellen Temperatur entsprechen. Bei den STREAM 1996-Messungen wurde in den trockensten Luftmassen ein H_2O -Mischungsverhältnis von 3,1 ppmv und ein O_3 -Mischungsverhältnis von 340-400 ppbv gemessen. Dies ist deutlich mehr als während der STREAM 1996-Kampagne an der Tropopause (83 ppbv) gemessen wurde. Abbildung 4.5 zeigt, daß dies die höchsten O_3 -Mischungsverhältnisse sind, die während STREAM-1996 gemessen wurden. Nach Gleichung (4.4) entsprechen solche O_3 -Werte einem N_2O -Mischungsverhältnis von 281-287 ppbv. Aufgrund dieser stratosphärischen Spurengasmischungsverhältnisse kann ausgeschlossen werden, daß diese Luftmassen zwischen der 356 und 364 K-Isentrope am Subtropenjet vor kurzer Zeit unvermischt aus der Troposphäre in die Stratosphäre eingedrungen sind und in mittlere Breiten transportiert wurden.

Bei den STREAM 1997-Messungen (Abbildung 4.9) wurde in den trockensten Luftmassen ein H_2O -Mischungsverhältnis von 3,6 ppmv und ein O_3 -Mischungsverhältnis von 530-570 ppbv gemessen. Nach Abbildung 4.5 und Gleichung (4.3) entsprechen solche O_3 -Werte einem N_2O -Mischungsverhältnis von 281-284 ppbv. Auch diese Luftmassen können aufgrund der stratosphärischen Spurengasmischungsverhältnisse nicht erst vor kurzer Zeit unvermischt am Subtropen-Jet aus der Troposphäre in die Stratosphäre eingedrungen sein. Denkbar ist jedoch solch ein Luftmasseneintrag vor einigen Jahren. Wenn diese Einmischung am Subtropen-Jet erfolgt ist, müßte noch anhand von ECMWF-Daten geprüft werden, ob dort lokal zwischen der 348 K und 356 K Isentrope so niedrige Temperaturen auftreten können (siehe Kapitel 5.3), daß das H_2O -Mischungsverhältnis durch Dehydrierung

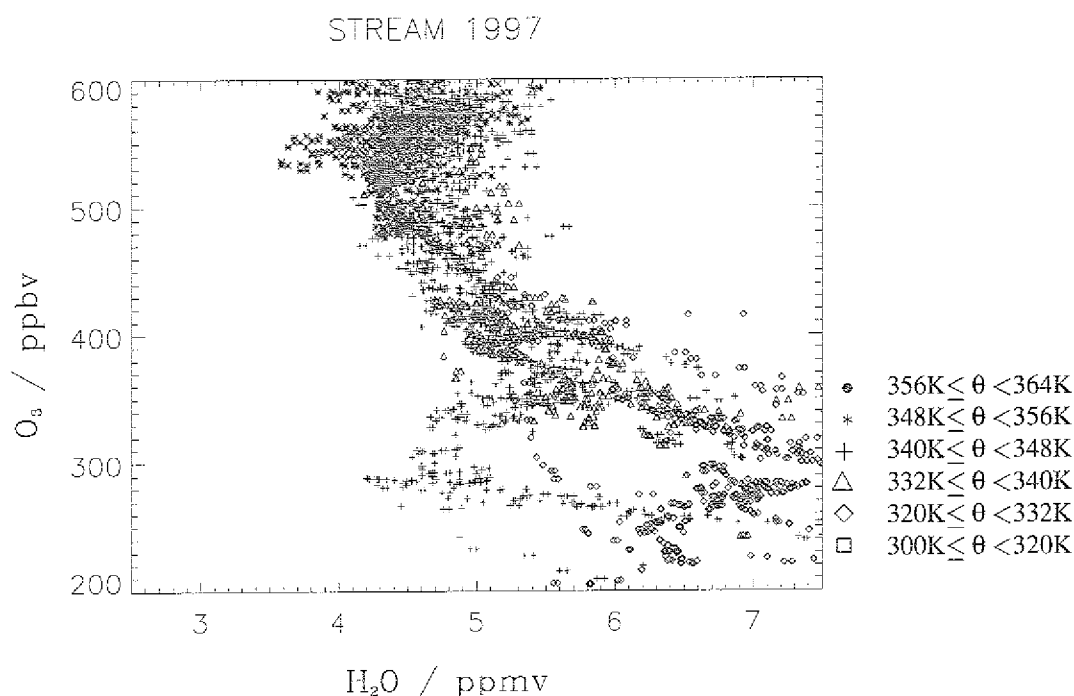


Abbildung 4.9: Die H_2O - O_3 -Korrelation der STREAM 1997-Messungen. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch verschiedene Symbole.

auf 3,6 ppmv reduziert wird. Es wäre zwar auch möglich, daß eine Vermischung von alter aus dem Polarwirbel abgestiegener Luft, mit typischerweise mehr als 4 ppmv (siehe Kapitel 1.2.1), mit junger gerade in die Stratosphäre eingetretener Luft stattgefunden hat, jedoch müßte diese junge Luft dann extrem trocken gewesen sein.

Bei einigen Flügen der POLSTAR 1997-Kampagne (Abbildung 4.10) wurden teilweise extrem niedrige H_2O -Mischungsverhältnisse von weniger als 3 ppmv gemessen. Das O_3 -Mischungsverhältnis in diesen Luftmassen betrug 450-600 ppbv zwischen der 340 und 364 K-Isentrope. Außerdem wurden sehr trockene Luftmassen mit einem H_2O -Mischungsverhältnis von 3,2-3,7 ppmv und einem O_3 -Mischungsverhältnis von 350-380 ppbv gemessen. Nach Gleichung (4.1) ergibt sich für diese Luftmassen ein relativ hohes N_2O -Mischungsverhältnis von 301-302 ppbv.

Ob die arktische Tropopausenregion im Winter so kalt sein kann, daß das Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis gerade 3,2-3,7 ppmv beträgt, wird in Kapitel 5.3 untersucht, um zu klären, ob eine Einmischung von troposphärischen Luftmassen an einer kalten arktischen Tropopause in die unterste Stratosphäre einige Tage vorher erfolgt sein könnte.

Die H_2O -Mischungsverhältnisse der POLSTAR 1998 - Messungen zeigten ein Minimum von 4,3 ppmv (siehe Abbildung 4.11). Die Differenz zu dem Minimum der H_2O -Mischungsverhältnisse der POLSTAR 1997 - Messungen beträgt demnach mehr als 1 ppmv. Berücksichtigt man die Absolutmeßgenauigkeit (siehe Tabelle 2.5a) der Flüge, bei denen die niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse gemessen wurden (970128a: $3,4 \text{ ppmv} \cdot 8,1\% = 0,28 \text{ ppmv}$; 970204a: $3,3 \text{ ppmv} \cdot 5,1\% = 0,17$

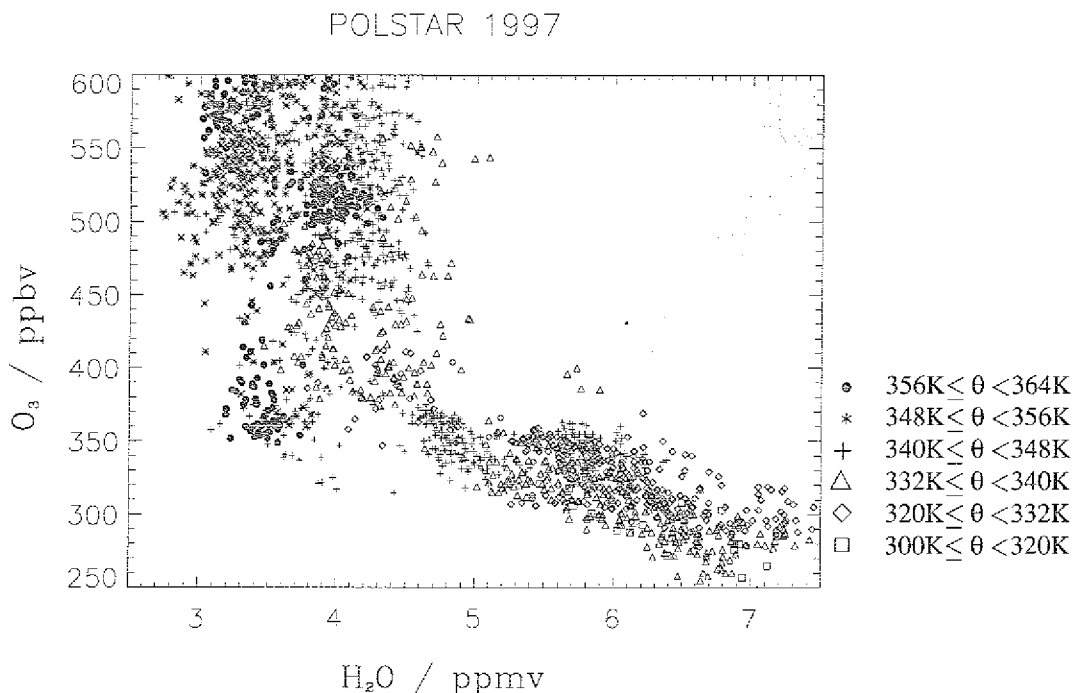


Abbildung 4.10: Die H_2O - O_3 -Korrelation der POLSTAR 1997-Messungen. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch verschiedene Symbole.

ppmv; 980129a: $4,3 \text{ ppmv} \cdot 6,2\% = 0,27 \text{ ppmv}$; 980201a: $4,4 \text{ ppmv} \cdot 5,6\% = 0,25 \text{ ppmv}$), dann ist diese Differenz signifikant.

Abgesehen davon, daß die minimalen Temperaturen und somit auch die minimalen Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnisse über Eis in der untersten Stratosphäre der Nordhemisphäre saisonal oder auch von Jahr zu Jahr unterschiedlich sein können, treten die Prozesse selten auf, die durch Dehydrierung von Luftmassen der untersten Stratosphäre das H_2O -Mischungsverhältnis dort auf teilweise unter 3 ppmv reduzieren, denn sie wurden nur bei einigen Flügen gemessen. So ist es nicht ungewöhnlich, daß bei den 9 POLSTAR 1998-Flügen nicht in diesen extrem trockenen nicht-repräsentativen Luftmassen der untersten Stratosphäre gemessen wurde. In diesem Zusammenhang soll das Vertikalprofil der H_2O -Messungen vom 11.02.97 (Abbildung 3.2) des Ballon-FISH diskutiert werden. Es zeigte ein Minimum von 3,2 ppmv bei etwa 370 K. Dies liegt ca. 10 K niedriger als die potentielle Temperatur der tropischen Tropopause, die im Januar / Februar mit der Hygropause identisch ist (Mote, 1996), so daß die Tropen als Ursprung dieser Luftmassen unwahrscheinlich sind. Das N_2O -Mischungsverhältnis betrug in diesen Luftmassen 295 ppbv, so daß diese Luftmassen durch Einmischung von troposphärischen Luftmassen in die unterste Stratosphäre an einem Tropopausenbruch entstanden sein können. Zudem müßten bei extrem niedrigen Temperaturen Kondensations- und Sedimentationsprozesse stattgefunden haben.

Messungen andere Spurengase wie F-12 oder SF_6 deuten auch darauf hin, daß diese Luftmassen für stratosphärische Verhältnisse jung sind, jedoch älter als ein

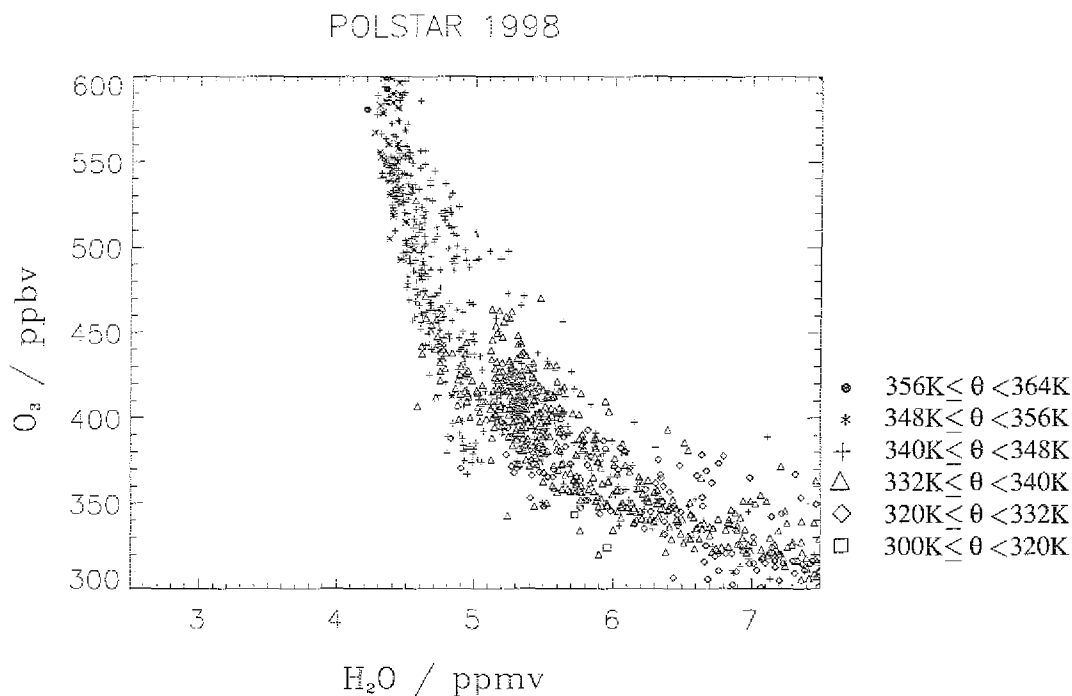


Abbildung 4.11: Die H_2O - O_3 -Korrelation der POLSTAR 1998-Messungen. Eine Klassifizierung in verschiedene Intervalle der potentiellen Temperatur erfolgt durch verschiedene Symbole.

paar Monate. Das F-12 - Mischungsverhältnis von 480 pptv (siehe Abbildung 3.2 bei 370 K) war deutlich, ca. 18 pptv, unterhalb dem aus dem gemessenen N_2O -Mischungsverhältnis und einer N_2O -F12 - Korrelation berechneten F-12 - Mischungsverhältnis. Die verwendete N_2O -F12 - Korrelation hat Bujok (1998) aus den STREAM 1997 - Messungen in der arktischen untersten Stratosphäre berechnet. Aus dem gemessenen SF_6 -Mischungsverhältnis kann man nach Volk (1997) direkt das Alter einer Luftmasse bestimmen, wenn man davon ausgeht, daß seit dem Eintrag in die Stratosphäre keine Mischung stattgefunden hat. Für einen Meßwert von 3,51 pptv am 11.2.1997 ergibt sich ein Alter von $1,8 \pm 0,2$ Jahren (einschließlich Meßpräzision und Absolutmeßgenauigkeit), d.h. der Eintrag in die Stratosphäre kann zwischen Februar 1995 und Juli 1995 erfolgt sein.

Kapitel 5

Dehydrierungsprozesse im Bereich $300 \leq \theta \leq 380 \text{ K}$

In diesem Kapitel werden Messungen in ziemlich trockenen Luftmassen diskutiert. Da keine signifikante chemische Abbaureaktion von H_2O in der Tropo- und Stratosphäre bekannt ist, kann den Luftmassen dort nur durch Dehydrierungsprozesse (Eisteilchenbildungs- und nachfolgende Sedimentationsprozesse) H_2O entzogen werden. Die Untersuchung dieser Prozesse, die in kalten Tropopausenregionen ($T < 200 \text{ K}$, $300 \leq \theta \leq 335 \text{ K}$) nachgewiesen wurden, war ein Ziel der POLSTAR-Messungen.

Die Flüge, bei denen teilweise in kalten Tropopausenregionen geflogen wurde (970124, 970206a/b, 980121, 980125, 980126a/b) und dort entweder große Eisteilchen (Radius $> 4 \mu\text{m}$) oder dehydrierte Luftmassen auftraten, werden in Abschnitt 5.1 diskutiert.

Im Abschnitt 5.2 wird für ein Filament (mit ca. 40 km horizontaler Ausdehnung) trockener und relativ warmen Luftmassen am 25.03.1997 in der Mischungsschicht mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien gezeigt, daß diese am 21.03.1997 in der Nähe einer hohen und kalten Tropopause dehydriert wurden.

In extrem trockenen Luftmassen in der untersten Stratosphäre ($\mu_{\text{H}_2\text{O}} < 4 \text{ ppmv}$, $T > 210 \text{ K}$, $340 \leq \theta \leq 380 \text{ K}$) konnten weder zum Meßzeitpunkt noch mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien Dehydrierungsprozesse, die nur wenige Tage zuvor hätten erfolgt sein müssen, nachgewiesen werden. Mit Hilfe einer Statistik von ECMWF-Temperaturen wird in Abschnitt 5.3 untersucht, ob diese Luftmassen in Abhängigkeit von der potentiellen Temperatur eher lokal in der untersten Stratosphäre mittlerer und hoher Breiten ($35\text{-}90^\circ\text{N}$) oder am Subtropen-Jet ($15\text{-}35^\circ\text{N}$) dehydriert worden sind.

5.1 Kalte Tropopausenregionen im arktischen Winter

Die arktische Tropopause ist kalt, wenn das aus der Temperatur und dem Druck berechnete Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis kleiner oder gleich den dort auftretenden H_2O -Mischungsverhältnissen von 10-32 ppmv (siehe Tabelle 4.1) ist. Der Einfluß von kalten Tropopausenregionen auf H_2O - O_3 - Korrelationen wird in Abbildung 5.1 anschaulich dargestellt. Die Meßwerte der Flüge

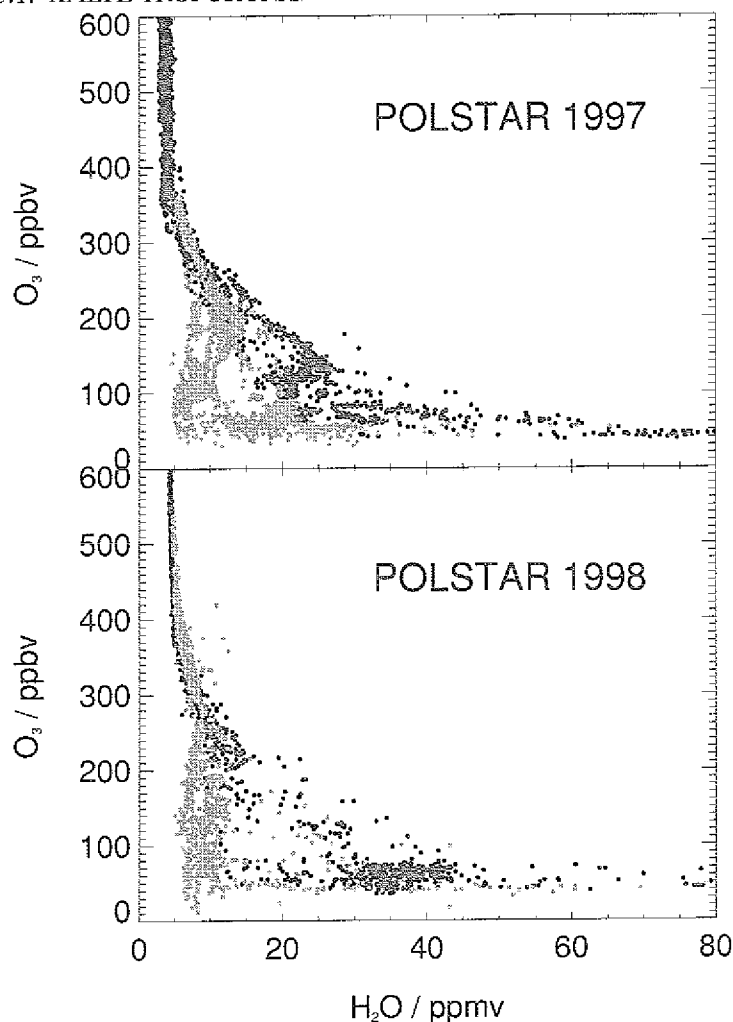


Abbildung 5.1: Die H_2O – O_3 -Korrelationen der POLSTAR-Messungen; 1997: 970124, 970206a/b in grau und 970128, 970130, 970204 in schwarz; 1998: 980121, 980125, 980126a/b in grau und 980129, 970201, 980204a/b in schwarz.

in diesen Regionen (970124, 970206a/b, 980121, 980125, 980126a/b) sind durch graue Punkte und die der übrigen Flüge (970128, 970130, 970204, 980129, 980201, 980204a/b) durch schwarze Punkte gekennzeichnet, wobei die POLSTAR 1997 - Daten im oberen Teil und die POLSTAR 1998 - Daten im unteren Teil geplottet sind. Deutlich erkennt man, daß in kalten Tropopausenregionen, in Luftmassen mit einem O_3 - Mischungsverhältnis von 50 bis 100 ppbv, signifikant niedrigere H_2O - Mischungsverhältnisse (ca. 5-15 ppmv) gemessen wurden als bei den übrigen Flügen in relativ warmen Tropopausenregionen, wo H_2O - Mischungsverhältnisse von ca. 15-40 ppmv gemessen wurden. Die ungewöhnlich niedrigen gemessenen H_2O -Mischungsverhältnisse im Vergleich zu den nach der H_2O - O_3 - Korrelation erwarteten Werten sind ein Hinweis darauf, daß diesen Luftmassen durch Eisteilchenbildungs- und Sedimentationsprozesse H_2O entzogen wurde. In den nächsten Unterabschnitten (5.1.1-5.1.5) wird durch Vergleich der Zeitreihen von gemessenen Gesamt - H_2O - Mischungsverhältnissen und berechneten Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnissen über Eis gezeigt, wann Luftmassen dehydriert waren und wann sogar noch Eisteilchen ($r > 4\mu\text{m}$) in diesen vorhanden wa-

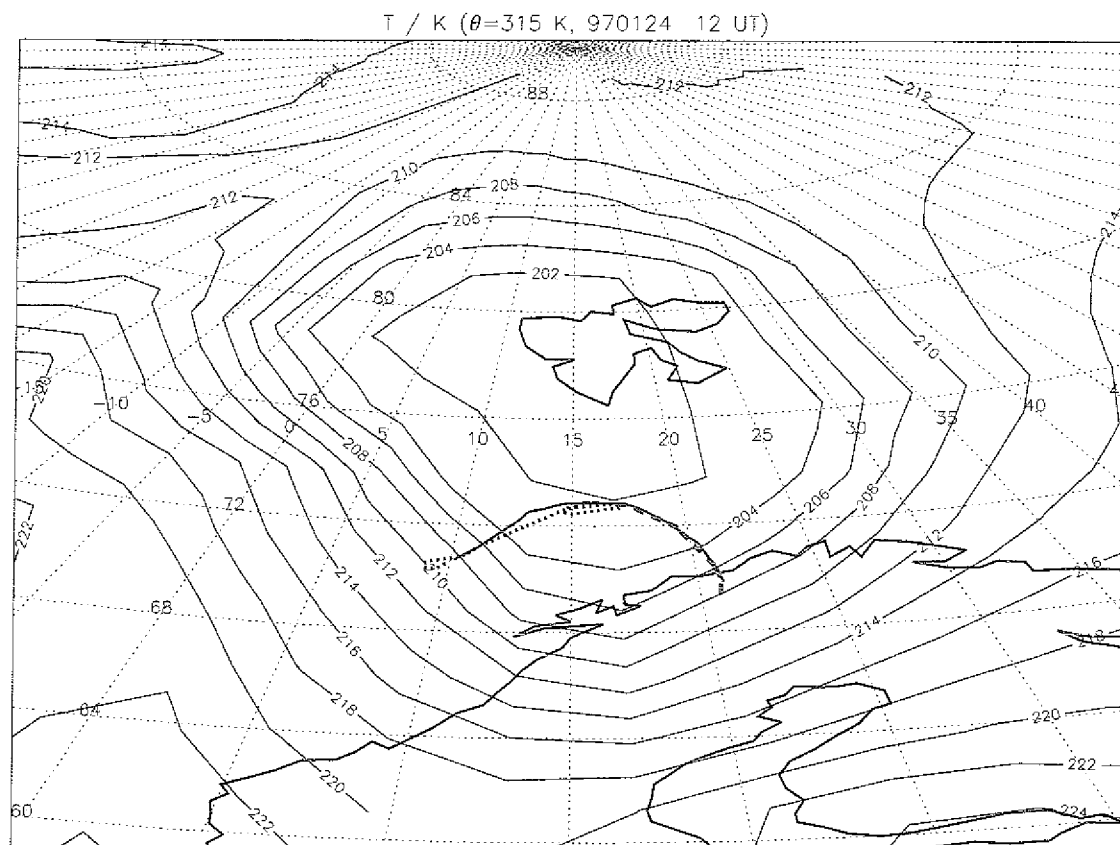


Abbildung 5.2: Die Temperaturen der 315 K Isentrope interpoliert aus UKMO-Daten am 24.01.1997 um 12 UTC. Die Flugroute, die aus drei Flugniveaus (197 hPa, 179 hPa, 170 hPa) besteht, ist gekennzeichnet durch —, ···, ---.

ren.

