

**Der Ozonabbau in der arktischen
Stratosphäre:
Ergebnisse einer neuen Meßstrategie (Match)**

**Markus Rex
Juni 1997**

Dissertation
Eingereicht im Fachbereich Geowissenschaften
der Freien Universität Berlin

Eingereicht am 26. Juni 1997

Datum der Disputation: 4. September 1997

1. Gutachter: Prof. Dr. Karin Labitzke

2. Gutachter: Dr. habil. Steven Pawson

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	5
Verzeichnis der abschnittsübergreifend verwendeten Variablen	7
1 Einleitung	10
1.1 Motivation	10
1.2 Bisher erreichter Wissenstand	11
1.3 Ziel der vorliegenden Arbeit	11
2 Grundlegende Größen	13
2.1 Meßgrößen für Ozon	13
2.2 Die potentielle Temperatur als Höhenskala	14
2.3 Meßgrößen für die potentielle Vorticity	17
2.3.1 Normierte potentielle Vorticity	17
3 Ozon in der polaren Stratosphäre	19
3.1 Die Chapman Chemie	19
3.2 Katalytische Ozonabbauzyklen	20
3.3 Meteorologische Prozesse in der winterlichen polaren Stratosphäre	22
3.4 Die gestörte Chemie der winterlichen polaren Stratosphäre	25
3.5 Ozon im antarktischen und arktischen Polarwirbel	27
4 Methoden zur Messung chemischen Ozonabbaus	35
4.1 Über den Polarwirbel gemittelt Ozon	35
4.2 Verwendung von inerten Tracern	36
4.2.1 N ₂ O als Tracer für die diabatische Zirkulation	36
4.2.2 Hintergrundaerosol als Tracer für Einmischungsvorgänge in den Wirbel	36
4.2.3 Ozon/Tracer-Korrelation	36
4.3 Kombination von Ozonmessungen mit Transportmodellen	37
5 Match-Kampagnen zur Messung chemischen Ozonabbaus	39
5.1 Geeignete Meßgeräte für Match	40

5.1.1	Funktion der Ozonsonden	42
5.2	Match-Auswertung der Ozonsondendaten des Winters 1991/92	46
5.3	Koordinierte Match-Kampagnen in den Wintern 1994/95 und 1995/96.	46
5.4	Koordinierung während der Match-Kampagnen.	48
5.4.1	Kampagnenablauf	48
5.4.2	Prozeduren zur Steuerung der Kampagne	49
5.4.2.1	Nahe Echtzeit Trajektorienrechnungen während der Kampagne	52
5.4.2.2	Auswahlkriterien für die Beurteilung von möglichen Match- Ereignissen	53
5.4.3	Beispiel für das Zustandekommen eines Matches.	55
5.5	Prozeduren zur Datenauswertung nach der Match-Kampagne	57
5.5.1	Trajektorienrechnungen zur Datenauswertung	58
5.5.1.1	Abdrift der Sonden	58
5.5.1.2	Korrektur Diabatischer Effekte	60
5.5.2	Berechnung der Matche.	63
5.5.3	Auswahl der Matche für die Auswertung	65
6	Meteorologie der arktischen Winter 1991/92, 1994/95 und 1995/96	71
6.1	Definition des Polarwirbels	71
6.1.1	pPV als Koordinatensystem im Wirbel	73
6.2	Abschätzung der Bereiche mit PSC-Bedingungen	75
6.3	Abschätzung des diabatischen Absinkens im Wirbel	75
6.4	Berechnung der mittleren Sonnenscheindauer pro Tag im Polarwirbel	76
6.5	Stabilität des Polarwirbels, QBO und Solarzyklus	76
6.6	Die Polarwirbel der drei untersuchten Winter.	77
6.6.1	Winter 1991/92	77
6.6.2	Winter 1994/95	80
6.6.3	Winter 1995/96	83
7	Chemische Ozonverluste in den Wintern 1991/92, 1994/95 und 1995/96	89
7.1	Berechnung der Ozonverlustraten während sonnenbeschienener Zeiten	89
7.2	Berechnung von Tagesmitteln der Ozonverlustraten	91

7.3	Der Winter 1991/92.....	92
7.3.1	Zeitlicher Verlauf der Ozonabbaurate.....	92
7.3.2	Höhenprofil der Ozonabbaurate.....	94
7.3.3	PV-Profil der Ozonabbaurate.....	95
7.3.4	Über den Winter akkumulierter Ozonverlust.....	96
7.4	Der Winter 1994/95.....	97
7.4.1	Zeitlicher Verlauf der Ozonabbauraten.....	97
7.4.2	Höhen/Zeitschnitt der Ozonabbaurate.....	100
7.4.3	Verlust in der Ozonsäule.....	104
7.4.4	PV-Profil der Ozonabbaurate.....	106
7.4.5	Über den Winter akkumulierter Ozonverlust.....	106
7.5	Der Winter 1995/96.....	107
7.5.1	Höhen/Zeitschnitt der Ozonabbaurate.....	107
7.5.2	PV-Profil der Ozonabbaurate.....	109
7.5.3	Über den Winter akkumulierter Ozonverlust.....	109
7.6	Tagesgang der Ozonabbaurate.....	115
8	Diskussion	125
8.1	Diskussion der beobachteten Ozonverluste.....	125
8.1.1	Diskussion des generellen Verlaufs des gefundenen Ozonabbaus anhand der grundlegenden Mechanismen polaren Ozonverlusts.....	125
8.1.2	Rückschlüsse auf den Grad und den Verlauf der Chloraktivierung.....	126
8.1.3	Beobachtete Merkmale der Deaktivierungsphase.....	128
8.1.4	Die chemischen Mechanismen der Deaktivierungsphase.....	129
8.1.5	Modellstudien.....	131
8.1.6	Auswirkungen von Denitrifizierung auf den Ozonabbau in der Arktis.....	135
8.2	Konsequenzen für den arktischen Ozonverlust und Vergleich mit der Antarktis... ..	136
8.3	Bewertung der arktischen Ozonverluste.....	138
9	Fehlerdiskussion	139
9.1	Statistische Fehler.....	139
9.2	Systematische Fehler.....	139

9.2.1 Fehler der diabatischen Erwärmungsraten	139
9.2.2 Überdeckung des Wirbels	142
9.2.3 Mögliche Drift der Trajektorien	145
9.3 Vergleich der Ergebnisse mit anderen Arbeiten	145
Fazit und Ausblick	149
A Tabelle der Stationen	150
Literaturverzeichnis	154

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde ein Lagrangesches Meßverfahren entwickelt, welches es erlaubt, chemische Ozonabbauraten in der arktischen Stratosphäre von dynamisch bedingten Änderungen der Ozonkonzentration zu trennen und damit den chemischen Ozonabbau zu quantifizieren. Das Verfahren beruht auf den koordinierten Starts von etwa 1000 bzw. 600 Ozonsonden in zwei Kampagnen 1994/95 und 1995/96. Die Starts erfolgten von 35 Stationen, die ein Netzwerk in der Arktis und in nördlichen mittleren Breiten bilden. Während der Kampagnen wurden in bestimmten Niveaus die Bahnen aller von den Sonden beprobter Luftpakete überwacht und vorhergesagt. Näherte sich eines der bereits beprobten Pakete an eine beteiligte Station an, wurde von dieser zum vorausberechneten optimalen Startzeitpunkt gezielt eine weitere Sonde in dieses Luftpaket hinein gestartet. Für die Koordinierung einer solchen Kampagne wurde die nötige Infrastruktur geschaffen. In diese waren außer dem Stationsnetzwerk selbst die Daten des Europäischen Zentrums für Mittelfristige Wettervorhersage, darauf basierende Trajektorienrechnungen, nahezu in Echtzeit, des Meteorologischen Instituts der Freien Universität Berlin und Strahlungstransportrechnungen der Universität Cambridge eingebunden. Chemische Ozonabbauraten ergaben sich aus einer statistischen Analyse der von einem Sondenpaar gemessenen Differenzen im Ozonmischungsverhältnis und der Zeiten, die das jeweilige Luftpaket in der Sonne verbracht hat.

Durch den Einsatz der koordinierten Kampagnen ist es gelungen, den zeitlichen Verlauf und die vertikale Verteilung der chemischen Ozonabbaurate in den Wintern 1994/95 und 1995/96 detailliert zu bestimmen. Die Ergebnisse wurden zusammen mit einer Lagrangeschen Neuauswertung der Ozonsondendaten des arktischen Winters 1991/92 dargestellt.

In allen drei Wintern wurde schneller chemischer Ozonabbau mit ähnlichen maximalen Raten von jeweils etwa 50 bis 60 ppbv bzw. 1,6 bis 1,7 % pro Tag festgestellt. Der in der Höhenschicht mit dem maximalen Abbau über den Winter akkumulierte chemische Ozonverlust betrug im Winter 1991/92 1,2 ppmv, im Winter 1994/95 2,0 ppmv und im Winter 1995/96 2,4 ppmv. Letzterer Wert entspricht einem Abbau von etwa 64 %, wenn er auf die Ozonmenge bezogen wird, die am Ende des Winters ohne die Wirkung der Chemie bei sonst gleicher dynamisch bedingter Ozoneinmischung vorgelegen hätte. Der akkumulierte chemische Verlust in der Ozongesamtsäule betrug im Winter 1994/95 etwa 130 DU. Der festgestellte chemische Verlust in der Ozonsäule entspricht in etwa der Menge, die in der gleichen Zeit durch dynamische Prozesse hinzugefügt wird. Durch die Auswirkung des chemischen Ozonverlusts sind die Ozongesamtsäulen in den Wintern 1994/95 und 1995/96 also auf einem konstantem Niveau geblieben, im Gegensatz zum normalen klimatologischen Anwachsen der Säulendichte in dieser Jahreszeit.

Der chemische Ozonverlust wurde jedesmal und in allen Höhen von Perioden eingeleitet, in denen die Temperaturen unterhalb des Wertes lagen, ab dem die Bildung von Polaren Stratosphärischen Wolken (PSC) möglich ist. Er war generell auf die Zeiten beschränkt, die eine Luftmasse in der Sonne verbracht hat. Dieses Verhalten entspricht genau dem, was von der Theorie des durch heterogene Chemie induzierten und durch Halogenradikale katalysierten Ozonabbaus vorausgesagt wird.

Der Verlauf des Rückgangs der Ozonabbaurate in der Erholungsphase machte deutlich, daß diese in der Arktis im wesentlichen von der Rückkehr der Sonne bestimmt wird. Als neues Ergebnis ist zu werten, daß der Prozeß der Erholung relativ unabhängig von der weiteren Existenz von PSCs ablief. Dieses wird erklärt durch ein Nachlassen der Effektivität der heterogenen Chemie in dem Moment, wo das gesamte HCl in der Luftmasse verbraucht ist. Die Effektivität der dann noch ablaufenden heterogenen Mechanismen war bisher nicht geklärt. Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit deuten darauf hin, daß diese nur noch einen sehr begrenzten Einfluß auf die stratosphärische Chemie haben und nicht in der Lage sind, den Aufbau des Frühjahrsmaximums des Chlornitrats und den Rückgang der Ozonabbaurate entscheidend zu verzögern. Die Gesamtmenge des in einem Winter zerstörten Ozons scheint demnach unabhängiger vom Zeitpunkt der Erwärmung im Frühjahr zu sein, als bisher angenommen. Insbesondere hat dieser Effekt die Bildung eines arktischen Ozonlochs während der ungewöhnlich langen kalten Periode des Winters 1995/96 verhindert.

Neben diesem den Ozonabbau in der Arktis offensichtlich eher begrenzenden Effekt wurde im Winter 1995/96 jedoch auch ein schmaler Höhenbereich gefunden, in dem der Ozonabbau lange nach Ende der PSC-Periode bis in den April hinein anhielt. Es wurde gezeigt, daß dies nur als die erste Beobachtung der Auswirkung von Denitrifizierung auf den Ozonabbau in der Arktis interpretiert werden kann. Diese Beobachtung zeigt, daß Denitrifizierung auch in der Arktis (wie regelmäßig in der Antarktis) Ausmaße erreichen kann, die eine signifikante Verlängerung des Ozonabbaus bewirken.

Beide gefundenen Effekte zusammen legen nahe, daß eine Verlängerung der PSC-Temperaturen im Frühjahr in der Arktis kaum zu Ozonverlusten führen kann, die dem antarktischen Ozonloch vergleichbar wären. Das Auftreten von extrem kalten Temperaturen, welche durch die Bildung von Eiswolken schwerwiegende Denitrifizierung hervorrufen können, kann demgegenüber jedoch auch in der Arktis den Ozonverlust im Frühjahr derart verlängern, daß die Bildung eines arktischen Ozonlochs denkbar erscheint. Dazu müßte jedoch in den nächsten Jahrzehnten, solange die stratosphärische Chlorbelastung noch groß ist, ein Winter mit noch weiter zeitlich und räumlich ausgedehnten Existenzbedingungen für Eiswolken auftreten, als dies 1995/96 der Fall war. Solche meteorologischen Bedingungen finden sich in der 30-jährigen Berliner Reihe bisher nicht. Für die weitere Entwicklung der arktischen Ozonverluste ist es demnach entscheidend, ob sich erste Hinweise auf einen Abkühlungstrend der polaren Stratosphäre in Zukunft bestätigen.

Verzeichnis der abschnittsübergreifend verwendeten Variablen

Variable	Kurzbezeichnung	Seite der Definition
α	Matchwinkel	65
A_{EIS}	Fläche der Nordhemisphäre mit Temperaturen kälter als T_{EIS}	75
A_{NAT}	Fläche der Nordhemisphäre mit Temperaturen kälter als T_{NAT}	75
D_{max}^{\perp}	Maß für die Divergenz der Trajektorien in der Vertikalen	65
D_{max}^{-}	Maß für die Divergenz der Trajektorien in der Horizontalen	65
ΔPV_{max}	maximaler horizontaler PV-Gradient	71
$d\Theta/dt$	diabatische Erwärmungsrate	60
ΔXO_3	zwischen beiden Sondenmessungen eines Matches aufgetretene Differenz des Ozonmischungsverhältnisses	67
ΔXO_3^*	ΔXO_3 korrigiert um den erwarteten Ozonabbau	67
Δz^A	vertikale Lücke im ersten Ozonsondenprofil eines Match in der Höhe des Matches	65
Δz^B	vertikale Lücke im zweiten Ozonsondenprofil eines Matches in der Höhe des Matches	65
h	geometrische Höhe	15
L_{d90°	Ozonverlustrate während Zeiten mit szw größer 90°	116
L_s	Ozonverlustrate während sonnenbeschienener Zeiten	89
L_{s90°	Ozonverlustrate während Zeiten mit szw kleiner 90°	116
L_t	Ozonverlust pro Tag	91
nPV	normierte potentielle Vorticity	17
p	Luftdruck	13
pPV	radiale Koordinate im Polarwirbel	73
PV	Ertelsche potentielle Vorticity	17
PV^{\sim}	Maß für die Änderung der PV-Werte entlang der Trajektorie	65

R	Matchradius	64
R_{\max}	Maximale zugelassener Matchradius.	65
$\sigma(\Delta XO_3^*)$	Streuung von ΔXO_3^*	67
S_{KERN}	mittlere Tageslänge im Kern des Polarwirbels	76
S_{RAND}	mittlere Tageslänge im Rand des Polarwirbels	76
S_{WIRBEL}	mittlere Tageslänge im Polarwirbels	76
T	Lufttemperatur.	13
t	gesamte Zeitspanne zwischen den beiden Ozonsondenmessungen eines Matches	64
Θ	potentielle Temperatur.	14
t_d	Zeit, die ein Luftpaket zwischen zwei Messungen im Dunkeln verbracht hat	115
t_{d90°	Zeit, die ein Luftpaket zwischen zwei Messungen bei szw größer als 90° verbracht hat	116
T_{EIS}	Frostpunkt	25
T_{NAT}	NAT Gleichgewichtstemperatur	25
t_s	Zeit, die ein Luftpaket zwischen zwei Messungen in der Sonne verbracht hat	64
t_{s90°	Zeit, die ein Luftpaket zwischen zwei Messungen bei szw kleiner als 90° verbracht hat	116
XO_3	Ozonmischungsverhältnis	13
XO_3^A	Ozonmischungsverhältnis, gemessen von der ersten Sonde eines Matches . . .	64
XO_3^B	Ozonmischungsverhältnis, gemessen von der zweiten Sonde eines Matches. .	64
$XO_3^{\sim 2K A}$	Maß für den maximalen vertikalen Gradienten von XO_3^A in einer ± 2 K Umgebung um das Niveau des Matches	65
$XO_3^{\sim 2K B}$	Maß für den maximalen vertikalen Gradienten von XO_3^B in einer ± 2 K Umgebung um das Niveau des Matches	65
$XO_3^{\sim 5K A}$	Maß für den maximalen vertikalen Gradienten von XO_3^A in einer ± 5 K Umgebung um das Niveau des Matches	65
$XO_3^{\sim 5K B}$	Maß für den maximalen vertikalen Gradienten von XO_3^B in einer ± 5 K Umgebung um das Niveau des Matches	65

$XO_3^{-10K A}$	Maß für den maximalen vertikalen Gradienten von XO_3^A in einer $\pm 10 K$ Umgebung um das Niveau des Matches	65
$XO_3^{-10K B}$	Maß für den maximalen vertikalen Gradienten von XO_3^B in einer $\pm 10 K$ Umgebung um das Niveau des Matches	65

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Motivation

Spätestens seit der Entdeckung des antarktischen Ozonlochs durch Chubachi [1984] und Farman et al. [1985] ist die globale Ozonschicht in der öffentlichen Diskussion. Ein wesentlicher Grund hierfür ist, daß eine abnehmende Ozonschichtdicke direkte Auswirkungen auf die Biosphäre hat. Die Ozonschicht absorbiert einen großen Teil der von der Sonne auf die Erde einstrahlenden UV-B ($\lambda = 290\text{-}315\text{ nm}$) Strahlung. Unter diesem Schirm hat sich die Biosphäre der Erde entwickelt und ist an die Intensität der UV-B Strahlung angepaßt, die nach der Ozonabsorption noch verbleibt. Bei einem Prozent Abnahme der Ozonschichtdicke nimmt die Intensität dieser Strahlung um etwa 2 Prozent zu [Chubarova, 1996]. Durch eine Erhöhung der Intensität der UV-B Strahlung kann es zu Schäden in weiten Bereichen der Biosphäre kommen. Als direkte Auswirkungen auf Menschen und höhere Tiere werden das vermehrte Auftreten von Hautkrebs, Schäden an den Augen und Infektionen diskutiert [van der Leun, 1995]. Der Einfluß einer erhöhten UV-B Belastung auf Pflanzen variiert stark zwischen den verschiedenen Arten. Zu den direkten Auswirkungen zählen eine unterschiedlich starke Hemmung des Wachstums bis hin zu Krüppelwachstum und das vermehrte Auftreten von Krankheiten. Dadurch kann indirekt das Gleichgewicht innerhalb der verschiedenen Biotope verschoben werden, was bisher unabsehbare Auswirkungen nach sich ziehen kann. Eine Verminderung der landwirtschaftlichen Produktion ist möglich [van der Leun, 1995]. Der direkte Einfluß auf ozeanische Lebensformen findet hauptsächlich nahe der Oberfläche statt. Hier ist der Lebensraum des Phytoplanktons, dessen Primärproduktion etwa 30 % der weltweiten Produktion tierischen Eiweiß darstellt. Studien belegen, daß sie durch erhöhte UV-B Belastung reduziert wird [van der Leun, 1995].

Die mit dem Ausdruck ‘Ozonloch’ verbundenen Vorgänge spielen sich jedes Jahr im Winter bis Frühjahr in einem unbesiedelten Bereich über der Antarktis ab. Dort haben die oben beschriebenen Auswirkungen der Abnahme der Ozonschichtdicke auf die Biosphäre nur einen begrenzten direkten Einfluß auf den Menschen. Eine tendenzielle Abnahme der Ozonschichtdicke wird aber auch über den dicht besiedelten mittleren Breiten beobachtet, wobei der negative Trend auf der Nordhemisphäre am größten ist [Stolarski et al., 1992; Solomon et al., 1996]. Dieser Trend ist allerdings nur knapp signifikant und nicht zu vergleichen mit dem starken Signal des antarktischen Ozonlochs.

Seit dem Auftreten des Ozonlochs über der Antarktis wird intensiv diskutiert, ob ein Ozonverlust ähnlichen Ausmaßes auch über der Arktis stattfinden kann. Die Arktis ist im Vergleich zu der Antarktis dicht besiedelt und die Luftmassen, in denen so ein Ozonverlust auftreten könnte, driften in den meisten arktischen Wintern für begrenzte Zeiten auch über Mitteleuropa. Sollte

in diesen Luftmassen eine dem antarktischen Ozonloch vergleichbare Ozonzerstörung stattfinden, könnte das direkte Konsequenzen für die Menschen der Arktis haben, aber auch für die mitteleuropäische Bevölkerung, Landwirtschaft und Struktur der Ökosysteme.

1.2 Bisher erreichter Wissenstand

Wegen der möglichen schwerwiegenden Folgen einer Ozonzerstörung in der Arktis wurde die Ozonschicht in diesem Bereich seit Entdeckung des antarktischen Ozonlochs intensiv untersucht. Erste Hinweise auf eine Ozonabnahme wurden von den arktischen Wintern 1988/89, 1989/90 und 1991/92 berichtet [Hofmann et al., 1989; Evans, 1990; Proffitt et al., 1990; Schoeberl et al., 1990; Hofmann und Deshler, 1991; Proffitt et al., 1993; Waters et al., 1993a]. Der Nachweis chemisch bedingten Ozonverlusts in der Arktis wird allerdings durch eine sehr starke natürliche Variabilität der Ozonschicht über der Arktis erschwert. Durch Transporte von Luftmassen unterschiedlichen Ozongehalts, kommt es in der Arktis zu schnellen Änderungen der Ozonkonzentration, auch wenn keine chemische Prozessierung vorliegt. Daher können diese frühen Arbeiten nur als Hinweise auf eine chemisch bedingte Ozonreduktion gewertet werden. Mit der Entwicklung von Verfahren, welche die Auswirkungen solcher Transporteffekte berücksichtigen, ist es seitdem gelungen, chemischen Ozonabbau in der Arktis zweifelsfrei nachzuweisen. Dieser Nachweis wurde erstmals für den Winter 1991/92 geführt [Browell et al., 1993; Rex, 1993; von der Gathen et al., 1995; Rex et al., 1996a].

Eine Quantifizierung des arktischen Ozonabbaus ist durch die erwähnten Auswirkungen von Transporteffekten bisher nur in Ansätzen gelungen, wobei erst während des Zustandekommens der vorliegenden Arbeit verschiedene erfolgversprechende Verfahren entwickelt wurden. Eine Übersicht über die entsprechende Literatur und die verwendeten Methoden wird im Kapitel 4 gegeben. Alle verwendeten Verfahren haben es jedoch bisher nicht ermöglicht, die chemische Ozonabbaurate in einem arktischen Winter detailliert, zeitlich und höhenaufgelöst zu beobachten. Die meisten Verfahren erlaubten nur eine Abschätzung des über den Winter akkumulierten Verlusts oder ergaben nur Ergebnisse in einer Höhenschicht.

1.3 Ziel der vorliegenden Arbeit

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, eine Methode zu entwickeln und anzuwenden, die es erlaubt, ein detailliertes, zeitlich und höhenaufgelöstes Bild der Ozonabbaurate in einem arktischen Winter zu erhalten. Dazu baut die Arbeit auf dem von Rex [1993] und von der Gathen et al. [1995] eingeführten Lagrangeschen Verfahren zum Nachweis chemischer Ozonverluste auf. Bei diesem Verfahren werden Ozonsondenmessungen miteinander verknüpft, die jeweils in der gleichen Luftmasse stattgefunden haben. Bislang basiert dieses Verfahren auf zufälligen Ozonsondenmessungen. Die vorliegende Arbeit erweitert diese Methode derart, daß nun aktiv im Rahmen einer Kampagne Lagrangesche Messungen durchgeführt werden. Dies bedingt die Entwicklung einer Echtzeitkoordinierung von vielen hundert Ozonsondenstarts eines großen Netzwerkes von Stationen. Um dies zu ermöglichen ist die während des European Arctic Stratospheric Ozone Experiments (EASOE) begonnene Integration der etwa 35 nationalen Ozonsondenstationen in der Arktis und nördlichen mittleren Breiten zu einem kooperierenden einheitlichen Netzwerk fortzusetzen. Weiterhin sind die bestehenden Ressourcen verschiedener Europäischer Institutionen zusammen mit diesem Stationsnetzwerk zu einer Infrastruktur zusammenzufügen, die die Überwachung der Bahnen bereits beprobter Luftmassen erlaubt und gezielte weitere Sondenstarts in diese Luftmassen hinein ermöglicht. Zu den zu verknüpfenden Ressourcen gehören neben dem Stationsnetzwerk selbst die Analyse- und Vorhersagedaten des

Europäischen Zentrums für Mittelfristige Wettervorhersage (EZMW), schnelle Trajektorienrechnungen (nahe Echtzeit) des Meteorologischen Instituts der Freien Universität Berlin (FU) und Strahlungstransportrechnungen der Universität Cambridge.

Mit Hilfe des erhaltenen Bildes des arktischen Ozonverlusts ist die chemische Situation in der arktischen Stratosphäre einzuschätzen sowie eine Überprüfung unseres bisherigen Verständnisses der dem Ozonverlust zugrundeliegenden Mechanismen durchzuführen.

Kapitel 2

Grundlegende Größen

2.1 Meßgrößen für Ozon

Der Gehalt an Ozon in der Atmosphäre kann in verschiedenen physikalischen Größen gemessen werden. Die Ozonkonzentration ($[O_3]$) bezeichnet die Anzahl von Ozonmolekülen pro Volumeneinheit. Sie wird in dieser Arbeit in der Einheit cm^{-3} verwendet.

Der Ozonpartialdruck ($P(O_3)$) gibt den Teil des Gesamtdrucks an, der von den Ozonmolekülen erzeugt wird. Bei den auftretenden sehr kleinen Ozonkonzentrationen kann Ozon gut als ideales Gas angesehen werden. Es gilt dann das ideale Gasgesetz:

$$P(O_3) = R_a \cdot T \cdot [O_3] \quad (1)$$

$$R_a = \text{Allgemeine Gaskonstante} \approx 8,3143 \frac{J}{K \cdot mol}$$

$$T = \text{Lufttemperatur}$$

Das Ozonmischungsverhältnis bezeichnet das Verhältnis von Ozonmenge zur Gesamtmenge an Gas in einem Volumen. Es kann als Volumenmischungsverhältnis (XO_3) oder als Massenmischungsverhältnis angegeben werden. Das Volumenmischungsverhältnis bezeichnet den Anteil des von den Ozonmolekülen eingenommenen Volumens am Gesamtvolumen. Da auch trockene Luft bei atmosphärischen Temperatur- und Druckverhältnissen gut einem idealen Gas entspricht, ist das Volumenmischungsverhältnis identisch mit der Anzahl von Ozonmolekülen pro Luftmolekül. Das Massenmischungsverhältnis bezeichnet den Gewichtsanteil des Ozons am Gesamtgewicht einer Luftmasse. Bei der Angabe von Mischungsverhältnissen wird in dieser Arbeit ausschließlich das Volumenmischungsverhältnis verwendet. Mischungsverhältnisse sind physikalisch einheitslos. Sie werden hier in ppmv (parts per million by volume = 10^{-6}), ppbv (parts per billion by volume = 10^{-9}) oder pptv (parts per trillion by volume = 10^{-12}) angegeben.

Das Volumenmischungsverhältnis berechnet sich aus der Ozonkonzentration oder dem Ozonpartialdruck nach:

$$XO_3 = \frac{[O_3]}{\rho} = \frac{P(O_3)}{p} \quad (2)$$

$$\rho = \text{Teilchendichte der Luft}$$

$$p = \text{Luftdruck}$$

Das Mischungsverhältnis hat gegenüber der Konzentration den Vorteil, daß es eine physikalische Erhaltungsgröße ist. Solange Ozon nicht an chemischen Prozessen beteiligt ist, bleibt das Ozonmischungsverhältnis somit konstant. Für Ozonkonzentration oder Ozonpartialdruck gilt dies nicht; diese Größen unterliegen auch ohne chemischer Prozessierung Änderungen durch Druck- oder Temperaturveränderungen in der Luftmasse.

Für die UV-Belastung der Biosphäre ist der Gesamtgehalt an Ozon in der Luftmasse zwischen Erdboden und Weltall ausschlaggebend. Die über die Höhe aufintegrierte Ozonkonzentration bezeichnet man als Ozongesamtsäule oder Ozonsäulendichte (O_3 -Säule):

$$O_3\text{-Säule} = \int_0^{\infty} [O_3] dz \quad (3)$$

wobei z die vertikale Koordinate sei. Für die Ozonsäulendichte ist eine spezielle Einheit gebräuchlich, die Dobson Units (DU). Dobson Units geben die Schichtdicke in Millimetern an, die alle Ozonmoleküle in der Säule unter Normalbedingungen bilden würden, wenn sie als Schicht auf dem Erdboden abgelagert würden. Die Umrechnung in Anzahl der Ozonmoleküle pro Flächeneinheit lautet:

$$1 \text{ DU} = 2,69 \cdot 10^{16} \frac{1}{\text{cm}^2} \quad (4)$$

In Abbildung 2.1 ist ein Ozonkonzentrationsprofil mit dem dazugehörigen Ozonmischungsverhältnisprofil dargestellt. Obwohl die Ozonkonzentration etwa ab 18 km Höhe abnimmt, nimmt das Mischungsverhältnis auch weiter oben noch zu. Dies liegt daran, daß die Abnahme der Ozonkonzentration nach oben langsamer langsamer verläuft als die Abnahme der Luftdichte. Ab etwa 25 km gleichen sich beide Abnahmen in etwa aus, so daß ab hier etwa konstante Mischungsverhältnisse auftreten. Die Ozonsäulendichte für diesen Tag errechnet sich zu 295 DU. Bei der Berechnung der Ozonsäulendichte wird das Ozon, welches sich oberhalb des gemessenen Profils befindet, mit der Annahme konstanten Mischungsverhältnisses abgeschätzt. Da sich die Säulendichte nach Gleichung 3 aus dem Integral der Konzentration ergibt und die Konzentration oberhalb des gemessenen Profils sehr gering ist, hat die Abschätzung nur einen sehr kleinen Einfluß auf die errechnete Säulendichte.