In den ersten beiden Unterabschnitten werden die drei Flüge (970124, 970206a/b) der POLSTAR 1997-Kampagne beschrieben, die zum Teil in kalten Tropopausenregionen durchgeführt wurden. Zu diesen Flügen sind auch Konturen von Temperaturen aus UKMO-Daten des entsprechenden Tages um 12 UTC (Universal Time Clock) auf einer Isentrope geplottet, um die Größe des jeweiligen Kaltgebietes aufzuzeigen. Die Flüge (980121, 980125, 980126a/b) der POLSTAR 1998-Kampagne folgen in den Unterabschnitten 5.1.3-5.1.5.

5.1.1 Der Flug (970124) am 24.01.1997

Nach der Vorhersage war ein Kaltgebiet mit Temperaturen von weniger als 203 K zwischen dem 200 hPa und 150 hPa Niveau am 24.01.1997 in Reichweite von Kiruna. Der Flug wurde zwischen 11 und 14 UTC auf drei Flugniveaus (197 hPa, 178 hPa, 170 hPa), die im Temperaturenplot der 315 K - Isentrope (Abbildung 5.2) eingezeichnet sind, möglichst parallel zum aus westlichen Richtungen wehenden Wind durchgeführt.

Kalte Tropopausenregionen treten dort, wo die Tropopause hoch ist, durch abgekühlte adiabatisch gehobene Luftmassen auf. Trajektorienrechnungen mit Hilfe von ECMWF-Daten (B. Naujokat, pers. Mitteilung) zu den kalten Luftmassen am

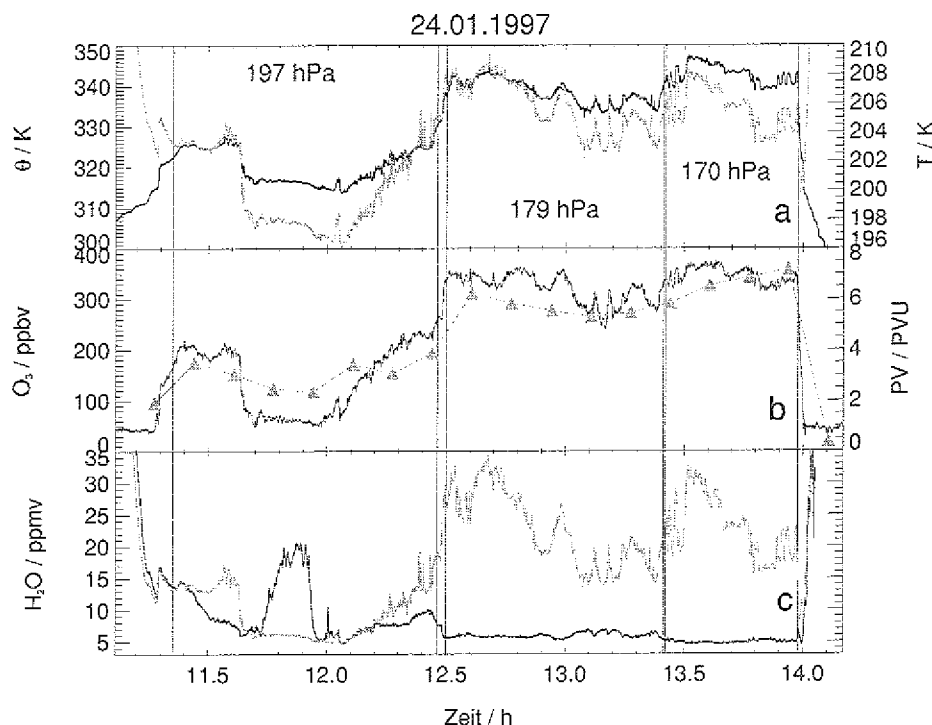


Abbildung 5.3: Zeitreihen des Fluges 970124: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vortizität aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

24.01.1997 zeigen, daß diese Luftmassen innerhalb von 50 Stunden von dem 300 hPa-Niveau auf das 200 hPa-Niveau gehoben wurden. Auf der Bodenwetterkarte vom 24.01.1997 um 12 UTC erkennt man einen Tiefdruckwirbel an der Ostküste Grönlands ($68^\circ N 30^\circ W$), dessen zugehörige Warmfront sich bis $80^\circ N$ zwischen Grönland und Spitzbergen vorgeschoben hat und dessen nachfolgende Kaltfront sich noch westlich von $0^\circ W$ befand. Nach Liljequist (1984, S.284) kann die hohe und kalte Tropopause an der Vorderseite einer Zyklone (über dem Warmluftsektor) und die tiefe warme Tropopause an der Rückseite folgendermaßen erklärt werden: Die Warmluft wird beim Aufgleiten über die Warmfront gehoben, während die Kaltluft auf der Rückseite zusammensinkt, da sie während ihrer Strömung sich immer mehr in horizontaler Richtung ausbreitet und daher an Mächtigkeit abnimmt.

Die Zeitreihen einiger gemessener Spurengase dieses Fluges sind in Abbildung 5.3 dargestellt. Die kälteste Luftmasse mit einem Minimum von 196 K (Abbildung 5.3a) wurde auf dem 197 hPa - Niveau zwischen 11:40 und 12:10 UTC durchflogen. In diesem Zeitraum wurden Ozonmischungsverhältnisse von 50-80 ppbv gemessen (Abbildung 5.3b), was auf nicht-stratosphärische Luftmassen hindeutet. Die potentielle Vortizität (PV) entlang der Flugroute (Abbildung 5.3b) hat ein lokales Minimum von etwa 2,5 PVU zwischen 11:45 und 12:00 UTC. Geht man von 1,5-4 PVU an der Tropopause aus (siehe Kapitel 1.1), dann werden die durchflogenen Luftmassen als tropopausennah identifiziert.

Die H_2O -Mischungsverhältnisse (Abbildung 5.3c) erreichten in dem betrachteten Zeitraum teilweise bis zu 20 ppmv (11:45 - 11:57 UTC) und auch ein Minimum von 5 ppmv um 12:04 UTC. Dies sind bereits die nach Gleichung (2.7) korrigierten H_2O -Mischungsverhältnisse, denn wenn Eisteilchen in den Einlaß gelangen, dann ist die Luft im Einlaß gegenüber der Außenluft je nach Verhältnis der Anströmgeschwindigkeit zur Strömungsgeschwindigkeit im Einlaß mit Eisteilchen angereichert (siehe Kapitel 2.2.4). Als Aspirationkoeffizient wurde der Wert 7,8 verwendet, der für den Zeitraum 11:40 bis 12:10 UTC mit Hilfe eines kommerziellen Softwarepaketes berechnet wurde.

Das aus den gemessenen Druck- und Temperaturdaten berechnete Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis ist in Abbildung 5.3c eingezeichnet. Da das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis dem maximalen H_2O -Mischungsverhältnis in der Gasphase entspricht, ist die mit dem für Gesamtwassermessungen konzipierten FISH gemessene Erhöhung von 11:45 bis 11:57 UTC durch Eisteilchen hervorgerufen, die im beheizten Einlaß verdampft sind (vergleiche Kapitel 2.2.4). Dies wird durch Messungen (mit MASP, siehe Tabelle 3.4a) der Gesamtteilchenkonzentration und deren Größenverteilung bestätigt (Feigl, 1998). Ein Lyman - α - Absorptions - Hygrometer (Hersteller: Buck Research), welches zur Grundausstattung der Falcon gehört und H_2O -Mischungsverhältnisse von mehr als 20 ppmv in der Gasphase relativ genau messen kann, hat zumindest deutlich weniger als 20 ppmv H_2O in der Gasphase von 11:40 bis 12:10 UTC gemessen. Von 12:04 bis 12:12 UTC stimmen die Gesamt- H_2O -Messungen (5-7ppmv) mit den Sättigungswasserdampfmischungsverhältnissen überein; folglich sind aus diesen Luftmassen die größeren Eisteilchen bereits sedimentiert.

Auf den beiden oberen Flugniveaus (179 hPa, 170 hPa) wurden keine Partikel- und Sedimentationsprozesse beobachtet. Die Ozonmessungen mit 250-380 ppbv und die PV mit 5-7 PVU zeigen, daß deutlich oberhalb der Tropopause geflogen wurde, wo das gemessene H_2O -Mischungsverhältnis (4,5-7 ppmv) maximal 50% des Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisses über Eis betrug, so daß Eispartikel sich dort nicht bilden konnten (siehe Schiller 1999, Feigl 1999, Meilinger, 1999).

5.1.2 Die Flüge (970206a/b) am 06.02.1997

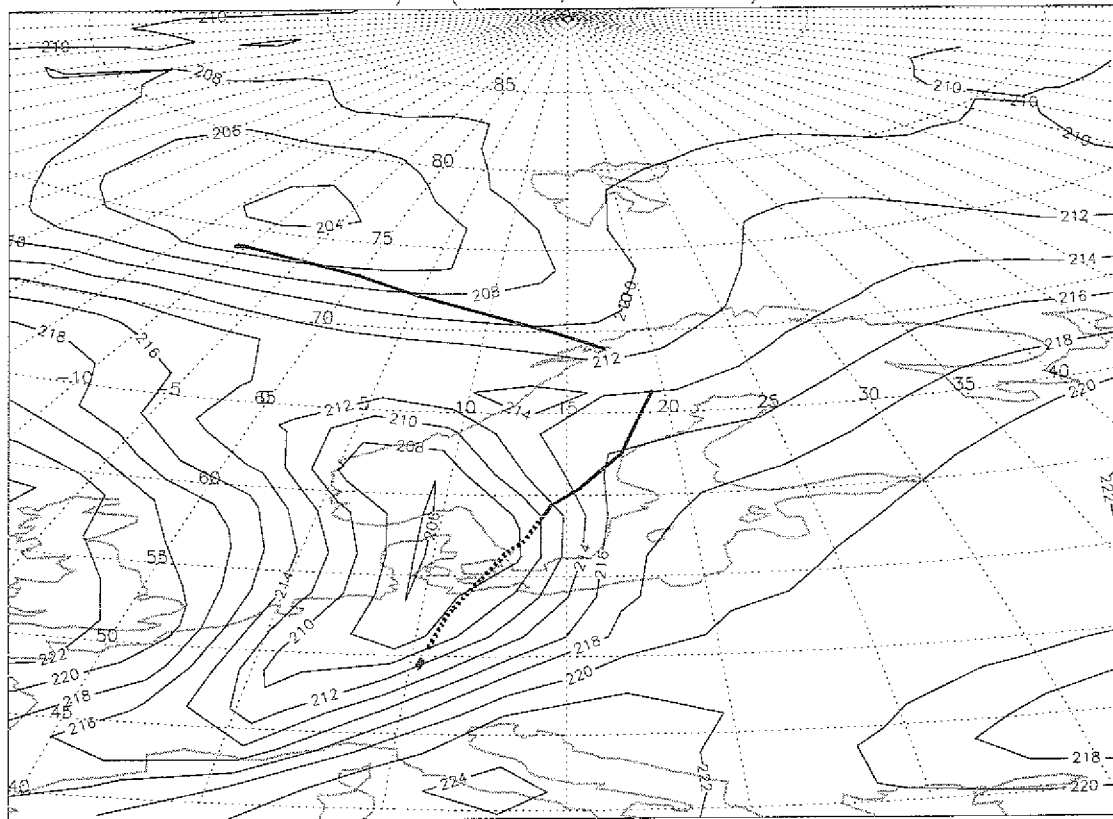
T / K ($\theta=320$ K, 970206 12 UT)

Abbildung 5.4: Die Temperaturen der 320 K Isentrope interpoliert aus UKMO-Daten am 06.02.1997 um 12 UHR (UT). Die Flugrouten, die aus einem (240 hPa) und drei Flugniveaus (240 hPa, 215 hPa, 330 hPa) bestehen, sind gekennzeichnet durch —, ···, ---.

Diesmal war nach der Vorhersage ein Kaltgebiet mit Temperaturen von weniger als 204 K auf der 240 hPa Isobare zwischen 6 UTC und 12 UTC bei 10°W75°N zu erwarten. Der Flug, dessen Route in Abbildung 5.4 von Kiruna aus in nordwestlicher Richtung eingezeichnet ist, wurde zwischen 7:30 und 11:30 UTC auf der 240 hPa Isobare durchgeführt.

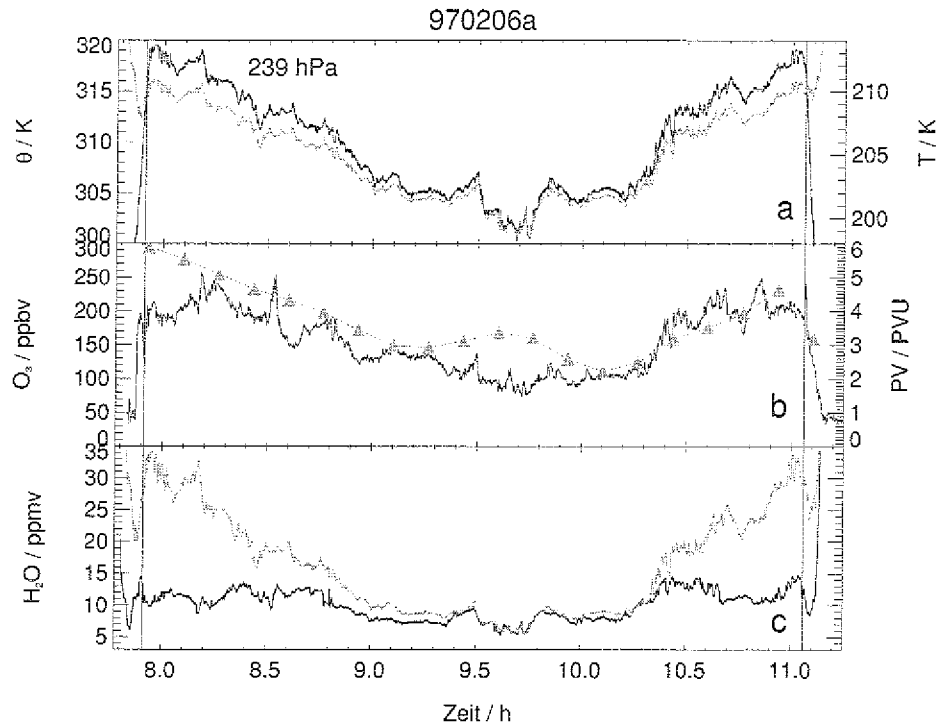


Abbildung 5.5: Zeitreihen des Fluges 970206a: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Die Zeitreihen einiger gemessener Tracer dieses Fluges sind in Abbildung 5.5 dargestellt. Temperaturen von weniger als 204 K wurden zwischen 9:00 und 10:20 UTC gemessen (Abbildung 5.5a). Die in diesem Zeitraum gemessenen Ozonmischungsverhältnisse von 80-130 ppbv und die PV von 2-3 PVU (siehe Abbildung 5.5b) deuten an, daß dies tropopausennahe Luftmassen waren. Das gemessene Gesamt- H_2O -Mischungsverhältnis entsprach nahezu dem berechneten Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis; d.h., es waren keine größeren Eisteilchen mehr in der Luftmasse vorhanden.

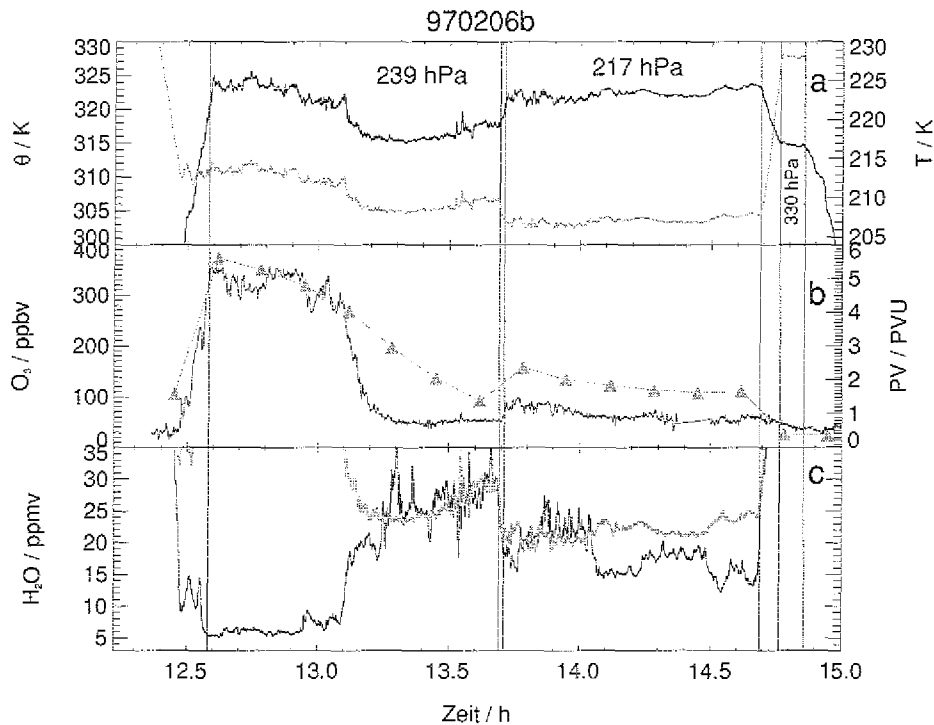


Abbildung 5.6: Zeitreihen des Fluges 970206b: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis.

Der Transferflug (Kiruna-Oberpfaffenhofen) 970206b lieferte einen Breitenschnitt der gemessenen Spurengasmischungsverhältnisse, und es wurde diesmal eine relativ kalte Tropopausenregion, mit einem Temperaturminimum von etwa 206 K (siehe Abbildung 5.6a), in mittleren Breiten durchflogen. Die Konturen der auf der 320 K Isentrope interpolierten Temperaturen am 6.02.1997 um 12 UTC in Abbildung 5.4 zeigen, daß über Ostdeutschland der Rand des Kaltgebietes durchflogen wurde. Der Eintritt erfolgte etwa um 13:10 UTC und verlassen wurde es um 14:40 UTC (siehe Abbildung 5.6a). Gleichzeitig waren das Ozonmischungsverhältnis mit 50-80 ppbv und die PV mit 1,5-2,5 PVU (siehe Abbildung 5.6b) in diesem Kaltgebiet relativ niedrig, was ein Hinweis auf Luftmassen der Tropopausenregion ist. Das H_2O -Mischungsverhältnis variierte dort zwischen 14 und mehr als 35 ppmv (siehe Abbildung 5.6c) und war teilweise höher als das berechnete Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis, z.B. in den Zeiträumen 13:15-13:20, 13:25-13:30 und 13:50-14:05 UTC. Da diese Erhöhung im H_2O -Mischungsverhältnis offensichtlich durch Eisteilchen in Wolken verursacht wurde, ist für diese Zeiträume ein Aspirationskoeffizient von 6,9 berechnet worden und das gemessene H_2O -Mischungsverhältnis nach Gleichung (2.7) korrigiert worden.

Sporadisch wurden relativ niedrige H_2O -Mischungsverhältnisse von 14 ppmv (signifikant unterhalb dem lokalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis) in eisteilchenfreien Luftmassen gemessen (z.B. 13:43-13:48 UTC). Dies waren wahr-

scheinlich Luftmassen, die außerhalb von Wolken aus größeren Höhen abgestiegen sind und aus denen kurz vorher bei noch niedrigeren Temperaturen sämtliche großen Eisteilchen sedimentiert sind.

5.1.3 Der Flug (980121) am 21.01.1998

Am 21.01.1998 trat aufgrund einer ziemlich hohen Tropopause ein ausgedehntes Kaltgebiet auf dem 200 hPa-Niveau auf, dessen Kern mit vorhergesagten Minimumtemperaturen von weniger als 201 K südlich der Lofoten bei 65°N lag. Dieses Kaltgebiet wurde auf dem 200 hPa-Niveau parallel zum Wind von Osten startend bei 17,3°E bis 4°E und zurück bis 17,3°E durchflogen.

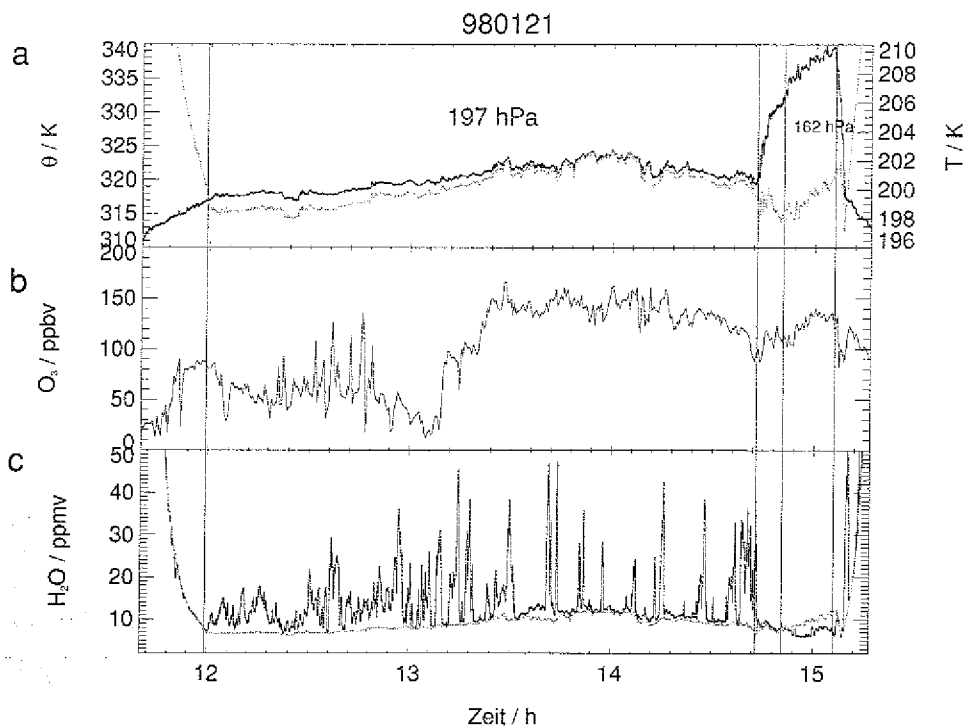


Abbildung 5.7: Zeitreihen des Fluges 980121: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Die gemessenen Temperaturen (Abbildung 5.7a) sind sogar teilweise niedriger als 198 K (12:20-12:24 UTC, 14:42 UTC). Der gesamte Flug, auch von 14:50-15:06 UTC auf dem 162 hPa-Niveau, fand in der Troposphäre bzw. im Tropopausenbereich statt; denn die Ozonmischungsverhältnisse wichen mit 20-150 ppbv (Abbildung 5.7b) kaum von dem für die POLSTAR 1998-Messungen bestimmten Tropopausenwert von 75 ppbv (Tabelle 4.1) ab. Außerdem sind die gemessenen H_2O -Maxima von 20-50 ppmv (Abbildung 5.7c), die größer oder gleich dem während der POLSTAR 1998-Kampagne an der Tropopause bestimmten Wert von 10-22 ppmv (Tabelle 4.1) sind, ein Indiz für Messungen an der Tropopause bzw. in der oberen Troposphäre.

Das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis war sehr niedrig, meist niedriger als das gemessene Gesamt-H₂O-Mischungsverhältnis. Offensichtlich bestand dann das gemessene H₂O teilweise aus Eispartikeln. Wenn das Gesamt-H₂O-Mischungsverhältnis dem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis entsprach, ist in wolkenfreien Luftmassen geflogen worden, die ihre Eispartikel durch Sedimentation verloren haben. Die starke Variation im H₂O-Mischungsverhältnis wurde durch einen raschen Wechsel von Wolken und wolkenfreien Luftmassen verursacht. Als optimaler Aspirationskoeffizient wurde der Wert 6,8 für das 197 hPa - Niveau berechnet. Auf dem 162 hPa-Niveau lag das gemessene H₂O - Mischungsverhältnis nicht oberhalb dem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis (Abbildung 5.7: 14:50-15:06 UTC), so daß keine Eispartikel in den Luftmassen vorhanden gewesen sein können und deswegen auch keine Korrektur nach Gleichung (2.7) durchgeführt werden mußte.

5.1.4 Der Flug (980125) am 25.01.1998

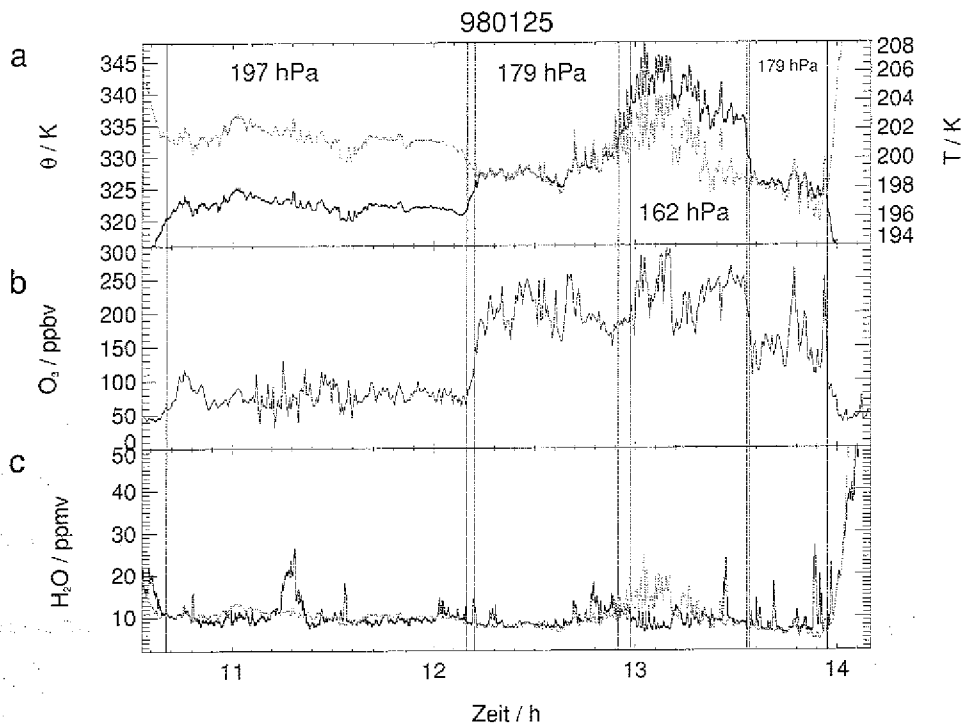


Abbildung 5.8: Zeitreihen des Fluges 980125: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H₂O, (grau) Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis.

Am 25.01.1998 befand sich nach der Vorhersage ein Kaltgebiet auf dem 200 hPa-Niveau mit zwei Zentren, eines bei 60°N über Norwegen und ein zweites bei 58°N über Schweden. Der Flug wurde weiter nördlich, am Rand des Kaltgebietes, parallel zum Wind durchgeführt, denn dort waren die vorhergesagten Windgeschwindigkeiten nahezu doppelt so hoch (etwa 20 m/s) und senkrecht zum norwegischen Gebirge, so daß Leewellen zu erwarten waren.

Die Zeitreihe des Ozonmischungsverhältnisses in Abbildung 5.8b zeigt, daß im ersten und letzten Flugabschnitt (10:40-12:10 UTC, 197 hPa; 13:33-13:57 UTC, 179 hPa) überwiegend im Tropopausenbereich geflogen wurde, denn die Werte variierten meist zwischen 50 und 120 ppbv. Das Gesamt - H₂O - Mischungsverhältnis (Abbildung 5.8c) entspricht in diesem Zeitraum meist dem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis von etwa 10 ppmv, was ein Hinweis auf wolkenfreie Luftmassen ist, aus denen Eisteilchen sedimentiert sind.

Aufgrund von Eispartikeln in Wolken ist das Gesamt-H₂O-Mischungsverhältnis z.B. von 11:14-11:18 und 13:54-14:00 UTC auf mehr als 25 ppmv angestiegen. Die optimalen Aspirationskoeffizienten, die für alle vier Niveaus berechnet wurden, lauten: 6,7 (197 hPa); 6,9 (179hPa); 7,6 (162 hPa); 7,3 (179 hPa).

Ozonmischungsverhältnisse von 150-250 ppbv deuten an, daß von 12:12-13:33 UTC etwas oberhalb der Tropopause geflogen wurde (Niveaus: 179 hPa, 162 hPa). Teilweise wurde auch dort ein im Vergleich zum Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis erhöhtes Gesamt-H₂O-Mischungsverhältnis gemessen; das Maximum lag auf dem höheren Niveau bei etwa 24 ppmv in Luftmassen mit einer potentiellen Temperatur von ca. 337 K.

5.1.5 Die Flüge (980126a/b) am 26.01.1998

Das Kaltgebiet, das im vorangehenden Flug diskutiert wurde, hat sich nach Norden verschoben. Es wurde wieder ein Flug (Kiruna-Stockholm a: 197, 179 hPa; Stockholm-Kiruna b: 179 hPa) parallel zum Wind, senkrecht zum norwegischen Gebirge und etwas südlicher als am 25.01.1998 durchgeführt.

Ozonmischungsverhältnisse von mehr als 200 ppbv (Abbildung 5.9b) deuten an, daß der Flug 980126a auf beiden Niveaus (197, 179 hPa) oberhalb der Tropopause stattfand. Das H₂O-Mischungsverhältnis blieb auf beiden Niveaus unterhalb von 17 ppmv (Abbildung 5.9c). Von 12:55 bis 13:05 UTC war das Gesamt-H₂O-Mischungsverhältnis deutlich höher als das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis. Für diesen Zeitraum wurde ein optimaler Aspirationskoeffizient von 7,0 berechnet.

Während des Rückfluges (Stockholm-Kiruna) 980126b wurden die niedrigsten Temperaturen (197 K) noch vor Erreichen des 179 hPa-Niveaus gemessen (15:36-15:42 UTC, Abbildung 5.10a). Nur in diesem Zeitraum ist teilweise in Luftmassen geflogen worden, die Eispartikel enthielten; der Aspirationskoeffizient änderte sich in diesem Zeitraum von 6,7 auf 7,4.

Auf dem 179 hPa-Niveau blieb das Gesamt-H₂O-Mischungsverhältnis mit maximal 13 ppmv deutlich unterhalb dem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis (Abbildung 5.10c). Das Ozonmischungsverhältnis blieb auf diesem Niveau oberhalb von 280 ppbv (Abbildung 5.10b).

In Tabelle 5.1 sind alle Flüge aufgelistet, bei denen Luftmassen mit Eispartikeln bzw. Luftmassen, aus denen Eispartikel sedimentiert sind, nachgewiesen wurden. Während der Flüge 970124 und 980126a wurden Eiswolken durchflogen, die horizontal etwa 130-140 km ausgedehnt waren (200 m/s · 12 min). Bei den Flügen 980125 und 980126b waren diese Eiswolken mit etwa 50 km (200 m/s · 4 min)

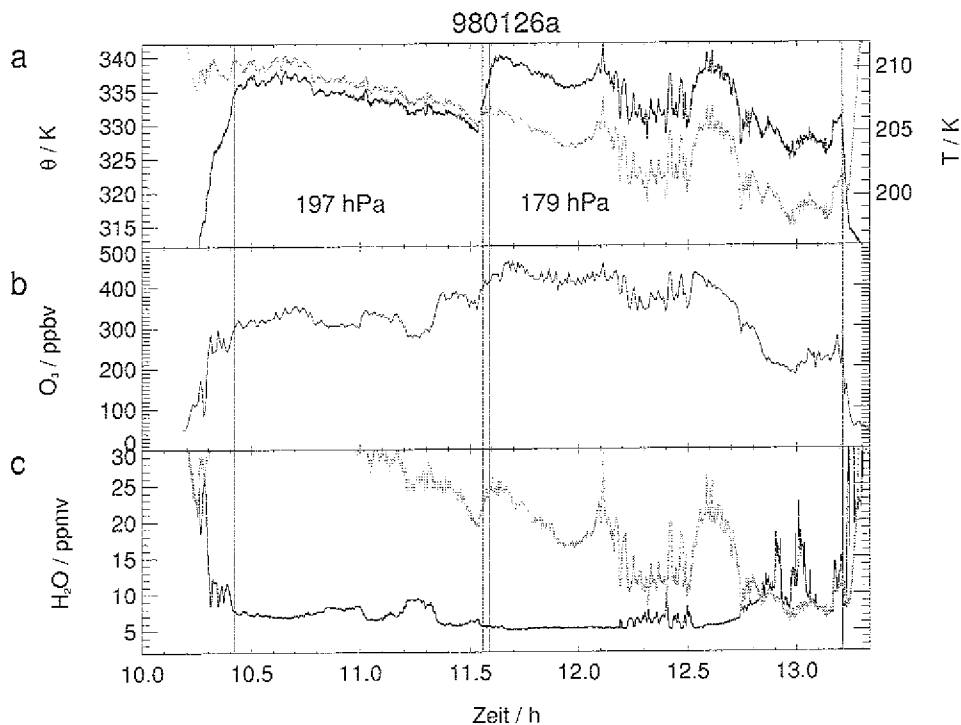


Abbildung 5.9: Zeitreihen des Fluges 980126a: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

horizontaler Ausdehnung bedeutend kleiner. Gemeinsam haben diese Flüge, daß sowohl zusammenhängende Eiswolken als auch Luftmassen durchflogen wurden, aus denen bereits sämtliche Eispartikel sedimentiert waren (hier entsprach das gemessene H_2O -Mischungsverhältnis dem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis). Die höheren O_3 -Mischungsverhältnisse in den dehydrierten Luftmassen deuten an, daß dies Luftmassen der untersten Stratosphäre oberhalb der Tropopause waren, während die Eiswolken überwiegend direkt an der Tropopause bzw. in der oberen Troposphäre auftraten. Der Flug 970206a führte nur durch Luftmassen, aus denen Eispartikel bereits sedimentiert waren. Bei den Flügen 970206b und 980121 trat ein häufiger Wechsel zwischen Luftmassen auf, die Eispartikel enthielten, und Luftmassen, die keine Eispartikel enthielten, so als ob sich in dem Meßgebiet viel kleine Wolken in kurzen horizontalen Abständen nebeneinander befanden.

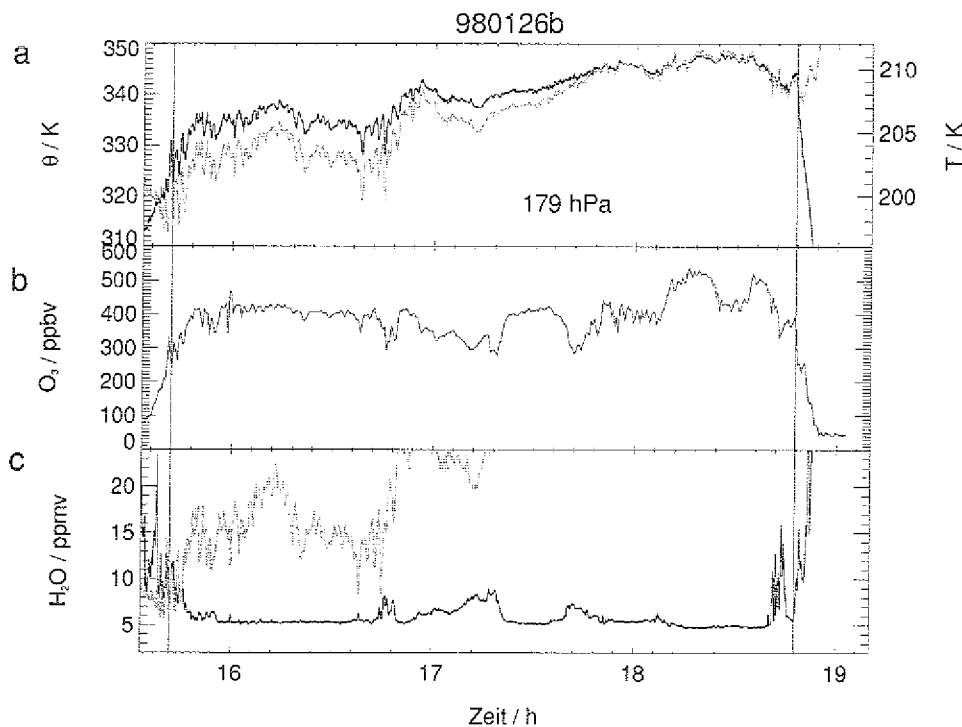


Abbildung 5.10: Zeitreihen des Fluges 980126b: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampfmisungsverhältnis über Eis.

5.2 Transport dehydrierter Luft in der Mischungsschicht

Im vorhergehenden Abschnitt wurden Flugzeugmessungen in kalten und horizontal weit ausgedehnten (>250 km) Tropopausenregionen untersucht, in denen zur Zeit der Messung oder unmittelbar zuvor Eisteilchenbildungs- und Sedimentationsprozesse stattgefunden haben.

Bei anderen Flugzeugmessungen traten innerhalb der Mischungsschicht Filamente von relativ warmen und ungewöhnlich trockenen Luftmassen (im Vergleich zu den nach den gemessenen N_2O - und O_3 -Mischungsverhältnissen erwarteten H_2O -Mischungsverhältnissen) auf. Am 25.03.1997 wurde zu Beginn des Fluges auch solch ein Filament (ca. 40 km Durchmesser) trockener und relativ warmer Luft in der Mischungsschicht durchflogen, wobei für diese Luftmassen mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien ein Dehydrierungsprozeß vier Tage zuvor nachgewiesen werden konnte.

Flug	Charakteristika	Meßzeit / UTC	H ₂ O / ppmv	θ / K	O ₃ / ppbv
970124	Eispartikel dehydr. Luft	11:45-11:57	20	315-317	50-80
		12:04-12:12	5-8	315-318	80-150
970206a	dehydr. Luft	9:24-10:20	5,5-10	302-308	80-130
970206b	Eispartikel/ dehydr. Luft	13:15-14:02	14-35	315-324	45-90
980121	Eispartikel/ dehydr. Luft	12:00-14:56	6-50	317-324	20-150
980125	Eispartikel dehydr. Luft	11:14-11:18	25	324	50-120
		10:40-13:56	7-10	320-340	50-250
980126a	Eispartikel dehydr. Luft	12:53-13:04	16	325-330	180-220
		13:04-13:10	7-9	326-328	200-220
980126b	Eispartikel dehydr. Luft	15:36-15:40	16	318-322	100-200
		15:40-15:46	8-11	322-331	200-330

Tabelle 5.1: Charakterisierung der Luftmassen in kalten Tropopausenregionen.

5.2.1 Der Transferflug (970325) Kiruna → Amsterdam

Meteorologische Situation

Östlich von Nordskandinavien befand sich ein Tiefdruckgebiet. Dieses verursachte eine sehr niedrig liegende Tropopause über Nordskandinavien (etwa bei 450 hPa). Mitteleuropa stand unter dem Einfluß eines Azorenhochs, so daß die Tropopause über Amsterdam bei etwa 220 hPa lag. Während des Transferfluges Kiruna-Amsterdam wurde der größte Gradient in der Tropopausenhöhe bei etwa 66°N um 10:12 UTC überflogen (Anstieg von 400 auf 260 hPa zwischen 67,5 und 65,5°N). Die südlich von 66°N durchflogenen Luftmassen wurden von den USA nach Europa transportiert, während nördlich von 66°N der Luftmassenursprung arktisch war.

Zeitreihenanalyse

Die potentielle Temperatur schwankte auf dem 197 hPa-Niveau zwischen 337 und 345 K. Entsprechend wurden dort Temperaturen von 210 bis 216 K gemessen. Allmählich abnehmende O₃-Mischungsverhältnisse (siehe Abbildung 5.11b: 380 → 200 ppbv) und eine abnehmende PV (5,5 → 2,5 PVU) von 11:30 bis 12:30 deuten an, daß während des Fluges der Abstand zur Tropopause in der Mischungsschicht kontinuierlich sich verminderte. Die Mischungsverhältnisse der troposphärischen Spurengase, die antikorreliert zu denen von O₃ sind, erhöhten sich (CO: 30 → 60 ppbv, N₂O: 295 → 305 ppbv). Das H₂O-Mischungsverhältnis stieg in diesem Zeitraum von 5 auf etwa 15 ppmv an (siehe Abbildung 5.11d). Das aus der Temperatur und dem Druck berechnete Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis blieb während des gesamten Fluges oberhalb von 30 ppmv und war somit außerhalb des dargestellten Bereiches (4-18 ppmv).

Zwei markante Filamentierungen zeigen die Zeitreihen während des Aufstiegs von 10:04 bis 10:14 UTC. Einerseits waren Luftmassen teilweise relativ trocken

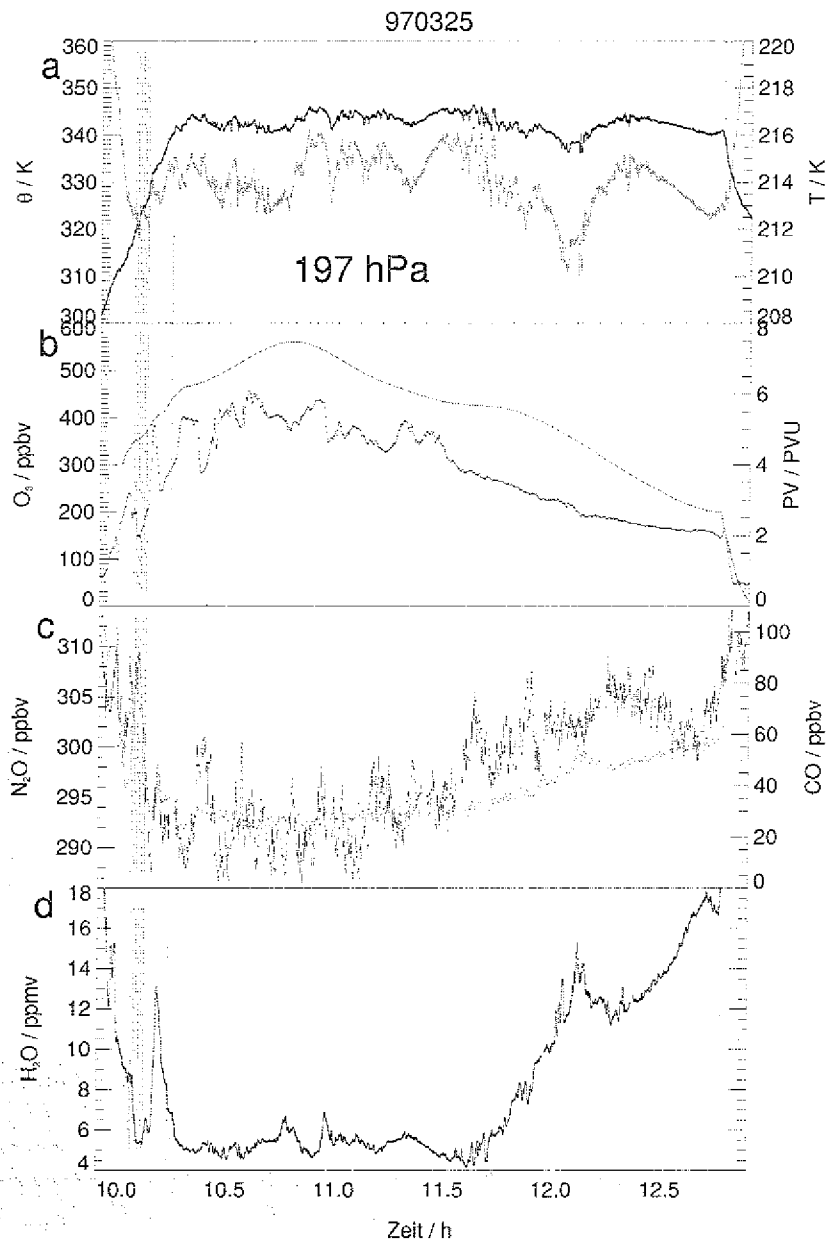


Abbildung 5.11: Zeitreihen des Fluges 970325: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) N_2O , (grau) CO d.) H_2O .

(siehe Abbildung 5.11d um 10:06 UTC: ca. 6 ppmv H_2O), als gleichzeitig das Ozonmischungsverhältnis mit 150 ppbv relativ niedrig war (siehe Abbildung 5.11b um 10:06 UTC). Auch die Mischungsverhältnisse der troposphärischen Spurengase (siehe Abbildung 5.11c: 80 ppbv CO , 308 ppbv N_2O) zu diesem Zeitpunkt deuten an, daß dies ein Filament tropopausennaher Luftmassen innerhalb der Mischungsschicht war. Die vom Modell berechnete Zeitreihe der potentiellen Vorticity zeigt dieses Filament nicht, sondern die PV ist im Zeitintervall 10:02-10:08 UTC von ca. 4,5 auf 5,0 PVU kontinuierlich angestiegen. Auch die gemessene potentielle Temperatur ist in diesem Zeitintervall angestiegen, von 318 auf 330 K (siehe Abbildung 5.11a). Andererseits wurden um etwa 10:10 UTC Wasserdampfmischungsverhältnisse von 13 ppmv in Luftmassen gemessen, in denen das O_3 -Mischungsverhältnis ca. 250 ppbv betrug. Die CO - und N_2O -Zeitreihen hatten dort ein lokales Maximum von 40 ppbv und 297 ppbv. Nach der mittleren H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1997-Daten zu urteilen, beträgt jedoch das mittlere H_2O -Mischungsverhältnis in Luftmassen mit einem N_2O -Mischungsverhältnis von 297 ppbv nur ca. 8 ppmv (siehe Abbildung 4.6) statt 13 ppmv, so daß dieses Filament nicht aus typischen Luftmassen der Mischungsschicht im arktischen Spätwinter bestand. Diese Luftmassen sind eher mit denen vergleichbar, die während der STREAM 1996-Kampagne gemessen wurden (siehe die mittlere H_2O - N_2O -Korrelation der STREAM 1996-Messungen in Abbildung 4.6). Wie im Mai 1996 am Jet-Stream in mittleren Breiten, müssen diese Luftmassen durch eine turbulente Einmischung von troposphärischen Luftmassen in die unterste Stratosphäre entstanden sein. Am Ort der Messung ist solch ein Eintrag unwahrscheinlich gewesen, da um 10:10 UTC etwa auf dem 212 hPa-Niveau geflogen wurde, also deutlich oberhalb der lokalen Tropopause (diese liegt bei 400-260 hPa).

5.2.2 Rückwärtstrajektorien zu einem Filament von dehydrierten Luftmassen

Da die Luftmassen des im Unterabschnitt 5.2.1 erwähnten Filaments (siehe Abbildung 5.11: 10:02:30-10:07:30 UTC) ähnliche Spurengasmischungsverhältnisse hatten wie die im Abschnitt 5.1 diskutierten dehydrierten Luftmassen in kalten Tropopausenregionen, wird anhand von Rückwärtstrajektorien überprüft, ob eine Dehydrierung einige Tage vorher stattgefunden hat. Die Rückwärtstrajektorien wurden von dem Königlich - Niederländischen Meteorologischen Institut (KNMI) anhand von ECMWF - Daten diabatisch (d.h. mit Berücksichtigung von Strahlung) gerechnet. Als Startpunkte wurden die potentielle Temperatur, Position des Flugzeuges und die Uhrzeit in Abständen von 5 Minuten entlang der Flugstrecke gewählt. Zwei dieser berechneten Trajektorien hatten als Startzeitpunkte 10:02:30 und 10:07:30 UTC, also genau die Grenzen des in Abbildung 5.11 grau markierten Zeitintervalles. Das gemessene H_2O -Mischungsverhältnis betrug zu diesen Zeitpunkten 8,8 und 6,5 ppmv, während man aus den gemessenen Temperaturen von 212,5 und 213,5 K auf der 318 und 328 K Isentrope Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis von 41 und 45 ppmv berechnet.

In Abbildung 5.12 sind die beiden Trajektorien eingezeichnet. Das entlang der Trajektorien im Stundenabstand berechnete Sättigungswasserdampfmischungsverhält-

25.3.97 (318 K, 328 K) – Trajectories

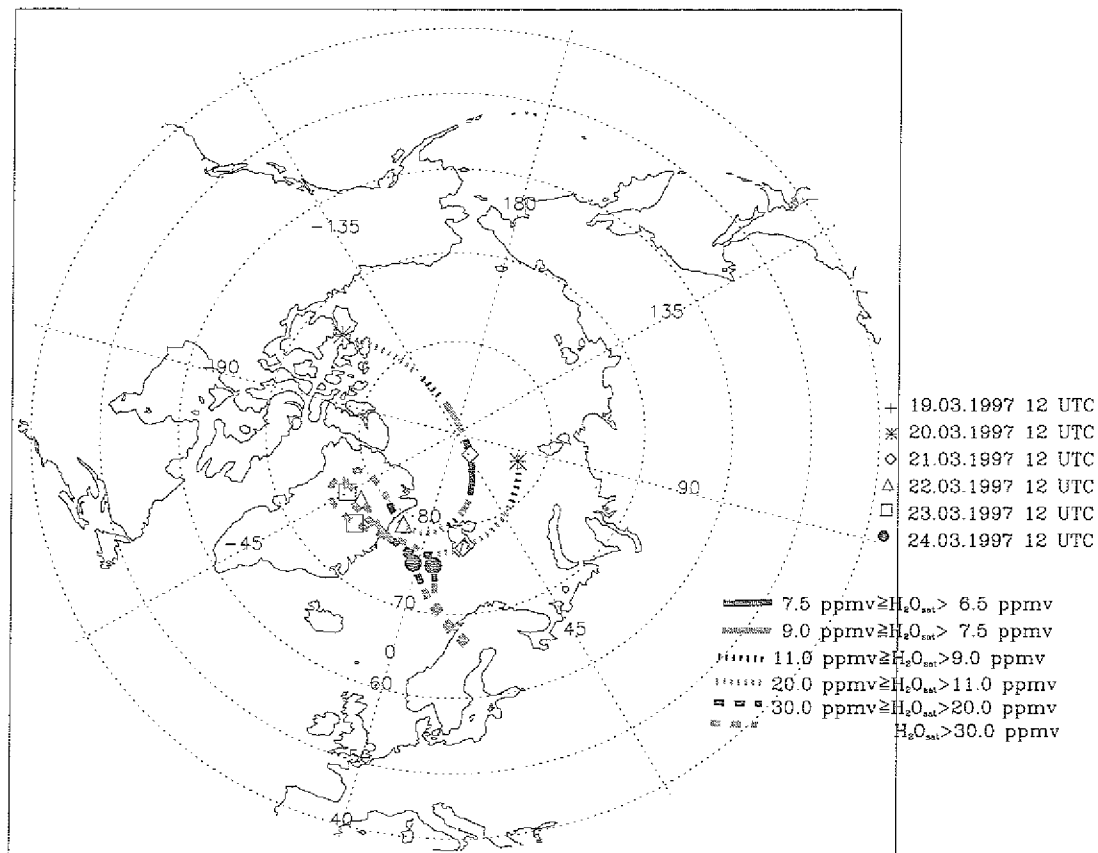


Abbildung 5.12: Rückwärtstrajektorien zu dem Flug 970325 (Kiruna - Amsterdam) um 10:02:30 und 10:07:30 UTC: Die Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnisse über Eis sind entlang der Trajektorien im Stundenabstand berechnet worden und durch unterschiedliche Farben gekennzeichnet. Für jeden Tag ist der Zeitpunkt 12:00 UTC durch ein extra großes Symbol gekennzeichnet.

nis über Eis ist durch unterschiedliche Linien und der Zeitpunkt 12 UTC jeden Tages durch ein extra großes Symbol gekennzeichnet. Man sieht deutlich, daß die berechneten Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnisse über Eis entlang der Trajektorien zwischen Nordskandinavien und Grönland größer als 20 ppmv waren (318 K Trajektorie: 25.03.1997 um 10:02:30 UTC bis 21.03.1997 um ca. 12 UTC, 328 K Trajektorie: 25.03.1997 um 10:07:30 UTC bis 22.03.1997 um 12 UTC). Bei weiterer Rückrechnung ist dieses Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis rapide abgesunken: Auf der 318 K Isentrope betrug es am 20.03.1997 von ca. 17:00 bis 12:00 UTC 9-11 ppmv und auf der 328 K Isentrope betrug es am 21.03.1997 von ca. 18:00 bis 11:00 UTC 6,5-7,5 ppmv. Die Ursache für diese niedrigen Temperaturen am 20. und 21.03.1997 in der Nähe des Nordpols war eine adiabatisch gehobene Tropopause.