2.2 Die potentielle Temperatur als Höhenskala

Die potentielle Temperatur (Θ) einer Luftmasse ist definiert als die Temperatur, die die Luftmasse annehmen würde, wenn sie trocken-adiabatisch auf 1000 hPa komprimiert (bzw. expandiert) würde. Sie berechnet sich aus:

$$\Theta = T \cdot \left(\frac{1000 \text{ hPa}}{p} \right)^\kappa \quad (5)$$

$$\kappa = \frac{R}{c_p} \approx 0,286 \text{ für trockene Luft}$$

c_p = spezifische Wärme bei konstantem Druck

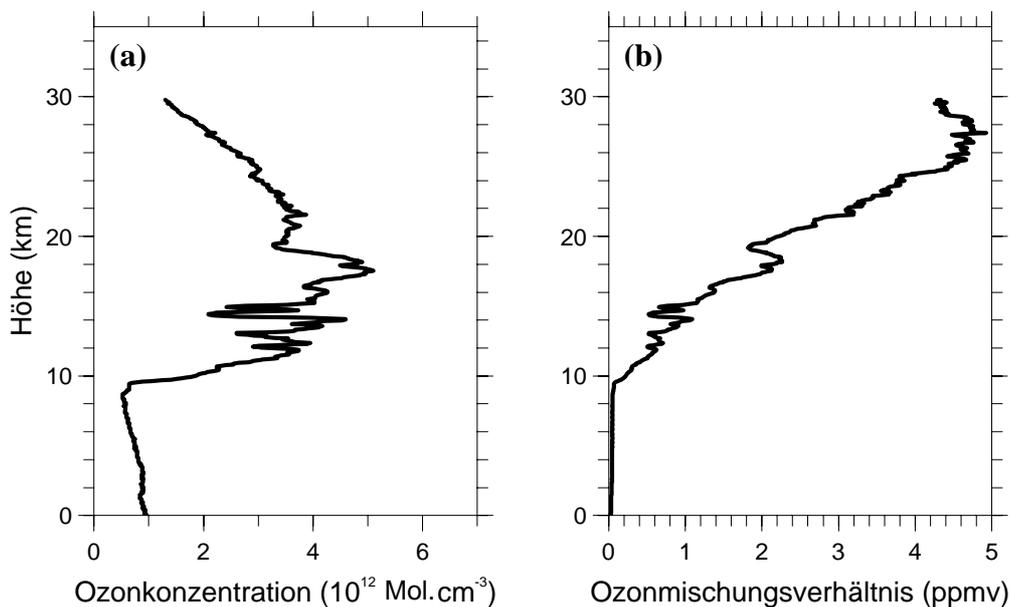


Abbildung 2.1: Ozonprofil über Ny-Ålesund, gemessen mit einer Ozonsonde am 3.2.1995. (a) zeigt das Konzentrationsprofil, (b) das zugehörige Profil des Ozonmischungsverhältnisses.

Aus der Definition geht hervor, daß Θ für adiabatische Bewegungen eine Erhaltungsgröße ist. Der Gradient von Θ gibt die Stabilität der Schichtung an. Nimmt Θ nach oben ab, würde ein Luftpaket, welches durch einen nach oben gerichteten Impuls aufzusteigen beginnt und dabei adiabatisch expandiert, bald eine geringere Dichte als die Luft der Umgebung haben, daher einen Auftrieb erfahren und weiter beschleunigen. Eine solche Schichtung ist instabil. Umgekehrt würde ein aufsteigendes Luftpaket in einer Schichtung mit nach oben zunehmendem Θ eine rücktreibende Beschleunigung erfahren. Da die Stratosphäre bis auf lokale Bereiche brechender Wellen durchweg stabil geschichtet ist, nimmt Θ in ihr streng monoton mit der Höhe zu. Das heißt, daß man für jede vertikale Luftsäule in der Stratosphäre eine eindeutige Zuordnung zwischen der geometrischen Höhe (h) und Θ finden kann. Die Flächen mit konstanter potentieller Temperatur, die auch den Isentropen entsprechen, sind ungefaltet übereinander angeordnet. Man kann daher Θ anstatt der geometrischen Höhe oder des Luftdrucks als vertikale Skala verwenden. Der Vorteil dieser Skala ist, daß aufgrund der konservativen Eigenschaften von Θ in einem solchen System keine vertikalen Bewegungen auftreten, solange adiabatische Prozesse betrachtet werden. In der vorliegenden Arbeit wird aus diesem Grund an den meisten Stellen Θ als vertikale Skala verwendet.

Die Zuordnung zwischen Θ und h ist jeweils von T und p abhängig. Tabelle 2.1 gibt für die verschiedenen Zeiträume der Untersuchungsperiode die mittlere Zuordnung zwischen Θ und der geometrischen Höhe an. Zur Berechnung der angegebenen Werte wurde jeweils über die geometrische Höhe aller Temperatur- und Druckmessungen der Ozonsonden gemittelt, die im angegebenen Zeitraum auf der jeweiligen Isentropenfläche im Polarwirbel stattgefunden haben.

Θ [K]	1992			1995			1996		
	Januar	Februar	März	Januar	Februar	März	Januar	Februar	März
	h s [km]								
375	13,8 0,6	13,3 0,6	13,2 0,7	14,1 0,6	13,3 0,7	13,6 0,7	14,2 0,4	14,2 0,6	13,8 0,5
400	15,5 0,5	15,0 0,6	14,9 0,6	15,8 0,6	15,0 0,8	15,2 0,7	15,9 0,4	15,9 0,5	15,5 0,7
425	16,9 0,5	16,5 0,5	16,4 0,6	17,3 0,6	16,5 0,8	16,6 0,7	17,5 0,4	17,4 0,5	17,1 0,7
450	18,3 0,6	17,8 0,5	17,9 0,5	18,7 0,6	17,8 0,7	18,0 0,6	19,0 0,4	18,7 0,6	18,3 0,7
475	19,6 0,7	19,1 0,5	19,2 0,5	19,9 0,6	18,9 0,6	19,1 0,7	20,2 0,5	19,9 0,6	19,5 0,8
500	20,8 0,8	20,2 0,5	20,3 0,5	20,9 0,6	20,0 0,6	20,2 0,6	21,3 0,5	21,0 0,5	20,6 0,8
525	21,9 0,9	21,3 0,5	21,3 0,5	21,9 0,5	21,1 0,6	21,2 0,6	22,3 0,6	22,0 0,6	21,6 0,7
550	22,9 0,8	22,3 0,5	22,3 0,5	22,8 0,5	21,9 0,6	22,1 0,6	23,3 0,6	22,9 0,6	22,5 0,9
575	23,6 0,9	23,1 0,5	23,6 0,4	23,6 0,5	22,7 0,5	22,9 0,6	24,1 0,6	23,7 0,5	23,3 0,8
600	24,4 0,8	23,9 0,5	24,0 0,4	24,4 0,6	23,5 0,6	23,7 0,6	24,9 0,6	24,4 0,5	24,0 0,8

Tabelle 2.1: Die Beziehung der potentiellen Temperatur zur geometrischen Höhe innerhalb des Polarwirbels während Januar bis März der behandelten Jahre. Die Daten beruhen auf allen im jeweiligen Zeitraum im Polarwirbel erfolgten Temperatur- und Druckmessungen durch Ozonsonden. Als Maß für die Variabilität gibt σ die einfache Standardabweichung der Höhen an. Eine genaue Definition des Begriffs 'innerhalb des Polarwirbels' wird in Abschnitt 6.1 gegeben. Es wurde auch jeweils der Kern des Polarwirbels separat vom Rand untersucht, wobei sich jedoch keine signifikanten Unterschiede ergaben.

2.3 Meßgrößen für die potentielle Vorticity

Die Ertelsche potentielle Vorticity (PV) ist eine weitere für adiabatische Bewegungen konservative Größe. Sie ist definiert als:

$$PV = -g \cdot (f + \zeta_{\Theta}) \cdot \frac{\partial \Theta}{\partial p} \quad (6)$$

wobei g die Erdbeschleunigung bezeichnet, f den Coriolisparameter und ζ_{Θ} die Θ -Komponente der Rotation des Windfeldes.

Als Einheit der potentiellen Vorticity wird hier die weit verbreitete PVU (Potential Vorticity Unit) definiert:

$$1 \text{ PVU} = 10^{-6} \frac{\text{K} \cdot \text{m}^2}{\text{s} \cdot \text{kg}} \quad (7)$$

PV dient später zur Definition der Außengrenze der in Abschnitt 3.3 beschriebenen Polarwirbel. Im Zentrum des Polarwirbels nimmt PV ein Maximum an und nimmt auf einer Isentropenfläche nach außen monoton ab. Weiterhin nimmt PV nach oben zu.

2.3.1 Normierte potentielle Vorticity

Dunkerton und Delisi [1986] führten die skalierte potentielle Vorticity ein, die für adiabatische Bewegungen ebenfalls konservativ ist, aber eine geringere Höhenvariation aufweist. Die Definition der skalierten PV wird hier um einen konstanten Normierungsfaktor k ($k = 2,65 \cdot 10^5$) ergänzt. Die sich daraus ergebende Größe wird hier normierte PV (nPv) genannt. Sie ist anhand der Ertelschen PV wie folgt definiert:

$$\text{nPV} = \frac{PV}{g \cdot \frac{\partial \Theta_0(p)}{\partial p}} \cdot k \quad (8)$$

$\Theta_0(p)$ ist ein mittleres Profil der potentiellen Temperatur.

Das mittlere $\Theta_0(p)$ Profil wurde aus etwa 500 Radiosondenprofilen von Ny-Ålesund aus den Monaten Dezember, Januar und Februar seit 1988 berechnet. Zwischen 350 K und 700 K wird die Umkehrfunktion dieses mittleren Profils sehr gut von folgender Funktion approximiert [von der Gathen, 1996]:

$$p = p_0 \cdot e^{a_0 + a_1 \cdot \Theta_0 + a_2 \cdot \Theta_0^2 + a_3 \cdot \Theta_0^3} \quad (9)$$

$$a_0 = 12,480$$

$$a_1 = -3,212 \cdot 10^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$$

$$a_2 = 3,708 \cdot 10^{-5} \cdot \text{K}^{-2}$$

$$a_3 = -1,627 \cdot 10^{-8} \cdot \text{K}^{-3}$$

$$p_0 = 1,0 \text{ hPa}$$

Der Normierungsfaktor k wurde so gewählt, daß die Zahlenwerte von nPV (in s^{-1}) und PV (in PVU) auf der 475 K Isentrope gerade übereinstimmen. Eine weitere auf PV beruhende Größe, pPV , wird in Abschnitt 6.1.1 eingeführt.

Kapitel 3

Ozon in der polaren Stratosphäre

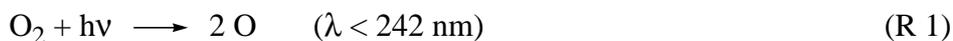
Die Entwicklung unseres heutigen Wissens der stratosphärischen Ozonchemie war durch drei wesentliche Erkenntnisschübe geprägt, nachdem Schönbein das Ozon im Jahre 1839 entdeckt hatte und Hartley es 1881 in der Atmosphäre nachgewiesen hatte. Seitdem sind als besondere Fortschritte zu werten:

1. Die Publikation der grundlegenden photochemischen Ozonbildungs- und Abbaumechanismen durch Chapman [1930].
2. Die Entdeckung einer ganzen Reihe katalytischer Ozonabbaumechanismen verschiedener Radikale, wobei die Arbeiten in den 70-er Jahren von Crutzen [1970], Crutzen [1971] und Molina und Rowland [1974] von besonderer Bedeutung sind.
3. Die Erkenntnis der Rolle heterogener chemischer Prozesse für die stratosphärische Ozonchemie durch Crutzen und Arnold [1986] und Solomon et al. [1986] nach der Entdeckung des antarktischen Ozonlochs durch Chubachi [1984] und Farman et al. [1985].

Die wesentlichen Gesichtspunkte der stratosphärischen Ozonchemie sollen hier im wesentlichen in der Reihenfolge ihrer Entdeckung geschildert werden, da diese eine logische Gliederung des Gebiets darstellt. Dabei wird nur auf die Aspekte der polaren Ozonchemie etwas detaillierter eingegangen.

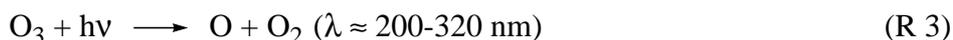
3.1 Die Chapman Chemie

Der bereits von Chapman [1930] vorgeschlagene grundlegende photochemische Ozonbildungsmechanismus lautet:



wobei M ein beliebiger zum Impulstransfer benötigter Stoßpartner ist.

Der Ozonabbau erfolgt ebenfalls durch Photochemie:



Allein durch Schlußfolgerungen aus diesen Reaktionen und durch frühe Messungen mit Ozonradiosonden [Coblentz und Stair, 1939] und Dobson Spektrometern [Dobson, 1931] konnte die globale Ozonverteilung bereits in den vierziger Jahren in wesentlichen Punkten qualitativ korrekt beschrieben werden [Götz, 1944].

Aus den Wellenlängenabhängigkeiten der Photolyseraten von R1 und R3 ergibt sich, daß bei intensiveren kurzwelligeren Strahlungsflüssen die Ozonproduktion überwiegt. Daher ist die Hauptquelle von Ozon in äquatorialen Breiten und in der höheren Stratosphäre; noch weiter oben nimmt die Produktionsrate aufgrund der abnehmenden Luftdichte wieder ab. Von dort wird das Ozon mit der mittleren globalen Zirkulation in höhere Breiten und niedere Luftschichten verteilt.

3.2 Katalytische Ozonabbauzyklen

Bei zunehmender Dichte der Messungen und durch die inzwischen entwickelten Modelle der atmosphärischen Zirkulation wurden dann jedoch zunehmend deutliche Unterschiede zwischen der beobachteten Ozonverteilung und den von Modellen produzierten Ergebnissen sichtbar (z.B. [Bates und Nicolet, 1950]). Besonders die vertikale Position des Ozonmaximums wurde von den Modellen deutlich zu weit oben errechnet. Versuche, diese Unterschiede zu erklären, führten schließlich zur Entdeckung einer ganzen Reihe katalytischer Ozonabbaumechanismen. Bates und Nicolet [1950] schlugen den ersten dieser Zyklen vor, der wegen der involvierten Wasserstoff/Sauerstoffverbindungen HO_x -Zyklus genannt wird:



Crutzen [1971] ergänzte den NO_x -Zyklus:



Als Rowland und Molina sich in den 70-er Jahren Gedanken darüber machten, wo die seit Mitte des Jahrhunderts in zunehmendem Maße von der Menschheit produzierten und in die Atmosphäre freigesetzten chemisch äußerst stabilen Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe (FCKW) letztlich bleiben, stießen sie darauf, daß ein Großteil dieser Verbindungen in die Stratosphäre gelangt und erst dort besonders in der mittleren und oberen Stratosphäre photolytisch gespalten wird. Dabei werden Chlorradikale freigesetzt, die einen weiteren katalytischen Ozonabbauzyklus antreiben, den ClO_x -Zyklus:

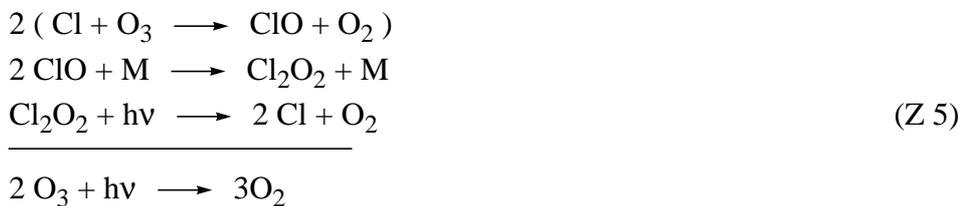


Diese drei Zyklen sind nur die Grundtypen vieler weiterer ebenfalls möglicher und ablaufender Variationen. Wegen ihrer besonderen Bedeutung sollen hier nur noch drei dieser Variationen beschrieben werden. Zunächst eine Variation des HO_x -Zyklusses:

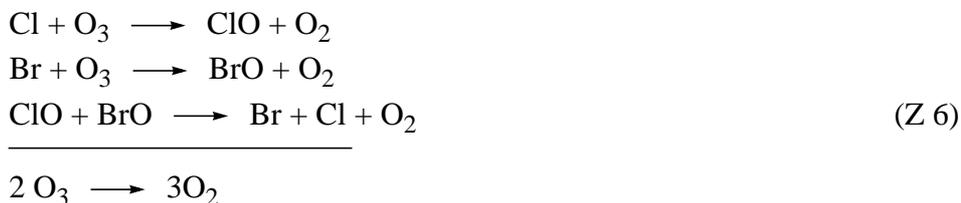


Im Gegensatz zu den Zyklen Z1-Z3 ist dieser Zyklus nicht von der Konzentration von atomarem Sauerstoff abhängig. Da die Konzentration des atomaren Sauerstoffs in der Stratosphäre deutlich nach oben zunimmt [Brasseur und Solomon, 1986], sind die Zyklen Z1-Z3 besonders in der mittleren und oberen Stratosphäre wirksam. Z4 hingegen ist für das Ozongleichgewicht der unteren Stratosphäre besonders bedeutsam [Peter, 1993].

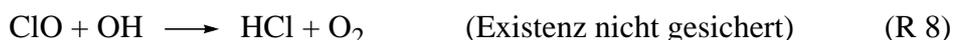
Für den polaren Ozonverlust sind zwei Variationen des ClO_x -Zyklus von Bedeutung. Besonders wichtig ist der ClO-Dimer-Zyklus [Molina und Molina, 1987], da er bei hohen ClO-Konzentrationen besonders effektiv ist:



Durch den Einsatz von Halonen (stabile bromhaltige organische Verbindungen) nimmt auch die stratosphärische Bromkonzentration zu. Daher hat auch folgender Zyklus gerade für die Polarregionen eine wichtige Bedeutung, der eine an Brom gekoppelte Abwandlung des ClO_x -Zyklus darstellt:



Nach anfänglicher großer Sorge, daß die von der kräftig steigenden FCKW-Produktion in der Stratosphäre freigesetzten Cl-Radikale das Ozongleichgewicht weltweit über die Zyklen Z3 und Z5 drastisch stören könnten, wurde schnell entdeckt, daß auch die Koppelung der Zyklen untereinander sehr wichtige Auswirkungen haben. So bilden nämlich Verbindungen der verschiedenen Radikale miteinander und mit anderen stratosphärischen Komponenten relativ stabile Reservoirgase, z. B. [Peter, 1993]:



Die Bildung der Reservoirgase ClONO_2 , HCl und HNO_3 entzieht der Stratosphäre einen Teil der ozonzerstörenden Radikale und trägt somit erheblich zur Stabilität der Ozonschicht bei [Peter, 1993]. Insbesondere zeigten Modellrechnungen schon bald nach der Veröffentlichung von Molina und Rowland [1974], daß der weitaus größte Teil des von den FCKW freigesetzten Chlors über die Reaktionen R5 und R6 schnell in HCl und ClONO_2 überführt wird und somit

den Ozonabbauzyklen nicht zur Verfügung steht. Diesen Modellrechnungen nach wären merkliche Verschiebungen des Ozongleichgewichts im wesentlichen auf Höhen über 30 km beschränkt. Sie würden im äquatorialen Gebieten am ausgeprägtesten sein, wo die Reservoirstoffe durch die aktivere Photochemie nicht so stabil sind. Da das Ozonkonzentrationsmaximum deutlich unter dieser Höhe liegt, wäre von dem Ozonverlust nur ein kleiner Teil des in der Gesamtsäule vorhandenen Ozons betroffen.

Den Chlorreservoirstoffen entsprechend existieren für Brom HBr und BrONO₂. Sie sind aber wesentlich weniger stabil und photolysieren beide relativ leicht [De Moore, 1992]. Daher liegt im Vergleich zum Chlor ein größerer Anteil des stratosphärischen anorganischen Broms in den aktiven Formen Br und BrO vor. Das stratosphärische Ozon reagiert also auf eine Erhöhung der Bromkonzentration empfindlicher als auf eine entsprechende Erhöhung der Chlorkonzentration. Solomon et al. [1994] haben darauf hingewiesen, daß aufgrund der noch größeren Reaktivität von Jod, schon kleinste Mengen Jod (bereits ca. 1 pptv) in der Stratosphäre einen bedeutenden Einfluß auf das Ozongleichgewicht haben. Gleichzeitig merkten Solomon et al. [1994] jedoch an, daß es keine unter troposphärischen Bedingungen sehr langlebigen Jodverbindungen gibt. Somit ist es wenig wahrscheinlich, daß größere Jodmengen in die Stratosphäre gelangen können. Jod konnte auch bisher in der Stratosphäre nicht nachgewiesen werden.

Den in diesem Abschnitt geschilderten Mechanismen zufolge dürfte eine Erhöhung des stratosphärischen Chlorgehalts nur eine mäßige Auswirkung auf das Ozongleichgewicht haben. Diese Auswirkung sollte zudem in Höhen über 30 km und nahe am Äquator am größten sein. Die Entdeckung des antarktischen Ozonlochs ([Chubachi, 1984; Farman et al., 1985]) kam deshalb völlig überraschend. Die Prozesse, die das Ozonloch hervorrufen, sind an die besondere meteorologische Situation in der winterlichen polaren Stratosphäre geknüpft. Die dort herrschenden Verhältnisse werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

3.3 Meteorologische Prozesse in der winterlichen polaren Stratosphäre

Die winterlichen polaren Bereiche sind durch die dort vorherrschende Polarnacht gekennzeichnet. Mit Einsetzen der nachlassenden Sonneneinstrahlung im Herbst befindet sich die atmosphärische Temperatur über der Strahlungsgleichgewichtstemperatur, was zu einer strahlungsbedingten diabatischen Abkühlung der gesamten Luftsäule führt. Durch die mit der Abkühlung verbundene Dichteerhöhung nimmt das Volumen der Luftsäule ab und sie sinkt nach unten zusammen. Dies führt in der Stratosphäre zu der Ausbildung eines kräftigen Tiefdruckgebiets. Oben seitlich nachströmende Luft wird durch die Corioliskraft auf eine geostrophische Bahn senkrecht zum Druckgradienten abgelenkt und bildet eine ausgeprägte Westwindströmung (den Westwind-Jet oder 'Polar Night Jet').

Die weitere dynamische Entwicklung dieses von dem Westwind-Jet gebildeten Polarwirbels ist durch die mittlere diabatische Zirkulation der Luftmassen in der Stratosphäre beeinflusst. Dabei ist mit der diabatischen Zirkulation die vertikale Bewegung von Luftmassen über die Isentropen hinweg gemeint. Als vertikale Skala wird hier die potentielle Temperatur (Θ , siehe Abschnitt 2.2) verwendet. Mit dem Begriff Aufwärtsbewegung ist eine Zunahme der potentiellen Temperatur durch diabatische Effekte gemeint. Abwärtsbewegung meint entsprechend eine Abnahme der potentiellen Temperatur. Der folgende kurze Überblick über die diabatische Zirkulation folgt im wesentlichen [Holton et al., 1995] und [Holton, 1997], wobei die Effekte hier nur qualitativ dargestellt werden. Für eine formale Ableitung siehe [Holton et al., 1995].

Für die diabatische Zirkulation in der Stratosphäre spielen aus der Troposphäre nach oben propagierende Wellen eine entscheidende Rolle. Solche Wellen entstehen durch Wechselwirkung der troposphärischen Winde mit der Erdoberfläche oder durch Anregung an troposphärischen Windsystemen. Bei ihrer Ausbreitung nach oben nimmt ihre Amplitude wegen der absinkenden Luftdichte zu. Dabei wird ab einer bestimmten Amplitude die Schichtung zwischen Wellenminimum und Wellenmaximum instabil, d.h. der Gradient der potentiellen Temperatur kehrt sich dort lokal um. In dem Niveau, in dem diese Amplitude erreicht wird, beginnt die Welle durch kleinskalige Turbulenz zu brechen. Dabei überträgt sie ihre Energie und ihren Impuls an die Atmosphäre. Die brechenden Wellen stellen also eine Impulskoppelung zwischen der Troposphäre und dem Bereich der Atmosphäre dar, in dem sie brechen. Im Bereich des Westwind-Jets führt die Impulsübertragung zu einer Abbremsung der Strömung. Der Effekt ist analog zu dem einer Reibung des Jets an dem Bereich der Quellregion der Wellen, welche in diesem Fall die Troposphäre ist. Dieser Effekt wird im Englischen als 'wave drag' bezeichnet. Die Wellenbrechung setzt in der mittleren Stratosphäre ein und ist in der oberen Stratosphäre am ausgeprägtesten. Die negative Beschleunigung des Grundstroms im Bereich des Westwind-Jets führt zu einer Strömungskomponente in das Tiefdruckgebiet hinein. Die Koppelung von Wellenbrechung und Westwind-Jet kann als Pumpe beschrieben werden, die auf der Winterhemisphäre laufend Luftmassen vom äquatorialen Gebiet in das Polargebiet pumpt. Diese Pumpe ist der hauptsächliche Antrieb der diabatischen Zirkulation. Sie saugt im äquatorialen Gebiet Luftmassen an, die dort durch aufsteigende (also sich diabatisch erwärmende) Luft ersetzt wird, und drückt diese in die Polarregion. Dort wird die Luft adiabatisch komprimiert. Dies führt im Polargebiet zu einer Temperaturerhöhung und verhindert, daß die Luftsäule im Polarwirbel die Strahlungsgleichgewichtstemperatur erreicht. Ohne die Wirkung der wellengetriebenen Pumpe würde das wesentlich kältere Strahlungsgleichgewicht im Polarwirbel bereits nach wenigen Tagen erreicht werden [Kiehl, 1997]. Da die Temperatur jedoch durch die adiabatische Kompression wärmer als im Strahlungsgleichgewicht bleibt, findet während des gesamten Winters andauernde diabatische, strahlungsbedingte Abkühlung statt. Dieser Effekt ist identisch mit einem Absinken der Luftmassen im Polargebiet.

Die geschilderten Zusammenhänge haben wesentliche Konsequenzen für die Polarwirbel der beiden Hemisphären. Die troposphärische Wellenaktivität ist in der Südhemisphäre wesentlich schwächer ausgeprägt als in der Nordhemisphäre, was letztlich auf der unterschiedlichen Verteilung der Landmassen beruht. Deshalb breiten sich auf der Südhemisphäre wesentlich weniger Wellen in die Stratosphäre aus. Der antarktische Westwind-Jet wird daher weniger durch Wellenbrechung abgebremst und ist wesentlich stärker, als sein arktisches Gegenstück. Gleichzeitig bedeutet die geringere Wellenaktivität auch einen geringeren Energietransport in den antarktischen Polarwirbel hinein. Die Luftmasse im antarktischen Wirbel ist daher dem Strahlungsgleichgewicht näher, also kälter, und die diabatischen Abkühlungsraten sind kleiner. Der von dem Westwind-Jet gebildete stärkere Polarwirbel ist in der Antarktis meist gut um den Pol zentriert und kreisförmig, und er besteht im Frühjahr länger. Der schwächere Wirbel der Arktis läßt sich häufig durch Wellen vom Pol abdrängen und wird dabei oft beträchtlich verformt. In der Arktis kommt es sogar in einigen Jahren mitten im Winter zu einem völligen Zusammenbruch des Polarwirbels mit einhergehender dramatischer Erwärmung der polaren Stratosphäre [Scherhag, 1952; Naujokat, 1992c].

Die im Westwind-Jet im wesentlichen zonale Zirkulation unterdrückt den meridionalen Austausch von Luftmassen in den polaren Bereich zu einem gewissen Grade. Der Grad der Isolation der Luftmassen im Polarwirbel wird jedoch erst dann deutlich, wenn statt der Breitenkreise ein an die tatsächliche Lage des Jets gekoppeltes Bezugssystem verwendet wird. Zur Definition ei-

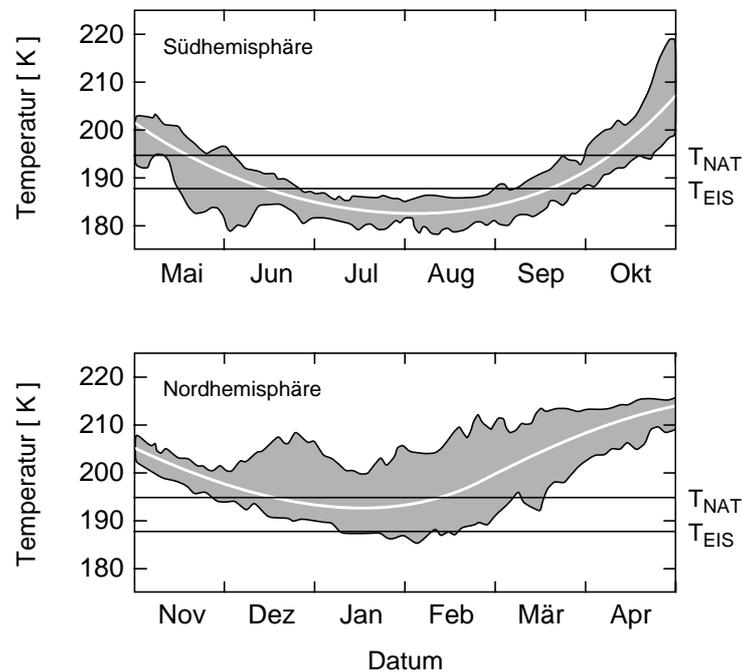


Abbildung 3.1: Zeitlicher Verlauf der täglich auf der Hemisphäre in 50 hPa aufgetretenen Minimumstemperatur in den NMC Analysen. Die weiße Linie gibt den Mittelwert der Minimumstemperaturen der Jahre 1978 bis 1994 an; die grau schraffierte Fläche zeigt den Bereich an, in dem die Kurven der einzelnen Jahre verlaufen. (a) für die Winterperiode (Mai bis Oktober) der Südhemisphäre; (b) entsprechend November bis April für die Nordhemisphäre. Die beiden horizontalen Linien geben die ungefähren Kondensationstemperaturen von NAT und Eis an (siehe Abschnitt 3.4). Nach [Nagatani et al., 1990].

nes solchen Systems eignet sich besonders die potentielle Vorticity (PV, siehe Abschnitt 2.3). PV erreicht im Zentrum des Polarwirbels einen maximalen Wert und nimmt nach außen hin monoton ab. Der horizontale Gradient von PV wird dabei im Maximum des Betrags der Horizontalwindgeschwindigkeit am größten (z.B. [Rummukainen et al., 1994]). Da PV für adiabatische Bewegungen eine Erhaltungsgröße ist, muß der starke PV Gradient als Barriere für Austauschbewegungen verstanden werden. Diese Barriere umgibt den Wirbel und isoliert ihn von den Luftmassen mittlerer Breiten. Der Grad dieser Isolation ist weiterhin in der wissenschaftlichen Diskussion (z.B. [WMO, 1995] Abschnitt 3.5 und Referenzen darin.). Unumstritten ist, daß die Isolation des antarktischen Polarwirbels vollständiger ist als die des arktischen Wirbels.