Am Boden hatte sich am 20/21.03.1997 eine Warmfront von Grönland aus bis zum Nordpol vorgeschoben, wodurch die Tropopause (im stärksten Ausmaß über dem Nordpol) über dem Warmluftsektor gehoben wurde. Ähnlich wie am Jet-Stream

in mittleren Breiten hat sich am 20/21.03.1997 ein ausgeprägter Gradient in der Tropopausenhöhe vom Nordpol bis etwa 80°N zwischen 0 und 180°E eingestellt. Dadurch kann eine kleine räumliche Variation eines Trajektorienpunktes zu einer bemerkbaren Änderung des berechneten Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisses über Eis führen. Kleine Fehler in der Position und den Temperaturen der Trajektorien könnten demnach ein Grund für die höheren minimalen Werte (318 K Trajektorie: 10,2 ppmv, 328 K Trajektorie: 7,3 ppmv) im Vergleich zu den gemessenen H₂O - Mischungsverhältnissen von 8,8 und 6,5 ppmv um 10:02:30 und 10:07:30 UTC am 25.03.1997 sein.

5.3 Minimale H₂O-Mischungsverhältnisse (<4 ppmv)

Im Unterabschnitt 5.3.1 werden Messungen von trockenen Luftmassen im Bereich $343 \leq \theta \leq 370$ K anhand von Spurengasmessungen diskutiert. Da bei keiner dieser Messungen die Temperaturen sowohl zum Meßzeitpunkt als auch entlang einer 5-Tages-Rückwärtstrajektorie so niedrig waren, daß das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis weniger als 4 ppmv betrug, wird in Unterabschnitt 5.3.2 mit Hilfe einer Statistik von ECMWF-Temperaturen in verschiedenen Jahreszeiten untersucht, ob in mittleren und hohen Breiten (35-90°N) in der untersten Stratosphäre oder an der Tropopause am Subtropen-Jet lokale Dehydrierungsereignisse wahrscheinlicher sind.

5.3.1 Übersicht aller gemessenen minimalen H₂O-Mischungsverhältnisse

In Tabelle 5.2 sind für alle Messungen, bei denen das H₂O-Mischungsverhältnis niedriger als 4 ppmv war, die potentielle Temperatur, das H₂O-, das N₂O-, das O₃-(Flugzeugmessungen), das SF₆-(Ballonmessung) Mischungsverhältnis und die Flugbezeichnung aufgelistet.

Flugzeugmessungen				
θ / K	H ₂ O / ppmv	N ₂ O / ppbv	O ₃ / ppbv	Flug
343-365	3,5-4,0	280-306	400-800	970130
347-359	2,7-4,0	287-304	460-700	970204
353-356	3,5-4,0	271-283	530-680	970321
358-363	3,2-3,5	293-305	350-550	970128
362-369	2,5-3,5	278-286	320-400	960522
Ballonmessung				
θ / K	H ₂ O / ppmv	N ₂ O / ppbv	SF ₆ / pptv	Flug
370	3,2	295	3,51	970211

Tabelle 5.2: Die potentielle Temperatur, das H₂O-, das N₂O-, das O₃- (Flugzeugmessungen), das SF₆- (Ballonmessung) Mischungsverhältnis und die Flugbezeichnung von Messungen in extrem trockenen Luftmassen.

Die potentiellen Temperaturen in diesen Luftmassen zeigen, daß diese Luftmassen von der Obergrenze der lokalen Mischungsschicht (siehe Kapitel 4.2.2) oder der

„freien Stratosphäre“ oberhalb der Mischungsschicht stammen. Die relativ niedrigen N_2O -Mischungsverhältnisse in diesen Luftmassen verglichen mit den in Kapitel 4.2.1 bestimmten minimalen N_2O -Mischungsverhältnis der lokalen Mischungsschicht untermauern diese Feststellung (vergleiche das minimale N_2O - Mischungsverhältnis von 290 ppbv in der Mischungsschicht während der STREAM 1996-Messungen aus Kapitel 4.2.1 mit den Werten des Fluges 960522 in Tabelle 5.2; verführe mit den STREAM 1997-Daten [N_2O : 295 ppbv, Flug: 970321] und den POLSTAR 1997-Daten [N_2O : 302 ppbv, Flüge: 970128, 970130, 970204] ebenso). Die O_3 -Mischungsverhältnisse in diesen Luftmassen waren bei allen Flügen etwa so wie man es nach dem gemessenen N_2O - Mischungsverhältnis und der O_3 - N_2O - Korrelation (siehe Abbildung 4.5) der jeweiligen Kampagne erwarten würde. D.h. 1997 waren diese Luftmassen arktischen Ursprungs, während sie 1996 aus mittleren Breiten kamen.

Von dem Ballonflug am 11.02.1997 liegt zusätzlich eine SF_6 -Messung von 3,51 pptv in der trockenen Luftmasse vor. Geht man davon aus, daß seit dem Eintritt dieser Luftmassen in die Stratosphäre keine Mischung stattgefunden hat, entspricht dieses Mischungsverhältnis einem Alter von $1,8 \pm 0,2$ Jahren (Volk, 1997). In diesem Fall könnte der Eintrag troposphärischer Luftmassen in die Stratosphäre zwischen Februar 1995 und Juli 1995 an der tropischen Tropopause ($\theta = 380$ K) erfolgt sein mit nachfolgendem Transport in nördlichere Breiten, denn ein diabatisches Absinken auf 370 K wäre nur in Breiten möglich, wo die Abkühlung der Luftmasse durch Ausstrahlung während der Nacht gegenüber der Einstrahlung von der Sonne am Tag überwiegt. Andernfalls kann eine turbulente Einmischung von troposphärischer Luft mit einem höheren SF_6 - Mischungsverhältnis am Subtropen-Jet vor nicht all zu langer Zeit in ältere stratosphärische Luftmassen mit einem niedrigeren SF_6 -Mischungsverhältnis stattgefunden haben. Entweder wurden die Luftmassen direkt am Subtropen-Jet oder später im Winter in der untersten arktischen Stratosphäre dehydriert.

Die in Abschnitt 5.3.2 folgende Statistik von minimalen Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnissen über Eis in verschiedenen Breiten und Intervallen der potentiellen Temperatur soll prüfen, inwieweit die bisher erwähnten Troposphären - Stratosphären - Austausch - und Transportprozesse auf bestimmten Isentropen möglich sind und wo die Luftmassen dehydriert wurden.

5.3.2 Statistik von minimalen Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnissen

Ausgewertet wurden ECMWF-Daten der Nordhemisphäre (in NADIR NEWS, Volume 5, Number 1, June 1996 ist beschrieben in welchem Format diese Daten vorliegen und wie man Zugang zu diesen Daten bekommt).

Untersucht werden zum einen Zeiträume, in denen Kampagnen stattfanden und zum anderen ein Zeitraum von zwei Wochen im Juli 1995, denn in diesem Zeitraum können die während des Ballonfluges am 11.2.1997 gemessenen extrem trockenen Luftmassen von der Troposphäre in die Stratosphäre eingetreten sein (siehe 5.3.1).

Nach Jahreszeiten geordnet sind dies die Zeiträume: 14.01.-04.02.1998, 01.02.-11.02.1997, 03.03.-25.03.1997, 15.05.-02.06.1996, 17.07.-31.07.1995. Die ECMWF-Daten liegen im zeitlichen Abstand von sechs Stunden auf 25 Druckniveaus zwi-

schen 1000 und 10 hpa und in einem Gitterabstand von $1,125^\circ$ (Breite) $\times$ $1,125^\circ$ (Länge) vor. Für jeden Gitterpunkt wurde aus dem Vertikalprofil der Temperatur und dem Druck das minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis bestimmt (z.B. Marti and Mauersberger, 1993) und die potentielle Temperatur berechnet. Zur weiteren Auswertung wurde der Längen- und Breitengrad dieses Gitterpunktes, das minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis des Vertikalprofils und die zugehörige potentielle Temperatur gespeichert.

Um nun zu beurteilen, in welchen Breitengraden die im Unterabschnitt 5.3.1 vorgestellten trockenen gemessenen Luftmassen dehydriert wurden, sind für jeden Zeitraum die gespeicherten Daten in drei Bereichen getrennt ausgewertet worden; Subtropen (15 - $35^\circ N$), mittlere Breiten (35 - $60^\circ N$) und hohe Breiten (60 - $90^\circ N$).

14.01.-04.02.1998

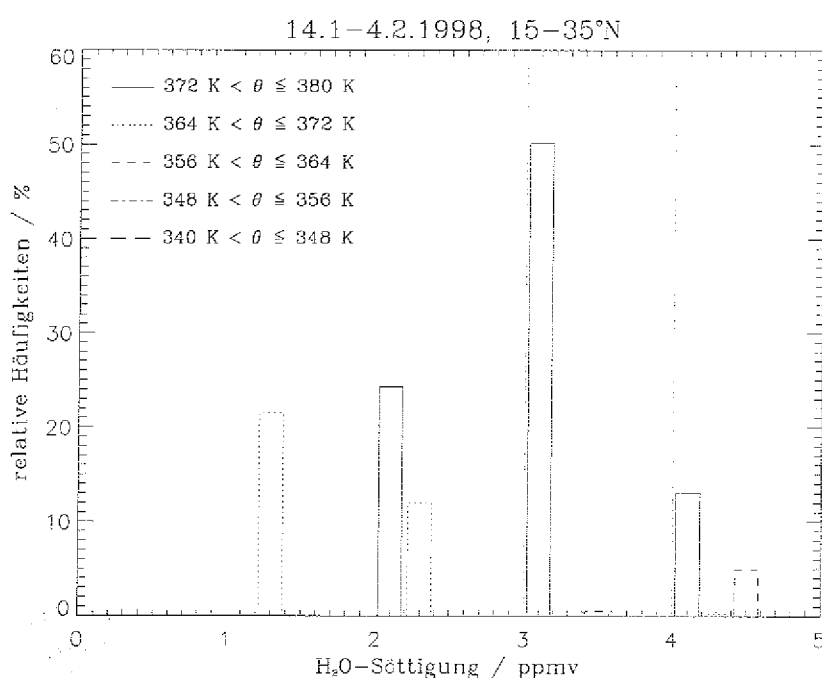


Abbildung 5.13: Die relativen Häufigkeiten der aufgetretenen minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis für die Intervalle 0-1, 1-2, 2-3, 3-4, 4-5 ppmv bezogen auf jeweils einen θ -Bereich im Zeitraum 14.01.-04.02.1998 in den Subtropen 15 - $35^\circ N$.

Für die Subtropen sind in Abbildung 5.13 die relativen Häufigkeiten der aufgetretenen minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis für die Intervalle 0-1, 1-2, 2-3, 3-4, 4-5 ppmv bezogen auf einen θ -Bereich grafisch dargestellt. Betrachtet man z.B. Datenpunkte mit potentiellen Temperaturen von 372 - 380 K, dann hatten 0 % von diesen ein Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis von 0-2 ppmv, 24 % von diesen lagen bei 2-3 ppmv, 50% bei 3-4 ppmv, 13% bei 4-5 ppmv und der Rest (13%) oberhalb von 5 ppmv.

Ein beträchtlicher Teil (22%) der Datenpunkte mit potentiellen Temperaturen von

364-372 K hatte ein Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis von 1-2 ppmv. Für die Interpretation der trockenen Luftmassen des Ballonfluges 970211 (siehe Tabelle 5.2) bedeutet dies, daß diese sowohl vor $1,8 \pm 0,2$ Jahren in die Stratosphäre eingedrungen sein können (wie in 5.3.1 diskutiert) als auch durch Einmischung von troposphärischer Luft mit einem H_2O -Mischungsverhältnis von 1-2 ppmv in ältere stratosphärische Luft mit einem H_2O -Mischungsverhältnis von ca. 5 ppmv vor relativ kurzer Zeit am Subtropen-Jet entstanden sein. Die Mischungsverhältnisse der anderen gemessenen Spurengase, z.B. N_2O : 295 ppbv und SF_6 : 3,51 pptv (siehe Abbildung 3.2), müssen dann auf gleiche Weise durch Vermischung von troposphärischer Luft (N_2O : 312 ppbv und SF_6 : 3,95 pptv) mit stratosphärischer Luft entstanden sein (z.B. N_2O : 278 ppbv und SF_6 : 3,05 pptv).

Solch einen Eintrag von troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre am subtropischen Jet-Stream und einen nachfolgenden Horizontaltransport in mittlere Breiten hat Vaughan (1998) im Januar 1992 anhand von Trajektorienrechnungen und O_3 -Messungen nachgewiesen.

In den mittleren und hohen Breiten existierten für diesen wie für die im folgenden diskutierten Zeiträume keine Datenpunkte mit einem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis von weniger als 5 ppmv im Bereich 340-380 K. So kann anhand der ausgewerteten ECMWF-Daten davon ausgegangen werden, daß die niedrigen gemessenen H_2O -Mischungsverhältnisse von weniger als 4 ppmv ausschließlich durch Dehydrierungsprozesse am Subtropen-Jet entstanden sind. Es müßte untersucht werden, ob im Winter in hohen Breiten über dem Grönlandeis oder Norwegens Gebirge eine Abkühlung der Luftmassen durch eine adiabatische Hebung zu einer mesoskaligen Dehydrierung von stratosphärischen Luftmassen im Bereich 340-380 K geführt haben kann, jedoch wären dafür in diesen Regionen Radiosondenaufstiege in kurzen horizontalen Abständen notwendig.

01.02.-11.02.1997, 03.03.-25.03.1997

In Abbildung 5.14 sind die relativen Häufigkeiten der aufgetretenen minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis wiederum für die Subtropen im Bereich 340-380 K für die Zeiträume 1.2-11.2.1997 und 3.3-25.3.1997 dargestellt. Im Gegensatz zu dem gerade betrachteten Zeitraum war häufig nun auch in geringeren Höhen (348-364 K) das minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis niedrig (2-4 ppmv). Anfang Februar 1997 betrug von 14% der Datenpunkte mit einer potentiellen Temperatur von 356-364 K das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis 3-4 ppmv und von 7 % der Datenpunkte mit einer potentiellen Temperatur von 348-356 K sogar nur 2-3 ppmv. Im März 1997 betrug die relative Häufigkeit nur 3% von Datenpunkten mit einer potentiellen Temperatur von 356-364 K und einem Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis über Eis von 3-4 ppmv.

Demnach haben die ECMWF-Daten gezeigt, daß die während der Flüge 970130, 970204, 970321 (siehe Tabelle 5.2) gemessenen niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse in niedrigen Höhen ($343 \text{ K} \leq \theta \leq 365 \text{ K}$) im Februar oder März eines vorangegangenen Jahres durch Dehydrierungsprozesse am Subtropen-Jet hervorgerufen

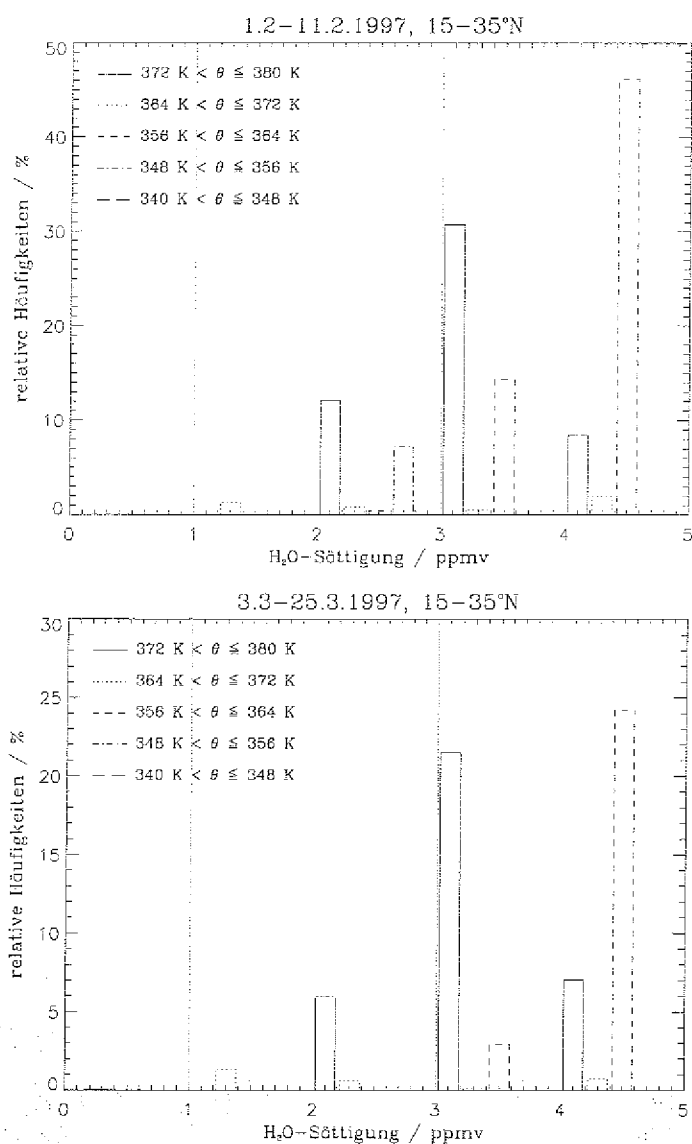


Abbildung 5.14: Die relativen Häufigkeiten der aufgetretenen minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis für die Intervalle 0-1, 1-2, 2-3, 3-4, 4-5 ppmv bezogen auf jeweils einen θ -Bereich in den Zeiträumen 01.02.-11.02.1997, 03.03.-25.03.1997 in den Subtropen 15-35°N.

worden sein können.

15.05.-02.06.1996

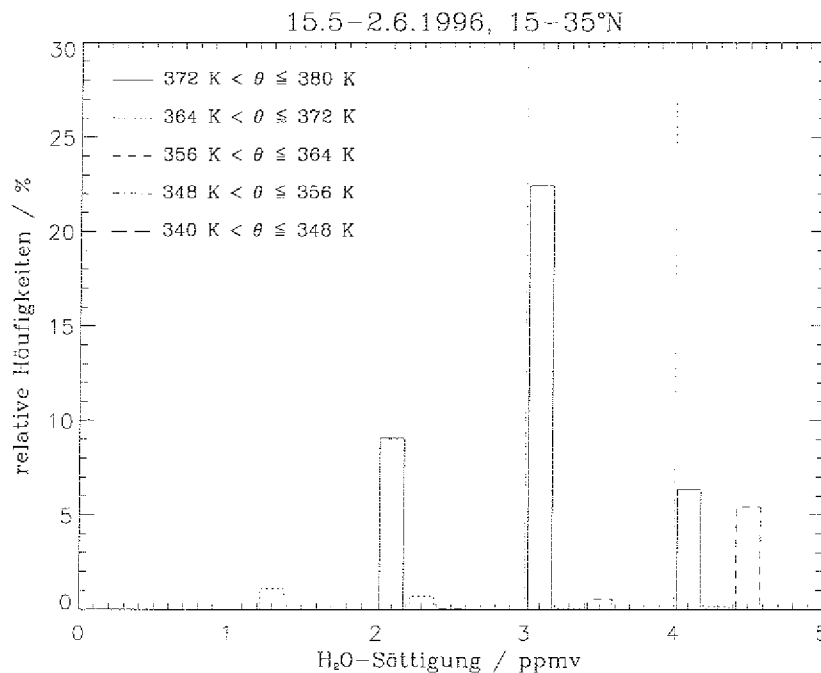


Abbildung 5.15: Die relativen Häufigkeiten der aufgetretenen minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis für die Intervalle 0-1, 1-2, 2-3, 3-4, 4-5 ppmv bezogen auf jeweils einen θ -Bereich im Zeitraum 15.05.-02.06.1996 in den Subtropen 15-35°N.

In der zweiten Maihälfte 1996 war die Wahrscheinlichkeit relativ gering (relative Häufigkeiten < 2%), daß in Luftmassen mit einer niedrigeren potentiellen Temperatur als 372 K das H₂O-Mischungsverhältnis in diesen auf unter 4 ppmv durch Dehydrierung am Subtropen-Jet reduziert wurde (siehe Abbildung 5.15).

17.07.-31.07.1995

Dagegen traten in der zweiten Julihälfte am Subtropen-Jet Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis von 3-4 ppmv (11%) im Bereich 356-364 K und 2-3 ppmv (5%) im Bereich 348-356 K zu einem signifikanten Anteil auf (siehe Abbildung 5.16). Eine genauere Analyse ergibt, daß die letzteren in der Region 15-19°N85-155°E und meistens bei 115°E (Vietnam) auftraten.

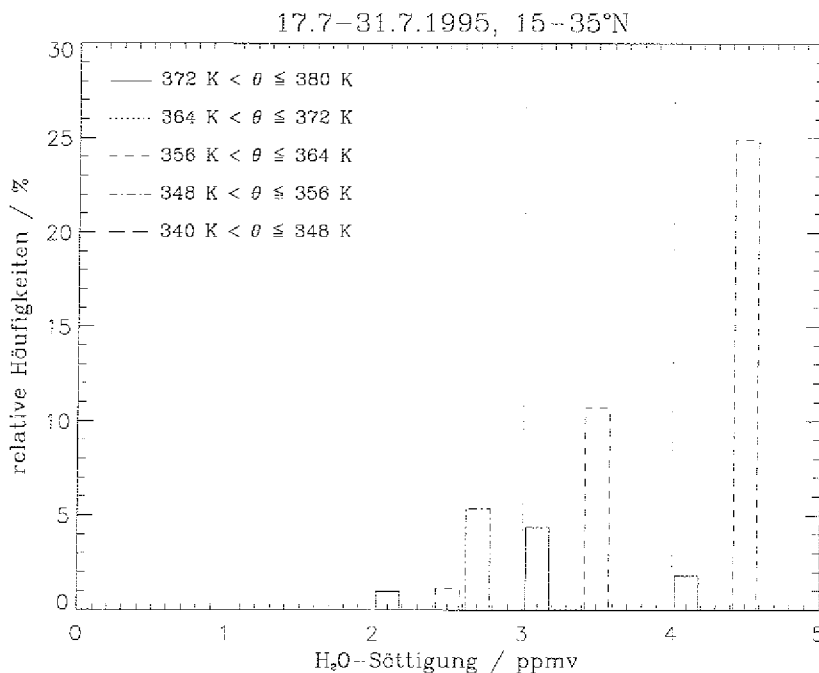


Abbildung 5.16: Die relativen Häufigkeiten der aufgetretenen minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis für die Intervalle 0-1, 1-2, 2-3, 3-4, 4-5 ppmv bezogen auf jeweils einen θ -Bereich im Zeitraum 17.07.-31.07.1995 in den Subtropen 15-35°N.

Die wichtigsten Ergebnisse der Statistik von ECMWF-Temperaturen sind:

- Eine Statistik über die minimalen Temperaturen / Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse von Vertikalprofilen zu machen, um z.B. anhand der tropischen Tropopausentemperaturen die in der „Overworld“ ($\theta > 380$ K) gemessenen Wasserdampfmischungsverhältnisse zu erklären, halten auch Highwood and Hoskins (1998) für sinnvoller als Mittelwerte über ein Druckniveau bzw. über eine Isentrope zu berechnen. Dessler (1998) berechnete mit solch einem Verfahren ein Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis von $4,0 \pm 0,8$ für die tropische Tropopausenregion, welches fast mit dem Wasserdampfmischungsverhältnis von $3,8 \pm 0,3$ übereinstimmt, das in gerade in die „Overworld“ eingetretenen troposphärischen Luftmassen bestimmt wurde (siehe Kapitel 1.2.1).
- In keinem der betrachteten Zeiträume war die Temperatur der untersten Stratosphäre ($340 \leq \theta \leq 380$ K) in mittleren und hohen Breiten (35-90°N) so niedrig, daß das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis unterhalb von 4 ppmv lag. Da die mittlere Strömung in der Stratosphäre zonal ist und nicht meridional, ist es deshalb gar nicht ungewöhnlich, daß die gemessenen niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse in der untersten Stratosphäre im arktischen Winter nicht durch Dehydrierungsereignisse entlang von 120 - Stunden - Rückwärts-Trajektorien erklärt werden konnten. Eventuell könnte im Winter in Luftmas-

sen der arktischen untersten Stratosphäre das H_2O -Mischungsverhältnis aufgrund adiabatischer Hebungen in Leewellen auf weniger als 4 ppmv reduziert worden sein, jedoch findet man solche mesoskaligen Ereignisse nicht in den ECMWF-Daten. Daß in mittleren Breiten die Tropopause nie so kalt ist, daß das Sättigungswasserdampfmischungsverhältnis unterhalb von 4 ppmv liegt, wurde durch Messungen bei $37^\circ\text{N}, 122^\circ\text{W}$ im Mai 1993 bestätigt (Dessler, 1995). Die Temperaturen variierten an der lokalen Tropopause (diese lag im Bereich 330-350 K) zwischen 200 und 220 K. Dies entspricht Sättigungswasserdampfmischungsverhältnissen von 9-134 ppmv.