In den Polarwirbeln sinkt die Temperatur im Laufe des Winters ab, bleibt dabei aber wie erwähnt im arktischen Wirbel deutlich wärmer als im antarktischen Wirbel. Da die Wellenaktivität auf der Nordhemisphäre äußerst variabel ist, weist die Temperatur im arktischen Wirbel auch eine sehr starke Variation von Jahr zu Jahr auf (z.B. [Pawson et al., 1995]). Abbildung 3.1 zeigt für die Winterperioden der Nord- und Südhemisphäre den zeitlichen Verlauf der täglichen Minimumstemperaturen in den Analysen des National Meteorological Center (NMC). Die grau schraffierte Fläche gibt den Bereich an, in dem diese Kurven für die Jahre 1978 bis 1994 verlaufen. Die größere Variabilität, die allgemein höheren Temperaturen und die frühere Frühjahrserwärmung werden in dieser Abbildung sehr deutlich.

3.4 Die gestörte Chemie der winterlichen polaren Stratosphäre

In diesem Abschnitt wird auf die besonderen chemischen Vorgänge eingegangen, die sich in den kalten winterlichen Polarwirbeln abspielen. Es wird gezeigt, daß die besonderen Bedingungen in den Polarwirbeln letztlich zu einer schnellen Zerstörung des Ozons führen können.

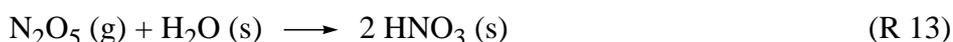
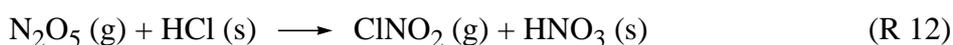
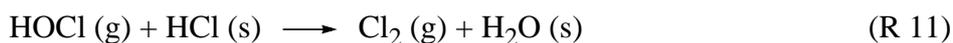
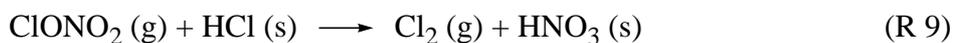
In den sehr kalten Luftmassen des Polarwirbels können verschiedene Kondensate aus Wasser, Salpetersäure und Schwefelsäure auskondensieren. Als erstes stabiles Kondensat wurde Salpetersäuretrihydrat (Nitric Acid Tryhydrate, NAT) identifiziert [Crutzen und Arnold, 1986; Toon et al., 1986]. Die Gleichgewichtstemperatur von NAT (T_{NAT}) wurde von Hanson und Mauersberger [1988] bestimmt. Sie liegt bei mittleren Annahmen für die H_2O und HNO_3 -Konzentration in 50 hPa bei etwa 195 K [Beyerle, 1994]. Unterschreiten die Temperaturen den Frostpunkt (T_{EIS} , in 50 hPa etwa 188 K, [Beyerle, 1994]) nehmen die Aerosole schnell Wasser auf und bilden große Wassereispartikel. Diese beiden Typen von Aerosolen wurden mit den schon aus optischen Beobachtungen seit längerem bekannten zwei Sorten von Polaren Stratosphärischen Wolken (Polar Stratospheric Clouds, PSC) identifiziert. Dabei bilden Wassereispartikel die PSC Typ II Wolken, während man lange davon ausging, daß die PSC Typ I Wolken aus NAT bestehen. In jüngerer Zeit sind allerdings viele weitere stabile Kondensate aus $\text{H}_2\text{O}/\text{HNO}_3$ und H_2SO_4 nachgewiesen worden (z.B. [WMO, 1995] und Referenzen darin). Daher muß man davon ausgehen, daß die PSC Typ I Wolken je nach Bedingungen aus verschiedenen dieser Kondensate bestehen.

T_{NAT} und T_{EIS} sind in Abbildung 3.1 mit eingezeichnet. Man erkennt, daß in der antarktischen Stratosphäre sowohl T_{NAT} als auch T_{EIS} in jedem Winter über lange Zeiträume unterschritten werden. Im variableren und wärmeren arktischen Polarwirbel ist die Situation deutlich anders. T_{EIS} wird nur in sehr seltenen Ausnahmefällen lokal unterschritten und auch T_{NAT} wird nur in manchen Wintern phasenweise erreicht.

Die Aerosole haben nachhaltige Effekte auf die stratosphärische Chemie:

1. Auf der Oberfläche der Aerosolpartikel kann eine ganze Klasse zusätzlicher Chemie ablaufen, die heterogene Chemie.
1. Eispartikel können groß genug wachsen, um mit merklicher Geschwindigkeit aus der Stratosphäre herauszusinken (z.B. [Peter, 1993]). Dabei entfernen sie das in ihnen gebundene HNO_3 und H_2O langfristig aus der Luftmasse. Diesen Effekt nennt man Denitrifizierung/Dehydrierung.

Die wichtigsten der heterogenen Reaktionen sind:



(g) bedeutet in der Gasphase, (s) in der festen/flüssigen Phase.

Die grundsätzliche Bedeutung der heterogenen Chemie wird deutlich, wenn man sich die Überlegungen des Abschnitts 3.2 vergegenwärtigt. Demnach ist die Wirkung des anorganischen stratosphärischen Chlors (Cl_y) auf das Ozon ganz wesentlich davon abhängig, welcher Anteil des

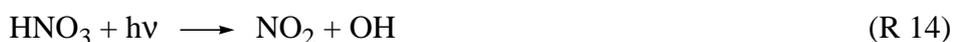
Cl_y sich in den aktiven Formen Cl , ClO und Cl_2O_2 (zusammen ClO_x) befindet und welcher Anteil demgegenüber in den Reservoirsubstanzen HCl und ClONO_2 gebunden ist. Das Verhältnis ClO_x/Cl_y wird hier als Grad der Chloraktivierung bezeichnet. Die heterogenen Reaktionen R9 bis R11 stellen nun Reaktionen dar, die Reservoirgase in solche Chlorverbindungen (Cl_2 und HOCl) überführen, die ihrerseits schnell zu ClO_x photolysieren. R9 ist von diesen Reaktionen unter normalen Bedingungen die effektivste. Wie Müller [1994] gezeigt hat, wird über R9 (und nachfolgende Photolyse) beim ersten PSC-Auftreten in der Luftmasse innerhalb einiger Stunden das gesamte ClONO_2 und eine entsprechende Menge HCl in ClO_x überführt. Dabei wird im Gegensatz zu Webster et al. [1993] davon ausgegangen, daß sich unter normalen Bedingungen zu Beginn des Winters mehr HCl als ClONO_2 in der Luftmasse befindet. Bei nachfolgendem PSC-Auftreten wird dann schrittweise weiteres HCl aktiviert, indem es mit ClONO_2 reagiert, welches jeweils in der Zwischenzeit über R5 zurückgebildet wurde. Dies kann im weiteren Verlauf des Winters je nach meteorologischer Situation zu einer vollständigen Aktivierung des Chlors führen.

Wenn ein hoher Grad der Chloraktivierung erreicht ist, läuft sehr schneller Ozonabbau über den Zyklus Z5 ab. Im Licht ist der langsamste und daher geschwindigkeitsbestimmende Schritt in diesem Zyklus die Bildung des Cl_2O_2 . Da an dieser Reaktion zwei ClO -Radikale beteiligt sind, ist seine Geschwindigkeit proportional zum Quadrat der ClO -Konzentration. Da sich im Hellen der weitaus größte Teil des ClO_x im ClO aufhält, ist die Geschwindigkeit des Ozonabbaus über Z5 auch proportional zum Quadrat der ClO_x -Konzentration. Dieser Zyklus wird deswegen besonders bei hohen Graden der Chloraktivierung effektiv und ist dann von weit größerer Bedeutung als der Zyklus Z3. Dieser ist bei niedrigeren ClO_x -Konzentrationen und in höheren Luftschichten von relativ größerer Bedeutung. In der Dämmerung wird im Zyklus Z5 die Photolyse vom Cl_2O_2 langsamer und übernimmt bei zunehmender Dunkelheit die Rolle des geschwindigkeitsbestimmenden Schritts. Der Ozonabbau ist dann stark vom für die Cl_2O_2 Photolyse wirksamen Photonenfluß (\sim ab nahem UV [DeMoore et al., 1994]) abhängig und proportional zur ClO_x -Konzentration [Peter, 1993]. Der wirksame Photonenfluß nimmt ab Sonnenzenitwinkeln (szw) um 90° rapide ab, da nun die Sonnenstrahlen tangential die Ozonschicht durchqueren und daher der größte Teil der entsprechenden UV Strahlung der Ozonabsorption zum Opfer fällt. Der geometrische Sonnenuntergang wird in 20 km Höhe bei etwa 95° szw erreicht. Im Dunkeln kommt der Ozonabbau nach Z5 zum Erliegen und das ClO_x sammelt sich im Cl_2O_2 .

Der für den polaren Ozonabbau zweitwichtigste Zyklus ist Z6. Modellrechnungen zufolge entfällt auf ihn etwa 20-30% des gesamten Ozonverlusts in der Arktis [Chipperfield et al., 1993]. Auch dieser Zyklus läuft nur im Licht ab, da im Dunkeln kein ClO für die Reaktion $\text{ClO} + \text{BrO}$ zur Verfügung steht.

Als weitere wichtige Folge der heterogenen Chemie wird während des Winters über R12 und R13 der stratosphärische Gehalt an NO_x ($= \text{NO} + \text{NO}_2$), der im schnellen Gleichgewicht mit N_2O_5 steht, in HNO_3 überführt [Müller, 1994]. Dieser Effekt wird auch als Denoxifizierung bezeichnet. Er hat besondere Auswirkungen auf die Erholungsphase in der Arktis:

Nach dem Ende der PSC-Periode beginnt die Erholung des ClO_x/Cl_y -Verhältnisses in der Arktis über die Reaktion R5. Durch die Denoxifizierung steht jedoch zunächst nicht genügend NO_2 zur Verfügung. Erst wenn über die allmähliche Photolyse



bei wiederkehrender Sonne NO_2 gebildet wird, kann dieses über die Reaktion mit ClO die ClO_x -Konzentration reduzieren. Im weiteren Verlauf der Erholung bildet sich über die schneller werdende Reaktion R5 ein ausgeprägtes ClONO_2 Maximum aus. Erst wenn bei weiter zunehmender Sonneneinstrahlung sich im Gleichgewicht



ein größerer Anteil ins NO verschiebt und deswegen



für höhere Cl-Konzentrationen im Gleichgewicht Cl/ClO führt, wird R6 effektiv genug, um nun auch eine Erholung des HCl-Reservoirs herbeizuführen. Da ClONO_2 langsam photolysiert, bildet sich nun auch das normale Verhältnis der beiden Reservoirgase HCl und ClONO_2 untereinander wieder aus [Webster et al., 1993].

Die Erholungsphase in der Antarktis verläuft aus zwei Gründen deutlich anders. Zum einen kommt es im antarktischen Winter regelmäßig wegen ausgedehnter PSC II Bildung und Sedimentation zu starker Denitrifizierung. Daher steht nur wenig HNO_3 zur Verfügung. Die Produktion von NO_2 über R14 ist demnach gehemmt und die NO_2 -Konzentrationen bleiben langfristig niedrig. Damit kann die Erholung über R5 nicht stattfinden. Zum anderen wird in der Antarktis in großen Bereichen das Ozon nahezu vollständig zerstört. Dadurch kommt die Reaktion



in Z5 nahezu zum Erliegen und die Cl-Konzentration steigt an. Beide Effekte zusammen bewirken, daß in der Antarktis die HCl-Erholung über R6 schneller ist als die ClONO_2 -Erholung über R5. Das in der Arktis beobachtete ClONO_2 -Maximum bleibt in der Antarktis zumindest im Zentrum des Ozonlochs aus [Douglass et al., 1995].

3.5 Ozon im antarktischen und arktischen Polarwirbel

Nach der Beschreibung der chemischen Vorgänge folgt nun ein Blick auf die Klimatologie des Ozons in den beiden Polarwirbeln. Dabei wird auch darauf eingegangen, welche sichtbaren Auswirkungen die im letzten Abschnitt beschriebenen Effekte auf den Jahresgang des Ozons haben.

Die Abbildung 3.3 und Abbildung 3.2 zeigen Höhen/Zeitschnitte des Jahresgangs der Ozonkonzentration, gemessen mit Ozonsonden in der Antarktis und in der Arktis [Gernandt et al., 1996]. Für die Antarktis ist der Zeitraum vor dem Auftreten des Ozonlochs und der aktuelle Jahresgang gesondert dargestellt. Teilbild a zeigt den Jahresgang 1967-1979 mit Meßdaten der Syowa Station ($69,0^\circ\text{S}$, $39,4^\circ\text{O}$) vor dem Auftreten des Ozonlochs, Teilbild b zeigt Daten der Neumayer Station ($70,6^\circ\text{S}$, $8,2^\circ\text{O}$) aus den Jahren 1992-1997. Aufgrund ihrer nahezu identischen Breite und der hohen zonalen Symmetrie der mittleren Ozonkonzentration über der Antarktis, kann davon ausgegangen werden, daß die Daten der Syowa Station und der Neumayer Station miteinander vergleichbar sind [Gernandt et al., 1996]. Die Daten für den Jahresgang der Arktis stammen von der Koldewey Station in Ny-Ålesund ($78,9^\circ\text{N}$, $12,0^\circ\text{O}$). Alle Stationen liegen in den Wintermonaten der entsprechenden Hemisphäre nahezu permanent unter dem Polarwirbel, so daß die gezeigten Daten im Winter im wesentlichen die Situation im Polarwirbel widerspiegeln.

Es fällt auf, daß nach der Ausbildung des Polarwirbels (ca. September in der Arktis, März in der Antarktis) die stratosphärische Ozonkonzentration unterhalb von ca. 24 km in beiden Hemisphären zunächst zunimmt. Dies liegt an dem in Abschnitt 3.3 geschilderten diabatischen Absinken der Luftmassen im Polarwirbel und einhergehender adiabatischer Kompression. Dadurch sinken Luftmassen mit hohem Ozonmischungsverhältnis (vergleiche Abbildung 2.1) ab und werden bei zunehmendem Druck komprimiert. Dies führt zu dem beobachteten Anstieg der Ozonkonzentration. Da das Ozonmischungsverhältnis oberhalb von ca. 24 km nur noch wenig zunimmt, ist dieser Effekt im wesentlichen auf die untere Stratosphäre beschränkt. Da das diabatische Absinken aus den in Abschnitt 3.3 genannten Gründen in der Arktis stärker ist als in der Antarktis, ist auch die dynamisch bedingte Zunahme der Ozonkonzentration in der Arktis stärker ausgeprägt als in der Antarktis.

Abbildung 3.3b zeigt den aktuellen Jahresgang des Ozons in der Antarktis. Als Auswirkung der im letzten Abschnitt geschilderten chemischen Vorgänge ist dann ab ca. Anfang August die Bildung des Ozonlochs als drastische Abnahme der Ozonkonzentration im Polarwirbel zu beobachten. Das in der Antarktis jährlich auftretende Ozonloch gehört zu den stärksten anthropogenen Signalen in der Atmosphäre überhaupt. Abbildung 3.4 zeigt eine Reihe von Ozonprofilen der Amundsen-Scott Station am Südpol, die die Abnahme des Ozons von Ende August bis Mitte Oktober im Zentrum des Ozonlochs verdeutlichen. In dem ganzen Bereich, wo

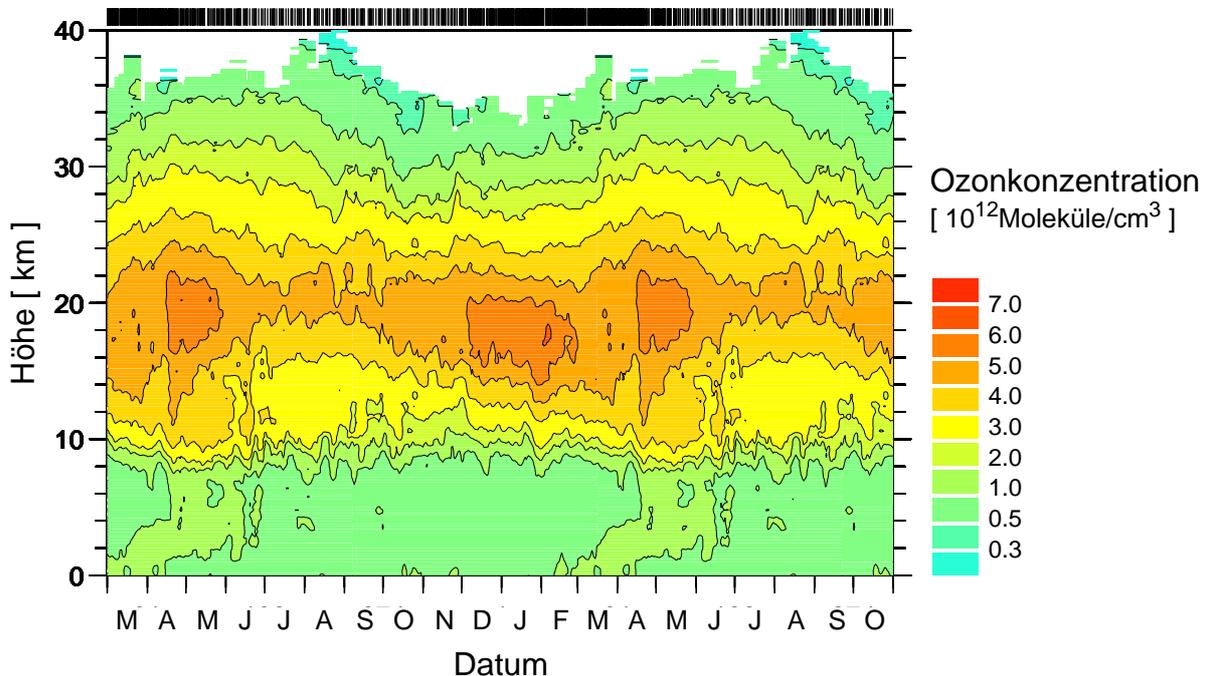


Abbildung 3.2: Höhen-/Zeitschnitt der mittleren Ozonkonzentration der Jahre 1992-1997 über Ny-Ålesund, Arktis (78,9°N, 12,0°O). Für die Abbildung wurden die Daten von 641 Ozonsonden verwendet. Jede Ozonsondenmessung ist am oberen Bildrand durch einen vertikalen Balken angedeutet. Auf der Zeitachse sind die Anfangsbuchstaben der Monate eingetragen. Um den vollständigen Jahresgang besser erkennen zu können, sind die Monate März bis Oktober an den Bildrändern wiederholt. Aktualisiert nach [Gernandt et al. 1996].

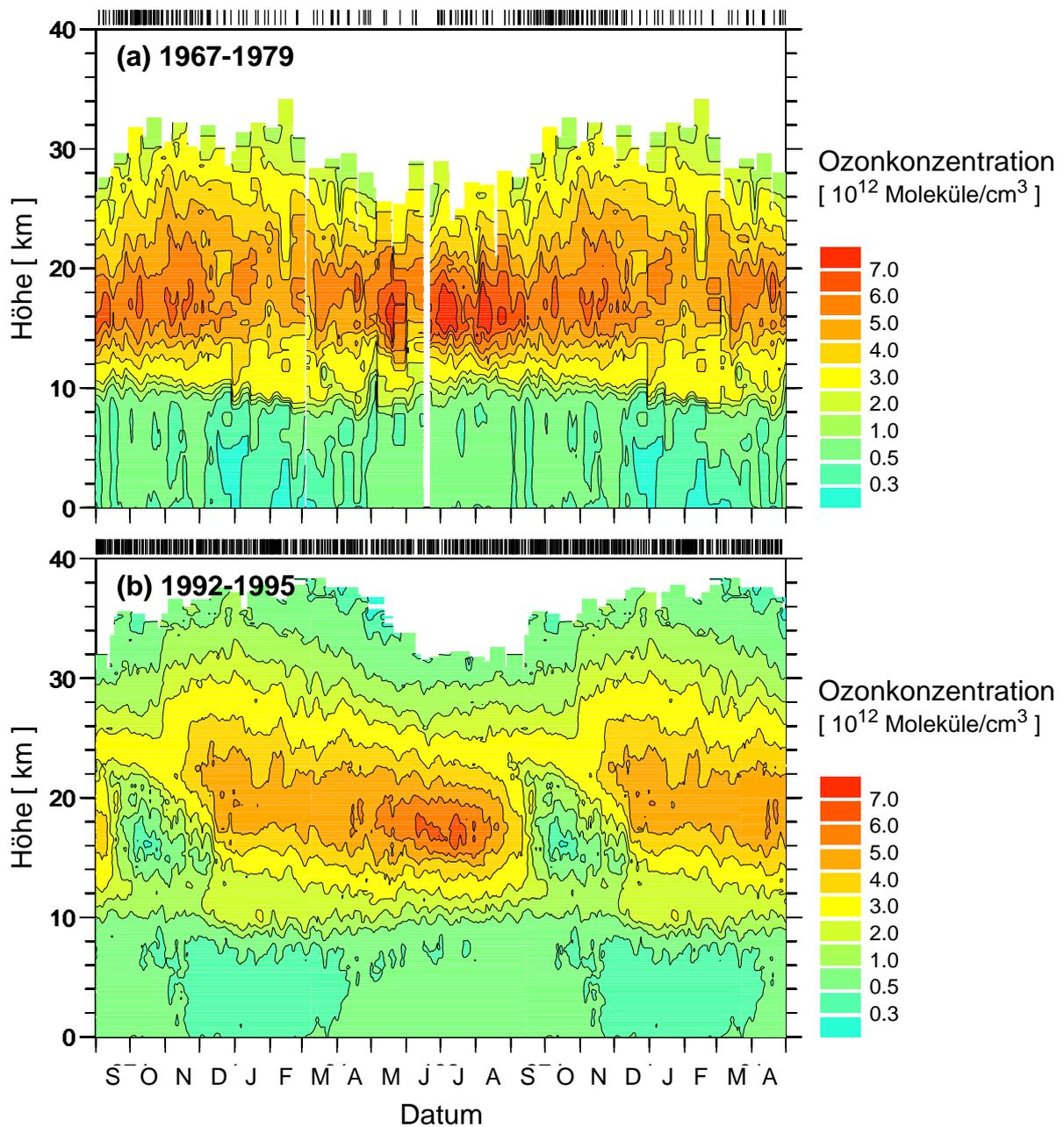


Abbildung 3.3: (a) Höhen-/Zeitschnitt der mittleren Ozonkonzentration der Jahre 1967-1979 über der Syowa Station, Antarktis (69,0°S, 39,4°O). Für die Abbildung wurden die Daten von 141 Ozonsonden verwendet. Jede Ozonsondenmessung ist am oberen Bildrand durch einem vertikalen Balken angedeutet. Auf der Zeitachse sind die Anfangsbuchstaben der Monate eingetragen. Um den vollständigen Jahresgang besser erkennen zu können, sind die Monate September bis April an den Bildrändern wiederholt. (b) wie (a), aber für die Jahre 1992-1997 über der Neumayer Station (70,6°S, 8,2°O). Es wurden die Daten von 403 Ozonsonden verwendet. Aus [Gernandt et al., 1996].

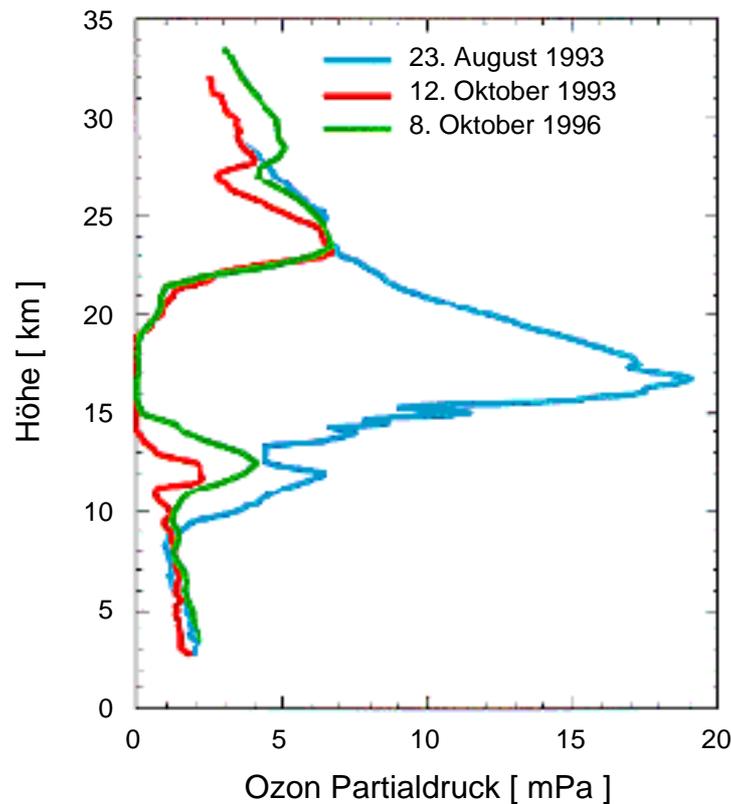


Abbildung 3.4: Ozonpartialdruckprofile, gemessen mit Ozonsonden am 23. August 1993, 12. Oktober 1993 und 8. Oktober 1996 über der Südpolstation Amundsen-Scott (90,0°S). Aktualisiert nach [Hofmann et al., 1994].

normalerweise das Ozonkonzentrationsmaximum zu finden ist, war in den Jahren 1993 und 1996 Mitte Oktober kein Ozon mehr nachweisbar. Die horizontale Ausdehnung des Ozonlochs ist an einem Beispiel in Abbildung 3.5 dargestellt.

In der Arktis ist ein vergleichbar dramatischer Effekt in Abbildung 3.2 nicht zu finden. Im Mittel über die dargestellten Jahre nimmt die Ozonkonzentration im Polarwirbel bis ca. März/April weiter zu. Die räumliche Verteilung der Ozonsäulendichten ist dabei durch eine sehr große Variabilität gekennzeichnet, wie in Abbildung 3.6 für einen typischen Tag dargestellt. Man beachte die gegenüber Abbildung 3.5 geänderte Farbskala, die durch die in der Arktis im Mittel deutlich größeren Ozonsäulendichten nötig ist. Die räumliche Variabilität der Gesamtsäule ist hoch mit verschiedenen meteorologischen Parametern wie z.B. dem Bodendruck und der Tropopausentemperatur korreliert, wie schon Dobson et al. [1929] bekannt war. Sie läßt sich zu einem großen Teil dynamisch erklären (z.B. [Petzold et al., 1994]. Anders als in der Antarktis ist die zonale Symmetrie nur schwach ausgeprägt. Auch die Ozonprofile weisen eine ausgeprägte Variabilität auf. Ein Beispiel ist in Abbildung 3.7a dargestellt. Die Ozonkonzentration über Ny-Ålesund geht hier vom 25. zum 27. Januar 1992 innerhalb von zwei Tagen in einem schmalen Höhenbereich auf ca. ein Drittel zurück und ist bereits zwei Tage später wieder in der normalen Größenordnung. Diese schnelle Variabilität ist dynamisch durch den Transport von Luftmassen bedingt. So kam Ny-Ålesund am 27. Januar durch ein Abdriften des Wirbels in den Wirbelrandbereich, der mit Luftmassen aus mittleren und tropischen Breiten durchmischt ist. Allerdings zeigen auch jeweils gegen Ende März tief im Wirbel aufgenommene Ozonprofile in den letzten

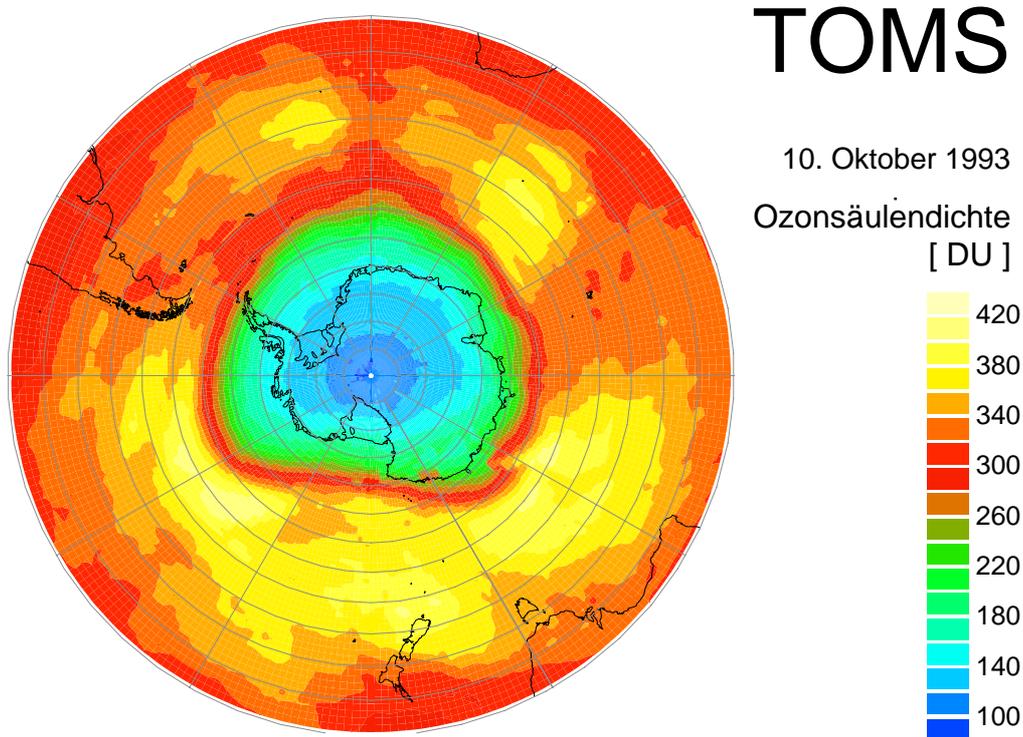


Abbildung 3.5: Horizontale Verteilung der Ozonsäulendichten wie sie am 10. Oktober 1993 vom Total Ozone Mapping Spektrometer (TOMS) gemessen wurden. Die Karte zeigt den Bereich südlich von 30°S in polar stereographischer Projektion, der Greenwich Meridian zeigt nach oben. Die Daten wurden freundlicherweise von A.J. Krueger (NASA) zur Verfügung gestellt und über das NILU verteilt.