- Am Subtropen-Jet ($15-35^\circ\text{N}$) waren in Luftmassen mit einer potentiellen Temperatur von 372-380 K minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse von 2-4 ppmv über Eis ziemlich häufig (20-50%), abgesehen von dem zuletzt betrachteten Zeitraum (17.7.-31.7.1995). D.h. die trockene am 11.02.1997 gemessene Luftmasse bei 370 K über Nordskandinavien kann vorher in jeder Jahreszeit am Subtropen-Jet dehydriert worden sein.
- Minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse von 1-2 ppmv über Eis traten im Zeitraum 14.1.-4.2.1998 relativ häufig (22%) in Luftmassen mit einer potentiellen Temperatur von 364-372 K am Subtropen-Jet auf. Niedrige gemessene H_2O -Mischungsverhältnisse von etwa 3 ppmv können demnach auch durch Mischung am Subtropen-Jet von extrem kalter und trockener troposphärischer Luft (1-2 ppmv) mit älterer stratosphärischer Luft (4-5 ppmv) erklärt werden.
- In den Zeiträumen 1.2.-11.2.1997 und 17.7.-31.7.1995 war am Subtropen-Jet auch in niedrigen Höhen (348-364 K) ein signifikanter Anteil (5-14%) der minimalen Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse über Eis im Bereich 2-4 ppmv.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde zum einen ein vorhandenes Hygrometer für Flugzeugmessungen weiterentwickelt, so daß die Zuverlässigkeit im Meßeinsatz erhöht wurde und es mittlerweile einfach zu bedienen ist, und zum andern ein Gerät für Ballonmessungen neu entwickelt.

Insgesamt wurden H₂O-Messungen bei vier Flugzeug- und zwei Ballonkampagnen durchgeführt. Während dieser Kampagnen wurden neben den zahlreichen Meßflügen in der Tropopausenregion und unteren Stratosphäre viele Kalibrationen durchgeführt. Die Auswertung der Kalibrationen ergab, daß die Absolutmeßgenauigkeit troposphärischer H₂O-Mischungsverhältnisse (≥ 40 ppmv) besser als 3% war und die von stratosphärischen H₂O-Mischungsverhältnissen (3-6 ppmv) 3-10% betrug. Die Qualität der FISH-Messungen ist demnach ausreichend, um Filamente in der Tropopausenregion und untersten Stratosphäre bei einer hohen räumlichen (200 m) bzw. zeitlichen Auflösung (1 s) nachzuweisen ($200 \text{ m} = 1 \text{ s} \cdot 200 \text{ m/s}$). Außerdem zeigten die zahlreichen Kalibrationen, daß die Qualität der Messungen reproduzierbar ist und somit die Messungen während der verschiedenen Kampagnen vergleichbar sind.

Korrelationen von H₂O mit langlebigen Spurengasen, wie N₂O und O₃, dienten der Untersuchung von saisonalen und regionalen Unterschieden im H₂O - Mischungsverhältnis in der untersten Stratosphäre und der Tropopausenregion. Diese Regionen waren im Mai 1996 in der Nähe des Jet-Streams in mittleren Breiten am feuchtesten. Bei Bujok (1998) werden Troposphären-Stratosphären Luftmassenaustauschprozesse detailliert untersucht. In dieser Arbeit wurden die Luftmassen in der Tropopausenregion und untersten Stratosphäre im Hinblick auf ihre Trockenheit diskutiert. In der Tropopausenregion im arktischen Winter ($\theta \approx 300\text{-}325\text{K}$) betrug das H₂O-Mischungsverhältnis bei einzelnen Flügen nur 5-6 ppmv, während im Mittel dort 10-32 ppmv gemessen wurden. Dies konnte durch nachgewiesene Eisteilchenbildungs- und nachfolgende Sedimentationsprozesse in sehr kalten Luftmassen erklärt werden.

In der untersten Stratosphäre, deutlich oberhalb der Tropopause, wurden teilweise (im Mai 1996 über Irland: $\theta \approx 362\text{-}369 \text{ K}$, von Januar - März 1997 über der Arktis: $\theta \approx 343\text{-}370 \text{ K}$) extrem niedrige H₂O - Mischungsverhältnisse (≤ 4 ppmv) gemessen. Diese Luftmassen waren jedoch relativ warm ($T > 210 \text{ K}$), so daß das Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis sogar über 10 ppmv lag. Das führt zu

der Frage:

Wie wurden diese Luftmassen so trocken?

Mit Hilfe von Trajektorienrechnungen konnte in keinem Fall ein Eisteilchenbildungs- und Sedimentationsprozeß nachgewiesen werden, wodurch das H_2O - Mischungsverhältnis in diesen Luftmassen auf weniger als 4 ppmv reduziert wurde. Je größer der zeitliche Abstand zum Meßzeitpunkt ist, umso ungenauer wird eine Trajektorienrechnung, so daß eine Rückrechnung von nur wenigen Tagen für Luftmassen der untersten Stratosphäre sinnvoll ist.

Aus diesem Grunde wurde eine Statistik von minimalen ECMWF-Temperaturen / Sättigungswasserdampfmischungsverhältnissen gemacht. In den Subtropen ($15-35^\circ \text{N}$) traten in verschiedenen Jahreszeiten im Bereich $348 < \theta \leq 380 \text{ K}$ Minima von 1-4 ppmv auf.

In mittleren und hohen Breiten traten im Bereich $340 < \theta \leq 380 \text{ K}$ nie minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse von weniger als 4 ppmv auf. Abgesehen von eventuellen mesoskaligen Dehydrierungsprozessen im arktischen Winter in der untersten Stratosphäre aufgrund von Leewellen kann aufgrund der durchgeführten Statistik davon ausgegangen werden, daß die gemessenen niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse ausschließlich durch Dehydrierung am Subtropen-Jet, der zu allen untersuchten Jahreszeiten die erforderlichen niedrigen Temperaturen aufweist, erfolgen kann.

Zu beachten ist, daß die am Subtropen-Jet auftretenden Minima in den Sättigungswasserdampfmischungsverhältnissen im Bereich $340 < \theta < 380 \text{ K}$ nicht identisch sind mit der im Kapitel 1.4 beschriebenen Hygropause der „Overworld“, die in den Tropen und teilweise auch in mittleren Breiten im Bereich $380 < \theta < 440 \text{ K}$ auftritt (McCormick, 1993).

Tatsache ist, daß unterhalb der tropischen Tropopause ($\theta \approx 380 \text{ K}$), die als niedrigste Höhe für die Hygropause angesehen wird, teilweise sehr niedrige H_2O - Mischungsverhältnisse von etwa 3 ppmv sowohl im Mai in mittleren Breiten als auch im arktischen Winter gemessen wurden.

Die Statistik von ECMWF-Daten zeigte, daß im Zeitraum 14.1.-4.2.1998 am Subtropen-Jet minimale Sättigungswasserdampfmischungsverhältnisse von 1-2 ppmv über Eis in Luftmassen mit der Potentiellen Temperatur 364-372 K (d.h. auch unterhalb der tropischen Tropopause) relativ häufig vorkamen, so daß temporäre Dehydrierungsereignisse in extrem kalten Luftmassen am Subtropen-Jet und ein nachfolgender Transport zu hohen Breiten hin die in der untersten Stratosphäre gemessenen niedrigen H_2O - Mischungsverhältnisse von etwa 3 ppmv hervorgerufen haben können.

Meistens wurde jedoch in Luftmassen der untersten Stratosphäre oberhalb der Mischungsschicht (siehe Kapitel 4.2.2) ein H_2O -Mischungsverhältnis von 3,5-5,5 ppmv gemessen; dieser Bereich ist in den Abbildungen 4.1-4.7 jeweils grau schraffiert. Da oberhalb der Mischungsschicht keine Einmischung von troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre an der lokalen Tropopause in mittleren bzw. hohen Breiten stattfindet, kann nur eine Einmischung von troposphärischer Luft am Subtropen-Jet und von aus der „Overworld“ abgestiegenen Luftmassen in hohen Breiten für die gemessene Variabilität im H_2O -Mischungsverhältnis in Luftmassen der untersten Stratosphäre verantwortlich sein.

Anhang A

Detaillierte Berechnung des Fluoreszenzsignals

Durch Messen der Fluoreszenzstrahlung (Gleichung 2.2) und der Intensität der Lyman- α -Strahlung in der Fluoreszenzzelle kann das H_2O -Mischungsverhältnis bestimmt werden.

Die Zahl der gemäß Gleichung (2.1) angeregten OH-Moleküle N_{OH} berechnet sich zu

$$N_{\text{OH}} = n_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \int \int \int N_{\text{VUV}}(\nu, \Omega, r) \cdot \sigma_{\text{H}_2\text{O}}(\nu) \cdot \phi_{\text{H}_2\text{O}}(\nu) \cdot d\nu d\Omega dr \quad (\text{A.1})$$

mit der Wasserdampfteilchendichte $n_{\text{H}_2\text{O}}$, der Zahl der VUV-Photonen $N_{\text{VUV}}(\nu, \Omega, r)$, des Absorptionsquerschnitts $\sigma_{\text{H}_2\text{O}}(\nu)$ und der Quantenausbeute der Photolyse $\phi_{\text{H}_2\text{O}}(\nu)$.

Bei einer monochromatischen Lichtquelle und einer räumlich konstanten Intensitätsverteilung, vereinfacht sich das Integral zu

$$N_{\text{OH}} = n_{\text{H}_2\text{O}} \cdot N_{\text{VUV}} \cdot \sigma_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \phi_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \Delta r \quad (\text{A.2})$$

mit N_{VUV} der Zahl der VUV-Photonen im Fluoreszenzvolumen und Δr der Länge des Fluoreszenzvolumens.

Für die Zahl der Fluoreszenzphotonen eines Überganges vom angeregten Zustand mit der Quantenzahl j in den Zustand i gilt,

$$N_{\text{FL}}^{ij} = N_{\text{OH}} \cdot \frac{A_{\text{F}}^{ij}}{\sum_{i,j} (A_{\text{F}}^{ij} + S_{\text{Q}}^{ij})} = N_{\text{OH}} \cdot \frac{A_{\text{F}}^{ij}}{A_{\text{F}} + k_{\text{Q}} \cdot n_{\text{Luft}}} \quad (\text{A.3})$$

mit A_{F}^{ij} der spontanen Übergangswahrscheinlichkeit des Zustandes j in den Zustand i , S_{Q}^{ij} der strahlungslosen Übergangswahrscheinlichkeit von j nach i , A_{F} der Einstein-Übergangswahrscheinlichkeit, k_{Q} der Löschkonstante für Luft und n_{Luft} der Gesamtteilchendichte.

Registriert man die Fluoreszenzstrahlung mit einem Photomultiplier und vorge-

schalteter Optik mit Filter, so ergibt sich für die Zahl der detektierten Photonen

$$N_{\text{Ph}} = \sum_{i_f, j_f} N_{\text{FL}}^{i_f, j_f} \cdot \eta_{\text{Ph}} \cdot \delta \cdot T_F = n_{\text{H}_2\text{O}} \cdot N_{\text{VUV}} \cdot \sigma_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \phi_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \Delta r \cdot \frac{\sum_{i_f, j_f} A_F^{i_f, j_f}}{A_F + k_Q \cdot n_{\text{Luft}}} \cdot \eta_{\text{Ph}} \cdot \delta \cdot T_F \quad (\text{A.4})$$

mit η_{Ph} der Quantenausbeute des Photomultipliers, δ der Sammeleffizienz der Optik, T_F der Transmission des Filters und i_f, j_f den von der Bandbreite und der Mittelfrequenz des Filters abhängigen Summationsindizes.

Mit Einführung eines Gerätefaktors

$$F_G = \Delta r \cdot \eta_{\text{Ph}} \cdot \delta \cdot T_F \cdot \frac{\sum_{i_f, j_f} A_F^{i_f, j_f}}{A_F} \quad (\text{A.5})$$

vereinfacht sich die Gleichung zu

$$N_{\text{Ph}} = N_{\text{VUV}} \cdot \sigma_{\text{H}_2\text{O}} \cdot \phi_{\text{H}_2\text{O}} \cdot F_G \cdot \frac{A_F \cdot n_{\text{Luft}}}{A_F + k_Q \cdot n_{\text{Luft}}} \cdot \frac{n_{\text{H}_2\text{O}}}{n_{\text{Luft}}} \quad (\text{A.6})$$

mit $A_F = 1,26 \cdot 10^6 \text{s}^{-1}$ (Crosley, 1975) und $k_Q = 2,3 \cdot 10^{-11} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ (Kley, 1978).

Anhang B

Absorption der Lyman- α -Strahlung

Die simultane Messung der Lyman- α -Strahlung mit zwei VUV-Detektoren in unterschiedlichen Entfernungen von der Strahlungsquelle ermöglicht, die Absorption der Lyman- α -Strahlung durch die in der Luft vorhandenen O_2 - und H_2O -Moleküle zu bestimmen. Nach dem Lambert-Beer-Gesetz berechnet sich das Wasserdampf-mischungsverhältnis aus der Absorption zu

$$\mu_{H_2O} = \frac{\ln \frac{C_A}{C_B} - \ln \frac{U_A}{U_B} - [O_2] \cdot \sigma_{O_2} \cdot l_{AB}}{\sigma_{H_2O} \cdot l_{AB} \cdot [Luft]} \quad (B.1)$$

mit den Detektorkonstanten $C_{A,B}$, der Sauerstoffteilchendichte $[O_2]$, der Luftteilchendichte $[Luft]$, dem O_2 - Absorptionsquerschnitt σ_{O_2} , dem H_2O - Absorptionsquerschnitt σ_{H_2O} , der Absorptionslänge l_{AB} und den Signalen $U_{A,B}$ der VUV - Detektoren.

Eine Abschätzung des Fehlers in der Berechnung von μ_{H_2O} nach Gleichung (B.1) ergibt mit $l_{AB}=0,11$ m, $\sigma_{H_2O}=1,7 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$, $[Luft]=5 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ($p \approx 200 \text{ hPa}$, $T \approx 290 \text{ K}$), $U_B=2$ V, $\Delta U_B=\pm 0,002$ V, $U_A=2$ V und $\Delta U_A=\pm 0,002$ V

$$\Delta \mu_{H_2O} = \frac{-\ln \frac{U_A}{U_B} + \ln \frac{U_A + \Delta U_A}{U_B + \Delta U_B}}{\sigma_{H_2O} \cdot l_{AB} \cdot [Luft]} = \frac{+\ln \frac{1,000 \pm 0,001}{1,000 \pm 0,001}}{1,7 \cdot 10^{-21} \cdot 0,11 \cdot 5 \cdot 10^{24}} = \frac{\pm 0,002}{935} = \pm 2,1 \cdot 10^{-6} \quad (B.2)$$

D.h. kleine relative Fehler der Signale $U_{A,B}$ führen zu einem Absolutfehler von $\Delta \mu_{H_2O} = 2,1$ ppmv. Für H_2O -Messungen in der Troposphäre ist solch ein Fehler vernachlässigbar, jedoch ist dieser für Messungen in der Stratosphäre, in der 3-6 ppmv gemessen werden, eindeutig zu groß. Deshalb wurden die Daten der Flüge (960523, 970314), bei denen das H_2O -Mischungsverhältnis aus der Absorption der Lyman- α -Strahlung berechnet wurde, nicht für Korrelationen mit anderen Spurengasen in Kapitel 4 und Interpretationen in Kapitel 5 verwendet.

Bei einigen Flügen während der POLSTAR-1997 Kampagne war die U_B -Messung fehlerhaft (siehe Kapitel 2.2). Wie in Gleichung (B.2) gezeigt, ist ein $\Delta \mu_{H_2O} = 2$ ppmv mit einem $\frac{\Delta U_{A,B}}{U_{A,B}} = 0,001$ verknüpft. Folglich kann U_B nach Gleichung (B.1) ziemlich genau berechnet werden, wenn μ_{H_2O} und U_A bekannt sind.

Da für die POLSTAR 1997-Messungen μ_{H_2O} nicht bekannt war, wurden U_B und μ_{H_2O} aus den Gleichungen (2.5), (2.6) und (B.1) mit Hilfe eines Näherungsverfahrens iterativ bestimmt.

Anhang C

Dokumentation der STREAM 1996/1997 - Messungen

Dokumentiert werden die H₂O-Messungen aller Flüge, abgesehen von dem Flug 970325, der bereits in Kapitel 5 dokumentiert wurde, und den Transferflügen, bei denen teilweise gar nicht gemessen wurde bzw. keine Daten von den anderen Spurengasen vorhanden sind. Neben der Zeitreihe des H₂O-Mischungsverhältnisses sind die des O₃-Mischungsverhältnisses, der potentiellen Vorticity (PV), der potentiellen Temperatur (θ) und der Temperatur dargestellt. Die PV wurde entlang der Flugroute aus ECMWF-Analysen, die auf dem Modell T213 (interpolierte horizontale Auflösung: $0,5^\circ \times 0,5^\circ$, vertikale Auflösung: 31 Niveaus zwischen 1000 hPa und 10 hPa, zeitliche Auflösung: 6h) basieren, vom Königlich-Niederländischen Meteorologischen Institut (KNMI), De Bilt, Niederlande berechnet (*M. Ambaum, KNMI, persönliche Mitteilung*).

C.1 Der Flug (960522)

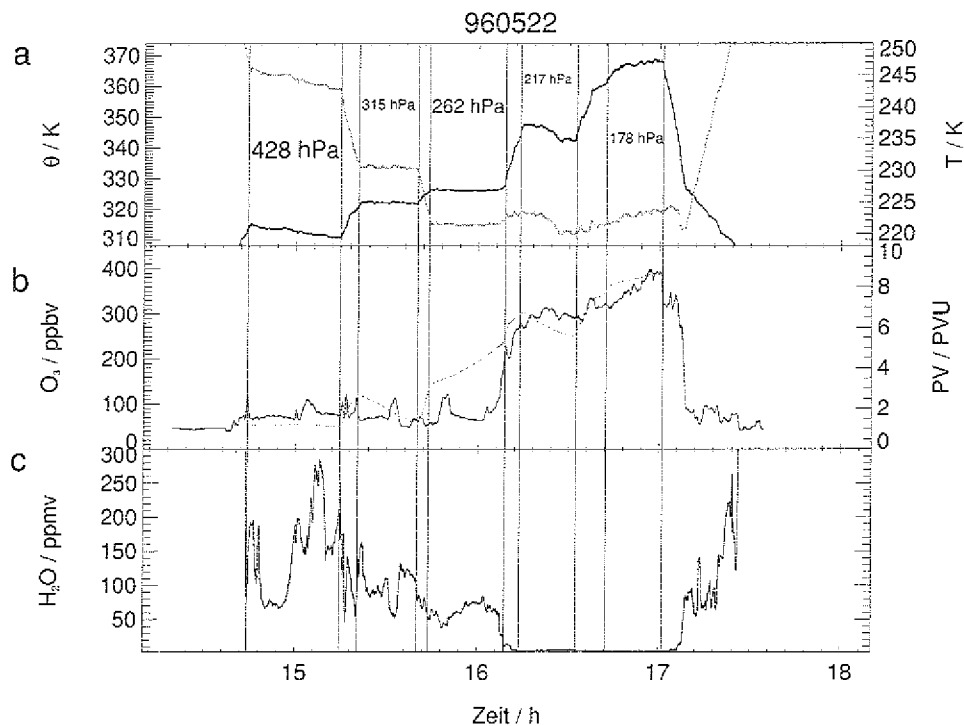


Abbildung C.1: Zeitreihen des Fluges 960522: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H₂O.

Am Boden hatte eine Kaltfront eines Tiefdruckwirbels nordwestlich von Irland bereits Irland überquert. Auf der Rückseite der Kaltfront sank die Höhe der Tropopause über der polaren Luftmasse von 323 K auf 310 K (siehe Tabelle 3.3). Direkt senkrecht zu diesem Tropopausenbruch hatte sich ein Jet-Stream in West-Ost-Richtung mit maximalen Windgeschwindigkeiten von mehr als 40 m/s gebildet. Ein Flug wurde vor der Westküste Irlands auf fünf Niveaus in Nord-Süd-Richtung durchgeführt.

O₃-Mischungsverhältnisse von mehr als 250 ppbv und eine PV von mehr als 5 PVU auf den beiden obersten Flugniveaus von 16:12-17:00 UTC (siehe Abbildung C.1b) sind ein Hinweis auf stratosphärische Luftmassen. Das H₂O-Mischungsverhältnis betrug in diesen deutlich weniger als 10 ppmv (Abbildung C.1c). In der Troposphäre bzw. innerhalb der Tropopausenregion wurde auf den untersten drei Flugniveaus von 14:43-16:10 UTC geflogen. Das O₃-Mischungsverhältnis variierte in diesem Zeitraum zwischen 50 und 100 ppbv und das H₂O-Mischungsverhältnis zwischen 40 und 300 ppmv.

C.2 Der Flug (960523)

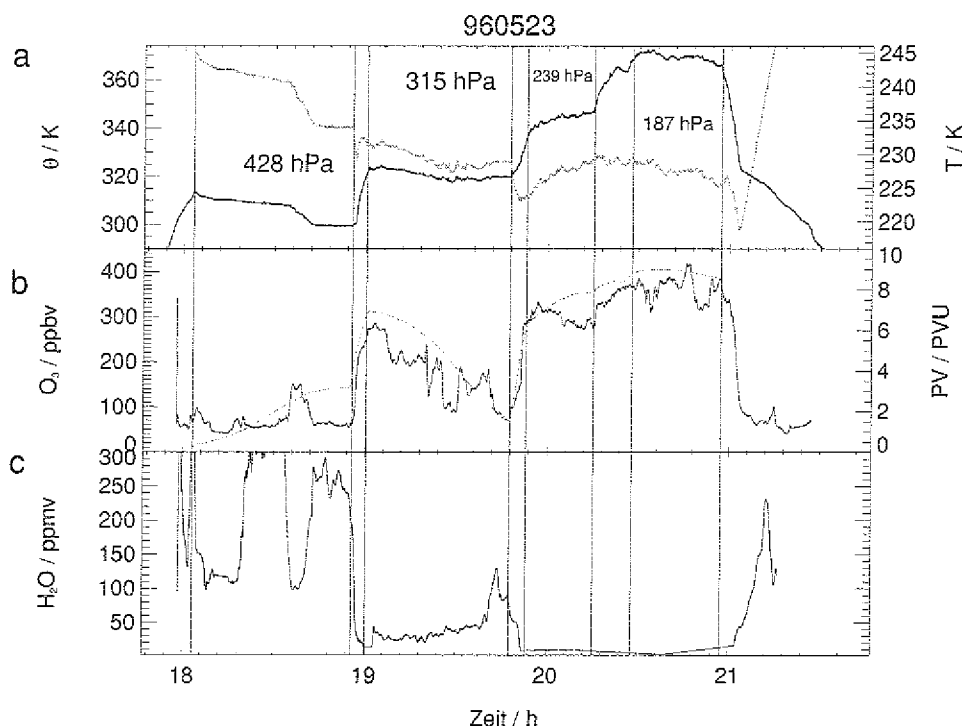


Abbildung C.2: Zeitreihen des Fluges 960523: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vortizität aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Der im letzten Abschnitt erwähnte Tiefdruckwirbel ist weiter nach Osten gezogen. In der Höhe lag das Zentrum des Tiefs bei $9^\circ W 57^\circ N$, wo die Höhe der Tropopause von 323 K auf 297 K sank (siehe Tabelle 3.3). Am Rand dieses Höhentiefs betrug die maximale Windgeschwindigkeit bei etwa $9^\circ W 54^\circ N$ mehr als 40 m/s in West-Ost-Richtung. Ein Flug wurde auf 4 Niveaus in Nord-Süd-Richtung durchgeführt.

Da bei diesem Flug wegen einer Funktionsstörung des Spiegelantriebs die H_2O -Mischungsverhältnisse aus der Absorption der Lyman- α -Strahlung berechnet wurden, ist die Präzision relativ schlecht (siehe Tabelle 2.4), z.B. 9 ppmv von 19:12 bis 19:24 UTC in Abbildung C.2.c.

Nach den O_3 -Mischungsverhältnissen von mehr als 250 ppbv und einer PV von mehr als 6 PVU zu urteilen, befanden sich die beiden obersten Flugniveaus in der Stratosphäre (siehe Abbildung C.2b). Auf dem untersten Niveau wurde in der Troposphäre bzw. in der Tropopausenregion geflogen, denn das O_3 -Mischungsverhältnis betrug dort 50 bis 120 ppbv. Ozonmischungsverhältnisse von 80 bis 260 ppbv auf dem 2. Niveau sind ein Hinweis auf Messungen in der Mischungsschicht.