Jahren eine deutlich reduzierte Ozonkonzentration im Bereich des Ozonmaximums (Abbildung 3.7b). Die Interpretation dieses Ozondefizits als Auswirkung chemischen Ozonabbaus ist allerdings zunächst nicht möglich, da die Größenordnung möglicher dynamisch bedingter Ozondefizite, wie sie in Abbildung 3.7a dargestellt sind, berücksichtigt werden muß. In der vorliegenden Arbeit wird allerdings gezeigt werden, daß die in Abbildung 3.7b dargestellten Ozonprofile der Winter 1994/95 und 1995/96 den chemischen Ozonverlust der jeweiligen Winter tatsächlich recht gut illustrieren, was jedoch zu einem Teil auf Zufall beruht. Besonders deutlich wird das anhand der Tatsache, daß in der vorliegenden Arbeit auch beträchtlicher chemischer Ozonabbau im Jahr 1992 nachgewiesen wird. Dieser ist in dem Profil in Abbildung 3.7b nicht zu erkennen. Der Winter 1996/97 wird in der vorliegenden Arbeit nicht weiter behandelt. Vorläufige Ergebnisse der laufenden Auswertung zeigen jedoch, daß auch in diesem Jahr chemischer Ozonabbau in einem Ausmaß stattgefunden hat, das mit dem in Abbildung 3.7b sichtbaren Ozondefizit vergleichbar ist.

In Abbildung 3.8 ist der Jahresgang der Ozonsäulendichte über Ny-Ålesund dargestellt. Auch die Säulendichte im Polarwirbel steigt im Mittel während des Winters an, was ebenfalls auf dem diabatischen Absinken der Luftmassen im Wirbel beruht. Die dadurch im oberen Teil des Wirbels seitlich einströmende Luft hat eine größere Ozonkonzentration als die Luft, die im untersten Teil der Stratosphäre den Wirbel durch turbulenten Austausch verläßt (siehe [Holton et al., 1995] für eine Diskussion des Mechanismus dieses turbulenten Austauschs). Dadurch steigt die

in der Gesamtsäule vorhandene Ozonmenge an. Abbildung 3.8 zeigt jedoch auch, daß dieser mittlere Anstieg der Ozonsäulendichte in Januar bis März in den Jahren ab 1995 schwächer ausgefallen ist, bzw. sogar ganz ausblieb. Es wird in der vorliegenden Arbeit gezeigt, daß dies durch die chemischen Ozonverluste in diesen Jahren verursacht wurde. Auch in dieser Abbildung wird wieder die große Variabilität der Ozonschicht über der Arktis gerade im Frühjahr deutlich.

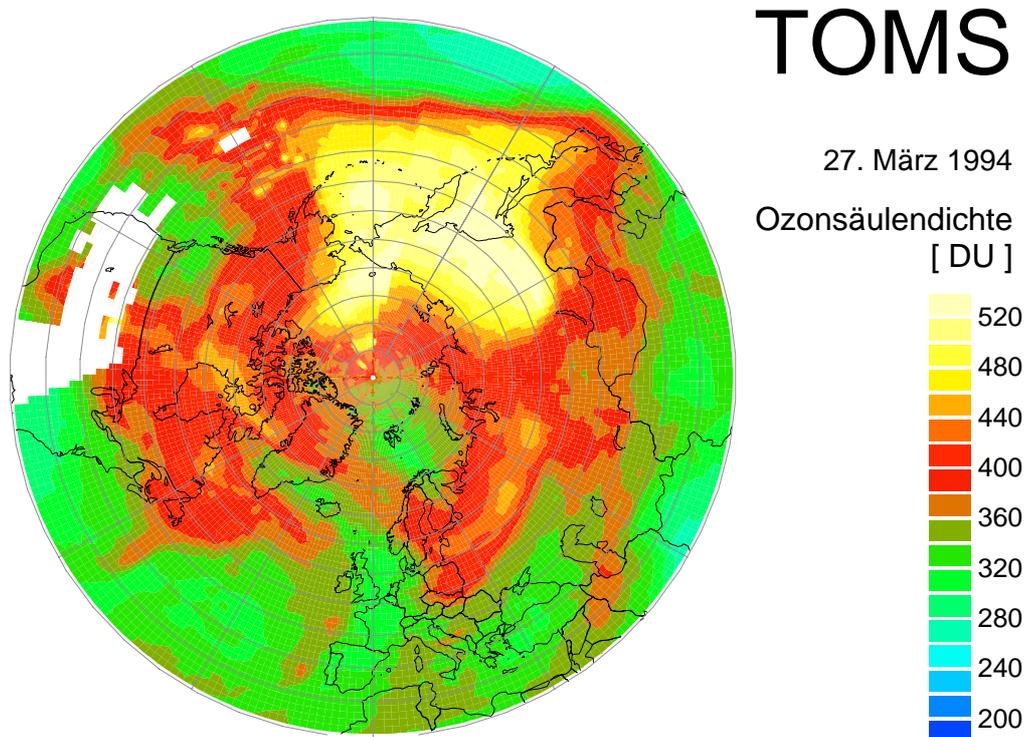


Abbildung 3.6: Wie Abbildung 3.5 aber für den 27. März 1994. Die Karte zeigt den Bereich nördlich von 30°N, der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Die Daten wurden freundlicherweise von A.J. Krueger (NASA) zur Verfügung gestellt und über das NILU verteilt.

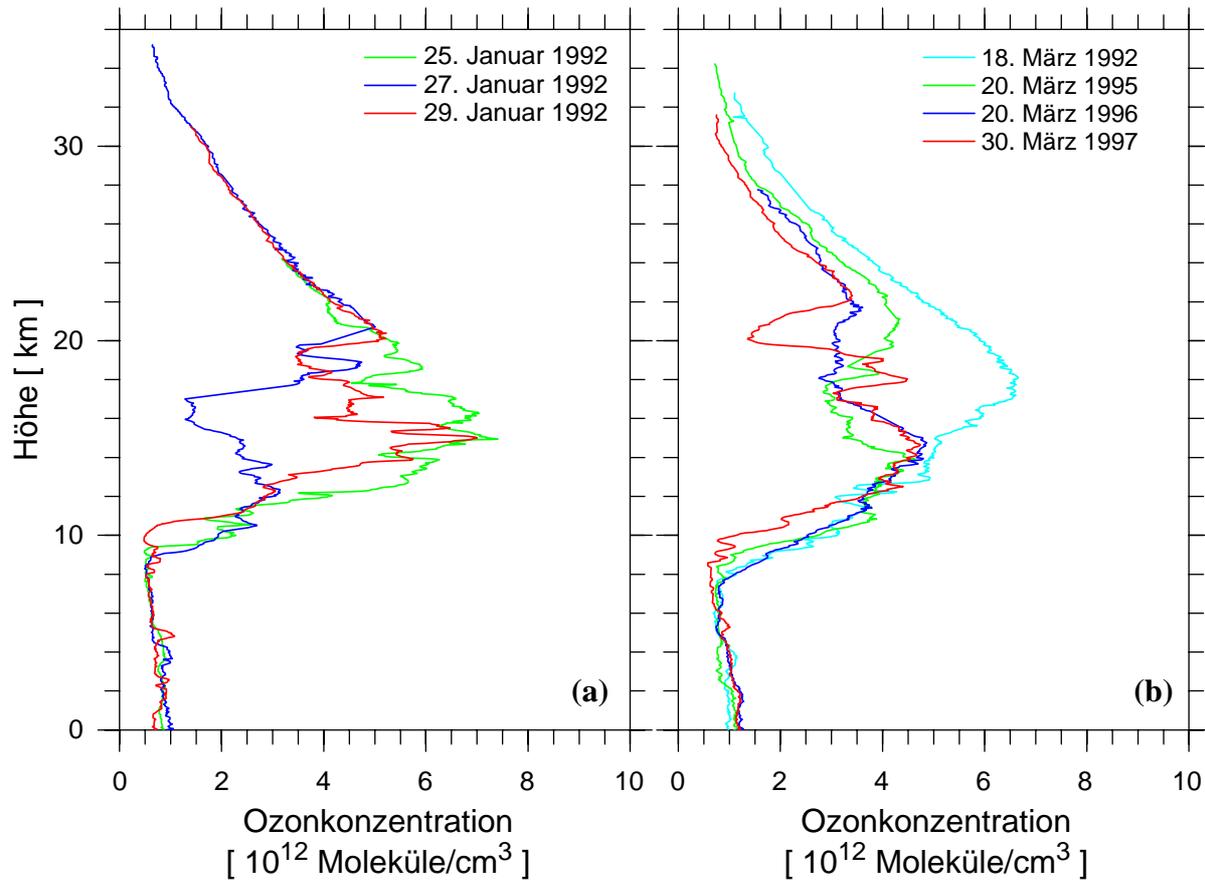


Abbildung 3.7: Mehrere Ozonkonzentrationsprofile, die von Ozonsonden über Ny-Ålesund gemessen worden sind. (a) zeigt drei Profile, die im Januar 1992 innerhalb von vier Tagen gemessen wurden, (b) zeigt aus den Jahren 1992, 1995, 1996 und 1997 Profile, die jeweils Ende März gemessen wurden. (b) aktualisiert aus [von der Gathen et al. 1996].

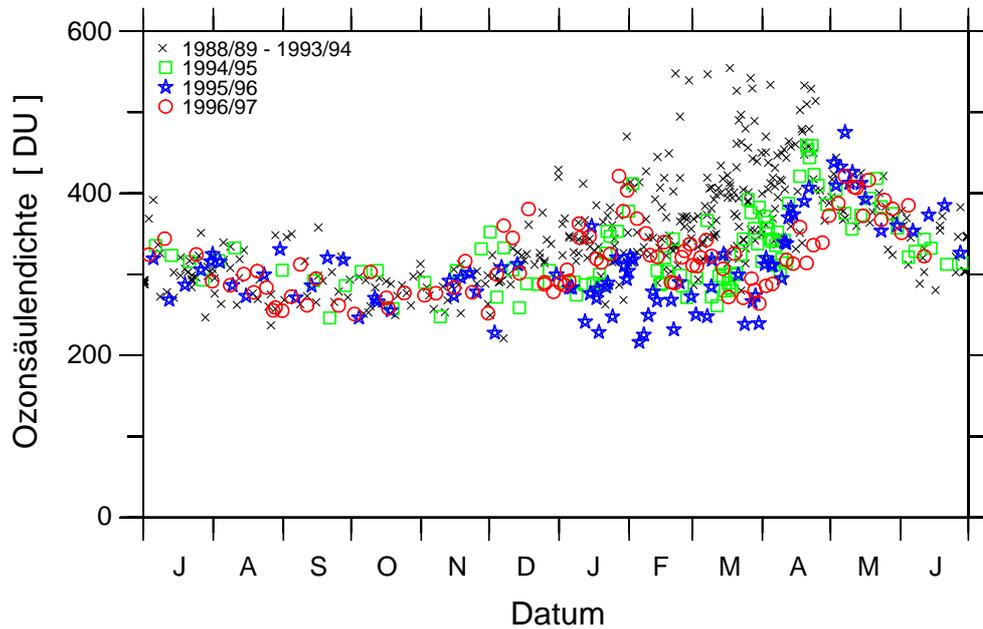


Abbildung 3.8: Jahrgänge der Ozonsäulendichten über Ny-Ålesund. Auf der Zeitachse sind die Monate von Juli bis Juni aufgetragen. Die Jahre 1988/89 bis 1993/94 sind als schwarze Kreuze eingezeichnet; die Jahre seit 1994/95 sind farbig markiert. Aktualisiert aus [von der Gathen et al. 1996].

Kapitel 4

Methoden zur Messung chemischen Ozonabbaus

Um den chemischen Ozonabbau in der Arktis trotz der im letzten Abschnitt geschilderten dynamischen Variabilität nachweisen zu können, müssen Verfahren verwendet werden, die es erlauben, chemische Einflüsse auf die Ozonkonzentration von Einflüssen durch die Dynamik der atmosphärischen Luftmassenbewegungen zu trennen. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über die bisher verwendeten Verfahren gegeben

4.1 Über den Polarwirbel gemitteltes Ozon

Wie in Abschnitt 3.3 geschildert, stellt der Polarwirbel eine gegenüber den umgebenden Luftmassen zu einem gewissen Grade isolierte Einheit dar. Bei Vernachlässigung des diabatischen Absinkens im Wirbel sollte demnach das über den Wirbel gemittelte Ozonmischungsverhältnis auf einer Isentropenfläche dynamisch verhältnismäßig wenig beeinflusst sein. Das diabatische Absinken führt jedoch, wie in Abschnitt 3.5 erläutert, normalerweise zu einem transportbedingten Ansteigen des mittleren Ozonmischungsverhältnisses auf Isentropenflächen. Wird daher stattdessen eine Abnahme des über den Wirbel gemittelten Ozonmischungsverhältnisses auf Isentropenflächen beobachtet, ist dies ein starkes Anzeichen für chemischen Ozonabbau.

Waters et al. [1993a] zeigte mit Daten des Microwave Limb Sounders (MLS), eines der Instrumente des Upper Atmosphere Research Satellite (UARS), während des Januars 1992 auf der 465 K Isentrope abnehmende Wirbelmittel von Ozon und interpretierte sie als Hinweis auf chemischen Ozonverlust.

Braathen et al. [1996] benutzte die Ozonsondendaten einiger arktischer Ozonsondenstationen, um die zeitliche Entwicklung des über den Wirbel gemittelten Ozonmischungsverhältnisses auf der 475 K Isentrope zu verfolgen. Braathen et al. [1996] analysierten die arktischen Winter seit 1988/89 und zeigten eine ausgeprägte Variabilität von Winter zu Winter, wobei eine Korrelation zwischen dem Auftreten von PSC -Temperaturen in einem Winter und Hinweisen auf chemischen Ozonverlust gefunden wurde. Die gesamte Ozonabnahme über den jeweiligen Winter wurde quantifiziert, wobei angemerkt wurde, daß der chemische Ozonverlust von diesen Abnahmen unterschätzt wird, da diabatisches Absinken vernachlässigt wurde.

Um den chemischen Ozonabbau mit der Mittelung über den Wirbel zu quantifizieren, muß der Einfluß des diabatischen Absinkens quantitativ abgeschätzt und berücksichtigt werden. Auch wenn dies geschieht, sind die Ergebnisse nur als Abschätzung zu verstehen, da der Einfluß von Austauschprozessen über den Wirbelrand nicht bekannt ist. Allgemein ist davon auszugehen, daß bei dynamisch ruhigeren Wintern die Ergebnisse dieser Methode den wahren Ozonabbau besser repräsentieren, als bei dynamisch gestörteren Wintern. Im nächsten Abschnitt wird eine Methode beschrieben, die diabatische Absinkbewegung zu berücksichtigen.

4.2 Verwendung von inerten Tracern

Inerte Tracer wurden in einigen Arbeiten eingesetzt, um dynamische Prozesse zu identifizieren, die Einfluß auf das Ozonmischungsverhältnis haben können. Dabei werden sowohl vertikale Bewegungen als auch seitliches Einströmen in den Wirbel mit Tracern untersucht.

4.2.1 N₂O als Tracer für die diabatische Zirkulation

Manney et al. [1994] benutzten N₂O Messungen des Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer (CLAES) auf UARS, um das diabatische Absinken im Wirbel zu verfolgen. N₂O ist unter den Bedingungen der unteren polaren Stratosphäre chemisch inert und weist einen ausgeprägten vertikalen Gradienten auf. Die Flächen gleichen N₂O-Mischungsverhältnisses sollten also mit der diabatischen vertikalen Bewegung der Luftmassen über die Isentropen hinweg absteigen. Die für den Winter 1992/93 aus MLS-Daten berechnete Abnahme des Wirbelmittels des Ozonmischungsverhältnisses (vgl. Abschnitt 4.1) wird zusammen mit der aus den N₂O-Daten gewonnenen Absinkbewegung diskutiert und chemischer Ozonabbau qualitativ nachgewiesen.

4.2.2 Hintergrundaerosol als Tracer für Einmischungsvorgänge in den Wirbel

Wirth und Renger [1996] analysierten Daten eines vom Flugzeug aus betriebenen kombinierten Ozon-/Aerosollidars. Sie zeigten zwischen dem 3.2. und dem 21.3.1995 in etwa 450 K eine Reduktion des Ozonmischungsverhältnisses auf etwa 50%, wenn das Ozon entlang beider Flugpfade verglichen wird. Die Reduktion bestätigte sich auf einem dritten Flug am 26.3.1995. Auf allen drei Flügen wurde der innere Teil des Wirbels beprobt. Gleichzeitig wurde der Aerosolgehalt der Luftmassen bestimmt.

Im Februar sind innerhalb des Wirbels in 450 K Luftmassen anzutreffen, die durch diabatische Abkühlung während des Winters dorthin gelangten und somit bei Entstehung des Wirbels wesentlich höher lagen. Diese Luftschichten sind relativ arm an Hintergrundaerosol. Außerhalb des Wirbels reicht jedoch die aerosolreiche Junge-Schicht bis in dieses Niveau. Luftmassen, die zu dieser Zeit in den Wirbel eingemischt werden, sollten also an ihrem erhöhten Aerosolgehalt zu erkennen sein. Da bei beiden Flügen in 450 K aerosolfreie Luft angetroffen wurde, schließen Wirth und Renger [1996], daß Einmischung in den Wirbel keine wesentliche Rolle spielte. Sie bemerken weiterhin, daß eine solche Einmischung mit der Einmischung von niedrigem PV verbunden wäre, was im Widerspruch zu den Beobachtungen steht. Da nach Wirth und Renger [1996] eine eventuell unbemerkte Einmischung kleineren Ausmaßes aus dem Wirbelrandgebiet zudem zu einem Anstieg des Ozonmischungsverhältnisses führen würde und der oben beschriebene Effekt diabatischen Absinkens ebenfalls eine Ozonzunahme erwarten ließe, wird die beobachtete 50% Ozonabnahme eher als Untergrenze für den chemischen Ozonabbau bezeichnet.

4.2.3 Ozon/Tracer-Korrelation

Nach theoretischen Untersuchungen von Plumb und Ko [1992] werden für die Mischungsverhältnisse von Spurengasen mit hinreichend langen chemischen Lebensdauern untereinander nahezu lineare Korrelationen erwartet [Müller et al., 1996]. Dieses Verhalten wird auch von CTMs bestätigt [Hall und Prather, 1995]. Insbesondere sagen Plumb und Ko [1992] für die untere Stratosphäre in hohen Breiten eine lineare Korrelation zwischen Ozon und inerten Tracern (wie z.B. N₂O und CH₄) voraus. Ein Zusammenbrechen dieser Korrelation ist daher ein Anzeichen für schnelle chemische Prozessierung eines der beteiligten Spurengase. Unter den chemi-

schen Bedingungen der polaren Stratosphäre ist eine schnelle Prozessierung von N_2O oder CH_4 auszuschließen. Es kommt daher nur eine chemische Änderung des Ozons in Frage [Müller et al., 1996].

Proffitt et al. [1993] benutzten die Korrelation zwischen Ozon und N_2O , um den Ozonabbau im Winter 1991/92 zu untersuchen. Dabei verwendeten sie Ozon und N_2O -Daten, die während der Airborne Arctic Stratospheric Expedition (AASE II) in-situ an Bord des Stratosphärenflugzeugs ER-2 gemessen wurden. Aus der Veränderung der Korrelation zwischen O_3 und N_2O in einigen Luftmassen folgerten sie, daß chemischer Ozonverlust in diesem Jahr stattgefunden hat. Aufgrund beträchtlicher Unsicherheiten im Referenz $\text{O}_3/\text{N}_2\text{O}$ -Verhältnis geben sie jedoch nur eine obere Grenze für den akkumulierten Verlust an.

Müller et al. [1996] verwendeten die Antikorrelation zwischen Ozonmischungsverhältnissen und Methanmischungsverhältnissen (XCH_4), wobei sie Messungen vom Halogen Occultation Experiment (HALOE, ein weiteres der Instrumente auf UARS) analysierten. Sie schätzten für die Jahre 1991/92 bis 1994/95 den jeweils über den Winter akkumulierten chemischen Ozonabbau ab, indem sie gemessene Ozonprofile mit Profilen verglichen, die sich unter Verwendung der zu Beginn des Winters gemessenen Funktion $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ aus den CH_4 -Profilen ergaben. Die Differenz wird als chemischer Ozonabbau interpretiert. Weiterhin schätzten sie auch aus der Abnahme des Verhältnisses von Ozon- zu Methansäulendichte die chemisch bedingte Reduktion der Ozonsäule ab.

Quantitativ korrekte Aussagen über den Ozonabbau liefert dieses Verfahren allerdings nur unter der Annahme, daß der Wirbel eine ideal isolierte Luftmasse darstellt. Innerhalb und außerhalb des Wirbels finden sich bereits vor chemischer Prozessierung deutlich unterschiedliche Funktionen $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ [Müller et al., 1996]. Dies ist erst recht nach erfolgter Prozessierung im Wirbel der Fall. Wenn nun Luftmassen mit dem für außerhalb des Wirbel typischen $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ Verhältnis von eingemischt werden, ändert sich $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ im Wirbel auch ohne chemische Prozessierung. Eine Einmischung in den Wirbel kann anhand einer Analyse des Methanmischungsverhältnisses nicht quantisiert werden, da der Effekt sich nicht von dem Effekt diabatischen Absinkens trennen läßt.

4.3 Kombination von Ozonmessungen mit Transportmodellen

Eine weitere Methode chemischen Ozonverlust von dynamischen Einflüssen zu trennen, besteht darin, die Transporte von Luftmassen mit Modellen zu berechnen und direkt in der Auswertung von Ozonmessungen zu berücksichtigen. In [Rex, 1993; von der Gathen et al. 1995] und [Rex et al., 1996a] werden Trajektorienrechnungen verwandt, um von Ozonsonden beprobte Luftmassen zu verfolgen. Das Meßergebnis der jeweils ersten Messung wurde mit weiteren Ozonsondenmessungen zu vergleichen, die jeweils einige Tage später in der selben Luftmasse stattgefunden haben. Eine Weiterentwicklung dieser Methode ([Rex et al., 1995b; Rex et al., 1996b; Rex et al., 1996c]) ist Gegenstand der vorliegenden Arbeit, weshalb hier nicht auf sie eingegangen wird. Näheres findet sich in Kapitel 5.

Manney et al. [1995], Manney et al. [1996a] und Manney et al. [1996b] benutzten MLS Ozondaten, um durch Interpolation Ozon auf Gitterpunkten zu berechnen. An diesen Gitterpunkten wurden dann Trajektorienrechnungen gestartet, mit denen das durch MLS Messungen initialisierte Ozon als passiver Tracer advektiert wurde. Aus dem advektierten Ozon an den Endpunkten der Trajektorien wurde zu bestimmten Zeiten das Ozon an den Gitterpunkten interpoliert. Zu den gleichen Zeiten wurden die MLS Messungen auf das gleiche Gitter interpoliert und mit

dem advektierten Ozon verglichen. Die gefundene Ozondifferenz wurde über alle im Wirbel gelegenen Gitterpunkte gemittelt und der erhaltene Wert als über den Wirbel gemittelter Ozonverlust interpretiert. Ozonverluste wurden für die Zeiten, in denen MLS Messungen im Polarwirbel ausführte, auf der 465 K Isentrope angegeben.

Goutail et al. [1997] benutzten MLS Ozondaten um Ozon jeweils Anfang Dezember auf dem Gitter des REPROBUS (reactive processes ruling the ozone budget in the stratosphere) Chemie-Transport-Models (CTM) zu initialisieren. In Modellläufen mit abgeschaltetem Chemiemodul advektierten sie das Ozon als passiven Tracer. Das advektierte Modell-Ozon verglichen sie nun mit Ozonsäulenmessungen des SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zénithale) Netzwerkes und einigen Ozonprofilen, die von SAOZ Geräten an Ballonen gemessen worden waren. Sie quantifizierten den chemischen Verlust in der Ozonsäule und anhand jeweils zweier gegen Ende des Winters gemessener Profile auch den akkumulierten Verlust in einigen Niveaus für die Winter 1993/94 und 1994/95. Bei der Interpretation der Ergebnisse muß berücksichtigt werden, daß die Differenzen im Ozon zwischen Ozonmessungen völlig verschiedener Gerätetypen gebildet wurde, wobei das Ozon zwischen den Messungen über bis zu einige Monate mit dem Advektionsschema eines Modells advektiert wurde. Über diese lange Periode ergibt sich im advektierten Ozon außer den Fehlern, die durch Fehler der verwendeten Winddaten hervorgerufen werden im advektierten Ozon zwangsläufig auch ein Fehler durch die künstliche Diffusion des verwendeten Advektionsschemas. Das Advektionsschema des in diesem Falle verwendeten REPROBUS ist das semi-lagrangesche Verfahren [Lefèvre, 1996], welches eine verhältnismäßig große künstliche Diffusion verursacht [Prather, 1986].

Kapitel 5

Match-Kampagnen zur Messung chemischen Ozonabbaus

Im Abschnitt 3.5 wurde geschildert, welche Probleme der Nachweis chemischen Ozonabbaus aus Messungen bereitet, die im Eulerschen Sinne, d.h. an einem festen Ort durchgeführt werden, an welchem die Luftmassen vorbeiströmen. Von Rex [1993] und von der Gathen et al. [1995] wurde daher ein Verfahren entwickelt, das es erlaubt, Eulersche Messungen in einem quasi Lagrangeschen Sinne auszuwerten, wenn eine genügende Dichte von Eulerschen Messungen vorliegt. Das Lagrangesche System bewegt sich mit infinitesimalen Luftmassen mit, so daß Advektionsterme in ihm nicht auftreten. Die quasi Lagrangesche Formulierung [Rex, 1993] knüpft die Bewegung des Systems demgegenüber an die Bewegung von größeren Luftpaketen, wobei der Geschwindigkeitsvektor des Luftpakets definiert wird als das Volumenintegralmittel der Geschwindigkeitsvektoren im Paket. Eine theoretische

Betrachtung über die Form der Kontinuitätsgleichung in quasi Lagrangescher Formulierung und die bei dieser Formulierung auftretenden Diffusionsterme wird in [Rex 1993] gegeben. In der vorliegenden Arbeit wird eine Weiterentwicklung dieser Methode, chemische Ozonverluste zu detektieren, beschrieben. Bei der Weiterentwicklung werden nun Messungen im quasi Lagrangeschen Sinne durch aktive Planung durchgeführt. Dabei werden Paare von Ozonmessun-

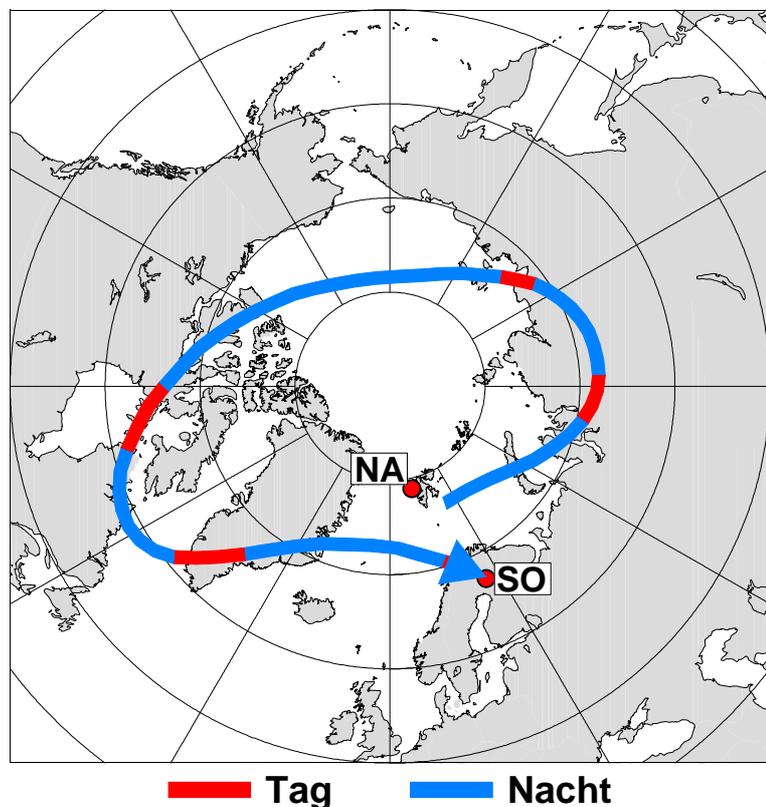


Abbildung 5.1: Beispiel eines Luftpakets, welches zunächst am 24.1.1992 von einer Ozonsonde bei Ny-Ålesund beprobt wurde und fünf Tage später nach einer Umrundung des Polarwirbels ein zweites Mal bei Sodankylä von einer Sonde durchflogen wurde. Die rot/blau Linie gibt die Trajektorie des Luftpakets an. Bereiche, in denen das Luftpaket von der Sonne beschienen wurde sind rot dargestellt.

gen in einem zeitlichen Abstand von einigen Tagen in jeweils derselben Luftmasse plaziert. Da die Luftmasse sich zwischen den beiden Messungen mit der stratosphärischen Strömung mitbewegt, müssen die beiden Messungen im allgemeinen an verschiedenen Orten durchgeführt werden. Abbildung 5.1 zeigt ein Beispiel eines im Abstand von fünf Tagen zweimal beprobten Luftpakets. So ein Paar von Messungen im gleichen Luftpaket wird hier als Match (vom englischen Begriff 'zu einander passen') bezeichnet.