C.3 Der Flug (960527)

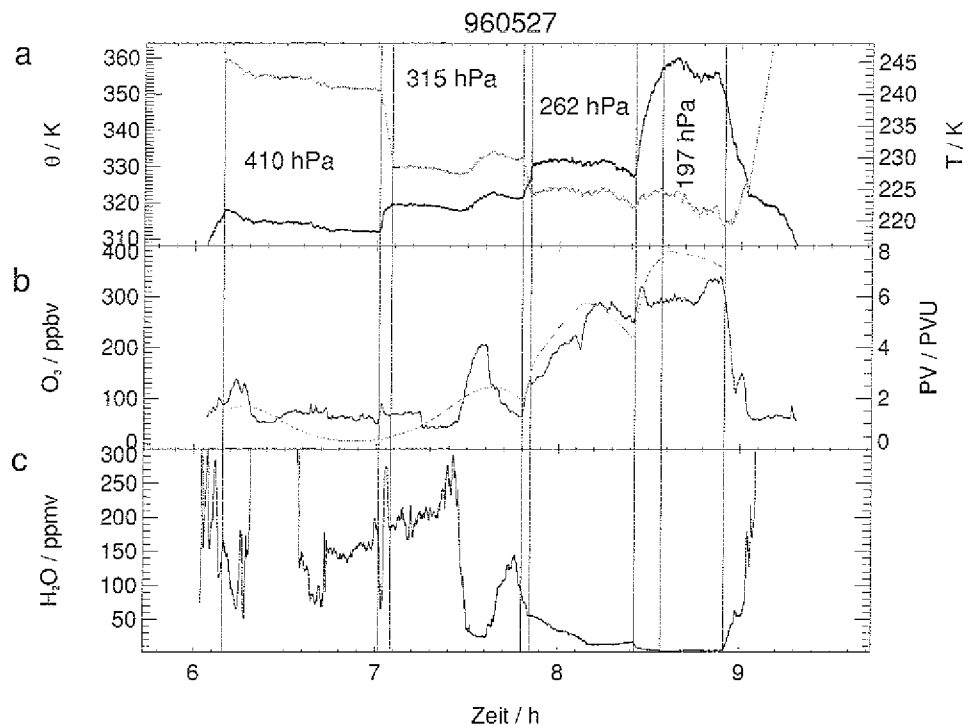


Abbildung C.3: Zeitreihen des Fluges 960527: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Am Boden hatte gerade ein Frontensystem Irland von West nach Ost passiert. Östlich von Irland war die Tropopause oberhalb des Warmluftsektors von 313 K auf 320 K erhöht. Westlich von Irland bewirkte ein Hochdruckrücken von den Azoren her eine Erhöhung der Tropopause von 313 K auf 340 K (siehe Tabelle 3.3). Zwischen diesen beiden Gebieten wurde die Tropopause leicht gefaltet. Die maximale Windgeschwindigkeit betrug an der Tropopause bei $10^\circ\text{W}52^\circ\text{N}$ mehr als 60 m/s in südöstlicher Richtung. Der Flug wurde auf 4 Niveaus senkrecht zur Windrichtung zwischen Irland und Schottland durchgeführt.

Das unterste Flugniveau (410 hPa) lag überwiegend in der Troposphäre und teilweise innerhalb der Tropopausenregion. Das O_3 -Mischungsverhältnis variierte dort zwischen 60 und 120 ppbv und das H_2O -Mischungsverhältnis zwischen 60 und mehr als 300 ppmv (siehe Abbildung C.3b und C.3c). Auf dem zweiten Niveau (315 hPa) wurde anfangs (7:06–7:24 UTC) in der Troposphäre geflogen. Von 7:28 bis 7:40 UTC wurde ein Filament (im Zentrum der Tropopausenfaltung) von Luftmassen der Mischungsschicht oberhalb der Tropopause durchflogen, in denen das minimale H_2O -Mischungsverhältnis 20 ppmv und das maximale O_3 -Mischungsverhältnis 200 ppbv betrug. Das dritte Niveau (262 hPa) war in der Mischungsschicht (H_2O : 13–15 ppmv, O_3 : 100–300 ppbv) und das oberste Niveau (197 hPa) oberhalb dieser.

C.4 Der Flug (960530)

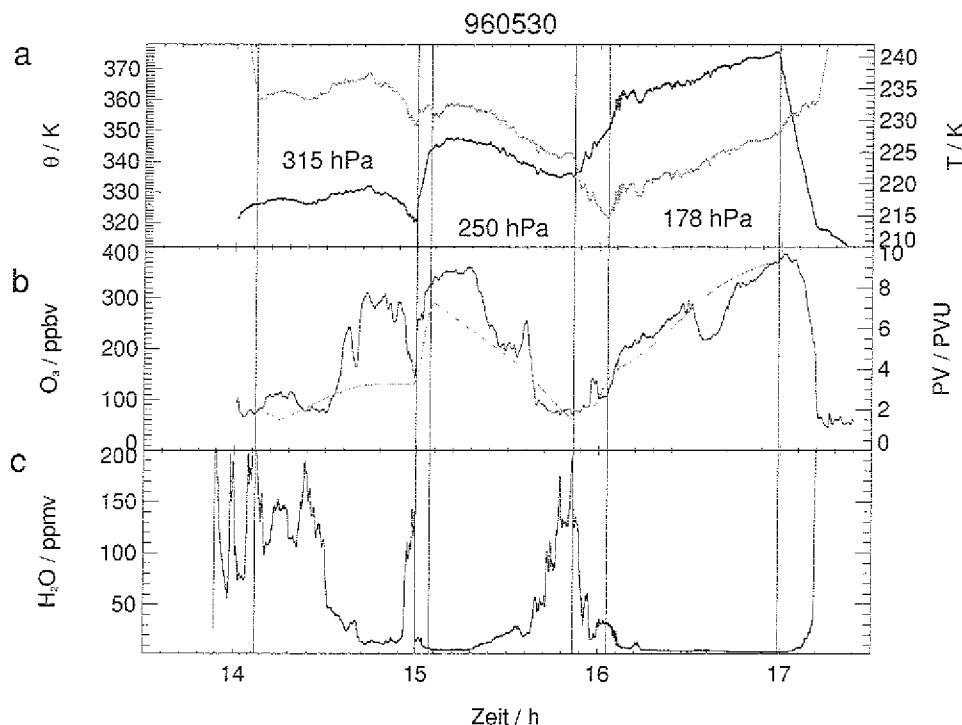


Abbildung C.4: Zeitreihen des Fluges 960530: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Zwischen einem Tiefdruckwirbel südöstlich von Grönland und einem Hochdruckrücken, der sich über der Nordsee von Mitteleuropa aus erstreckt, hat sich ein Tropopausenbruch (siehe Tabelle 3.3) an der Polarfront westlich von Irland gebildet mit maximalen Windgeschwindigkeiten von mehr als 50 m/s im Kern des Jet-Streams in nördliche Richtung. Ein Flug wurde auf drei Niveaus senkrecht zur Achse des Jet-Streams durchgeführt.

H_2O -Mischungsverhältnisse von deutlich weniger als 10 ppmv deuten an, daß zu Beginn des zweiten Niveaus (250 hPa) und gegen Ende des obersten Niveaus (178 hPa) in stratosphärischen Luftmassen geflogen wurde (siehe Abbildung C.4c). Relativ niedrige O_3 -Mischungsverhältnisse von 200-270 ppbv zwischen 17:15 und 17:45 UTC in diesen Luftmassen sind ein Hinweis darauf, daß auf dem obersten Niveau diese Luftmassen subtropischen Ursprungs waren (Bujok, 1998). Dies wird durch Trajektorienrechnungen bestätigt. Das unterste Niveau (315 hPa) erstreckte sich von der Troposphäre (H_2O : 200 ppmv, O_3 : 70 ppbv) bis in die Mischungsschicht oberhalb der Tropopause (H_2O : 12 ppmv, O_3 : 300 ppbv).

C.5 Der Flug (960531)

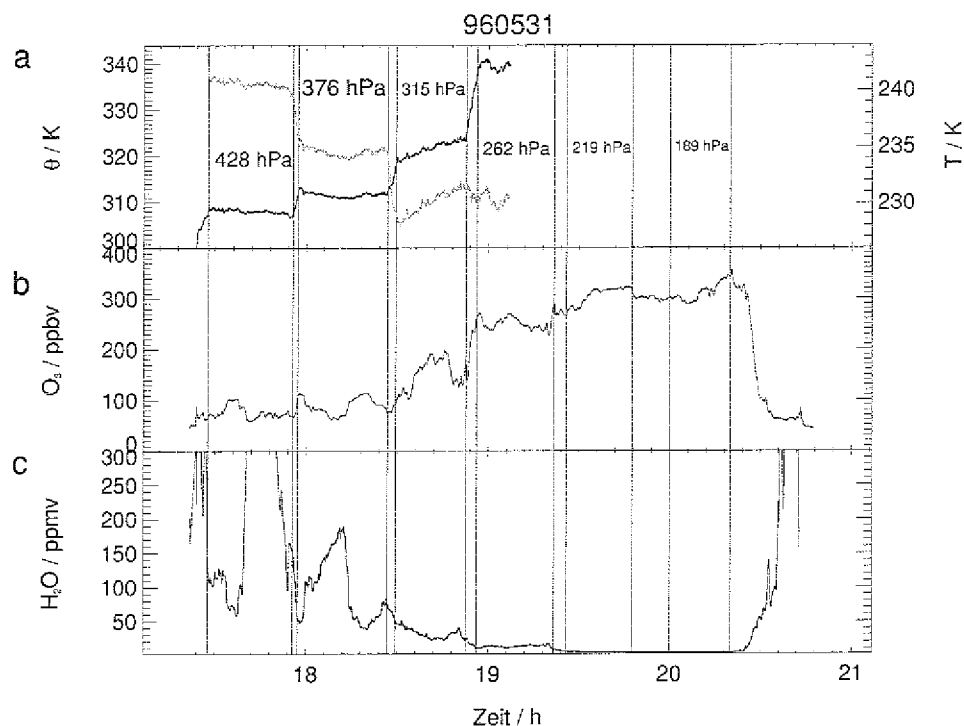


Abbildung C.5: Zeitreihen des Fluges 960531: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) H_2O .

Über Westirland hatte sich ein Tropopausentrog gebildet, bei dem der Gradient der Tropopausenhöhe in horizontaler Richtung senkrecht zum Jet-Stream deutlich schwächer war als am durchflogenen Tropopausenbruch am 30.05.1996. Der Flug wurde auf sechs Niveaus im und oberhalb des Tropopausentroges durchgeführt.

Von dem 4. Flugniveau (262 hPa) an bis zum Ende des Fluges fiel der Bordcomputer zur Speicherung der meteorologischen Daten aus. Aus diesem Grunde fehlen in diesem Zeitraum in Abbildung C.5a Werte für die Temperatur und die potentielle Temperatur. O_3 -Mischungsverhältnisse von mehr als 250 ppbv und H_2O -Mischungsverhältnisse von deutlich weniger als 10 ppmv (siehe Abbildung C.5b und C.5c) auf den beiden obersten Niveaus (219, 169 hPa) sind ein Indiz für stratosphärische Luftmassen. Messungen auf dem 3. und 4. Niveau (315, 262 hPa) wurden in der Mischungsschicht oberhalb der Tropopause (H_2O : 13-40 ppmv, O_3 : 100-220 ppbv) und auf den beiden untersten Niveaus (428, 376 hPa) in der Troposphäre bzw. innerhalb der Tropopausenregion (H_2O : ≥ 40 ppmv, O_3 : 60-100 ppbv) durchgeführt.

C.6 Der Flug (960601)

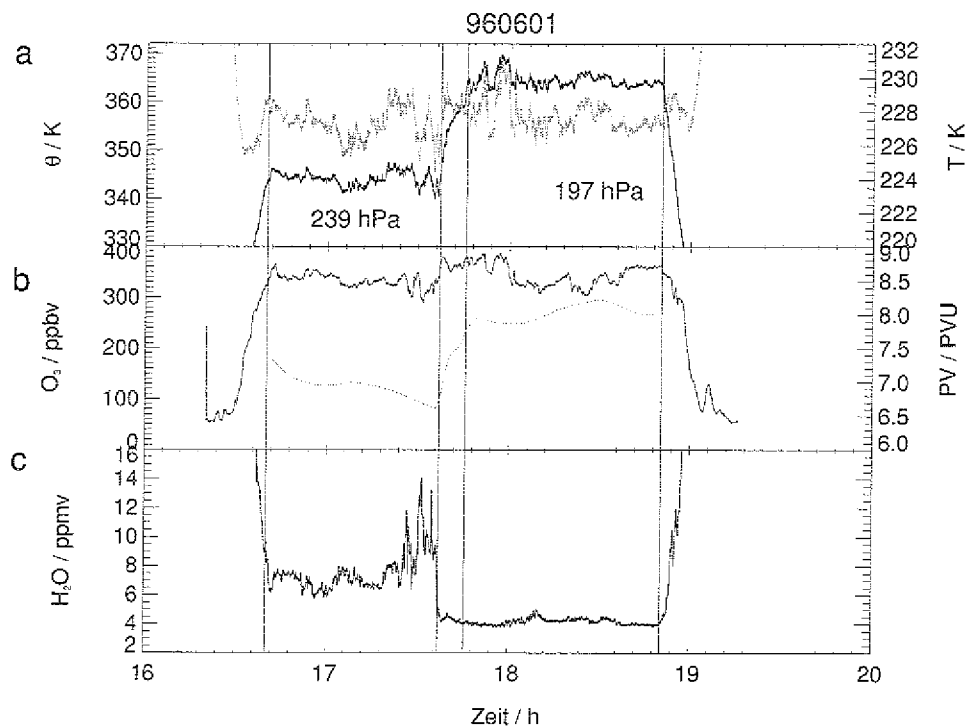


Abbildung C.6: Zeitreihen des Fluges 960601: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Das Operationsgebiet lag vollständig in der polaren Luftmasse, in der die Höhe der Tropopause relativ niedrig war (350-400 hPa). Ein Flug wurde von Shannon aus auf zwei Niveaus (239 hPa, 197 hPa) in nordöstliche Richtung durchgeführt.

H_2O -Mischungsverhältnisse von etwa 5 ppmv auf dem oberen Niveau und eine PV von mehr als 7,5 PVU (siehe Abbildung C.6c und 6.Cb) sind ein Hinweis auf stratosphärische Luftmassen. Auf dem unteren Niveau wurde ein H_2O -Mischungsverhältnis von 5,5-11 ppmv gemessen. Die PV betrug in diesem Zeitraum etwa 6,5-7 PVU. Im O_3 -Mischungsverhältnis (siehe Abbildung C.6b) ist kein signifikanter Unterschied zwischen den Messungen auf beiden Niveaus zu erkennen. Die potentielle Temperatur betrug auf dem unteren Niveau 341-347 K und auf dem oberen Niveau 363-369 K (siehe Abbildung C.6a).

C.7 Der Flug (970309)

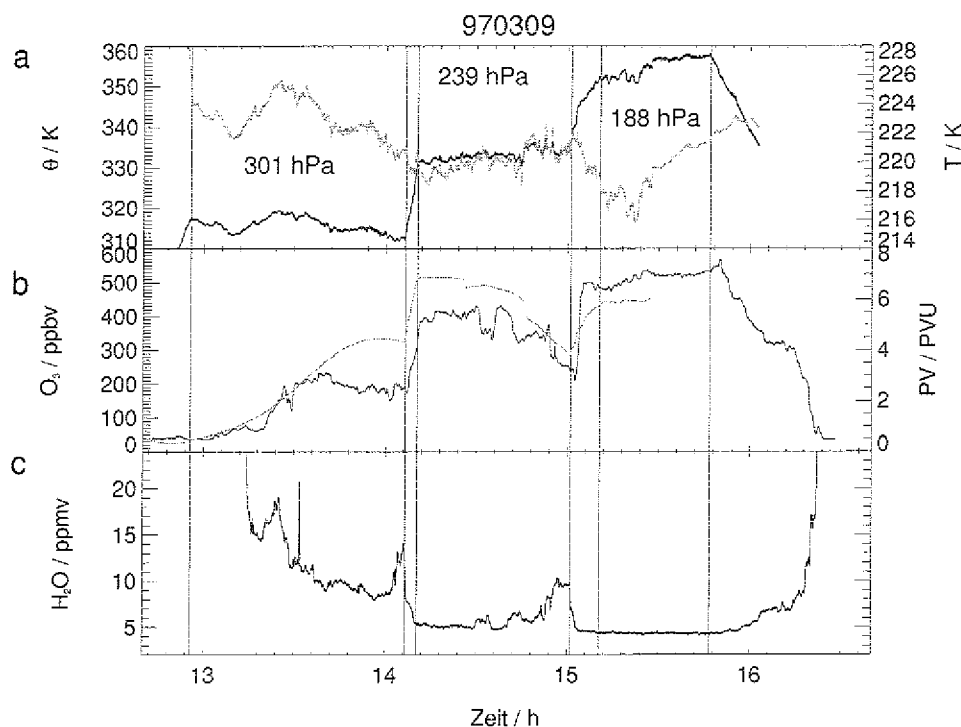


Abbildung C.7: Zeitreihen des Fluges 970309: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Zwischen einem Tief über Grönland und einem Hoch über Dänemark wurde die Polarfront über Europa bis nach Nordskandinavien verschoben. Dies hatte einen extremen Gradienten in der Tropopausenhöhe über Nordskandinavien in Nord-Süd-Richtung zur Folge. Die maximale Windgeschwindigkeit an diesem Tropopausenbruch (siehe Tabelle 3.3) betrug mehr als 70 m/s in östliche Richtung. Der Flug wurde auf dem 1. und 3. Niveau (301, 188 hPa) von Nordskandinavien in nördliche Richtung, auf dem 2. Niveau (239 hPa) und während des langsamen Abstiegs in umgekehrter Richtung durchgeführt.

Ein H_2O -Mischungsverhältnis (siehe Abbildung C.7c) von etwa 5 ppmv zu Beginn des zweiten Flugniveaus, während des obersten Flugniveaus und zu Beginn des langsamen Abstiegs (15:48-16:00 UTC) deuten stratosphärische Luftmassen an. Das O_3 -Mischungsverhältnis war in diesen Luftmassen oberhalb von 400 ppbv und die PV oberhalb von 6 PVU (siehe Abbildung C.7b). Auf dem untersten Flugniveau wurde anfangs in der Tropopausenregion geflogen, wo das H_2O -Mischungsverhältnis teilweise oberhalb von 24 ppmv lag, und später (13:36-14:06 UTC) in der Mischungsschicht oberhalb der Tropopause.

C.8 Der Flug (970314)

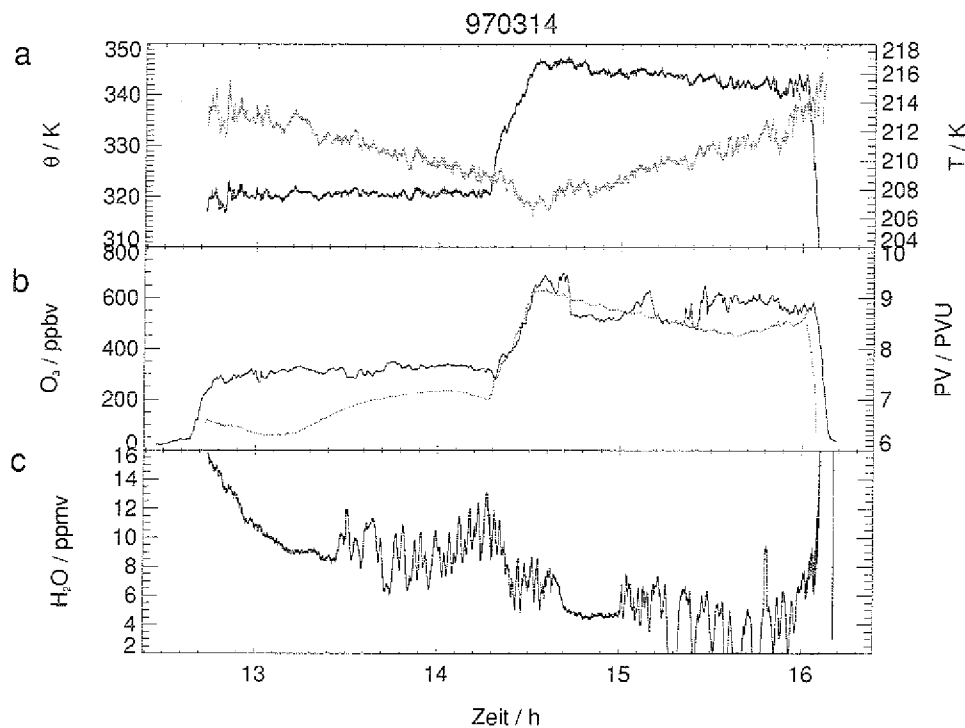


Abbildung C.8: Zeitreihen des Fluges 970314: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Ein Tiefdruckgebiet über Nordskandinavien führte zu einer extrem niedrigen Höhe der Tropopause, bei etwa 400–450 hPa. Aus diesem Grunde wurde versucht, möglichst hoch über der Tropopause in stratosphärischen Luftmassen zu fliegen, die diabatisch aus dem Polarwirbel abgesunken sein könnten. Geflogen wurde auf zwei isentropen Niveaus (ca. 320, 345 K) in nördliche Richtung, um die vertikale Ausdehnung von Filamenten prozessierter Luftmassen zu bestimmen.

Auf dem unteren Flugniveau (320 K) war das Ozonmischungsverhältnis (siehe Abbildung C.8b) nahezu konstant bei 300 ppbv, auf dem oberen Niveau variierte es zwischen 500 und 700 ppbv. Diese Variation könnte ein Hinweis auf prozessierte Luftmassen auf dem oberen Niveau sein. Die gemessenen H_2O -Mischungsverhältnisse (siehe Abbildung C.8c) haben teilweise eine ziemlich schlechte Präzision (siehe Tabelle 2.4), da bei diesem Flug das Photomultipliersignal zeitweise durch den Hochfrequenzsender der Durchflußlampe gestört wurde und für diese Zeiträume die H_2O -Mischungsverhältnisse aus der Absorption der Lyman- α -Strahlung berechnet wurden.

C.9 Der Flug (970321)

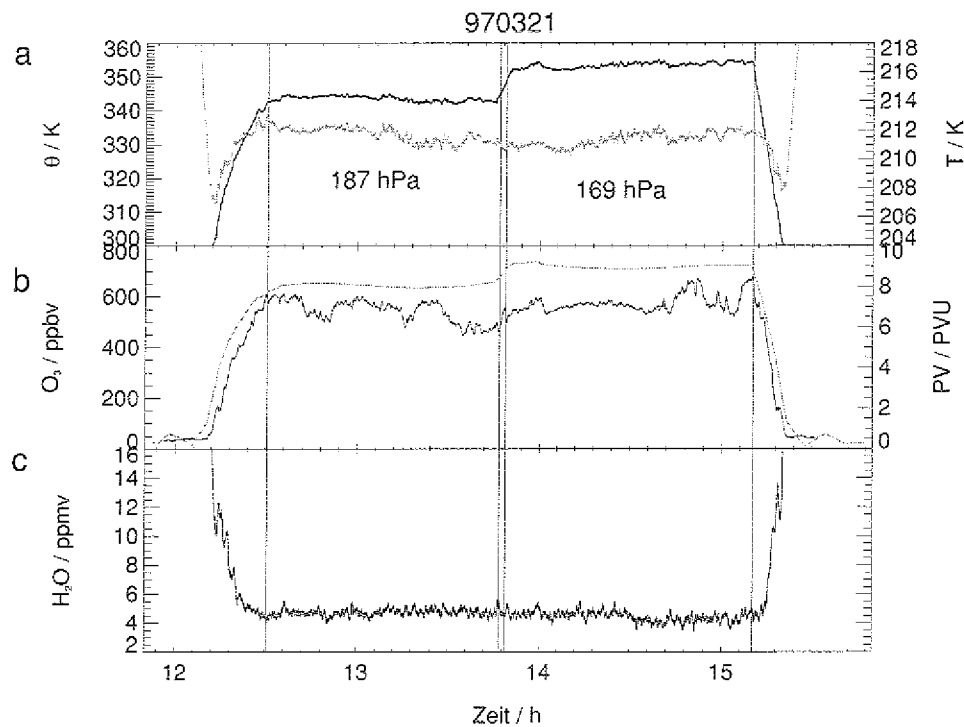


Abbildung C.9: Zeitreihen des Fluges 970321: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Die meteorologische Situation war ähnlich wie am 14.03.1997 mit dem Unterschied, daß sich ein Gebiet, in dem die Tropopause ziemlich niedrig war (350-400 hPa), über einem Tief nördlich von Island befand. Ein Flug wurde in nordnordwestliche Richtung auf zwei Flugniveaus (187, 169 hPa) durchgeführt.

Die potentielle Temperatur (siehe Abbildung C.9a) betrug auf den beiden Niveaus etwa 343 und 355 K. Das O_3 -Mischungsverhältnis variierte zwischen 400 und 650 ppbv und das H_2O -Mischungsverhältnis blieb relativ konstant bei 4-5 ppmv (siehe Abbildung C.9b und C.9c).