Der folgende Abschnitt 5.1 beinhaltet Betrachtungen über die für die quasi Lagrangesche Methode einsetzbaren Meßgeräte sowie eine Beschreibung der tatsächlich verwendeten Ozonsondenmessungen. In den Abschnitten 5.2 und 5.3 wird ein Überblick über die dieser Arbeit zugrundeliegenden Kampagnen gegeben, welche den Namen Match-Kampagnen erhalten haben. Wie die Match-Kampagnen im einzelnen durchgeführt wurden, wird in dem längeren Abschnitt 5.4 beschrieben. Nach den Kampagnen erfolgte jeweils eine umfassendere Neuberechnung der Match Ereignisse. Das Vorgehen dabei wird in Abschnitt 5.5 erläutert.

5.1 Geeignete Meßgeräte für Match

Die lagrangesche Methode läßt sich prinzipiell mit einer Vielzahl verschiedener Meßgeräte in die Praxis umsetzen. Dabei müssen jedoch zwei Grundvoraussetzungen beachtet werden. Erstens muß berücksichtigt werden, daß bei einem Verfahren, bei dem Differenzen zwischen zwei Meßwerten bestimmt werden sollen, die gegenüber der Meßgröße verhältnismäßig klein sind, eine hohe Anforderung an die Vergleichbarkeit der beiden messenden Geräte gestellt werden muß. Dies gilt natürlich insbesondere für eventuelle systematische Abweichungen der Geräte untereinander. Am besten geeignet sind also Geräte, die an vielen verschiedenen Orten auf der Erde absolut baugleich verwendet werden oder Satellitenmessungen, bei denen beide Messungen eines Matchpaares vom gleichen Instrument durchgeführt werden. Weiterhin muß wegen des großen vertikalen Windgradienten im Bereich des Polar Night Jets die verwendete Meßmethode eine ausreichende Höhenauflösung aufweisen. Jedes Verfahren, Ozonprofile zu messen, mittelt die tatsächliche Ozonkonzentration über einen gewissen räumlichen Bereich. Während die horizontale Auflösung bei vielen bodengestützten Verfahren sehr gut ist, weisen viele dieser Geräte nur eine begrenzte vertikale Auflösung auf, so daß im wesentlichen über eine gewisse vertikale Säule gemittelt wird. Dies ist zum Beispiel bei Lidarmessungen, Mikrowellenmessungen aber auch für Ozonsondenmessungen der Fall. Satellitenmessungen im Limb Modus mitteln zusätzlich auch über einen größeren horizontalen Bereich.

Ist die zunächst vertikale Säule zu groß, wird sie durch den vertikalen Windgradienten normalerweise schnell horizontal auseinandergezogen, so daß es keine Möglichkeit mehr gibt, sie nochmals mit einer Messung zu erfassen. Dies Problem zeigte sich sehr deutlich in einer Voruntersuchung, die für eine Flugzeugkampagne mit dem Airborne-Submillimeter-SIS-Radiometers (ASUR) durchgeführt wurde. Das Flugzeug war mit einem 600-700 GHz Empfänger ausgerüstet, der in der Lage ist, Ozon, ClO und BrO mit einer vertikalen Auflösung von einigen Kilometern zu messen. Es wurde untersucht, ob es möglich ist, zwei Flüge im Abstand einiger Tage durchzuführen und dabei jeweils die gleichen Luftsäulen zu beproben. Abbildung 5.2 zeigt das Ergebnis einer Trajektorienrechnung für einen möglichen Flugpfad am 7. Februar 1996. Bereits nach vierundzwanzig Stunden sind die während des ersten Flugs beprobten Luftsäulen über viele tausend Kilometer horizontal auseinandergezogen worden. Dieses für den äußeren Polarwirbel typische Beispiel zeigt die Schwierigkeiten, die mit der Anwendung des Matchprinzips auf Messungen von Instrumenten mit geringer Höhenauflösung verbunden sind.

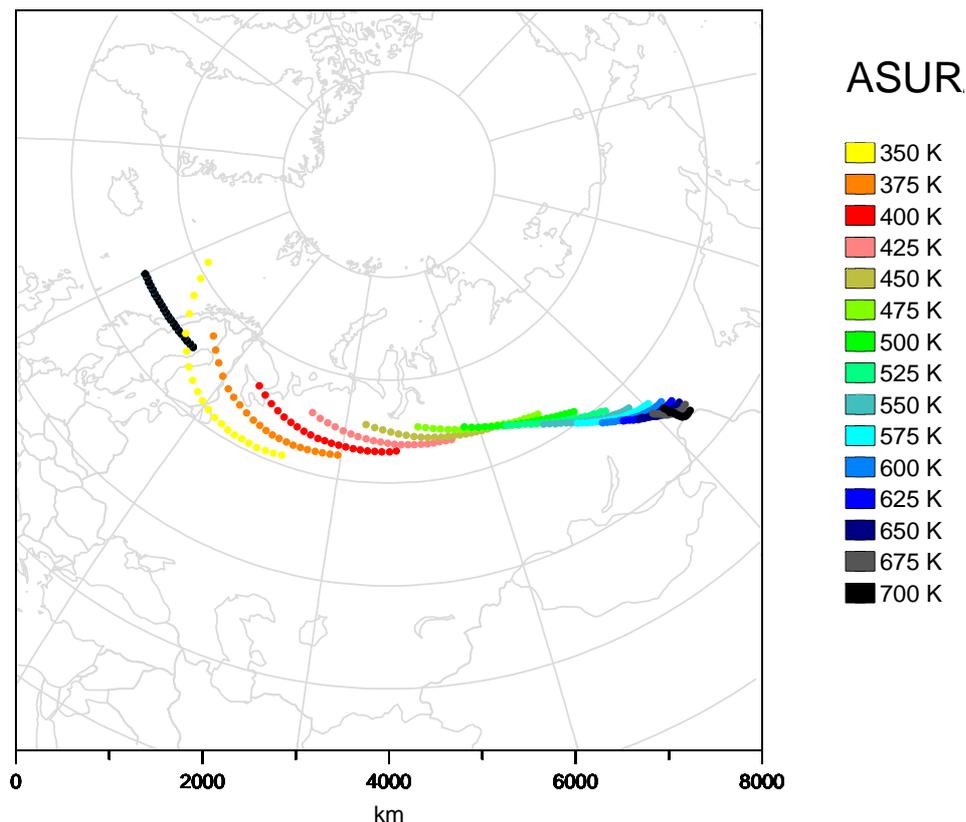


Abbildung 5.2: Zeitliches Auseinanderdriften der vertikalen Luftsäulen über einem hypothetischen Flugpfad eines Meßflugzeugs, das am 27. Februar 1995 mit 630 km/h ab 12:00 UT entlang des 65. Breitengrades zwischen 0° und 20° östlicher Länge fliegt. Der Flugpfad ist in der linken Bildhälfte schwarz eingezeichnet. Entlang von 21 vertikalen Säulen über diesem Flugpfad wurden jeweils im Höhenbereich 350 bis 700 K in 15 verschiedenen Niveaus Trajektorienrechnungen gestartet. Die Orte dieser Trajektorien am 28. Februar um 12:00 UT (also ca. 24 Stunden später) sind farbig eingezeichnet, wobei jede Farbe einem Niveau entspricht (siehe Legende am rechten Bildrand). Die für jedes Niveau am weitesten westlich gelegenen Punkte sind dabei die Luftpakete, die zuvor vertikal über dem westlichsten Punkt des Flugpfads gelegen haben. Der horizontale Abstand dieser Punkte beträgt bereits nach 24 Stunden mehr als 5000 km.

Diese Schwierigkeiten sind allerdings nicht unbedingt unlösbar. Ein Ansatz im obigen Beispiel der ASUR Messungen wäre zum Beispiel, sich statt auf Ozon auf Substanzen zu konzentrieren, die ein scharfes vertikales Maximum aufweisen, dessen Lage durch andere Informationen in etwa bekannt ist, und deren durch chemische Prozesse bedingte Variation wesentlich schneller abläuft, als dies beim Ozon der Fall ist. Im vorliegenden Beispiel bietet sich hierfür ClO an. Das in einer größeren Säule von dem Radiometer gemessene ClO ist sehr wahrscheinlich größtenteils auf den kleineren Bereich konzentriert, der zuvor von PSCs prozessiert worden ist. Wenn durch zusätzliche Informationen (wie etwa die Temperaturentwicklung entlang von Rückwärts-trajektorien) die Höhe dieses Bereichs ermittelt werden kann, braucht nur die Bewegung dieses kleineren vertikalen Bereichs mit Trajektorien verfolgt zu werden. Da die chemisch bedingte Änderung der ClO-Konzentration bei Sonnenuntergang oder Sonnenaufgang durch die schnelle Bildung (bzw. Photolyse) von Cl_2O_2 sehr schnell ist, reicht es, wenn zwischen beiden Messungen nur wenige Stunden liegen, während derer die Sonne unter oder auf gegangen ist. Unter diesen Voraussetzungen erscheint der erfolgreiche Einsatz von Match zur Messung chemisch bedingter Änderungen durchaus auch mit Radiometermessungen möglich.

Lidarmessungen weisen je nach Gerät und Integrationszeit im Bereich des Ozonmaximums üblicherweise eine Höhengauflösung um eintausend Meter auf. Dieser Wert ist deutlich kleiner als die Höhengauflösung von Radiometermessungen und ein Lidar-Match erscheint durchaus möglich zu sein. Da sich jedoch alle an den verschiedenen Stationen betriebenen Lidar-Geräte in ihrem Aufbau beträchtlich voneinander unterscheiden, könnten eventuelle systematische Abweichung der Messungen voneinander zu zusätzlichen Problemen führen. Die Möglichkeiten des Einsatzes von Lidar Geräten für Match werden derzeit von J. Steger am AWI untersucht.

Sollen Satellitendaten mittels Match analysiert werden, hat man es in der Regel neben einer begrenzten Höhengauflösung auch mit einer Mittelung über einen größeren horizontalen Bereich zu tun. Der Bereich, der von jedem Meßpunkt erfaßt wird, hängt von der Geometrie der Satellitenmessung ab. Profilmessungen von Satelliten werden in der Regel in der Limb Geometrie durchgeführt, die entlang des Beobachtungspfads zwischen Sonne und Satelliten etwa über 300 km horizontal mittelt. In solchen Fällen müssen Trajektorien auf der Oberfläche des von jedem Meßpunkt erfaßten Volumens gestartet werden. Nur Fälle, in denen dieses Volumen während des Transports nicht zu sehr auseinandergezogen wird, können mit der Match-Methode ausgewertet werden. Versuche, solch eine Auswertung mit POAM Daten durchzuführen, erwiesen sich wegen dieser Einschränkung als sehr schwierig und ergaben bis jetzt noch keine Ergebnisse [Deniel, 1996].

Die vorliegende Arbeit beruht auf Messungen mit elektrochemischen Ozonsonden. Diese sind für Messungen des chemischen Ozonabbaus mittels des Matchprinzips besonders gut geeignet, da sie eine sehr gute vertikale Auflösung aufweisen und nahezu baugleich in einem weitgehend standardisierten Verfahren an vielen auf der Nordhemisphäre verteilten Stationen gestartet werden können. Sie können flexibel, von Sonnenlicht und Wetter unabhängig, nach kurzer Präparation (siehe folgenden Abschnitt) jederzeit eingesetzt werden. Nur extreme Stürme können den Start einer Ozonsonde in Ausnahmefällen verhindern.

5.1.1 Funktion der Ozonsonden

Grundlage der vorliegenden Arbeit sind Ozonprofile, die von ballongetragenen Sensoren während des Aufstiegs gemessen werden. Das eingesetzte System besteht dabei aus einer Bodenstation, einer Radiosonde, dem Ozonsensor, einem Interface und dem Trägerballon. Die Materialkosten für einen Ozonsondenaufstieg belaufen sich zusammen auf etwa 1500 DM.

Als Trägerballone kommen dehnbare Latexballone oder bei sehr kalten stratosphärischen Temperaturen auch große, nicht dehnbare Plastikballone zum Einsatz. Die Ballone werden je nach Station mit Wasserstoff oder Helium befüllt, wobei die Füllmenge so gewählt wird, daß sich eine Aufstiegs geschwindigkeit von etwa 5 m/s ergibt. Das Gas im Ballon dehnt sich während des Aufstiegs aus und das Ende einer Sondierung wird in der Regel vom Platzen des Ballons bestimmt. Bei Plastikballonen ist die Sondierung beendet, wenn das Gas die von vorneherein sehr große Ballonhülle ausfüllt und sich nicht weiter ausdehnen kann. Der Ballon driftet dann in der Fläche gleicher Dichte weiter, in der die Luftdichte der nun konstanten Dichte im Ballon entspricht. Bei sehr kalten Temperaturen und besonders bei Aufstiegen im Dunkeln sind die Latexhüllen deutlich spröder als unter normalen Bedingungen und platzen häufig schon im Temperaturminimum, welches im hocharktischen Winter bei kaum ausgeprägter Tropopause in der unteren Stratosphäre liegt. Um bei sehr kalten Temperaturen auch mit den billigeren und wesentlich leichter handhabbaren Latexballonen befriedigende Gipfelhöhen zu erreichen, werden an einigen hocharktischen Stationen die Ballonhüllen vor dem Aufstieg lange vorgewärmt und in einem Benzin/Ölgemisch getränkt. Nach dem Platzen des Ballons fällt der Ozonsensor zur

Erde zurück. Um Gefährdungen in besiedelten Regionen auszuschließen ist er dort häufig mit einem Fallschirm versehen. Wird der Sensor zufällig aufgefunden, kann er meist wiederverwendet werden. Daher ist er in besiedelten Regionen mit der Adresse der startenden Institution und der Bitte um Rücksendung versehen. Manche mitteleuropäische Stationen erhalten so fast 50% ihrer Sensoren zurück und vielfach verwendete Sensoren sind dort keine Seltenheit. In arktischen Bereichen ist das zufällige Auffinden des Sensors sehr selten, obwohl es auch in Spitzbergen schon vorgekommen ist.

Die Bodenstation und die Radiosonde bilden eine aufeinander abgestimmte Einheit. Bei den an Match beteiligten Ozonsondenstationen kam dabei das System von Vaisala (Bodenstation DigiCORA oder MARWIN, Radiosonde RS 80-15E, RS80-15NE) zum Einsatz. Die Radiosonde mißt die meteorologischen Parameter Druck (P), Temperatur (T) und Feuchte (U) und mit Ausnahme der Sonde RS 80-15E auch ihre Position, aus der der Horizontalwind abgeleitet wird. Zur Positionsbestimmung wird die auf einem weltweiten Netz von Langwellensendern beruhende OMEGA Navigation verwendet, bei der die Position aus der relativen Phasenlage der einzelnen Langwellensignale untereinander bestimmt wird. Die geopotentielle Höhe der Sonde wird bei der Auswertung über die barometrische Höhenformel aus den PTU-Daten berechnet und bei Bedarf über das Gravitationsgesetz in die geometrische Höhe über dem Geoiden umgerechnet, wobei die Übereinstimmung zwischen beiden Höhen allerdings bis 50 km besser als 1% ist [Andrews et al., 1987]. Die eingesetzten Radiosonden sind im wesentlichen baugleich mit Geräten, die täglich weltweit hundertfach zur Wetterbeobachtung eingesetzt werden. Außer der Messung der meteorologischen Grundparameter übernimmt die Radiosonde auch die Radiübertragung der Meßgrößen zur Bodenstation. Die für Ozonsondenmessungen eingesetzten Radiosonden haben daher gegenüber den Standardgeräten einen weiteren Datenkanal, an den über ein Interface der Ozonsensor angeschlossen wird.

Während der Match-Kampagnen wurden vorwiegend ECC (Electrochemical Concentration Cell) Ozonsensoren verwendet, wobei nur die Stationen Uccle, Payerne und Hohenpeißenberg mit der Verwendung von Brewer-Mast Sonden eine Ausnahme bildeten, um nicht die an diesen Stationen existierende langjährige Reihen zu unterbrechen. Als ECC Sensoren wurden die Typen ECC5a von Science Pump, die u. a. von Vaisala vertrieben werden, und 1ZECC von ENSCI Corporation verwendet. Die verschiedenen Typen sind untereinander im wesentlichen baugleich. Smit et al. [1996] zeigten, daß die verwendeten ECC Sondentypen untereinander keine signifikanten systematischen Unterschiede aufweisen. De Backer et al. [1995] zeigten, daß die aus den Brewer-Mast Sondendaten gewonnen Ozonprofile bei Verwendung des benutzten Auswertverfahrens, welches höhenabhängige Korrekturfaktoren beinhaltet, zwischen 120 und 35 hPa keine signifikanten systematischen Unterschiede zu den Ozonprofilen von ECC Sonden aufweisen.

Abbildung 5.3 zeigt den schematischen Aufbau der ECC Ozonsensoren. Der Sensor besteht aus einer elektrochemischen Zelle und einer Pumpe, die einen definierten Luftstrom durch die eine Halbzelle erzeugt. Die Kathodenflüssigkeit besteht aus 1%-iger Kaliumjodidlösung. Sie ist mit dem System $\text{NaH}_2\text{PO}_4 / \text{Na}_2\text{HPO}_4$ auf pH 7 gepuffert. Die Anodenlösung ist mit Kaliumjodid gesättigt.

Wird ein Oxidationsmittel wie Ozon in die Kathode eingeleitet, wird dort Jodid zu Jod oxidiert:



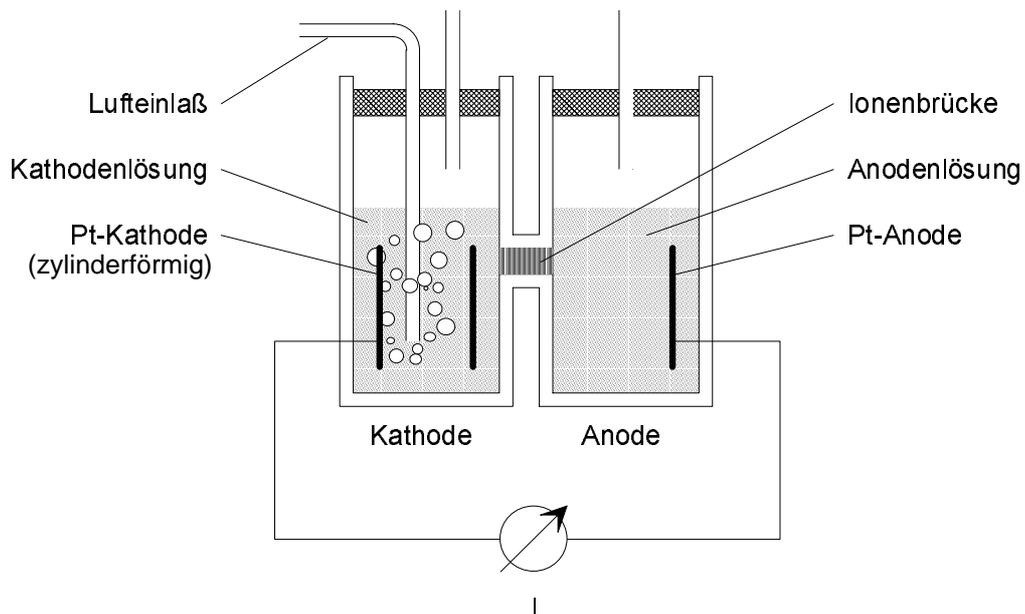


Abbildung 5.3: Schematischer Aufbau des ECC Ozonsensors. Die Elektroden sind aus Platin.

Diese Reaktion läuft quantitativ ab. Durch die Pufferung bleibt der pH Wert der Kathodenlösung trotz des entstehenden OH^- relativ konstant. Die Menge des in dieser Reaktion entstandenen Jods wird elektrochemisch bestimmt. Die beiden Zellenreaktionen des Systems lauten:

In der Kathode:



In der Anode:



Somit fließen pro Ozonmolekül zwei Elektronen. Sie werden von einem empfindlichen Strommeßgerät gemessen. Da die Pumpe einen in erster Näherung konstanten Volumenstrom durch die Kathode erzeugt, ist der gemessene Strom proportional der Ozonkonzentration.

Bei der Pumpe handelt es sich um eine Kolbenpumpe, die von einem Synchronmotor mit konstanter Hubfrequenz betrieben wird. Daher ist das pro Zeiteinheit durch den Kolben durchgesetzte Volumen konstant. Im Pumpenkolben herrschen jedoch von der Außentemperatur abweichende Temperatur und Druckverhältnisse. Um den durch die Pumpe erzeugten Volumenstrom auf Außenbedingungen umzurechnen, wird die Temperatur im Sensor als Näherung für die Temperatur im Pumpenkolben gemessen. Die Druckdifferenz zwischen Außendruck und Druck im Pumpenkolben ist selbst eine Funktion des Außendrucks. Die dadurch verursachte Änderung der Pumpeneffektivität während des Aufstiegs wird in der Auswertung durch einen Korrekturfaktor berücksichtigt [Komhyr, 1986].

Aus der Ansprechzeit des Ozonsensors auf Änderungen der Ozonkonzentration, die in der Größenordnung von 30 s liegt [Komhyr und Harris, 1971] und der Aufstiegeschwindigkeit von ca. 5 m/s ergibt sich eine vertikale Auflösung des gemessenen Ozonprofils von etwa 150 m. Der Sensor führt alle 0.1 s eine Messung aus. Über diese Daten wurde an den Stationen bei der Da-

tenreduktion gemittelt, wobei in der Regel alle 10 s ein Wert ausgegeben wurde. Einige wenige Stationen meldeten eine deutlich reduzierte Auflösung indem nur die Ozonmischungsverhältnisse an markanten Änderungen des Ozongradientens ausgegeben wurden. Weiterhin kommt es durch Ausfälle der Datenübertragung von der Sonde zur Bodenstation häufig zu größeren Lücken im gemeldeten Ozonprofil. Während der Auswertung wurde linear über $\log(p)$ zwischen den Meßpunkten des Profils interpoliert, wobei eine Interpolation über größere Lücken im Profil ausgeschlossen wurde (siehe Abschnitt 5.5.3).

Bei der Ozonmessung treten Querempfindlichkeiten zu SO_2 (reduziert entstehendes Jod in der Kathode) und zu NO_2 (oxidiert in der Kathode Jodid zu Jod) auf. Dabei führt SO_2 zu einer Unterschätzung des Ozonmischungsverhältnisses um ca. 0.93 ppbv pro ppbv SO_2 und NO_2 zu einer Überschätzung um ca. 0.0057 ppbv pro ppbv NO_2 [Grabbe, 1995]. Da die NO_2 -Mischungsverhältnisse in der polaren Stratosphäre im 1 ppbv Bereich liegen [Oelhaf et al., 1995] ist der von ihnen verursachte Fehler relativ zu einigen ppmv Ozon zu vernachlässigen. Der Einfluß von SO_2 auf Ozonmessungen ist bei Brewer-Mast Sonden größer als bei den ECC Typen [WMO, 1995, Abschnitt 1.3.1]. In der Stratosphäre kann er aber auch bei Brewer-Mast Sonden vernachlässigt werden [De Muer und De Backer, 1994].

Die Genauigkeit des ECC Ozonsensors ist vielfach untersucht worden (z.B.: Komhyr und Harris [1971], Aïmedieu et al. [1987], Beekmann et al. [1994], Kerr et al. [1994], Smit et al. [1996]). Aus den Ergebnissen dieser Arbeiten läßt sich für die untere Stratosphäre eine Genauigkeit der Ozonkonzentrationsmessung von etwa 5% ableiten [Vaisala, 1991].

Die Präparation der ECC Sonden für den Start wurde nach Vaisala [1991] durchgeführt. Sie verläuft in drei Schritten:

1. 3 Tage bis eine Woche vor dem Start wird die elektrochemische Zelle mit den Sensorlösungen befüllt.
2. Bis zu 24 Stunden vor dem Start werden u.a. die Lösungen ausgewechselt und die Pumpen- und Sensorcharakteristiken bestimmt. Diese Arbeiten dauern etwa 2 Stunden.
3. Direkt vor dem Start wird die Funktion der Sonde überprüft, konditioniert, die Nutzlast aus Ozonsensor, Interface und Radiosonde flugfertig gemacht und schließlich der Ballon befüllt. Für diese Arbeiten sollten 1.5 Stunden eingeplant werden.

Der zeitliche Ablauf der Sondenpräparation muß bei der Planung einer Matchkampagne berücksichtigt werden. Während der Kampagne müssen die Stationen je nach mittlerer Startfrequenz ständig ein bis drei nach Punkt 1 vorbereitete Sonden vorhalten. Um zu einem vorgegebenen Zeitpunkt eine Sonde starten zu können, muß eine rechtzeitige Benachrichtigung der Station mit ungefährender Angabe des Startzeitpunkts erfolgen, um die Vorbereitung nach Punkt 2 durchführen zu können. Diese Benachrichtigung sollte mindestens 24 Stunden vor dem Start geschehen, damit die Sondenvorbereitung in den Zeitplan der Station eingearbeitet werden kann. Die genaue Festlegung des Startzeitpunktes muß spätestens 1.5 Stunden vor dem Start erfolgen, damit genügend Zeit für die unmittelbare Startvorbereitung nach Punkt 3 zur Verfügung steht.

5.2 Match-Auswertung der Ozonsondendaten des Winters 1991/92

Das Matchprinzip wurde erstmals für eine Analyse der Ozonsondendaten eingesetzt, die während des European Arctic Stratospheric Ozone Experiments (EASOE) im Winter 1991/92 gemessen worden waren. Während der Kampagne wurden etwa 1200 Ozonsonden von 26 Stationen im arktischen Bereich und in nördlichen mittleren Breiten gestartet. Die Stationen sind in Anhang A zusammengefaßt. Ihre Lage kann aus Abbildung 5.4 entnommen werden.

Während EASOE fand kein Versuch einer Koordinierung der Ozonsondenstarts statt. Jede der beteiligten Stationen startete ihre Sonden nach einem unabhängigen Schema. Durch die große Anzahl der Ozonsonden konnten in einer Auswertung nach der Kampagne dennoch genügend zufällige Matche gefunden werden, um in einer statistischen Analyse daraus Ozonabbau bestimmen zu können. Das genaue Vorgehen bei der Auswertung dieser Kampagne ist in [Rex 1993] beschrieben.

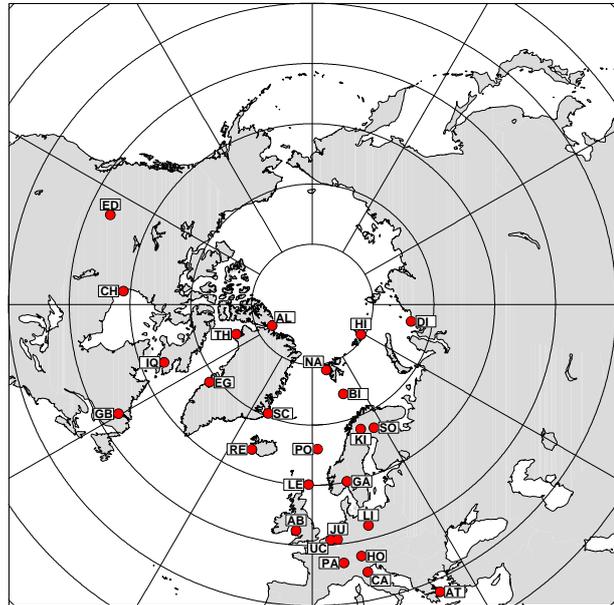


Abbildung 5.4: Ozonsondenstationen der EASOE Kampagne.

5.3 Koordinierte Match-Kampagnen in den Wintern 1994/95 und 1995/96

Im Winter 1994/95 fand das Second European Stratospheric Arctic and Mid-latitude Experiment (SESAME) statt, in dessen Rahmen auch etwa 1000 Ozonsonden zur Verfügung standen. Für SESAME wurde eine Echtzeitkoordinierung entwickelt, die Vorwärtstrajektorien mit einem Vorhersageanteil verwendet, um die Flugbahnen der von einer Ozonsonde beprobten Luftpakete zu bestimmen und vorherzusagen. Diese Ozonsonde wird 'erste Sonde' genannt. In Fällen in denen ein bereits beprobtes Luftpaket sich einer der beteiligten Stationen annäherte, wurde eine Startaufforderung an diese Station gesandt. Diese koordinierte Sonde wird hier 'zweite Sonde' genannt.