C.10 Der Flug (970323)

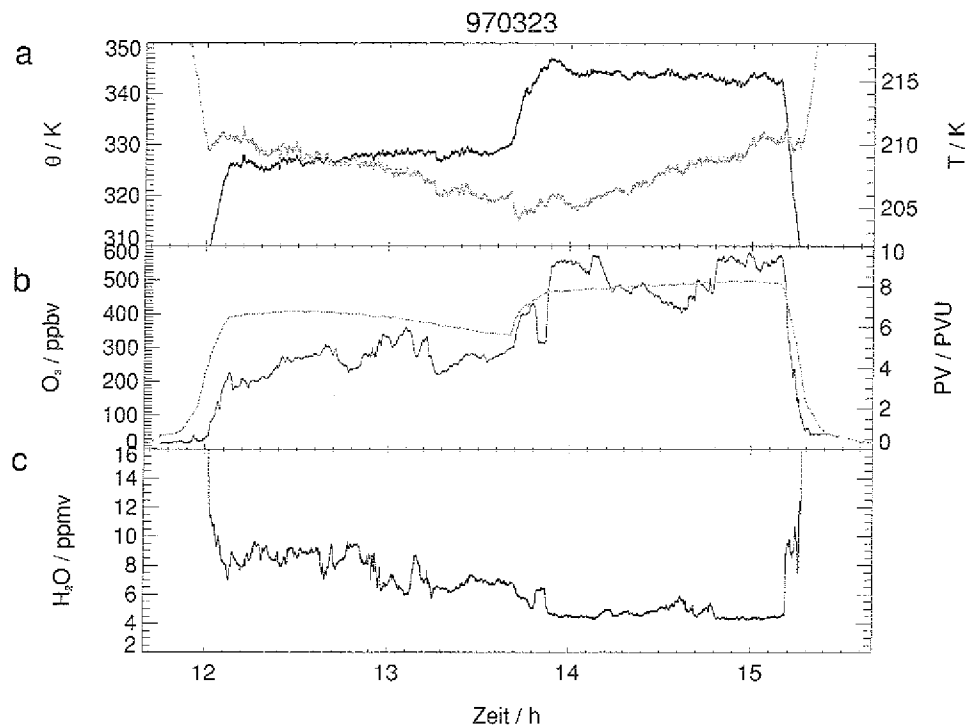


Abbildung C.10: Zeitreihen des Fluges 970323: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) H_2O .

Das Tief über Island hat sich in den letzten zwei Tagen abgeschwächt, so daß die Tropopause dort auf das Druckniveau 300-350 hPa anstieg. Es wurde auf zwei isentropen Niveaus (328 , 340 K) nach Norden geflogen, um in Luftmassen polaren Ursprungs zu messen.

Die O_3 -Mischungsverhältnisse waren auf beiden Niveaus ziemlich variabel (200-350 ppbv und 400-600 ppbv; siehe Abbildung C.10b). Die H_2O -Mischungsverhältnisse (siehe Abbildung C.10c) waren relativ variabel auf dem unteren Niveau (6-10 ppmv) und nahezu konstant auf dem oberen Niveau (5-7 ppmv). Trajektorienrechnungen zeigen, daß die vermessenen Luftmassen zwei Tage vorher eine Frontalzone in der Nähe des Nordpols passiert haben.

Anhang D

Dokumentation der POLSTAR 1997/1998 - Messungen

Zur weiteren Diskussion sind für alle Flüge Zeitreihen der Temperatur, der potentiellen Temperatur, von Ozon, H_2O und dem berechneten Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis geplottet. Für die Kampagne 1997 wurde zusätzlich eine Zeitreihe der potentiellen Vorticity entlang der Flugroute berechnet, was im wesentlichen die Startwerte der von der FU Berlin aus ECMWF-Daten berechneten isentropen Trajektorien sind.

D.1 Der Flug (970128)

Am 28.01.1997 traten Leewellen über Skandinavien auf. Zwischen einem Tiefdruckgebiet nördlich von Finnland und einem Hochdruckgebiet über Dänemark auf dem 250 hPa-Niveau waren die maximalen Windgeschwindigkeiten 30 m/s aus nordwestlicher Richtung, d.h. senkrecht zum norwegischen Gebirge. Der Flug wurde auf vier Niveaus (486 , 410, 220, 179 hPa) von den Lofoten aus in südöstlicher Richtung durchgeführt, um die Charakteristiken von Leewellen zu untersuchen.

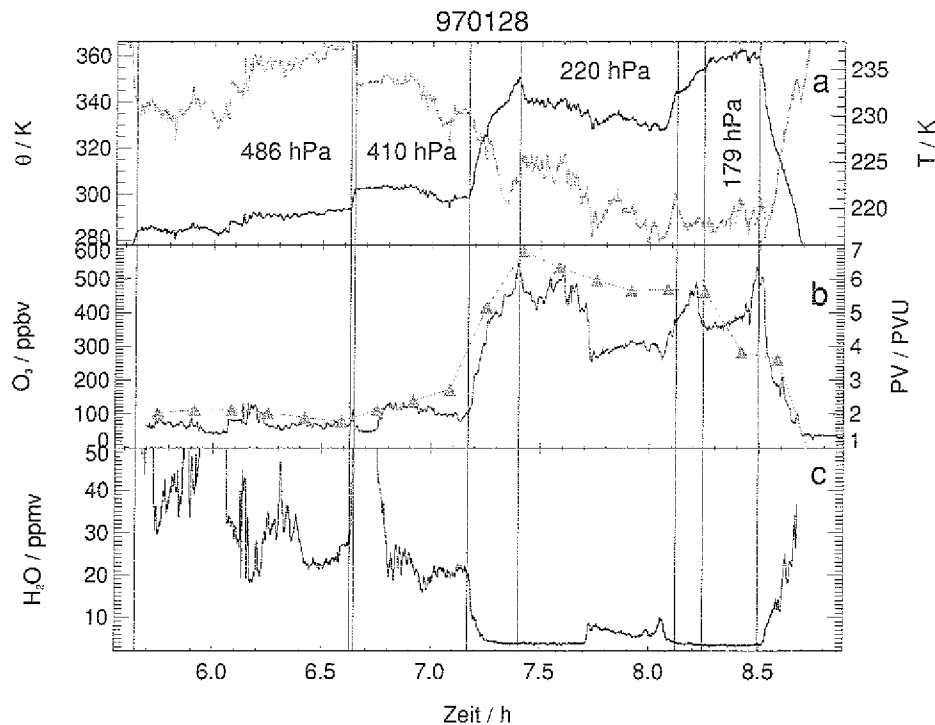


Abbildung D.1: Zeitreihen des Fluges 970128: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Die Zeitreihen in Abbildung D.1b zeigen, daß die ersten beiden Niveaus (486, 410 hPa) in der Tropopausenregion lagen mit Ozonmischungsverhältnissen von 50–100 ppbv und einer PV von etwa 2 PVU. Die H_2O -Mischungsverhältnisse schwankten in diesem Flugabschnitt zwischen 16 ppmv und mehr als 50 ppmv. Zu Beginn des 410 hPa-Niveaus (etwa 06:38–06:45 UTC) wurden über den Lofoten relativ niedrige Ozonmischungsverhältnisse gemessen. Am Ende des 220 hPa-Niveaus (etwa 07:42–08:06 UTC) und zu Beginn des 179 hPa-Niveaus (etwa 08:15–08:30 UTC) trat wieder über den Lofoten solch ein Filament im Ozonmischungsverhältnis auf. Zu beachten ist die vertikale Ausdehnung dieses Filaments; es trat etwa bei 304 K, 334 K und 360 K (Abbildung D.1a) auf. Das H_2O -Mischungsverhältnis ist in diesen Luftmassen über den Lofoten auf den 410 und 220 hPa-Niveaus erhöht im Gegensatz zu den Luftmassen auf dem 179 hPa-Niveau, wo ein Minimum von 3,2 ppmv (Abbildung D.1c) gemessen wurde. Es müßte nun untersucht werden, ob dieses Filament in den Ozon- und H_2O -Zeitreihen durch eine Einmischung von troposphärischen Luftmassen in die unterste Stratosphäre verursacht wurde, z.B. am Subtropen-Jet, wo die Tropopause fast vertikal verläuft und die Isentropen schneidet. Auf der 360 K Isentrope könnte an solch einer Tropopause die Luft auf bis zu 3,2 ppmv H_2O gefriergetrocknet worden sein.

D.2 Der Flug (970130)

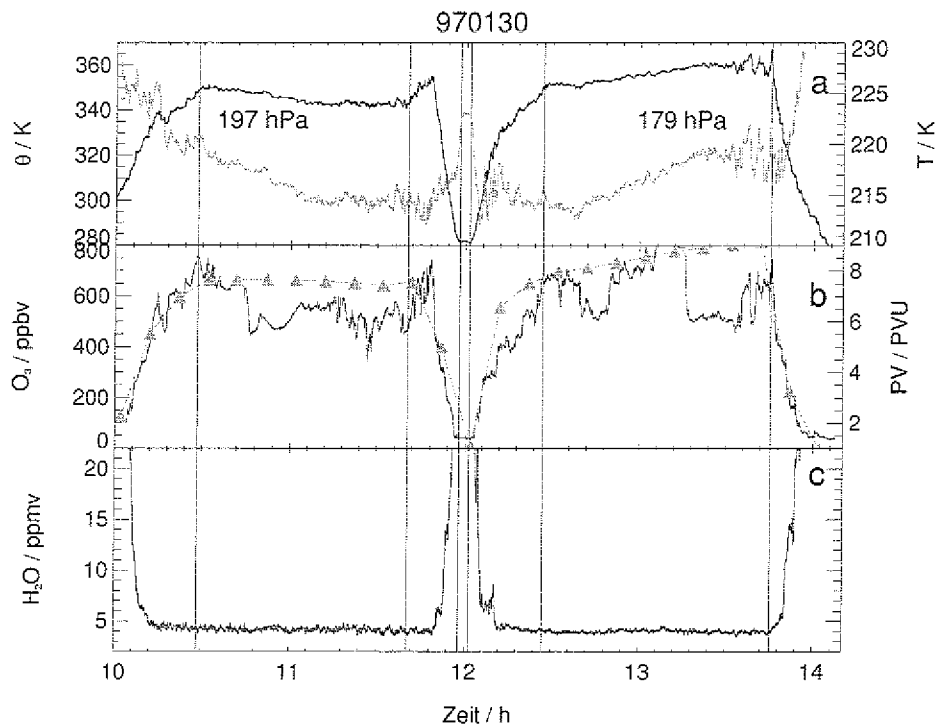


Abbildung D.2: Zeitreihen des Fluges 970130a: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Dieser Flug diente der Bestimmung von Tracerkorrelationen in der arktischen untersten Stratosphäre im Winter im ungestörten Fall, d.h. nicht in kalten Luftmassen und nicht in durch Leewellen adiabatisch erwärmten oder abgekühlten Luftmassen. Geflogen wurde in der untersten Stratosphäre auf dem 197 hPa-Niveau in Richtung Spitzbergen und zurück nach Kiruna auf dem 179 hPa-Niveau. Über Spitzbergen erfolgte ein Abstieg in die Troposphäre auf das 447 hPa-Niveau, auf dem etwa 8 Minuten geflogen wurde. Dort betrug das Ozonmischungsverhältnis (siehe Abbildung D.2b 11:56-12:04 UT) etwa 50 ppbv und die vom Modell entlang der Flugroute berechnete PV etwa 1,1 PVU. Auf den beiden anderen Niveaus war die PV größer als 7,5 PVU und das Ozonmischungsverhältnis variierte zwischen 400 und 800 ppbv (Abbildung D.2b) zwischen der 340 K und 360 K Isentrope (Abbildung D.2a). Das H_2O -Mischungsverhältnis erreichte in der Troposphäre Werte von etwa 80 ppmv und auf den oberen Flugniveaus 3,5-5,0 ppmv (Abbildung D.2c).

D.3 Der Flug (970204)

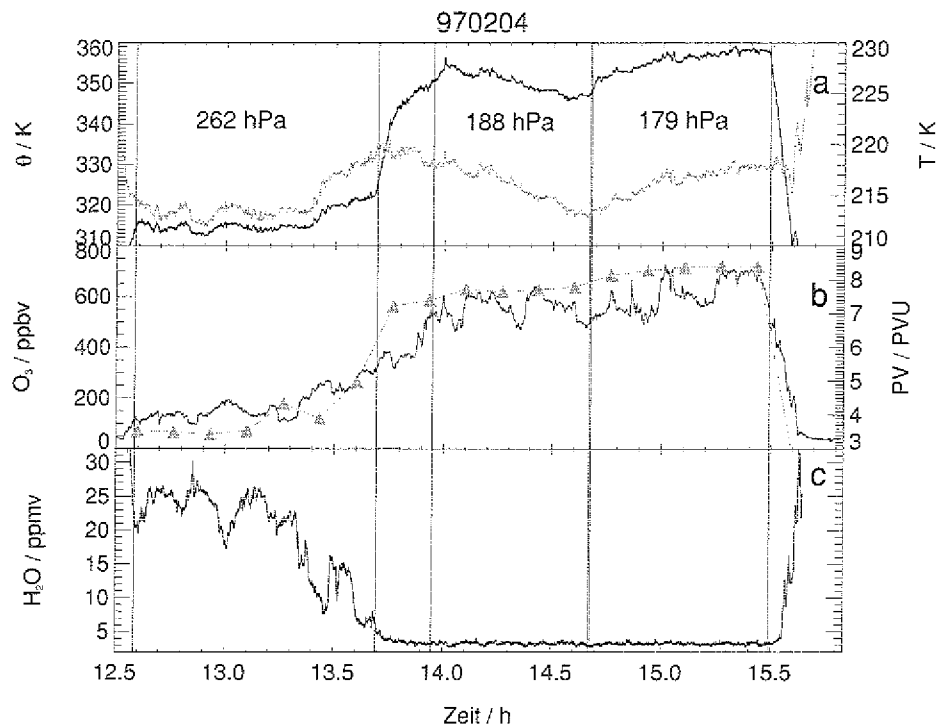


Abbildung D.3: Zeitreihen des Fluges 970204: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) (schwarz) Ozon, (grau) potentielle Vorticity aus Modellrechnungen entlang der Flugroute c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Am 04.02.1997 wurde von dem ADEOS Satelliten aus in der Stratosphäre über Skandinavien gemessen. Neben den Ballonflügen, die auch in diesem Zeitraum von Kiruna aus durchgeführt wurden und der Validierung der Spurengasmessungen des „Ilas“ Experimentes auf dem ADEOS Satelliten in der unteren Stratosphäre dienten, wurde ein Flug mit der Falcon 10° westlich von Kiruna auf drei verschiedenen Niveaus (262, 188, 179 hPa) durchgeführt. Ozonmischungsverhältnisse von 100-200 ppbv und eine PV von 3,4 PVU zwischen 12:30 und 13:10 UT (siehe Abbildung D.3b) deuten an, daß anfangs in der Tropopausenregion geflogen wurde. Das H_2O -Mischungsverhältnis variierte in diesem Zeitraum zwischen 17 und 31 ppmv (siehe Abbildung D.3c). Auf den oberen Flugniveaus zwischen der 345 K und 360 K Isentrope (Abbildung D.3a) variierte das Ozonmischungsverhältnis von 450 bis 700 ppbv, während die PV stets größer als 7 PVU war. Das H_2O -Mischungsverhältnis blieb in diesem Zeitraum (13:57-15:30 UT) unterhalb von 4ppmv.

D.4 Die Flüge (980129) und (980201)

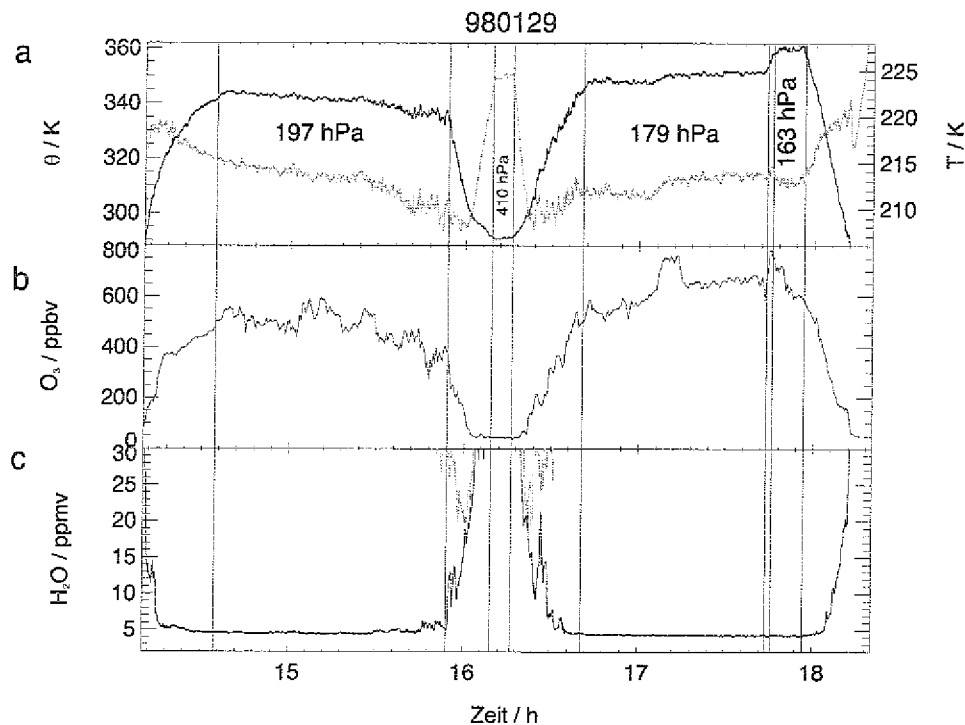


Abbildung D.4: Zeitreihen des Fluges 980129: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Diese Flüge dienen der Bestimmung von Tracerkorrelationen in der arktischen untersten Stratosphäre im Winter. Beide Flüge wurden in Richtung Norden von Kiruna aus durchgeführt. Am 29.01.1998 wurde zuerst auf dem 197 hPa-Niveau geflogen, dann erfolgte ein Abstieg auf das 410 hPa-Niveau über Spitzbergen und anschließend der Rückflug auf den 179 hPa- und 163 hPa-Niveaus.

Ozonmischungsverhältnisse von meist mehr als 400 ppbv (Abbildung D.4b) deuten an, daß oberhalb des Tropopausenbereiches geflogen wurde. Die H_2O - Mischungsverhältnisse variierten dort zwischen 4 und 5 ppmv (Abbildung D.4c). Beim Abstieg auf das 410 hPa-Niveau erfolgte ein Eintritt in die Troposphäre, wo Ozonmischungsverhältnisse von 40 ppbv und H_2O -Mischungsverhältnisse von bis zu 80 ppmv gemessen wurden.

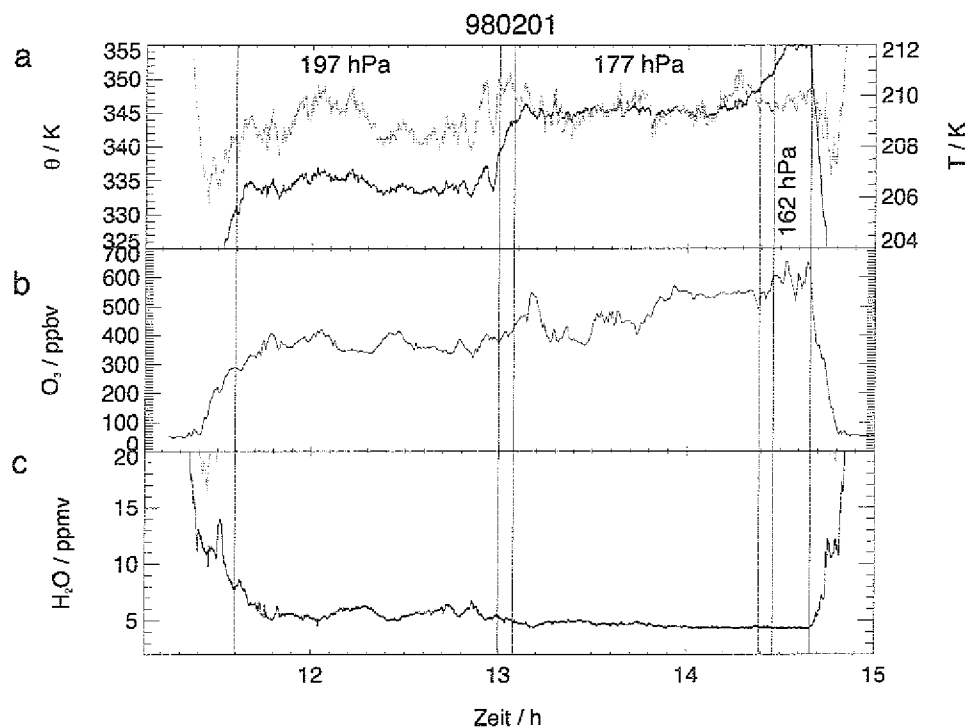


Abbildung D.5: Zeitreihen des Fluges 980201: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Am 01.02.1998 verlief der Flug ähnlich wie zwei Tage zuvor, wobei jedoch auf den Abstieg auf das 410 hPa-Niveau am nördlichen Wendepunkt verzichtet wurde. Die Ozonmischungsverhältnisse waren etwa 100 ppbv niedriger als am 29.01.1998 auf den entsprechenden Flugniveau (Abbildung D.5b); es muß jedoch berücksichtigt werden daß auch θ auf jedem Flugniveau etwa 5 K niedriger war (Abbildung D.5a). Das H_2O -Mischungsverhältnis variierte antikorreliert zum Ozon zwischen 5 und 7 ppmv von 12:00 bis 13:00 UTC. Auf den oberen beiden Niveaus erreichte es Werte von 4-5 ppmv.

D.5 Die Flüge (980204a/b)

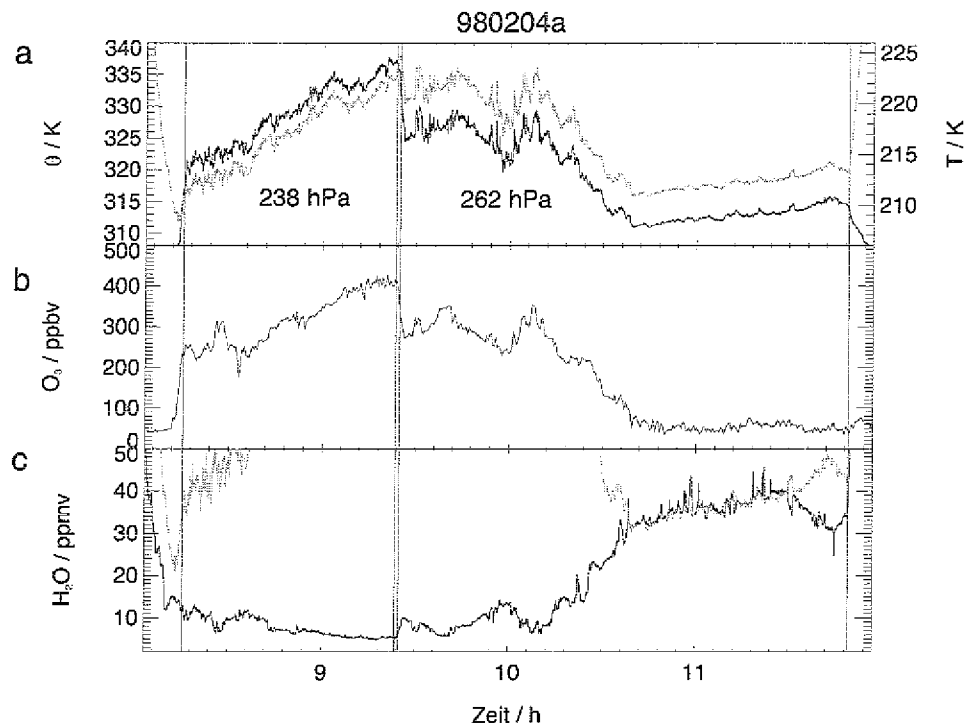


Abbildung D.6: Zeitreihen des Fluges 980204a: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Der Transfer von Kiruna nach Oberpfaffenhofen bestand aus zwei Teilen mit einer Landung in Shannon (Irland). Das Ziel war, eine großräumige Verteilung von der Arktis bis zu mittleren Breiten in der Tropopausenregion bzw. in der oberen Troposphäre zu vermessen. Geflogen wurde bis Shannon auf dem 238 hPa- und 262 hPa-Niveau. Vor 10:25 UTC war dies der Ozonzeitreihe ($O_3 > 200$ ppbv, Abbildung D.6b) nach zu urteilen oberhalb der Tropopause und ab 10:45 UTC in der Troposphäre ($80 \text{ ppbv} > O_3 > 30 \text{ ppbv}$). Die H_2O -Mischungsverhältnisse, 5-14 ppmv oberhalb der Tropopause und 30-40 ppmv in der oberen Troposphäre, waren nahezu antikorreliert zu den Ozonwerten. In der oberen Troposphäre war teilweise aufgrund von Eispartikeln das gemessene Gesamt- H_2O -Mischungsverhältnis höher als das Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

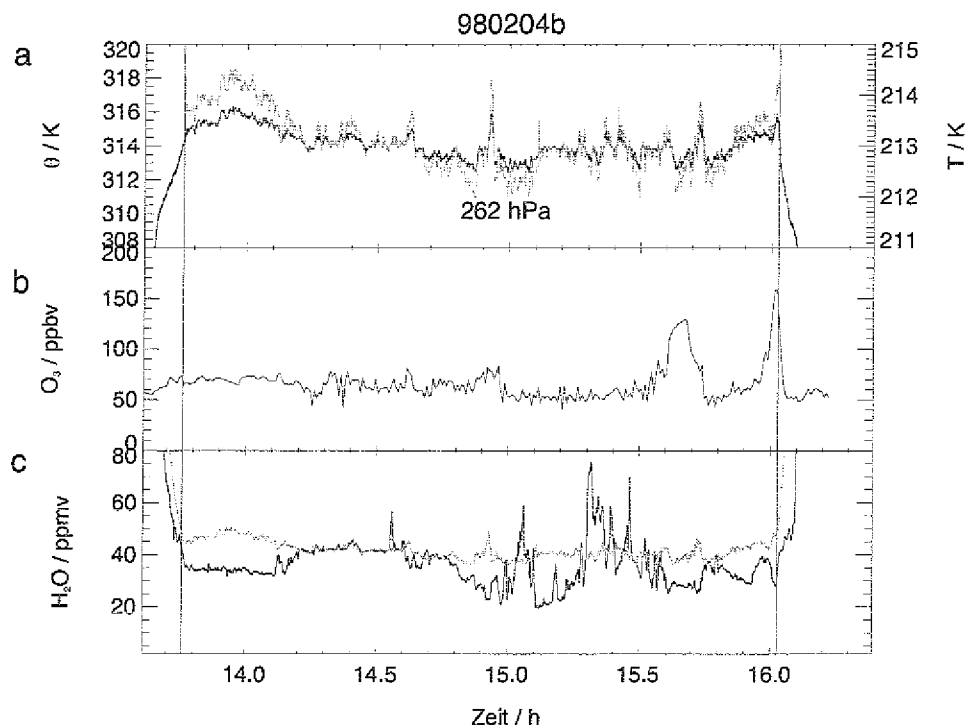


Abbildung D.7: Zeitreihen des Fluges 980204b: a.) (schwarz) potentielle Temperatur, (grau) Temperatur b.) Ozon c.) (schwarz) H_2O , (grau) Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis.