Mit den meteorologischen Daten des EASOE Winters wurde eine Vorstudie angefertigt, um die Wahrscheinlichkeit solcher Annäherungen abzuschätzen. Da die Erkenntnisse aus der Vorstudie eine große Anzahl möglicher Match Ereignisse erwarten ließen und wegen der ermutigenden Ergebnisse der EASOE Match-Auswertung [Rex, 1993; von der Gathen et al., 1995] konnten alle an SESAME beteiligten Ozonsondierungsstationen sowie weitere fünf kanadische Stationen (zusammen 35 Stationen) zur Teilnahme an der ersten Match-Kampagne gewonnen werden.

Nach erfolgreichem Einsatz der Match-Koordinierung während SESAME und Präsentation der vorläufigen Ergebnisse im Frühjahr 1995 [Rex et al., 1995a] war eine große Anzahl von Ozonsondenstationen bereit, ihre aus nationalen Quellen finanzierten Ozonsonden für eine weitere

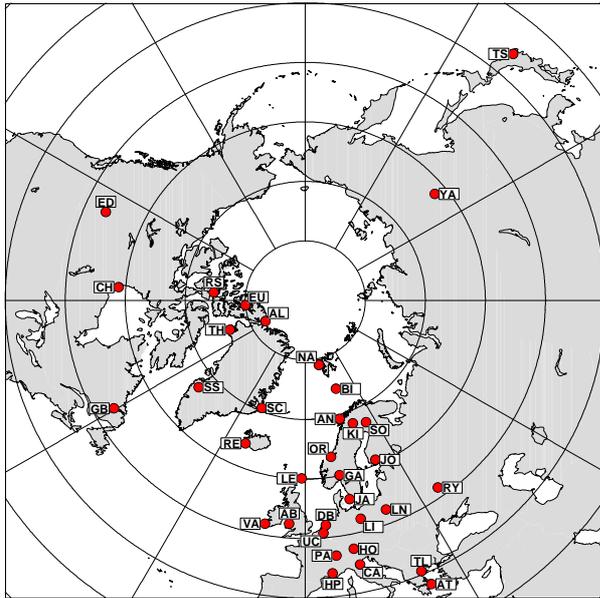


Abbildung 5.5: Ozonsondenstationen, die an Match94/95 teilgenommen haben.

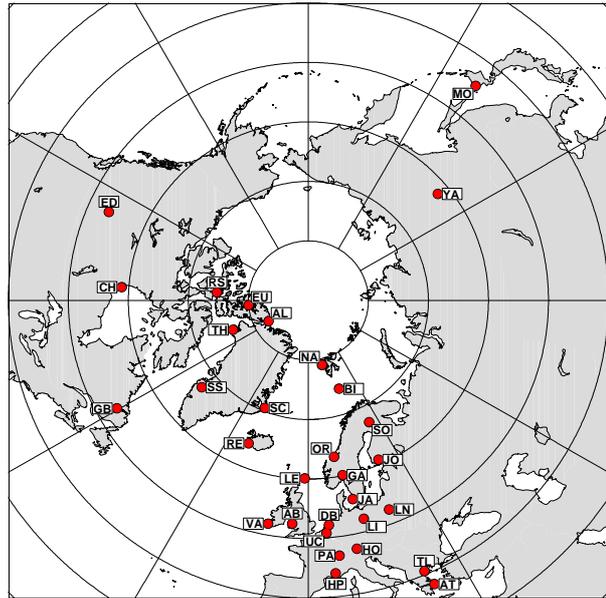


Abbildung 5.6: Ozonsondenstationen, die an Match95/96 teilgenommen haben.

Match-Kampagne im Winter 1995/96 zur Verfügung zu stellen. Zusammen mit Restbeständen aus dem Vorwinter standen so insgesamt für den Winter 1995/96 etwa 600 Ozonsonden für Match zur Verfügung.

Die Fortführung des Match Projekts im Rahmen der Europäischen Ozonforschung ist derzeit bis zum Winter 1998/99 durch Finanzierung der Europäischen Gemeinschaft gesichert. Das Projekt OSDOC (Ozone Sondes as a Tool for Detection of Stratospheric Change) läuft zur Zeit und beinhaltet als Kernexperiment eine Match-Kampagne 1996/97 welche eventuell durch eine kleinere im Winter 1997/98 ergänzt wird. Kürzlich wurde die Finanzierung des Projektes THE-SEO-O₃-loss im Rahmen von THESOE (Third European Stratospheric Experiment on Ozone) zugesagt. Dieses Projekt sieht eine umfangreiche Match Studie im Winter 1998/99 vor.

Die Koordination der Ozonsondenstarts der Match-Kampagnen bedingt, daß die beteiligten Stationen ihre Starts nicht wie bislang zu bestimmten Standarduhrzeiten durchführen können, sondern in der Lage sein müssen, flexibel auf Startanforderungen zu reagieren. Viele Stationen waren während der Kampagnen rund um die Uhr an allen Wochentagen (einschließlich Wochenenden und Feiertagen) in Startbereitschaft. Andererseits gab es auch an einigen Stationen Einschränkungen der Zeiten, in denen Starts vorgenommen werden konnten. Zu den Gründen für diese Einschränkungen zählte in erster Linie die Verfügbarkeit von Personal, aber auch Einschränkungen durch die erforderliche Freigabe des Luftraums über der Station durch die jeweilige Flugaufsichtsbehörde. Im einzelnen sind die teilnehmenden Stationen und die jeweiligen Startbereitschaftszeiten in Anhang A zusammengefaßt.

Die Lage der Stationen für beide Kampagnen kann aus Abbildung 5.5 und Abbildung 5.6 entnommen werden.

Im Winter 1994/95 wurde als Teil der Hauptkampagne eine gesonderte Koordination von einigen Matches durchgeführt, die zur Untersuchung von Prozessen innerhalb von Lamina-Strukturen eingesetzt wurden. Für diesen Zweck wurden Trajektorien jeweils genau im Minimum

oder Maximum einer Lamina-Struktur initialisiert und im weiteren Verlauf mehrere weitere Sonden erneut in diese Luftmasse plaziert. Obwohl sich aus diesen Matches wegen systematischen Effekten von Diffusion oder Trajektorienfehlern keine quantitativen Aussagen machen lassen, konnten zusammen mit einer chemischer Modellierung entlang der Trajektorien neue Erkenntnisse über die Entwicklung und Bedeutung dieser Lamina-Strukturen gewonnen werden. Da eine Beschreibung dieser Teilkampagne und ihrer Ergebnisse sehr weit vom eigentlichen Inhalt der vorliegenden Arbeit weg führen würde, wird hier darauf verzichtet. Dieser Teil der Kampagne erfolgte auf Anregung und in Zusammenarbeit mit Steve Reid. Eine Beschreibung und die Ergebnisse findet sich bei Reid et al. [1997].

5.4 Koordinierung während der Match-Kampagnen

Bei der Durchführung einer Match-Kampagne wurden folgende Ressourcen verschiedener Institutionen genutzt:

- Die Ozonsondenaufstiege aller beteiligter Institutionen.
- Meteorologische Analyse- und Vorhersagedaten des Europäischen Zentrums für Mittelfristige Wettervorhersage (EZMW) in Reading sowie Datenprozessierung des Deutschen Wetterdienstes (DWD) in Offenbach.
- Trajektorienrechnungen des Meteorologischen Instituts der Freien Universität Berlin (FU).
- Eine zentrale Datenbank am Norwegian Institute for Air Research (NILU) in Kjeller/Oslo.

Zur Auswertung wurden weiterhin verwendet:

- Diabatische Erärmungsraten der Universität Cambridge.

Die Darstellung des komplexen Ablaufs einer Match-Kampagne erfolgt hier in drei Abschnitten. Abschnitt 5.4.1 gibt einen allgemeinen Überblick über die zur Koordinierung einer Kampagne nötigen Arbeitsschritte und Kommunikationsabläufe. Im Abschnitt 5.4.2 wird detaillierter erläutert, welche automatisierten Prozeduren zur Steuerung der Kampagne eingesetzt wurden und wie diese ineinandergriffen. Abschließend wird im Abschnitt 5.4.3 das Zustandekommen eines Matches an einem Beispiel in chronologischer Reihenfolge zusammengefaßt.

5.4.1 Kampagnenablauf

Jede Ozonsondenstation meldete einen erfolgreichen Start baldmöglichst nach Abschluß der Sondierung der Match-Koordinierung. Dies geschah in vielen Fällen, indem die vollständigen Datensätze der Sonde zu der zentralen Datenbank am NILU übertragen wurden. Aufgrund nicht ausreichender Kapazität der Kommunikationsleitungen sandten einige abgelegene Stationen nur die Daten, die für die Koordinierung der Kampagne am wichtigsten sind (Startzeitpunkt, Aufstiegsgeschwindigkeit, erreichtes Niveau), per e-mail oder fax direkt zur Match-Koordinierung an das AWI.

Der Aufstiegsfad der Sonden wurde in den meisten Fällen aus den Winddaten integriert, die von der Ozonsonde gemessen wurden (näheres siehe Abschnitt 5.5.1.1). In den Fällen, in denen die vollständigen Daten der Sonde während der Kampagne nicht übermittelt werden konnten, und für Sonden, die ohne Windmeßeinrichtung gestartet wurden (etwa 30% der Aufstiege) wurden zunächst vertikale Aufstiege angenommen.

Entlang des Aufstiegsfad jeder Ozonsonde wurde in festen Höhenniveaus die Berechnung von Gruppen diabatischer Vorwärtstrajektorien gestartet. Diese Trajektorien wurden dann jeweils über einen Zeitraum von neun Tagen täglich mit den jüngsten EZMW Daten verlängert. Auf diese Weise wurde ein Pool von bekannten, bereits einmal beprobten Luftpaketen gebildet, deren Bewegungen von dem Match-Koordinierungsapparat überwacht wurde. An jedem Tag kamen jeweils die Trajektorien der während der letzten 24 Stunden gestarteten Ozonsonden zusätzlich dazu, während die Trajektorien der Sonden, die vor mehr als neun Tagen gestartet worden waren, wieder aus der Überwachung herausgenommen wurden. An typischen Tagen während der Match-Kampagne 1994/95 lag die Anzahl der Luftpakete, die aktuell überwacht wurden, üblicherweise bei einigen hundert. Mit den Trajektorien wurden nicht nur die aktuellen Positionen der Luftpakete beobachtet, sondern auch ihre Bahnen während der jeweils nächsten zwei Tage vorhergesagt.

Näherte sich eines der überwachten Luftpakete während des Vorhersagezeitraums einer der beteiligten Stationen, wurde diese Station mindestens 24 Stunden vor dem vorausberechneten optimalen Startzeitpunkt informiert und gebeten, eine Ozonsonde vorzubereiten. Die zu diesem Zeitpunkt an die Station gesandte Nachricht wird hier als 'Alert' bezeichnet.

Die Berechnung des optimalen Startzeitpunkts berücksichtigte dabei auch den für diese Station gültigen Startbereitschaftszeitraum und die abgeschätzte Zeit, die die Sonde während des Aufstiegs benötigen würde, um das Niveau des Luftpakets zu erreichen. Als erwartete Aufstiegs geschwindigkeit wurde dabei die Standardaufstiegsgeschwindigkeit von 5 m/s verwendet. Kurz vor dem vorausberechneten optimalen Startzeitpunkt wurde der Start noch einmal bestätigt und eine neue optimale Startzeit übermittelt, die dann auf den jüngsten Vorhersagen beruhte. Die zu diesem Zeitpunkt an die Station geschickte Nachricht wird hier 'Confirmation' genannt. In etwa 10% der Fälle mußten die Startvorbereitungen zu diesem Zeitpunkt abgebrochen werden, da die neuen Vorhersagen einen Start nicht mehr sinnvoll erscheinen ließen. Neben der optimalen Startzeit wurde noch ein Startfenster angegeben, welches der Station mitteilte, in welchem Zeitraum ein Start noch sinnvoll wäre, falls ein Start zu dem optimalen Startzeitpunkt ausnahmsweise nicht möglich sein sollte. Das Startfenster gibt den Zeitraum an, während dessen ein Start zu einer Messung in einer bestimmten Umgebung um das Luftpaket herum führen würde. Demzufolge hängt die Länge des Startfensters von der Entfernung der nächsten Annäherung des Luftpakets an die Station und von der Geschwindigkeit des Luftpakets ab. An typischen Tagen während der Hauptzeiten der Kampagnen wurden um 10 bis 15 Alerts und Confirmations ausgegeben.

5.4.2 Prozeduren zur Steuerung der Kampagne

Die Anzahl der überwachten Luftpakete und die pro Tag stattfindenden Annäherungen dieser Pakete an beteiligte Stationen macht es notwendig, daß das Auffinden dieser möglichen Matchereignisse vollständig automatisiert wird. Um die Kampagne handhabbar zu machen, müssen diese Ereignisse zusammen mit allen Parametern, die zu ihrer Beurteilung nötig sind, täglich automatisch in übersichtlichen Listen ausgegeben werden. Nur die darauf folgende Auswahl

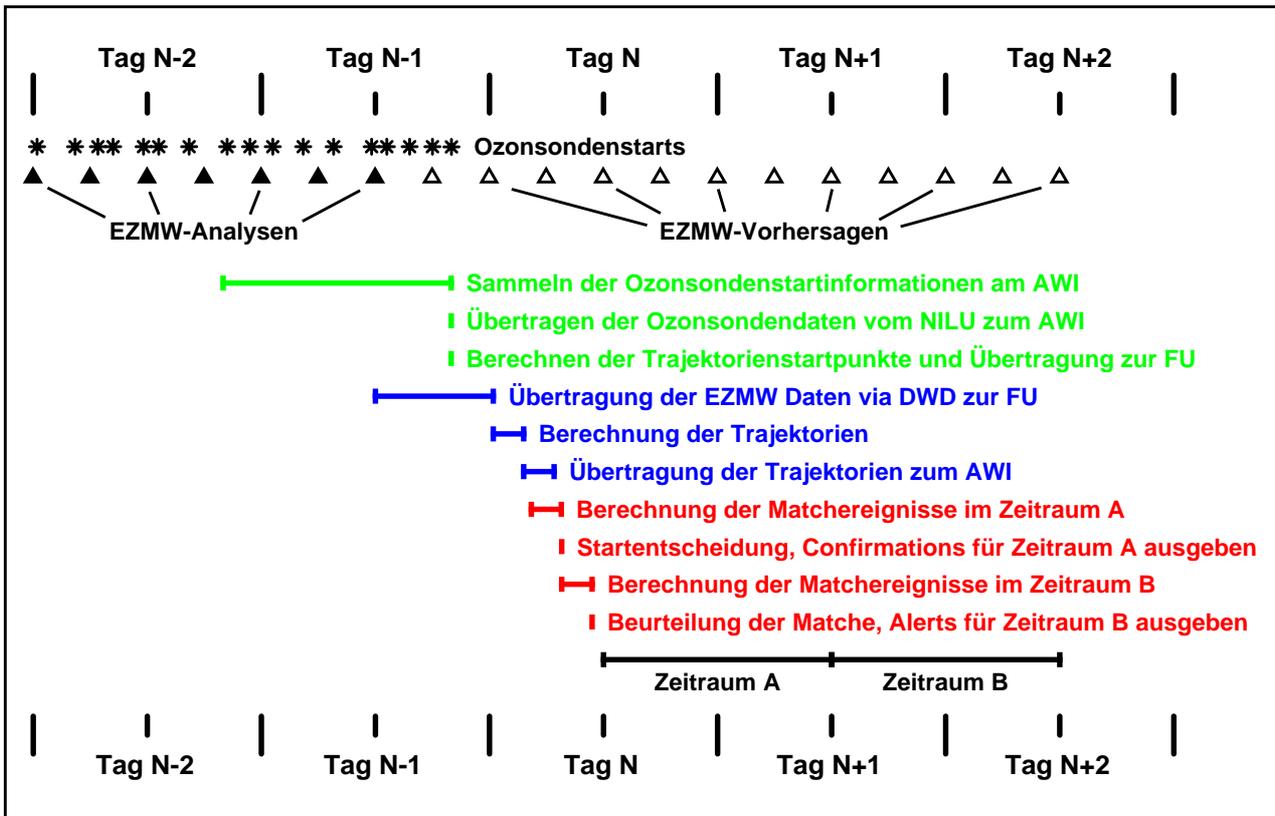


Abbildung 5.7: Zeitdiagramm des Kampagnenablaufs. Die horizontale Richtung stellt eine Zeitachse dar, wobei außer dem Kampagnentag N noch die beiden vorherigen und darauffolgenden Tage dargestellt sind. Die Sterne am oberen Bildrand geben die Ozone sondenstarts an, die am Tag N-1 um 23:00 UT bekannt waren. Die ausgefüllten Dreiecke geben die Zeitpunkte der EZMW Analysen an, auf denen die Trajektorienrechnungen des Tags N beruhen. Die hohlen Dreiecke geben analog die Zeitpunkte der EZMW Vorhersagen an. Die Zeiträume der einzelnen Koordinierungsschritte sind farbig eingezeichnet. Näheres siehe Text.

der tatsächlich zu startenden Sonden kann per Hand durchgeführt werden. Auch die anschließende Kommunikation mit den Stationen muß zur Vermeidung von Fehlern bei der Übermittlung der Startdaten und zur Zeitersparnis weitgehend automatisiert sein.

Abbildung 5.7 zeigt den zeitlichen Ablauf der Koordinierungsprozeduren, die zur Erstellung der Confirmations und Alerts am Kampagnentag N führen. Die dargestellten Schritte wurden täglich wiederholt und überlappen sich zum Teil mit den Prozeduren für die angrenzenden Tage, so daß im dargestellten Zeitraum auch weitere Prozeduren für Tag N-1 und N+1 usw. abliefen, die hier der Übersichtlichkeit halber weggelassen wurden. Aus dem Ablauf ergibt sich, daß jeder Tag, an dem die Prozeduren nicht gelaufen wären, zu zwei Tagen ohne Koordinierung führen würde, weshalb der Ablauf an Wochenenden und Feiertagen nicht unterbrochen wurde.

In der Abbildung 5.7 bezeichnet der Zeitraum B (12:00 UT am Tag N+1 bis 12:00 UT am Tag N+2) den Zeitraum für den am Tag N Alerts ausgegeben werden sollen. Zeitraum A ist der Zeitraum B des Vortags und bezeichnet den Zeitraum, in dem die Sondenmessungen liegen, für die

am Vortag Alerts ausgegeben wurden und für die am Tag N die Confirmations erstellt werden müssen. Dabei bezeichnen diese Zeiträume genaugenommen die Zeiträume der Sondenmessungen. Die dazugehörigen Sondenstarts müssen jeweils ca. eine Stunde früher erfolgen.

Die Arbeiten, die zur Bereitstellung der Trajektorienstartpunkte nötig sind, sind in Abbildung 5.7 grün dargestellt. Außer der täglichen Auswertung von Startmeldungen, die per Fax oder e-mail eintrafen, wurden diese Aufgaben von Routinen übernommen, die jeweils am späten Abend abliefen. Die Abläufe dieser Programme wurden von einer Steuerungsroutine untereinander koordiniert, deren Ausführung täglich um 23:00 Uhr MEZ automatisch startete. Das Berechnen der Trajektorienstartpunkte umfaßt dabei das Abholen der hinzugekommenen Ozonsondendaten vom NILU via Internet, die Integration der Aufstiegswege sowie die Verwaltung, welche Luftpakete noch in der Überwachung verbleiben. Als Abschluß dieser Prozeduren, wurden die Trajektorienstartpunkte via Internet zur FU gesandt.

Die blau dargestellten Arbeitsschritte dienen zur Berechnung der Trajektorien und wurden von der FU geleistet. Die Trajektorienrechnung startete jeweils sobald die EZMW Daten komplett bei der FU vorlagen, was nach automatischer Übertragung der Daten via DWD normalerweise gegen 3:00 Uhr UT der Fall war. Dann wurden die spektralen Daten zunächst auf Gitterpunkte umgesetzt und auf Θ Flächen interpoliert. Daraufhin begann die eigentliche Berechnung der Trajektorien. Nach Abschluß der Trajektorienrechnung begann automatisch eine Komprimierung der Trajektoriendaten und ihre Versendung zum AWI jeweils, sobald eine Trajektorie fertig komprimiert war. Die Übertragung der Trajektoriendaten begann meist gegen 6:00-7:00 UT und war im Regelfall gegen 7:30-8:30 UT beendet. Die Übertragung dieser täglich ca. 30 MByte über das Internet war besonders während der Kampagne 1994/95 eine der größten Unsicherheitsfaktoren, bei der es verhältnismäßig häufig zu Verzögerungen oder Abbrüchen kam. Es wurden für diese Fälle mehrere alternative Routen der Datenübertragung eingerichtet, über die die Übertragung bei auftretenden Problemen umgeleitet werden konnte. Dazu gehörten Umleitungen der Daten innerhalb des Internets und schließlich die Einrichtung einer ISDN Verbindung.

Für die eigentliche Koordinierung der Starts sind die rot dargestellten Schritte erforderlich. Die zeitlich dringendste Aufgabe ist dabei die Bestätigung der am Vortag herausgegebenen Alerts mit einer Neuberechneten optimalen Startzeit. Die Berechnungen dieses Teils wurden von einer Steuerungsroutine koordiniert, die täglich um 5:00 Uhr MEZ startete und zunächst eine Prozedur aufrief, die auf das Eintreffen von Trajektoriendatensätzen wartete. Sobald eine Trajektorie vollständig übertragen war, wurde sie automatisch dekomprimiert. Parallel dazu lief eine Routine ab, die auf fertig dekomprimierte Trajektorien wartete und diese jeweils sofort durchsuchte um Annäherungen an eine der beteiligten Stationen während des Zeitraums A festzustellen. Währenddessen lief die Übertragung und Dekomprimierung der restlichen Trajektorien weiter. Dieses ineinandergeschachtelte Vorgehen stellte sicher, daß mit der Berechnung der möglichen Match Ereignisse so früh wie möglich begonnen wurde. Um eine hinreichende Genauigkeit bei der Berechnung der Annäherungen zu erzielen, wurde dabei zunächst zwischen den stündlichen Positionsangaben im Trajektoriendatensatz auf eine Ausgabefrequenz von 1/10 Minuten in sphärischer Geometrie interpoliert. Für jede Station wurde während der Berechnung der minimalen Annäherung nur der Zeitraum berücksichtigt, in dem die jeweilige Station aufgrund ihrer Startbereitschaftszeiträume auch in der Lage war, eine Sonde in das entsprechende Niveau zu plazieren. Für alle gefundenen Annäherungen näher als 350 km wurde eine Reihe von Qualitätsmerkmalen berechnet (siehe unten). Nachdem alle Trajektorien durchsucht worden waren, wurde für die Stationen, die am Vortag ein Alert erhalten hatten, alle Annäherungen ausgege-

ben, die in zeitlicher Nähe zu dem im Alert genannten Zeitpunkt lagen. Durch die Ineinander-schachtelung waren diese Berechnungen bereits einige Minuten nach dem Eintreffen des letzten Trajektoriendatensatzes abgeschlossen.

Aus den möglichen Match Ereignissen wurde nun für jede am Vortag in Bereitschaft versetzte Station der Match herausgesucht, der nach Beurteilung seiner Qualitätsmerkmale am günstigsten erschien. Im Regelfall war dies genau der Match, für den das Alert vom Vortag ausgegeben worden war. Durch Verschiebungen bei den Qualitätsparametern erschien allerdings auch hin und wieder ein anderer Match günstiger und wurde statt des ursprünglichen ausgewählt. Dieses Auswahlverfahren wurde per Hand durchgeführt. Für die Auswahl stand meistens etwa eine Stunde zur Verfügung. Die Nummern der ausgewählten Matche wurden einer weiteren Routine übergeben, die die Confirmations erstellte und je nach Station per e-mail, Fax oder beidem übermittelte. Der in Abbildung 5.7 gezeigte zeitliche Ablauf des Koordinierungsapparates ist so eingerichtet, daß die Confirmations immer mindestens drei Stunden vor Beginn des Zeitraums A ausgegeben werden konnten, was zwei Stunden vor dem ersten möglichen Ozonsondenstart bedeutet. Dies läßt der Station genügend Zeit für die letzten Startvorbereitungen.

Anschließend wurde jede Trajektorie nach möglichen Match-Ereignissen im Zeitraum B durchsucht und alle Ereignisse sortiert nach zweiter Station zusammen mit ihren Qualitätsmerkmalen ausgegeben. Die Auswahl, für welche Station nun tatsächlich ein Alert ausgegeben wurde, erfolgte wiederum per Hand. Wie bei den Confirmations wurde danach die Kommunikation mit den Stationen wieder von einer Routine übernommen. Wie in Abbildung 5.7 dargestellt, erfolgte das Absenden der Alerts mindestens 24 Stunden vor Beginn des Zeitraums B.

Die zur Koordinierung der Kampagne notwendigen Routinen liefen größtenteils nachts automatisch ab und warteten jeweils aufeinander, bzw. waren ineinander verzahnt. Durch das große Volumen der zu behandelnden Inputdaten (Ozonsondendaten und EZMW Felder) und der notwendigen weiten Übertragung der Daten über Datennetze waren Fehler während der Abarbeitung der Routinen nicht immer auszuschließen. Der zeitliche Ablauf wie in Abbildung 5.7 gezeigt, ist notwendigerweise sehr eng gestaltet. Daher führten Fehler im Ablauf einer der beteiligten Routinen, wenn sie nicht rechtzeitig erkannt und behoben wurden, zu erheblichen Problemen, besonders bei der rechtzeitigen Versendung der Confirmations. Solche Probleme können leicht zur Verschwendung von Ozonsonden führen, die dann zu nicht optimalen Zeitpunkten gestartet werden, und haben auch auf die beteiligten Personen an den Stationen einen demotivierenden Effekt. Zudem kann allein die im Falle einer Verzögerung nötige Kommunikation mit den bis zu zwanzig Stationen, die dann auf die Bestätigung ihrer Ozonsondenstarts warten, die effektive Beseitigung des Fehlers noch weiter verzögern. Während besonders wichtiger Phasen der Kampagne und nach fehleranfälligen Änderungen in den Routinen wurde deswegen mit Hilfe der FU ein umschichtiger Überwachungsdienst während des Ablaufs der Routinen eingesetzt, um eventuelle Störungen bei der Abarbeitung der Routinen bereits zu beseitigen, bevor der Ablauf erheblich verzögert ist.

5.4.2.1 Nahe Echtzeit Trajektorienrechnungen während der Kampagne

Die für die Koordinierung benötigten Trajektorien wurden von dem Institut für Meteorologie der Freien Universität Berlin berechnet. Die Rechnungen beruhen auf den Temperatur- und Windfeldern des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (EZMW). Verwendet wurden die Analysedaten und die Vorhersagefelder bis zu den 72 Stunden Vorhersagen einschließlich. Die Trajektorien wurden quasi isentrop berechnet, was bedeutet, daß nur die Horizontalwinde der EZMW Daten benutzt wurden und die Trajektorien zunächst in isentropen

Flächen berechnet wurden. Zusätzlich wurde während jedes Integrationsschritts eine kleine diabatische Korrektur durchgeführt, die die Änderung der potentiellen Temperatur durch Strahlungsaustausch berücksichtigt. Die solare Erwärmung wurde während der Kampagne nach Lacis und Hansen [1974], abgeschätzt. Der Nettoeffekt des infraroten Strahlungsstransports wurde mittels des ‘Newtonian cooling’ Ansatzes parametrisiert [Dickinson, 1973]. Diese Parametrisierung verwendet ausschließlich die lokale Temperatur und eignet sich deswegen besonders gut für die Verwendung während der Kampagne, wo es auf schnelle Berechnung und leichte Handhabbarkeit ankommt. Die Qualität der so gewonnenen Abschätzung der diabatischen Effekte wird in Abschnitt 5.5.1 behandelt.

Während der Kampagne wurden Trajektorien auf neun Niveaus (440, 450, 460; 465, 475, 485; 540, 550, 560 K) gerechnet. Die Niveaus sind in drei Dreiergruppen gegliedert, die bei einer späteren Auswertung jeweils gemeinsam analysiert werden können. Die Verwendung von jeweils drei Niveaus nahe beieinander stellt eine hohe Anzahl von Matches in diesem Bereich sicher und erhöht die Wahrscheinlichkeit, auch bei ungünstigem Kampagnenverlauf zumindest in diesen Schichten signifikante Ergebnisse zu erzielen. Wegen der hohen Kosten einer Kampagne und der großen Anzahl mit erheblichem Aufwand beteiligter Gruppen, ist es besonders wichtig, die Kampagne robust zu planen und damit das Zustandekommen von verwertbaren Ergebnissen zumindest in Teilbereichen sicherzustellen.

Während der Match 1994/95 Kampagne wurden von der FU insgesamt etwa 600 000 Trajektorien mit einem Datenvolumen von etwa 2 GByte nahe Echtzeit berechnet.

5.4.2.2 Auswahlkriterien für die Beurteilung von möglichen Match-Ereignissen

In diesem Abschnitt wird ein Überblick über die Kriterien gegeben, nach denen entschieden wurde, für welches mögliche Match-Ereignis tatsächlich eine Sonde eingesetzt wurde. Die Kriterien wurden während der Kampagne laufend durch die Analyse der statistischen Fehler der ersten vorläufigen Ergebnisse optimiert, weshalb an dieser Stelle nur eine ungefähre Beschreibung gegeben werden kann, welche Größen bei der Entscheidung berücksichtigt wurden. Das Verfahren, wie aus der Analyse der statistischen Fehler die Auswahlkriterien optimiert wurden, und eine genaue Definition der letztlich zur Auswertung verwendeten Kriterien werden in Abschnitt 5.5.3 gegeben.