Von Shannon nach Oberpfaffenhofen wurde auf dem 262 hPa-Niveau im Tropopausenbereich bzw. in der oberen Troposphäre geflogen, nach den gemessenen Ozonmischungsverhältnissen von 50-150 ppbv (Abbildung D.7b) und H_2O - Mischungsverhältnissen von 20-80 ppmv (Abbildung D.7c) zu urteilen. Teilweise war das gemessene H_2O - Mischungsverhältnis höher als das Sättigungswasserdampf-mischungsverhältnis über Eis (um 15:18 UTC fast doppelt so hoch), d.h., daß sich dann größere Eispartikel in der Luft befanden. Partikelmessungen ($0,4\text{-}23\text{ }\mu\text{m}$) mit der FSSP 300 zeigten von 15:18 bis 15:24 UTC eine Erhöhung der Konzentration von $0,1$ auf $5,0\text{ cm}^{-3}$ (Borrmann, pers. Mitt.).

Literaturverzeichnis

- Abbas M.M.**, et al., Seasonal variations of water vapour in the lower stratosphere inferred from ATMOS measurements of H_2O and CH_4 , *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2401-2404, 1996.
- Barath F.T.**, et al., The Upper Atmosphere Research Satellite microwave limb sounder instrument, *J. Geophys. Res.*, 98, 10751-10762, 1993.
- Bauer H.**, Aufbau und Charakterisierung eines Kalibrierstandes für ein Stratosphärenhygrometer/ Herstellung der Lichtquelle des Stratosphärenhygrometers, Studienarbeit, RWTH Aachen, 1996.
- Baumgardner D.**, J.E. Dye, B.W. Gandrud, and R.G. Knollenberg, Interpretation of measurements made by the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-300) during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 97, 8035-8046, 1992.
- Belyaev, S.P. and L.M. Levin**, Techniques for collection of representative aerosol samples, *J. Aerosol Sci.*, 5, 325-338, 1974.
- Beraux, J.-L., and A. Delannoy**, Vertical distribution of H_2O in the stratosphere as determined by UV fluorescence in-situ measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 5, 1017-1020, 1978.
- Boering K.A.**, et al., Stratospheric Mean Ages and Transport Rates from Observations of Carbon Dioxide and Nitrous Oxide, *Science*, VOL. 274, 22 November 1996.
- Brasseur, G., and S. Solomon**, *Aeronomy of the Middle Atmosphere*, D. Reidel Publishing Company, 1984.
- Bregman A.**, et al., Aircraft measurements of O_3 , HNO_3 , and N_2O in the winter Arctic lower stratosphere during the Stratosphere-Troposphere Experiment by Aircraft Measurements (STREAM) 1, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 100, 11245-11260, 1995.
- Brewer, A.W.**, Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Quart. J. R. Meteorol. Soc.*, 75, 351-363, 1949.
- Bronstein, I.N., and K.A. Semendjajew**, *Taschenbuch der Mathematik*, Harri Deutsch, Thun, (5.2.4.1) 730, 1980.

- Bujok O.**, In-situ-Messung langlebiger Spurengase in der untersten Stratosphäre: Entwicklung und Anwendung einer flugzeuggestützten gaschromatischen Nachweismethode, Doktorarbeit, Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, 3517, 1998.
- Chen P.**, Isentropic cross-tropopause mass exchange in the extratropics, *J. Geophys. Res.*, 100, 16661-16673, 1995.
- Crosley, D.R., and R.K. Lengel**, Relative transition probabilities and the electronic transition moment in the A-X system of OH, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Trans.*, 15, 579, 1975.
- Conway T.J.**, et al., Evidence for interannual variability of the carbon cycle from the National Oceanic and Atmospheric Administration/Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory Global Air Sampling Network, *J. Geophys. Res.*, 99, 22831-22855, 1994.
- Danielsen E.F.**, Stratospheric-tropospheric exchange based upon radioactivity, ozone, and potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 25, 502-518, 1968.
- Danielsen E.F.**, A dehydration mechanism for the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 9, NO. 6, 605-608, 1982.
- Danielsen E.F.**, In Situ Evidence of Rapid, Vertical, Irreversible Transport of Lower Tropospheric Air into the Lower Tropical Stratosphere By Convective Cloud Turrets and by Larger-Scale Upwelling in Tropical Cyclones, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 98, NO. D5, 8665-8681, 1993.
- Dessler A.E.**, et al., Mechanisms controlling water vapor in the lower stratosphere: "A tale of two stratospheres", *Journal of Geophysical Research*, VOL. 100, NO. D11, 23167-23172, 1995.
- Dessler A.E.**, E.M. Weinstock, E.J. Hintsa, J.G. Anderson, C.R. Webster, R.D. May, J.W. Elkins, and G.S. Dutton, An examination of the total hydrogen budget of the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2563-2566, 1994.
- Dessler A.E.**, A reexamination of the „stratospheric fountain“ hypothesis, *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 25, No.22, 4165-4168, 1998.
- Dieke, G.H., and S.P. Cunningham**, A new type of hydrogen discharge tube, *J. Opt. Soc. America*, 42, 187-189, 1952.
- Dobson, G.M.B.**, Origin and distribution of polyatomic molecules in the atmosphere, *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, 236, 187-193, 1956.
- Engel A.**, et al., The total hydrogen budget in the Arctic winter stratosphere during the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 101, NO. D9, 14495-14503, 1996.
- Fahey D.W.**, et al., In situ observations of NO_y , O_3 , and the NO_y/O_3 ratio in the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 23, NO. 13, 1653-1656, 1996.

- Feigl C.**, Aufbau und Charakterisierung eines Meßsystems für NO, NO₂ und NO_y: Laboruntersuchungen und Einsatz in der untersten Stratosphäre, Doktorarbeit Universität München, 1998.
- Feigl C.**, H. Schlager, M. Kuhn, H. Ziereis, J. Curtius, and F. Arnold, Observation of NO_y uptake by particles in the Arctic tropopause region at low temperature, in press Geophys. Res. Lett., 1999.
- Fischer H.**, et al., Observations of high concentrations of total reactive nitrogen (NO_y) and nitric acid (HNO₃) in the lower Arctic stratosphere during the Stratosphere-Troposphere Experiments by Aircraft Measurements (STREAM) II campaign in February 1995, Journal of Geophysical Research, 102, 23559-23571, 1997.
- Foot J.S.**, Aircraft measurements of the humidity in the lower stratosphere from 1977 to 1980 between 45°N and 65°N, Quart. J. R. Met. Soc. (1984), 110, 303-319.
- Gille J.C.**, and J.M. Russell, The Limb Infrared Monitor of the Stratosphere: Experiment description, performance, and results, J. Geophys. Res., 89, 5125-5140, 1984.
- Groß, J.-U.**, Modelling of stratospheric chemistry based on HALOE/UARS stellite data, Doktorarbeit, Johannes Gutenberg-Universität, 1996, publiziert im Shaker Verlag, ISBN 3-8265-1645-1.
- Hall T.M.**, M.J. Prather, Simulations of the Trend and Annual Cycle in Stratospheric CO₂, J. Geophys. Res., 98, 10573-10581, 1993.
- Harnisch J.**, R. Borchers, P. Fabian, and M. Maiss, Tropospheric trends for CF₄ and C₂F₆ since 1982 derived from SF₆ dated stratospheric air, Geophys. Res. Lett., VOL. 23, NO. 10, 1099-1102, 1996.
- Harries J.E.**, J.M. Russell, A.F. Tuck, L.L. Gordley, P. Percell, K. Stone, R.M. Bevilacqua, M. Gunson, G. Nedoluha, and W.A. Traub, Validation of measurements of water vapor from the Halogen Occultation Experiment (HALOE), J. Geophys. Res., 101, 10205-10216, 1996.
- Helten M.**, H.G.J. Smit, W. Sträter, D. Kley, P. Nedelec, M. Zöger, and R. Busen, Calibration and performance of automatic compact instrumentation for the measurement of relative humidity from passenger aircraft, Journal of Geophysical Research, 103, 25643-25652, 1998.
- Highwood E.J.**, and B.J. Hoskins, The tropical tropopause, Q. J. R. Meteorol. Soc., 124, 1579-1604, 1998.
- Hintsa E.J.**, et al., SPADE H₂O measurements and the seasonal cycle of stratospheric water vapor, Geophys. Res. Lett., VOL. 21, NO. 23, 2559-2562, 1994.
- Hintsa E.J.**, K.A. Boering, E.M. Weinstock, J.G. Anderson, B.L. Gary, L. Pfister, B.C. Daube, S.C. Wofsy, M. Loewenstein, J.R. Podolske, J.J. Margitan, and

- T.P. Bui, Troposphere-to-stratosphere transport in the lowermost stratosphere from measurements of H₂O, CO₂, N₂O and O₃, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 25, NO. 14, 2655-2658, 1998.
- Hofmann D.J.**, and T. Deshler, Stratospheric cloud observations during formation of the Antarctic ozone hole in 1989, *J. Geophys. Res.*, 96, 2897-2912, 1991.
- Holton et al.**, Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, 33, 403-439, 1995.
- Hoskins, B.J.**, M.E. McIntyre and A.W. Robertson, On the use and significance of isentropic potential vorticity maps, *Quart. J. R. Meteorol. Soc.*, 111, 877-946, 1985.
- Hoskins J.**, Towards a PV- θ view of the general circulation, *Tellus*, 43AB, 27-35, 1991.
- Jackson D.R.**, et al., Troposphere to stratosphere transport at low latitudes as using HALOE observations of water vapour 1992-1997, *J. R. Meteorol. Soc.*, 124, 169-192, 1998
- Jensen E.J.**, et al., Dehydration of the upper troposphere and lower stratosphere by subvisible cirrus clouds near the tropical tropopause, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 23, NO. 8, 825-828, 1996.
- Kelly K.K.**, et al., Dehydration in the lower Antarctic stratosphere during late winter and early spring, 1987, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 94, NO. D9, 11317-11357, 1989.
- Kelly K.K.**, et al., A comparison of ER-2 measurements of stratospheric water vapor between the 1987 Antarctic and 1989 Arctic airborne missions, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 17, NO. 4, 465-468, 1990.
- Kley D.**, and E.J. Stone, Measurements of water vapour in the stratosphere by photodissociation with Ly- α (1216 Å) light, *Rev. Sci. Instrum.*, 49, 691-697, 1978.
- Kuhn M.**, A. Petzold, D. Baumgardner, and F.P. Schröder, Particle composition of a young condensation trail and of upper tropospheric aerosol, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 25, 2679-2682, 1998.
- Lelieveld J.**, et al. Chemical perturbation of the lowermost stratosphere through exchange with the troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 24, 603-606, 1997.
- Liljequist G.H.**, Cihak K., *Allgemeine Meteorologie*, Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig, 275-287, 1984.
- 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, 363-366, 1993.
- May R.D.**, Open-path, near-infrared tunable diode laser spectrometer for atmospheric measurements of H₂O, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 103, NO. D15, 19161-19172, 1998.

- McCormick M.P.,** E.W. Chiou, L.R. McMaster, W.P. Chu, J.C. Larsen, D. Rind, and S. Oltmans, Annual Variations of Water Vapor in the Stratosphere and Upper Troposphere Observed by the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 98, NO. D3, 4867-4874, 1993.
- Meilinger S.,** et al., HNO₃ Partitioning in Cirrus Clouds, in press *Geophys. Res. Lett.*, 1999.
- Mörschel U.,** E. Klein, D. Kley, and U. Schmidt, A new balloon borne stratospheric hygrometer, *Proc. 10th ESA Symp.*, Mandelieu-Cannes, France, 27.-31.5.1991, ESA SP-317, 201-205, 1991.
- Mörschel, U.,** Entwicklung eines ballongetragenen Stratosphärenhygrometers, Doktorarbeit, RWTH Aachen, 1992.
- Mote P.W.,** et al., Seasonal Variations of Water Vapor in the Tropical Lower Stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 22, NO. 9, 1093-1096, 1995.
- Mote P.W.,** et al., An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 101, NO. D2, 3989-4006, 1996.
- Murphy D.M.,** et al., Ice saturation at the tropopause observed from the ER-2 aircraft, *Geophys. Res. Lett.*, VOL. 17, NO. 4, 353-356, 1990.
- Newell R.E.,** and S. Gould-Steward, A stratospheric fountain?, *J. Atmos. Sci.*, 38, 2789-2796, 1981.
- Pan L.,** et al., Hemispheric asymmetries and seasonal variations of the lowermost stratospheric water vapour and ozone derived from SAGE II data, *Journal of Geophysical Research*, in press, 1997.
- Plumb R.A.,** and M.K.W. KO, Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents, *J. Geophys. Res.*, 97, 10145-10156, 1992.
- Read W.G.,** E.M. Stone, J.W. Waters, UARS MLS Upper Tropospheric Water Vapor Measurements, 1998 Spring Meeting May 26-29 Boston, American Geophysical Union A51D-5, S51, 1998.
- Reid G.C.,** and K.S. Gage, On the annual variation in height of the tropical tropopause, *J. Atmos. Sci.*, 38, 1928-1938, 1981.
- Reiter E.R.,** Stratospheric-tropospheric exchange processes, *Rev. Geophys. Space Phys.*, 13, 459-474, 1975.
- Remsberg E.E.,** J.M. Russell, L.L. Gordley, J. Gille, and P. Bailey, Implications of the stratospheric water vapor distribution as determined from the Nimbus 7 LIMS experiment, *J. Atmos. Sci.*, 41, 2934-2945, 1984.
- Rind D.,** E.W. Chiou, W.P. Chu, S. Oltmans, J. Lerner, J. Larsen, M.P. McCormick, and L.R. McMaster, Overview of the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II water vapor observations: Method, validation, and data characteristics, *J. Geophys. Res.*, 98, 4835-4856, 1993.

- Rinsland C.P.**, et al., ATMOS measurements of $\text{H}_2\text{O} + 2\text{CH}_4$ and total reactive nitrogen in the November 1994 Antarctic stratosphere: Dehydration and denitrification in the vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 23, NO. 17, 2397-2400, 1996.
- Rosenlof K.H.**, Seasonal cycle of the residual mean meridional circulation in the stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 100, NO. D3, 5173-5191, 1995.
- Rosenlof K.H.**, A.F. Tuck, K.K. Kelly, J.M. Russell, M.P. McCormick, Hemispheric asymmetries in water vapor and inferences about transport in the lower stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 102, NO. D11, 13213-13234, 1997.
- Russell J.M.**, L.L. Gordley, J.H. Park, S.R. Drayson, W. Donald Hesketh, R.J. Ciccone, A.F. Tuck, J.E. Frederick, J.E. Harries, and P.J. Crutzen, The Halogen Occultation Experiment, *J. Geophys. Res.*, 98, 10777-10797, 1993.
- Schiller C.**, A. Hofzumahaus, M. Müller, E. Klein, E.-P. Röth, and U. Schmidt, Ultraviolet actinic flux in the stratosphere: An overview of balloon-borne measurements during EASOE, 1991/92, *Geophys. Res. Lett.*, 21, NO. 13, 1239-1242, 1994.
- Schiller C.**, et al., The partitioning of hydrogen species in the Arctic winter stratosphere: Implications for microphysical parameters, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 101, NO. D9, 14489-14493, 1996.
- Schiller C.**, A. Afchine, N. Eicke, P. Konopka, D.S. McKenna, F. Tuitjer, M. Zöger, H. Fischer, F. Wienhold, A. Giez, H. Schlager, H. Ziereis, Ice particle formation and sedimentation in the tropopause region: A case study based on in-situ measurements of total water during POLSTAR 1997, in press *Geophys. Res. Lett.*, 1999.
- Schlager H.**, P. Konopka, P. Schulte, U. Schumann, H. Ziereis, F. Arnold, M. Klemm, D.E. Hagen, P.D. Whitefield, and J. Ovarlez, In situ observations of air traffic emission signatures in the North Atlantic flight corridor, *J. Geophys. Res.*, 102, 10739-10750, 1997.
- Schmidt U.**, G. Kulassa, E. Klein, E.-P. Röth, P. Fabian, R. Borchers, Intercomparison of balloon-borne cryogenic whole air samplers during the Map/Globus 1983 Campaign, *Planet. Space Sci.*, 35, 647-656, 1987.
- Schmidt U.**, R. Bauer, A. Khedim, E. Klein, G. Kulassa, and C. Schiller, Profile Observations of long-lived trace gases in the Arctic vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 18, NO. 4, 767-770, 1991.
- Schneider J.**, et al. The temporal evolution of the ratio HNO_3/NO_y in the arctic lower stratosphere from January to March 1997, in press *Geophys. Res. Lett.*, 1999.
- Schröder F.**, and J. Ström, Aircraft measurements of sub micrometer aerosol particles (>7 nm) in the midlatitude free troposphere and tropopause region, 1997.

- Shapiro M.A.**, Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and the troposphere, *J. Atmos. Sci.*, 37, 994-1004, 1980.
- Shiotani M.**, Annual, quasi-biennial, and El Niño-Southern Oscillation (ENSO) timescale variations in equatorial total ozone, *J. Geophys. Res.*, 97, 7625-7633, 1992.
- Shiotani M.**, and F. Hasebe, Stratospheric ozone variations in the equatorial region as seen in SAGA data, *J. Geophys. Res.*, 99, 14575-14584, 1994.
- Strahan S.E.**, A.R. Douglass, J.E. Nielsen, and K.A. Boering, The CO₂ seasonal cycle as a tracer of transport, *Journal of Geophysical Research*, VOL. 103, NO. D12, 13729-13741, 1998.
- Stull R.B.**, *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1988.
- Toohey D.W.**, et al., The performance of a new instrument for in-situ measurements of ClO in the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 1791-1794, 1993.
- Tuck A.F.**, J.M. Russel, Stratospheric dryness: Antiphased desiccation over Micronesia and Antarctica, J.E. Harries, *Geophys. Res. Lett.*, 20, NO. 12, 1227-1230, 1993.
- Tuitjer F.**, Entwicklung und Erprobung einer Wasserstoff-Plasmaentladungslampe im Durchflußbetrieb für ein flugzeuggetragenes Hygrometer, Diplomarbeit, FH Ostfriesland, 1997.
- Vaughan G.**, and C. Timmis, Transport of near-tropopause air into the lower mid-latitude stratosphere, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 124, 1559-1578, 1998.
- Volk C.M.**, J.W. Elkins, D.W. Fahey, R.J. Salawitch, G.S. Dutton, J.M. Gilligan, M.H. Proffitt, M. Loewenstein, J.R. Podolske, K. Minschwaner, J.J. Margitan, K.R. Chan, Quantifying Transport Between the Tropical and Mid-Latitude Lower Stratosphere, *Science*, 272, 1763-1768, 1996.
- Volk C.M.**, J.W. Elkins, D.W. Fahey, G.S. Dutton, J.M. Gilligan, M. Loewenstein, J.R. Podolske und K.R. Chan, On the evaluation of source gas lifetimes from stratospheric observations, *J. Geophys. Res.*, 25543-25564, 1997.
- Vömel H.**, S.J. Oltmans, D.J. Hofmann, T. Deshler and J.M. Rosen, The evolution of the dehydration in the Antarctic stratospheric vortex, *J. Geophys. Res.*, 100, NO. D7, 13919-13926, 1995.
- Wienhold F.G.**, et al. TRISTAR - a tracer in-situ TDLAS for atmospheric research, *Appl. Phys.*, B67, 411-417, 1998.
- Woyke T.**, Entwicklung einer Lyman- α -Strahlungsquelle für ein ballongetragenes Stratosphärenhygrometer, Diplomarbeit, RWTH Aachen, 1994.

- Woyke T.**, In-Situ Messung von Halogenoxiden in der polaren Stratosphäre: Untersuchung zur Ozonchemie im Winter 1994/1995, Doktorarbeit, Universität Bonn, Berichte des Forschungszentrums Jülich, 3559, 1998.
- Zhang Z.Q. and B.Y.H. Liu**, On the empirical fitting equations for aspiration coefficients for thin-walled sampling probes, *J.Aerosol Sci.*, 20, 713-720, 1989.
- Zöger M.**, Entwicklung eines flugzeuggetragenen Hygrometers für den Einsatz in der Stratosphäre, Doktorarbeit, Universität Köln, Berichte des Forschungszentrums Jülich, 3239, 1996.
- Zöger M., et al.**, Fast in situ stratospheric hygrometers: A new family of balloon-borne and airborne Lyman- α photophragment fluorescence hygrometers, *J. Geophys. Res.*, 104, 1807-1816, 1999[1].
- Zöger M., et al.**, Balloon borne in-situ measurements of stratospheric H_2O , CH_4 and H_2 at mid-latitudes, in press *J. Geophys. Res.*, 1999[2].

Danksagung

Diese Arbeit wurde am Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 1 - stratosphärische Chemie - unter Leitung von Herrn Prof. Dr. Daniel S. McKenna durchgeführt, dem ich für die Aufgabenstellung danke. Herrn Prof. Dr. Franz-Joseph Lübken vom Physikalischen Institut der Rheinischen Friedrich Wilhelms Universität Bonn danke ich für seine Bereitschaft, das Koreferat zu übernehmen.

Besonders bedanken möchte ich mich bei Herrn Dr. Cornelius Schiller für die interessanten Diskussionen bezüglich der Interpretation der Meßdaten und seine intensive Betreuung in der Endphase der Arbeit.

Herrn Dr. Martin Zöger danke ich für seine Einweisung in das Kalibrationsverfahren und das Meßverfahren des FISH zu Beginn der Arbeit.

Herrn Herbert Franken für seine mechanischen Arbeiten an dem Ballon-FISH.

Herrn Erich Klein für elektronische Arbeiten und Einweisung in Telekomando und Telemetrie.

Herrn Vicheith Tan für Entwicklung der Steuerungsprogramme aller Hygrometer und seine zahlreichen Überstunden vor allen Dingen beim Kampf gegen HF-Störungen der Durchflußlampe während der STREAM 1997-Kampagne.

Die Mitarbeiter der mechanischen Werkstatt für alle Schweiß- und Fräsarbeiten an den im Laufe dieser Arbeit gebauten Hygrometer.

Herrn Frank Tutjer für den Bau einer Durchflußlampe.

Marie-Theres Gerhards für den Bau etlicher sealed getter Lampen.

Herrn Thomas Woyke fürs zur Verfügungstellen der Pumpe und des Drucktanks aus dem CIO-Labor, insbesondere an den letzten Wochenenden und Feiertagen vor der Ballonkampagne im Herbst 1996.

Herrn Armin Afchine für die Berechnung des Aspirationskoeffizienten für kompressible Strömungen.

Herrn Reimar Bauer fürs Beantworten aller Fragen bezüglich IDL.

Frau Nicole Thomas fürs Lösen aller Probleme, die bei der Nutzung von Workstation auftraten.

Rolf Maser, Dieter und Harald von Enviskop für die Integration des Cessna-FISH mit zusätzlicher Pumpe in den LEARJET.

Herrn Marten Ambaum für die Berechnung der Trajektorien zu den STREAM - Messungen.

Herrn Oliver Bujok für die F12- und N₂O-Daten.

Herrn Horst Fischer für die CO- und N₂O-Daten.

Herrn Hans Schlager für die Ozondaten der POLSTAR-Kampagnen.

Herrn Jos Lelieveld für die Ozondaten der STREAM-Kampagnen

Herrn Andreas Engel für die langlebigen Spurengasmessungen des Ballonfluges am 11.02.1997.

Forschungszentrum Jülich



Jül-3714
Dezember 1999
ISSN 0944-2952