Bei der Koordinierung der Kampagne wurden nur Matche berücksichtigt, bei denen der minimal zu erzielende Abstand des Luftpakets von einer möglichen Sondenmessung weniger als 350 km betrug. Dieser Wert ist deutlich kleiner, als der maximale Matchradius, der in der letztlichen Datenanalyse verwendet wurde. Dadurch wurde die Wahrscheinlichkeit erhöht, daß der Match letztlich erfolgreich ist, auch wenn der Vorhersageanteil der Trajektorie noch mit dem Vorhersagefehler behaftet ist. Die Grenze von 350 km beruht auf dem bei der Analyse der EASOE-Daten gefundenen maximal erlaubtem Matchradius von etwa 500 km [Rex, 1993].

Außer diesem offensichtlichen Kriterium wurden noch weitere Qualitätsmerkmale eines möglichen Match Ereignisses berechnet und bei der Auswahl berücksichtigt. Wie in Abbildung 5.8 zu erkennen, wurde in jedem untersuchten Niveau eine Gruppe von Trajektorien mit etwas unterschiedlichen Startpunkten berechnet, die in den Eckpunkten eines Oktaeders liegen. Die zentrale Trajektorie startet an dem Punkt, an dem die Sonde das entsprechende Niveau passiert hat. Vier weitere Trajektorien wurden 100 km nördlich, westlich, südlich und östlich von der zentralen Trajektorie gestartet. In der Abbildung schlecht sichtbar sind zwei weitere Trajektorien, die jeweils 5 K unter und über der zentralen Trajektorie gestartet wurden. In Fällen, in dem die

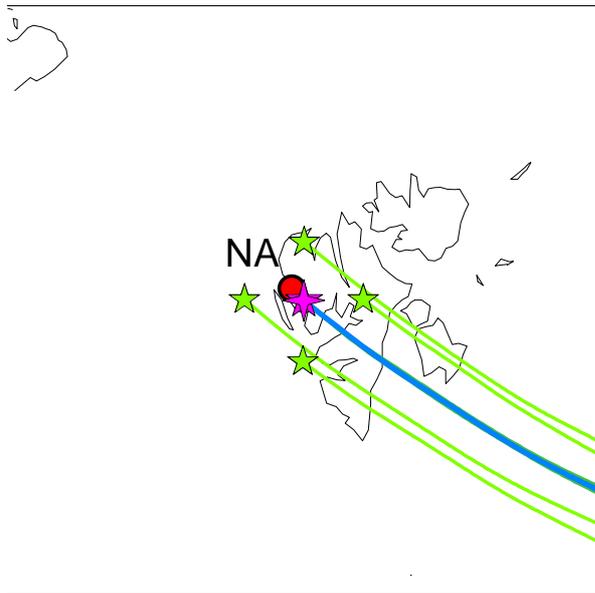


Abbildung 5.8: Start eines Trajektorienschwarms im 475 K Level ausgelöst durch die Ozonsonde, die am 23. Dezember 1994 in Ny-Ålesund (rot eingezeichnet) gestartet wurde. Die Sonde erreichte das 475 K Niveau um 21:36 UT. Der violette Stern markiert den Ort der Ozonsonde zu diesem Zeitpunkt, wie er sich aus der Integration des Windes entlang des Aufstiegspfads bis dahin ergeben hat. An diesem Ort wird die zentrale Trajektorie des Trajektorienschwarms gestartet, welche hier blau eingezeichnet ist. Vier weitere Trajektorien (grün) wurden jeweils um 100 km in die vier Himmelsrichtungen versetzt gestartet. Weitere zwei Trajektorien wurden im 470 und 480 K Niveau am gleichen Ort wie die zentrale Trajektorie ausgelöst. Diese werden hier weitgehend durch die zentrale Trajektorie verdeckt und werden nur am rechten Bildrand als grüner Rand neben der zentralen Trajektorie sichtbar.

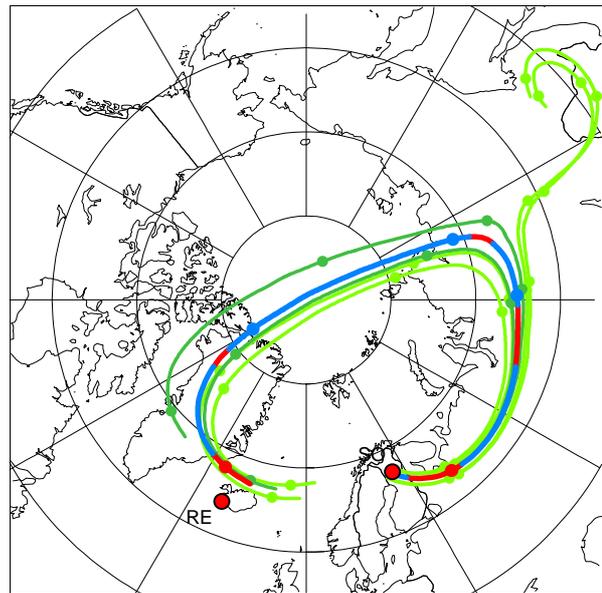


Abbildung 5.9: Beispiel eines Trajektoreinschwarms, bei dem die Trajektorien nach ca. 36 Stunden in völlig verschiedene Richtungen laufen. Die zentrale Trajektorie ist wie in Abbildung 5.1 blau/rot, die restlichen Trajektorien des Schwarms sind grün dargestellt. Die Punktmarkierungen auf den Trajektorien geben den Ort der Luftpakete jeweils um 12:00 UT an.

Trajektoriengruppe schnell auseinanderdriftet (ein extremes Beispiel zeigt Abbildung 5.9) wird die Luftmasse nicht als Einheit erhalten bleiben (oder anders ausgedrückt, es kommt zu großen Austauschprozessen über die Oberfläche des in [Rex 1993] definierten Luftpakets) und die Trajektorien sind mit einer großen Ungenauigkeit behaftet. Als Maß für das Auseinanderdriften wird der Abstand der Trajektorien der Gruppe von der zentralen Trajektorie zum fraglichen Zeitpunkt verwendet. Grenzwerte für den maximal erlaubten Abstand wurden während der Kampagne gewonnen, indem die Änderung der statistischen Fehler der ersten vorläufigen Ergebnisse bei einer Änderung der erlaubten Abstände analysiert wurden.

Die Änderung der potentiellen Vorticity entlang der zentralen Trajektorie wurde als Indikator für fehlerbehaftete Trajektorien oder für Situationen mit starken diabatischen Prozessen oder subskaligen Strukturen im Windfeld verwendet. Eine Grenze für die erlaubte PV-Änderung wurde wiederum durch Analyse der ersten Ergebnisse während der Kampagne gefunden. Die Erfahrung der EASOE-Auswertung konnte hier nicht genutzt werden, da durch eine Verbesserung der Datenassimilation beim EZMW (Übergang auf vierdimensionale Variationsanalyse) die PV Werte seit EASOE deutlich stabiler geworden sind.

Es wurde der vertikale Ozongradient im Ozonprofil der ersten Sonde verwendet, um den statistischen Fehler abzuschätzen, der aufgrund der Unsicherheit in der Bestimmung der vertikalen Position von Ozonsonde und Luftpaket zustandekommt. Der Grenzwert für den Gradienten wurde basierend auf der EASOE-Erfahrung während der Kampagne optimiert.

Außerdem wurde noch die Gesamtzeit zwischen den beiden Ozonsondenmessungen und die Zeit, die das Luftpaket zwischen den Messungen in der Sonne verbracht hat (Details zur Berechnung dieser Zeit siehe im Abschnitt 6.4) berücksichtigt. Basierend auf der EASOE Erfahrung wurden Matche mit einem zeitlichen Abstand zwischen den beiden Ozonsondenmessungen von 100 bis 200 Stunden bevorzugt. Bei dem prozentualen Anteil der Sonnenzeit an der Flugzeit wurde auf eine breite Streubreite geachtet, um genauere Ergebnisse von multivariaten Regressionen (siehe Abschnitt 7.6) zu ermöglichen.

Neben diesen geophysikalisch begründeten Kriterien wurde noch eine Reihe Umstände eher technischer Art beachtet:

Teilweise ergab sich die Möglichkeit, mit einem Start zu einem bestimmten Zeitpunkt mit einer Sonde mehrere Matche in unterschiedlichen Niveaus zu erzielen. Nach Möglichkeit wurde durch die Wahl des Startzeitpunkts die Anzahl der mit dieser Sonde beabsichtigten Matche maximiert. Dabei wurden Matche, die mit der selben ersten Sonde auf den verschiedenen Niveaus einer Dreiergruppe stattfanden, nur jeweils einmal berücksichtigt.

Die Anzahl der Ozonsonden, die an der jeweiligen Station noch vorhanden waren, mußte ständig beachtet werden, um ein frühzeitiges Ausscheiden einzelner Stationen wegen Sondenmanagements zu vermeiden. Um sicherzustellen, daß der Match-Koordinierung der Stand des Ozonsondenvorrats an den einzelnen Stationen immer korrekt vorlag, meldeten die Stationen nach jedem Start den jeweils noch verbliebenen Vorrat an Sonden. Eine auf der Zählung der Sondenstarts beruhende zentrale Buchführung des Sondenvorrats der einzelnen Stationen würde schnell von der Realität abweichen, da Sonden bei der Präparation wegen Defekten verworfen werden können und andererseits der Vorrat einzelner Stationen durch geborgene, wiederverwendbare Sonden wieder wachsen kann.

Auch die Arbeitsbelastung der Personen an den Stationen speziell die Belastung mit nächtlichen Starts durfte nicht außer acht gelassen werden. Bei einer Überbeanspruchung der Teilnehmer an der Kampagne besteht verständlicherweise die Gefahr, daß die Startzeiten nicht exakt eingehalten werden und die Sorgfalt bei der Sondenvorbereitung leidet. Hier erwies es sich als sehr vorteilhaft, neben den ständigen automatisierten Kontakten zur Datenübertragung auch hin und wieder in persönlichen Kontakt mit den Stationen zu treten, um die Stimmung vor Ort besser einschätzen zu können.

5.4.3 Beispiel für das Zustandekommen eines Matches

In diesem Abschnitt wird das Zustandekommen eines Matches an einem Beispiel zusammenfassend von Anfang an beschrieben.

Am 24.1.1995 wurde in Aberystwyth (AB, Wales) eine Ozonsonde gestartet und deren Daten in die zentrale Datenbank gemeldet. Die von dieser Sonde beprobten Luftmassen wurden ab dem 25.1. in die Match-Überwachung genommen. Am 27.1. wurde vorhergesagt, daß das von der Aberystwyth Sonde in 485 K beprobte Luftpaket sich am 29.1. so an die Station Jokionen (JO, Finnland) annähern würde, daß der Abstand zu einer um 7:40 UT dort gestarteten Sonde mit 197 km minimal würde. Aufgrund seiner günstigen Parameter (siehe Abbildung 5.10) wur-


```

From mrex Fri Jan 27 13:35:21 1995
To: esko.kyro@fmi.fi, markku.rummukainen@fmi.fi
Subject: MATCH alert (Jokionen)

*****
**                                                                 **
**              MATCH Ozone Sonde Alert                          **
**                                                                 **
*****

From:      Markus Rex, Peter v.d. Gathen
           match@awi-potsdam.de
Date:      Jan 27

To Station: Jokionen

Dear Esko + Markku,

we recommend to launch an ozonesonde at Jokionen on Jan 29 at 07:40 UT.
Tomorrow morning until 10:00 UT we will send you a confirmation for
this match and an updated optimal launch time together with a launch
window.
Hopefully this sonde will make a good match in the 485 K potential temperature
level with an ozonesonde launched at Aberystwyth on Jan 24. The predicted
matchradius is 196 km.
With best regards

Markus Rex
    
```

Abbildung 5.11: Alert Message, die am 27. Januar 1995 per e-mail nach Jokionen gesandt wurde.

de dieses mögliche Match-Ereignis ausgewählt und ein Alert an Jokionen geschickt (siehe Abbildung 5.11). In Jokionen wurde daraufhin eine Ozonsonde für einen Start zu dem angegebenen Zeitpunkt vorbereitet. Mit den neuen Vorhersagen des 28.1. bestätigten sich die günstigen Parameter dieses möglichen Match-Ereignisses sowie der optimale Startzeitpunkt und es wurde eine Confirmation nach Jokionen gesandt (siehe Abbildung 5.12). Daraufhin wurde in Jokionen am 29.1. um 7:45 UT eine Sonde gestartet, die um 8:46 UT in 155 km Abstand von der zentralen Trajektorie des zuvor in Aberystwyth beprobten Luftpakets eine Ozonmessung durchführte. Eine Übersicht über den erfolgreichen Match und die beiden Ozonsondenmessungen ist in Abbildung 5.13. gegeben.

5.5 Prozeduren zur Datenauswertung nach der Match-Kampagne

Schon während der Kampagne kann mit den für die Koordinierung berechneten Trajektorien eine grobe Auswertung der Daten vorgenommen werden. Die Ergebnisse dieser Vorauswertung dienen zum einen dazu, die Auswahlkriterien (Abschnitt 5.4.2.2) für mögliche Match-Ereignisse ständig zu verbessern und zum anderen, um bereits während des Winters eine aktuelle Einschätzung des Ozonverlustes geben zu können. Auch für die Bereitschaft der Stationen, sich einer nachfolgenden Kampagne anzuschließen ist eine schnelle Präsentation von Ergebnissen wichtig. Da die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse jedoch auf einer gesonderten Auswertung mit nach der Kampagne neu berechneten Trajektorien beruhen, soll auf das Vorgehen bei der vorläufigen Auswertung hier nicht weiter eingegangen werden.

Die Nachauswertung verlief in drei Schritten: Zunächst wurde ein wesentlich umfangreicherer Satz von Trajektorien berechnet, der sich in einigen wesentlichen Punkten von dem während der Kampagne benutzten unterscheidet. Die Neuberechnung der Trajektorien sowie dazu nötige weitere Arbeiten werden im folgenden Abschnitt 5.5.1 beschrieben. Danach wurden die Matchdaten mit diesem Trajektoriensatz exakter als während der Kampagne bestimmt; das Vorgehen

```
From mrex Sat Jan 28 8:51:12 1995
To: esko.kyro@fmi.fi, markku.rummukainen@fmi.fi
Subject: MATCH confirmation (Jokionen)

*****
**
**                      MATCH Confirmation Message                      **
**
*****

From:      Markus Rex, Peter v.d. Gathen
           match@awi-potsdam.de
Date:      Jan 28

To Station: Jokionen

Dear Esko + Markku,

our recommendation for an ozonesonde launch from yesterday is confirmed
now. The best launch time is Jan 29 at 07:40 UT. The launch window is
05:40-09:50 UT.
This sonde will make a good match in the 485 K potential temperature
level with an ozonesonde launched at Aberystwyth on Jan 24. The predicted
matchradius is 23 km.
Please put the data from the ozonesonde on zardoz at NILU soon after the
sounding and update the file containing the numbers of ozonesondes you have
left in Jokionen.

We will inform you about the success of this match.
Good luck !

Markus Rex
```

Abbildung 5.12: Confirmation Message, die am 28. Januar 1995 nach Jokionen gesandt wurde

wird in Abschnitt 5.5.2 erläutert. Vor der Berechnung von Ozonverlusten aus diesem Datensatz wurde er anhand einiger Auswahlkriterien gefiltert, um die statistischen Fehler der Analyse klein zu halten. Diese Kriterien und die Methode, die verwendet wurde, um jeweilige Grenzwerte der Auswahlkriterien festzulegen, werden im Abschnitt 5.5.3 beschrieben.

5.5.1 Trajektorienrechnungen zur Datenauswertung

Nach Abschluß der Kampagne wurde ein neuer Satz Trajektorien zur Auswertung der Daten erstellt. Die Unterschiede dieses Trajektoriensatzes zu den Trajektorien, die zur Koordinierung verwendet worden waren, sind:

- Alle bisher verwendeten Vorhersagedaten wurden durch Analysedaten des EZMW ersetzt.
- Die Trajektoriengruppen wurden entlang des Aufstiegspfads der Sonden in 65 Niveaus in 5 K Abstand zwischen 340 K und 660 K initialisiert.
- Auch die Abdrift der Sonden, die keine Winddaten gemessen haben, wurde berücksichtigt (siehe Abschnitt 5.5.1.1).
- Es wurde eine diabatische Korrektur der Trajektorien verwendet, die auf einer vollständigen Strahlungstransportrechnung beruht (siehe Abschnitt 5.5.1.2).

5.5.1.1 Abdrift der Sonden

Die Ozonsonden driften während ihres Aufstiegs in guter Näherung trägheitsfrei mit der atmosphärischen Strömung mit. Der Pfad während des Aufstiegs kann also aus einer Integration der Horizontalwinde gewonnen werden. Viele Sonden messen ihre horizontale Position während des Aufstiegs mit Hilfe der OMEGA Navigation (Abschnitt 5.1.1) und leiten bei der Auswer-

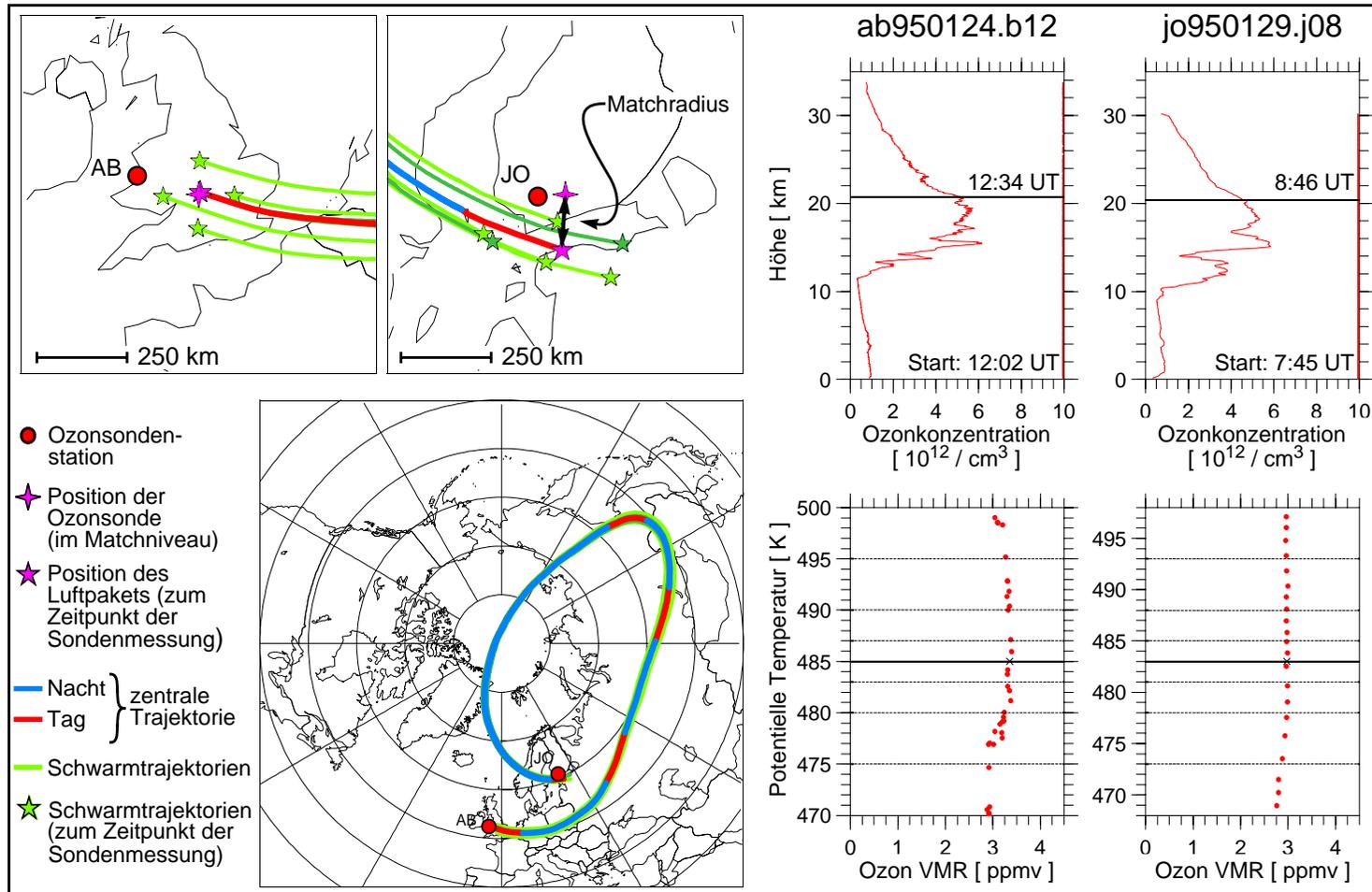


Abbildung 5.13: Überblick über den Match zwischen der Sonde ab950124.b12 und jo950129.j08. Das linke untere Bild zeigt den Verlauf des Trajektorienchwarms, der in 485K am Ort von ab950124.b12 gestartet wurde. Die beiden Vergrößerungen links oben geben die Situation des Trajektorienchwarms während beider Sondenmessungen an. Der Ausschnitt, welcher die Situation am Ort der zweiten Sonde zeigt, verdeutlicht die Definition des Matchradius. Rechts sind die Ozonprofile, wie sie von den beiden Sonden gemessen wurden, dargestellt. Die beiden oberen Grafiken zeigen einen Überblick über das ganze Profil in den anschaulichen Einheiten geometrische Höhe gegen Ozonkonzentration. In diesen beiden Grafiken sind die Zeiten der Sondenstarts und die der Sondenmessungen im Matchniveau angegeben. Die Höhe des Matchniveaus ist durch die horizontale Linie angedeutet. Die beiden unteren Bilder rechts zeigen Vergrößerungen der Ozonprofile (als einzelne Meßpunkte) in der Nähe des Matchniveaus in den Einheiten potentielle Temperatur gegen Mischungsverhältnis. Das Matchniveau (durgezogene Linie) und die 2K, 5K und 10K Umgebungen (gestrichelte Linien) liegt wegen der diabatischen Abkühlung der Luftmasse zwischen beiden Messungen bei der zweiten Sonde etwas tiefer. Ein kleines schwarzes Kreuz deutet jeweils das zwischen den Punkten des Profils auf das Matchniveau interpolierte Ozonmischungsverhältnis an. Die Differenz zwischen diesen beiden Ozonmischungsverhältnissen ist ein Meßpunkt für den chemischen Ozonabbau. Für die Auswertung der Winter wurden jeweils viele hundert solcher Ereignisse verwendet.

tung der Sondierung routinemäßig den Wind entlang des Aufstiegspfads daraus ab. Diese Winddaten werden dann im Datensatz der Sonde zur Verfügung gestellt. Die Windmessung wurde von etwa 70% der Sonden durchgeführt. Bei diesen Sonden kann der Aufstiegspfad einfach durch Integration der von den Sonden bereitgestellten Winddaten wieder rekonstruiert werden. Dabei wurde der Ort der Sonde zu jedem Meßpunkt aus dem Ort am letzten Meßpunkt plus dem Produkt des Windvektors des letzten Meßpunktes und der Zeit zwischen beiden Meßpunkten gewonnen. Da die Zeitspanne zwischen zwei Meßpunkten im Sekundenbereich liegt, konnte auf eine Interpolation des Windvektors zwischen den Punkten verzichtet werden. Die Berechnung erfolgte in geographischen Koordinaten in sphärischer Geometrie, so daß der Aufstiegspfad der Sonde sofort in geographischen Koordinaten vorlag und auf eine sonst notwendige doppelte Kartenprojektion (zunächst die Projektion der Umgebung der Ozonsonde auf ein kartesisches System und nach der Integration des Aufstiegspfades die Rückprojektion dieses Systems in geographische Koordinaten) verzichtet werden konnte. Abbildung 5.14 zeigt für drei verschiedene Niveaus die Verteilung der Entfernungen vom Startort (gefüllte Balken), die die Sonden in den jeweiligen Niveaus erreicht hatten. Dabei treten ab 475 K Entfernungen über 200 km auf. Typische Driftentfernungen sind jedoch in diesen Höhen 30 bis 100 km.

Bei ca. 30% der Sonden standen keine von der Sonde gemessenen Winde zur Verfügung oder diese waren durch Datenausfälle der OMEGA Navigation zu spärlich, als daß der Aufstiegspfad aus ihnen hätte rekonstruiert werden können. Bei diesen Sonden wurde der Aufstiegspfad mit Hilfe der EZMW Windfelder abgeschätzt. Da diese Felder aber eine wesentlich schlechtere Höhenauflösung haben (Flächen auf 850, 700, 500, 400, 300, 200, 150, 100, 70, 50, 30 hPa), sind dabei größere Fehler bei der Berechnung möglich. Das gilt vor allem im Bereich des Polar Night Jets, in dem erhebliche vertikale Windgradienten vorkommen. Aus den beiden jeweils zeitlich benachbarten EZMW Analysezeitpunkten wurde durch 4-dimensionale lineare Interpolation im EZMW Gitter der Windvektor zu jedem Meßpunkt der Ozonsonde ausgelesen. Aus diesen Windvektoren wurde dann der Aufstiegspfad der Sonde wie oben beschrieben integriert. Um die Fehler, die mit diesem Verfahren verbunden sind, abschätzen zu können, wurde der Aufstiegspfad auch für die Sonden, die selbst Windmessungen durchgeführt haben, aus den EZMW Analysen bestimmt. Die in den einzelnen Niveaus aufgetretenen Abweichungen dieses 'EZMW Aufstiegspfades' gegenüber dem genaueren Aufstiegspfad aus Sondenwinden sind zusätzlich als nicht ausgefüllte Balken in Abbildung 5.14 eingetragen. Würden für Sonden ohne eigene Winddaten einfach senkrechte Aufstiege angenommen, würde der mittlere Fehler in der Positionsbestimmung sich genauso verhalten, wie die mittlere Abdrift (ausgefüllte Balken). Der Vergleich macht offensichtlich, daß durch die Abschätzung mit EZMW Winden die Position der Sonde wesentlich besser bestimmt wird, als mit der Annahme senkrechter Aufstiege. In fast 90% der Fälle ist der Fehler in der Position sogar kleiner als 20 km, wenn EZMW Winde verwendet werden.

5.5.1.2 Korrektur Diabatischer Effekte

Für die Nachberechnung der Trajektorien wurden diabatische Erwärmungsraten ($d\Theta/dt$) verwendet, die mit dem MIDRAD Strahlungstransportmodell [Shine, 1987; Shine und Rickaby, 1989] innerhalb des SLIMCAT CTM berechnet wurden. Die SLIMCAT CTM Läufe wurden mit EZMW Winden und Temperaturen angetrieben. Für die Strahlungstransportrechnungen wurden klimatologische Ozonprofile verwendet. Die Nettoraten der diabatischen Erwärmung wurden alle sechs Stunden auf sechs stratosphärischen Niveaus (380, 400, 435, 475, 510 und 550 K) auf einem T42 Gitter aus den Modellläufen extrahiert. Mit der zeitlichen Abtastung wird der Tagesgang von $d\Theta/dt$ gerade noch erfaßt. Information über die Form des Tagesgangs ist

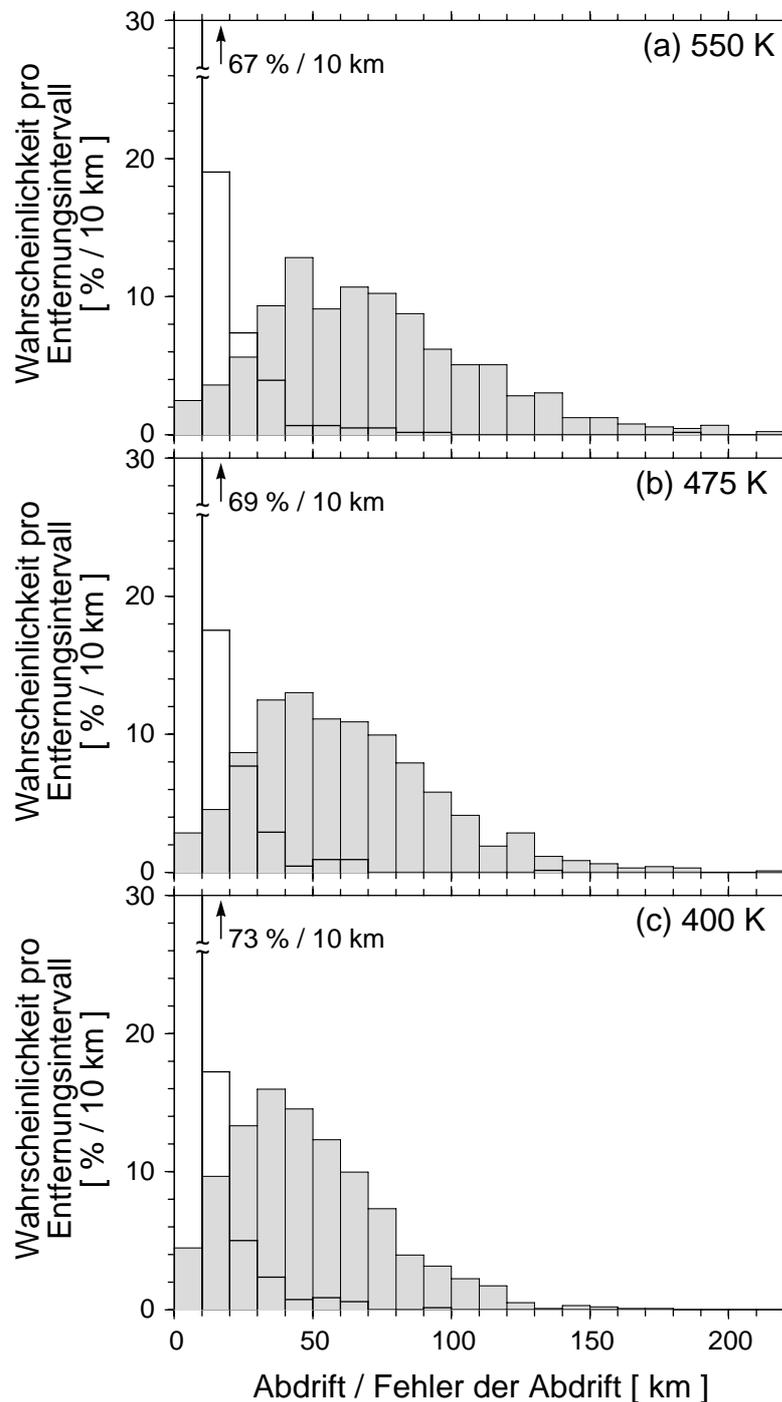


Abbildung 5.14: Ausgefüllte Balken: Mittlere Abdrift der Sonden während des Aufstiegs auf drei isentropen Niveaus. Die Höhe der Balken gibt an, welcher Anteil der Sonden in dem entsprechenden Niveau eine vom jeweiligen Intervall auf der x-Achse angegebene Entfernung vom Startort hatte. Durchsichtige Balken: Abweichung des aus EZMW Winddaten berechneten Aufstiegspfads vom Aufstiegspfad, der sich aus den von der Sonde gemessenen Winden ergibt. Die Differenz ist wie oben geschildert aufgetragen. Für die Abbildung wurden etwa 700 Sonden verwendet, deren Winddaten vollständig im Datensatz vorhanden waren.

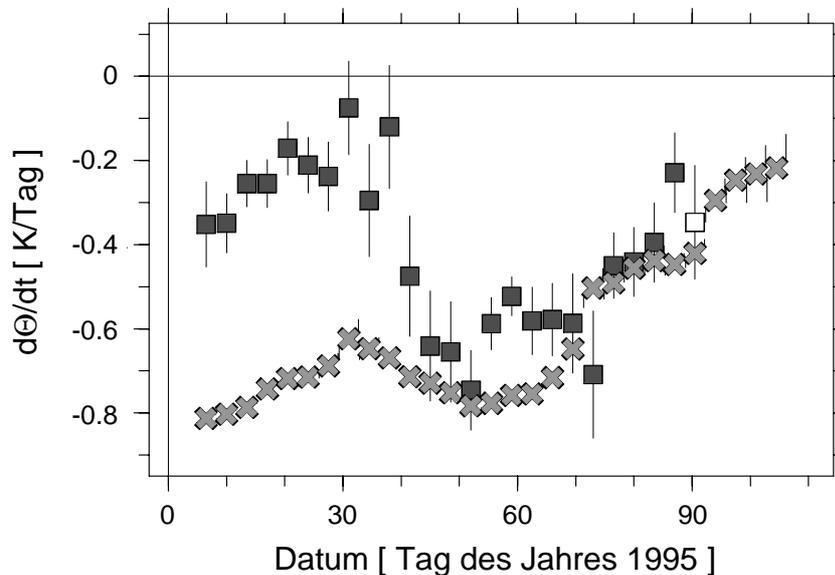


Abbildung 5.15: Entlang der Trajektorien gemittelte diabatische Erwärmungsraten. Die Quadrate geben die mittleren Raten an, die sich aus der während der Kampagne benutzten Abschätzung ergeben, die Kreuze zeigen die Ergebnisse von SLIMCAT (siehe Text).

nicht mehr enthalten. Bei der Berechnung der Trajektorien wurde nun während jedes Integrations-schrittes durch vierdimensionale Interpolation die diabatische Erwärmungsrate am jeweiligen Ort der Trajektorie ausgelesen und zur Korrektur der vertikalen Position der Trajektorie verwendet.

Da die diabatischen Effekte im polaren Winter im Mittel eine diabatische Abkühlung darstellen, ist die Bezeichnung als diabatische Erwärmungsrate etwas irreführend. Sie soll hier dennoch der ebenfalls verbreiteten Bezeichnung als diabatische Abkühlungsrate vorgezogen werden, da ansonsten konsequenterweise auch das Vorzeichen der Rate komplementär zu der Größe $d\Theta/dt$ definiert werden müßte.

Zunächst ist in Abbildung 5.15 dargestellt, wie sich die wesentlich genauere Berechnung von SLIMCAT von den groben Abschätzungen für $d\Theta/dt$ unterscheidet, die während der Kampagne benutzt wurde. Es wird deutlich, daß die Fehler der Abschätzung phasenweise recht erheblich sind. Dies war 1995 vor allem während des Januars der Fall. Die spätere Diskussion der meteorologischen Situation des Winters zeigt, daß sich während dieser Periode eine Stratosphären-erwärmung von oben nach unten durchsetzte, was mit einer kräftigen Abweichung vom mittleren Temperaturprofil einherging. Dies führt zu erheblichen Anomalien im Strahlungstransport, die von der Abschätzung nicht erfaßt werden, da diese nur die lokalen Temperaturen berücksichtigt.

Die von SLIMCAT gelieferten diabatischen Erwärmungsraten sind gemittelt in guter Übereinstimmung mit anderen Berechnungen von Strahlungstransportmodellen [Valero et al., 1993; Rosenfield et al., 1994] und mit dem beobachteten mittleren Absinken von Flächen gleicher N_2O -Konzentration [Strahan et al., 1994].

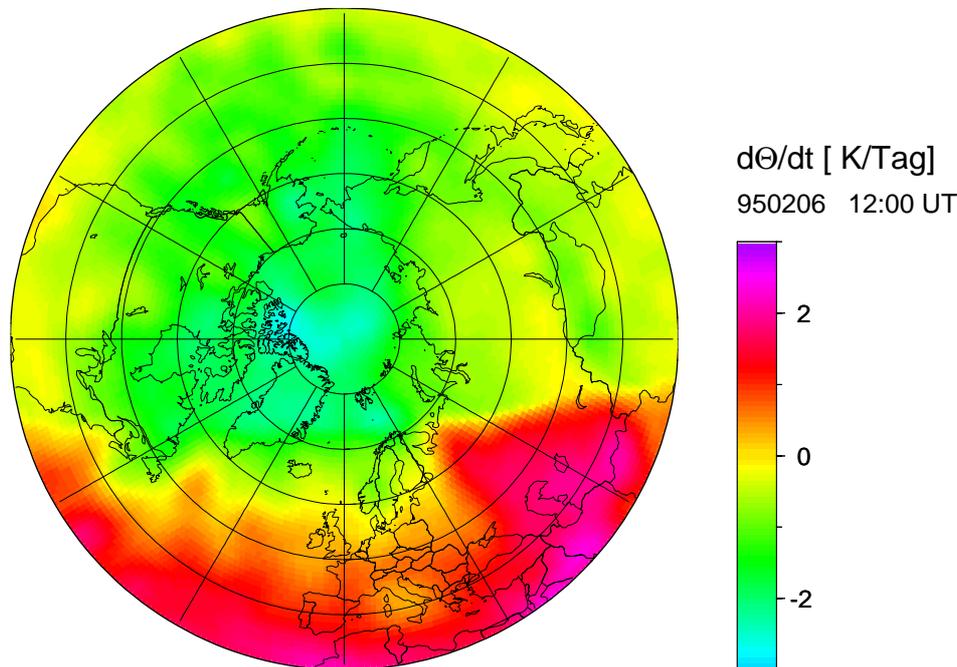


Abbildung 5.16: Karte der diabatischen Erwärmungsraten am 6. Februar 1995 auf dem 475 K Niveau, wie sie von SLIMCAT berechnet wurden. Der Kartenausschnitt reicht bis 30°N, der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Daten von M. Chipperfield.

Abbildung 5.16 zeigt beispielhaft für den 6.2.1995 die Verteilung der diabatischen Erwärmungsraten auf der 475 K Isentrope um 12:00 UT. Deutlich ist die Erwärmung als positive Rate im Bereich des Sonnenlichts zu erkennen. Ein Höhen-/Zeitschnitt von $d\Theta/dt$ an einem Ort im Zeitraum 24. bis 29. Januar 1995 ist in Abbildung 5.17 gegeben. Oberhalb von ca. 450 K wird der ausgeprägte Tagesgang deutlich. Die Erwärmung tagsüber erreicht ein durch die Ozonabsorption verursachtes Maximum um 475 K, während die Abkühlung während der Nacht deutlich nach oben hin zunimmt.

5.5.2 Berechnung der Matche

Nach der Neuberechnung der Trajektorien wurde der gesamte Trajektorien Datensatz nach aufgetretenen Matchen durchsucht. Dazu wurde der Abstand jeder zentralen Trajektorie von allen während des Zeitraums der Trajektorie im Niveau der Trajektorie stattgefundenen Ozonsondenmessungen berechnet. Der Ort des Luftpaketes zum jeweiligen Zeitpunkt der Sondenmessung wurde dazu jeweils durch eine Interpolation in sphärischer Geometrie zwischen den beiden zeitlich nächstliegenden Punkten des Trajektorien Datensatzes bestimmt. Für die Bestimmung der Orte und Zeiten der Ozonsondenmessungen im jeweiligen Niveau der Trajektorie wurde die Abdrift und die Aufstiegszeit der Sonde berücksichtigt. Der Abstand zwischen der Position des Luftpaketes zur Zeit der Ozonsondenmessung und dem Ort der Ozonsondenmessung im Niveau der Trajektorie wurde wiederum in sphärischer Geometrie bestimmt. Dieser Abstand wird hier Matchradius genannt (siehe auch Abbildung 5.13). Tatsächlich wurde allerdings, um eine ökonomischere Berechnung zu ermöglichen, der Matchradius für alle Fälle zunächst gröber be-

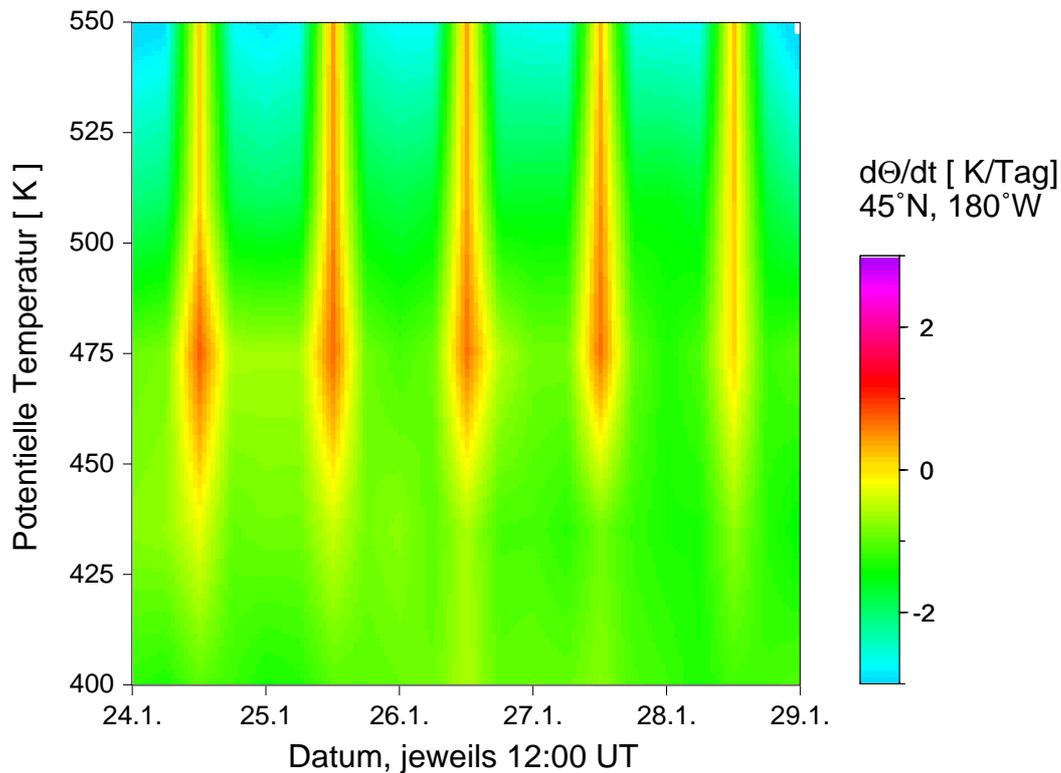


Abbildung 5.17: Höhen-/Zeitschnitt der von SLIMCAT berechneten diabatischen Erwärmungsraten im Bereich von 400 bis 550 K vom 24. bis zum 29. Januar 1995 bei 45°N, 180°W. Daten von M. Chipperfield.

stimmt (unter Verwendung von Sondenpositionen in bestimmten vordefinierten Standardniveaus und einiger weiterer Vereinfachungen). Nur für die Fälle mit einem vorläufigen Matchradius unter bestimmten Grenzen wurde dieser, wie oben beschrieben, exakt bestimmt.

Für alle Ereignisse mit einem abgeschätzten Matchradius unter 1000 km wurden folgende Merkmale berechnet und zur weiteren Auswertung verwendet:

- *Ozonmischungsverhältnisse beider Sonden (XO_3^A , XO_3^B):* Linear interpolierte Ozonmischungsverhältnisse beider Ozonsonden. Es wurde dabei zwischen den beiden dem aktuellen Niveau der Trajektorie benachbarten Meßpunkten der Ozonsonden interpoliert. Da die Trajektorie im Laufe der Zeit durch die diabatische Kühlung im Mittel etwas absinkt, ist das Niveau, dessen Ozonmischungsverhältnis bestimmt wird, bei der zweiten Sonde in der Regel etwas niedriger.
- *Flugzeit (t):* Gesamte Zeitspanne zwischen den beiden Ozonsondenmessungen
- *Sonnenzeit (t_s):* Entlang der Trajektorie aufintegrierte Zeit, die das Luftpaket zwischen den beiden Ozonsondenmessungen in der Sonne verbracht hat. Dabei wird als Kriterium zur Definition von t_s die geometrische Sichtbarkeit des Sonnenmittelpunkts vom Ort des Luftpakets aus verwendet. Die Berechnung dieser Zeit ist in [Rex, 1993] beschrieben.
- *Matchradius (R):* Definition siehe oben und Abbildung 5.13.

- *Matchwinkel* (α): Am Ort der zweiten Ozonsondenmessung: Winkel zwischen der Bewegungsrichtung des Luftpakets und der Verbindungslinie Luftpaket Ozonsondenmessung (siehe auch Abbildung 5.18).
- *Divergenz der Schwarmtrajektorien* (D_{\max}^{-} , D_{\max}^{\perp}): Zum Zeitpunkt der zweiten Ozonsondenmessung wurden die horizontalen Abstände der sechs Trajektorien des Trajektorien-schwarms von der zentralen Trajektorie bestimmt. D_{\max}^{-} gibt den größten dieser Abstände an, der bei den in einer Isentropenfläche gestarteten Trajektorien aufgetreten ist. D_{\max}^{\perp} ist der größere der beiden Abstände, der bei den vertikal versetzt gestarteten Trajektorien aufgetreten ist.
- *PV-Variation entlang der Trajektorie* (PV^{\sim}): Die Differenz zwischen der maximalen und der minimalen potentiellen Vorticity entlang der zentralen Trajektorie. Da bei der Bestimmung der potentiellen Vorticity durch die Bildung der zweiten Ableitungen bei der Berechnung der Rotation des Windfeldes relativ große statistische Streuung auftritt, wird vor dem Aufsuchen der Extremwerte ein gleitendes Mittel über ± 5 Stunden gebildet.
- *Ozonvariation in 2 K* ($XO_3^{\sim 2K A}$, $XO_3^{\sim 2K B}$): Die Differenz zwischen dem jeweiligen minimalen und maximalen Ozonmischungsverhältnis in einer 2 K Umgebung um das Niveau der Trajektorie. Dieser Wert wurde für beide Ozonsondenprofile eines Matches berechnet.
- *Ozonvariation in 5 K* ($XO_3^{\sim 5K A}$, $XO_3^{\sim 5K B}$): Wie oben, aber in einer 5 K Umgebung.
- *Ozonvariation in 10 K* ($XO_3^{\sim 10K A}$, $XO_3^{\sim 10K B}$): Wie oben, aber in einer 10 K Umgebung.
- *Lücke im Ozonprofil* (Δz^A , Δz^B): Der vertikale Abstand zwischen den beiden Meßpunkten im Ozonsondenprofil, über den zur Bestimmung des Ozonmischungsverhältnisses interpoliert werden mußte. Dieser Wert wurde für beide Ozonsondenprofile eines Matches berechnet.

5.5.3 Auswahl der Matche für die Auswertung

Um den statistischen Fehler des Ergebnisses zu minimieren, wurden die Matche unter Verwendung obiger Parameter gefiltert. Für die Auswertung wurden nur Matche verwendet, die in allen Parametern bestimmte Grenzwerte unterschritten. Aus der Analyse der statistischen Fehler (siehe im zweiten Teil dieses Abschnitts) ergaben sich dabei aufgrund der unterschiedlichen dynamischen Verhältnisse in den verschiedenen Höhenbereichen jeweils etwas voneinander abweichende optimale Grenzwerte. Im Höhenbereich um 475 K wurden folgende Auswahlkriterien verwendet:

- Die zweite Ozonsondenmessung muß innerhalb der Matchumgebung um den Ort des Luftpakets zum Zeitpunkt der Messung stattgefunden haben (siehe Abbildung 5.18).
Im Kern des Polarwirbels ($PV > 42 \text{ s}^{-1} \text{ nPV}$) wurde als Matchumgebung ein Kreis mit 500 km Radius um den Ort des Luftpakets definiert. D.h. alle Matche bis zu einem maximalen Matchradius (R_{\max}) von 500 km wurden ausgewertet.
Im Randbereich des Polarwirbels wurde als Matchumgebung eine Ellipse mit 500 km großer und 300 km kleiner Halbachse verwendet. Ihr Mittelpunkt wird von dem Ort des Luftpakets bestimmt, den dieses zum Zeitpunkt der Messung durch die zweite Sonde innehatte. Die Ausrichtung der großen Halbachse dieser Ellipse wird von der Bewegungsrichtung des Luftpakets zu diesem Zeitpunkt definiert (siehe Abbildung 5.18). Matche, bei denen die Ozon-

sondenmessung innerhalb dieser Ellipse stattgefunden hat, werden ausgewertet. Zur Berechnung, ob eine Ozonsondenmessung innerhalb der elliptischen Matchumgebung stattgefunden hatte, wurden α und R verwendet.

- D_{\max}^- kleiner als 1200 km.
- D_{\max}^\perp kleiner als 1300 km.
- t kürzer als 264 Stunden.
- PV^\sim kleiner als 25% der mittleren PV entlang der Trajektorie.
- $XO_3^{\sim 2K A}$ und $XO_3^{\sim 2K B}$ kleiner als 15%.
- $XO_3^{\sim 5K A}$ und $XO_3^{\sim 5K B}$ kleiner als 25%.
- Δz^A und Δz^B kleiner als 200 m.

Im Höhenbereich um 400 K wurden folgende Auswahlkriterien abweichend von oben verwendet:

- D_{\max}^- und D_{\max}^\perp kleiner als 1500 km.
- $XO_3^{\sim 2K A}$ und $XO_3^{\sim 2K B}$ kleiner als 20%.
- $XO_3^{\sim 5K A}$ und $XO_3^{\sim 5K B}$ kleiner als 30%.

Um 600 K wurde abweichend von den Auswahlkriterien in 475 K nur der Grenzwert für PV^\sim etwas schärfer definiert:

- PV^\sim kleiner als 20%.

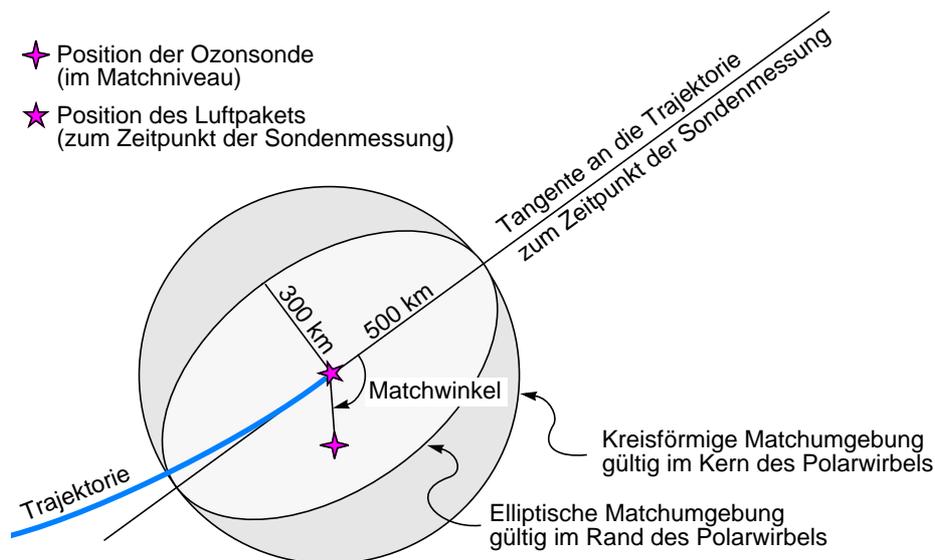


Abbildung 5.18: Definition des Matchwinkels und der Matchumgebungen im Rand ($36 \text{ s}^{-1} < nPV < 42 \text{ s}^{-1}$) und im Kern ($nPV > 42 \text{ s}^{-1}$) des Polarwirbels. Fand die Sondenmessung wie in diesem Beispiel innerhalb der für den entsprechenden PV-Bereich gültigen Matchumgebung statt, wird das Ereignis als Match bezeichnet und ausgewertet.

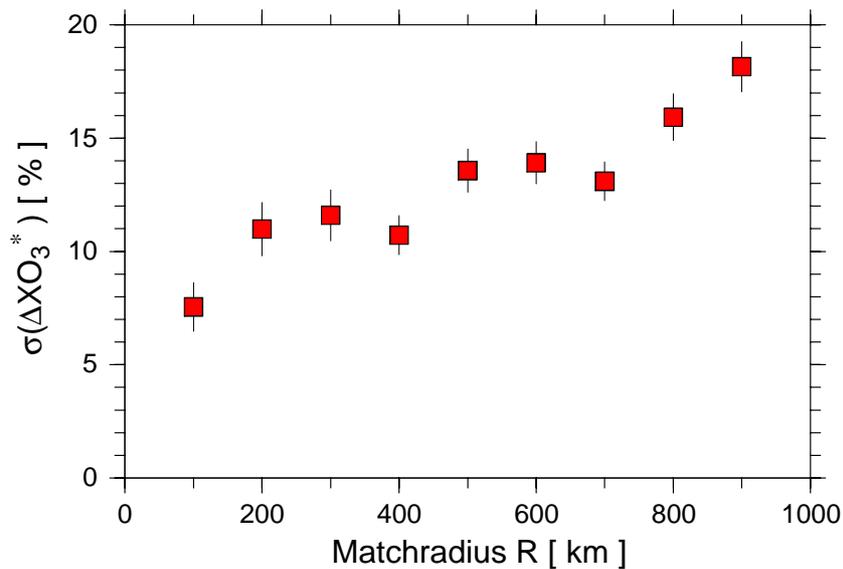


Abbildung 5.19: Streuung der Einzelmatche als Funktion des Matchradius. Jeder Punkt gibt $\sigma(\Delta XO_3^*)$ in einem 100km Intervall des Matchradius an. Das Diagramm beruht auf der Untergruppe von Matches, die zwischen dem 15. Januar und dem 10. Februar 1995 im Höhenbereich 470 bis 500 K stattgefunden haben. Die Fehlerbalken geben die statistische Unsicherheit des Schätzers für die Streuung an.

In den zwischen diesen Bereichen liegenden Niveaus wurden die Auswahlparameter gleitend zwischen den hier angegebenen angepaßt.

Die angegebenen Grenzwerte wurden gefunden, indem die statistische Streuung der Einzelmatche als Funktion des Qualitätsparameters untersucht wurde. Als Maß für die statistische Streuung wurde die Standardabweichung der Größe ΔXO_3^* verwendet:

$$\Delta XO_3^* = \Delta XO_3 + L_s \cdot t_s \quad (10)$$

$$\Delta XO_3 = XO_3^B - XO_3^A$$

L_s = Ozonabbaurate pro Sonnenstunde

Die Ozonabbaurate pro Sonnenstunde wurde, wie im Kapitel 7 beschrieben, aus der Gesamtheit der Matche im fraglichen Höhen- und Zeitintervall bestimmt. ΔXO_3^* stellt somit die um den erwarteten chemischen Ozonabbau korrigierte Differenz des Ozonmischungsverhältnisses dar. Diese Differenz beruht außer auf der lokalen Abweichung der Ozonabbaurate vom Mittel der Abbaurate auf der Summe der statistischen Fehler für einen Einzelmatch. Der Mittelwert von ΔXO_3^* ist definitionsgemäß Null, die Standardabweichung $\sigma(\Delta XO_3^*)$ gibt die Streuung der Einzelmatche an.

Abbildung 5.19 zeigt ΔXO_3^* in Abhängigkeit vom Matchradius beispielhaft für den Zeitraum 15.1. bis 10.2.1995 und den Höhenbereich 470 bis 500K. In dem so abgegrenzten Bereich war die Ozonabbaurate relativ zeit- und höhenunabhängig, wie später noch gezeigt wird. Sehr ähnliche Ergebnisse erhält man auch für die anderen untersuchten Zeiträume und Höhenbereiche. In Abbildung 5.19 wird deutlich, daß der statistische Fehler, der mit einem Match verbunden ist, bei Matchen mit kleineren Matchradien beträchtlich kleiner ist. Gleichzeitig nimmt aber

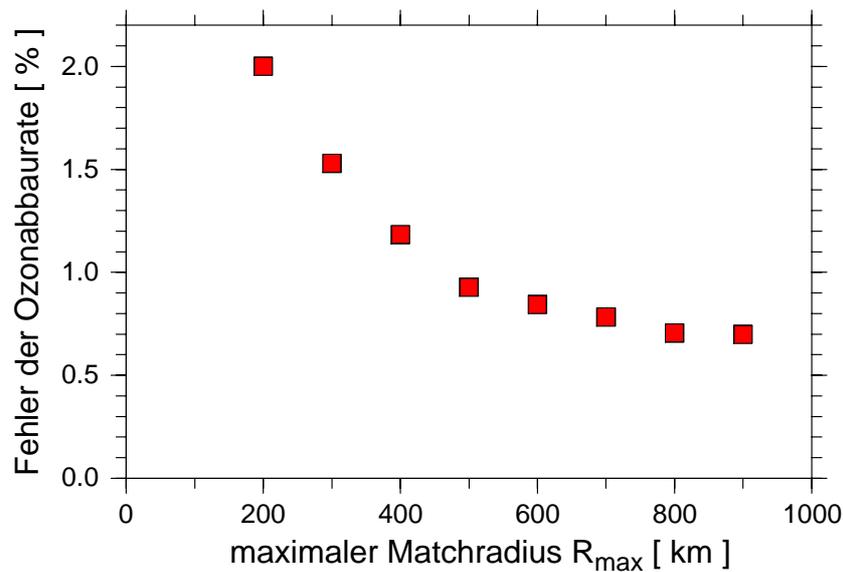


Abbildung 5.20: Statistischer Fehler der berechneten Ozonabbaurate in Abhängigkeit von der Wahl des maximal zulässigen Matchradius. Die Methode zur Berechnung der Ozonabbauraten und ihrer Fehler wird in Kapitel 7 beschrieben. Das Diagramm beruht auf der gleichen Untergruppe von Matches wie Abbildung 5.22.

auch die Anzahl der zur Verfügung stehenden Matche mit abnehmendem maximal erlaubtem Matchradius ab, was den Fehler in der Berechnung der Ozonabbaurate wiederum vergrößert. Beide Effekte zusammen führen dazu, daß der Fehler im Endergebnis bei zunehmendem R_{\max} bis etwa 500 km kleiner wird und für größere R_{\max} sich nicht mehr wesentlich ändert (Abbildung 5.20) oder in dynamisch gestörten Lagen auch wieder zunimmt. Da die Auswertung auf Fälle beschränkt werden soll, in denen die Luftmasse von der zweiten Sonde möglichst genau getroffen wurde, wurde mit $R_{\max} = 500$ km das kleinste R_{\max} gewählt, bei dem der Fehler des Ergebnisses schon klein ist und auch bei dynamisch gestörten Lagen noch klein bleibt. Der weitere Vorteil eines möglichst kleinen R_{\max} ist, daß Parameter wie die Sonnenzeit für Matche mit kleinem Matchradius besser für die tatsächlich vermessene Luftmasse repräsentativ sind und man dynamisch bedingte Einflüsse besser ausschließt. Es wurde getestet, ob die berechnete Ozonabbaurate von der Wahl von R_{\max} abhängt. Abbildung 5.21 zeigt, daß dies im Rahmen der Fehlerbalken nicht der Fall ist.

In Abbildung 5.22 wird die Streuung in Abhängigkeit von α (Definition siehe Abbildung 5.18) untersucht. Es wird deutlich, daß bei der Verwendung einer kreisförmigen Matchumgebung im Rand des Polarwirbels bei α um 90° eine deutlich höhere Streuung auftritt, als bei Ereignissen, bei denen die Sonde im wesentlichen entlang des Flugpfades des Luftpaketes gemessen hat. Das ist darin begründet, daß im Wirbelrand der mittlere horizontale Ozongradient senkrecht zur Strömungsrichtung (und damit auch senkrecht zu den PV-Isolinien) deutlich größer ist, als in Strömungsrichtung. Besonders deutlich wird dieser Effekt bei Matchen im Wirbelrand, bei denen die Sonde noch weiter außen im Wirbel gemessen hat, als sich das Luftpaket befand. Dies sind die Matche mit α um 90° im Gegensatz zu den Matchen mit α um -90° , bei denen die Sonde relativ zum Ort des Luftpaketes weiter innen im Wirbel gemessen hat. Aus Abbildung 5.22 geht hervor, daß im Wirbelkern die Streuung nicht vom Matchwinkel abhängt. Um eine gleichmäßi-

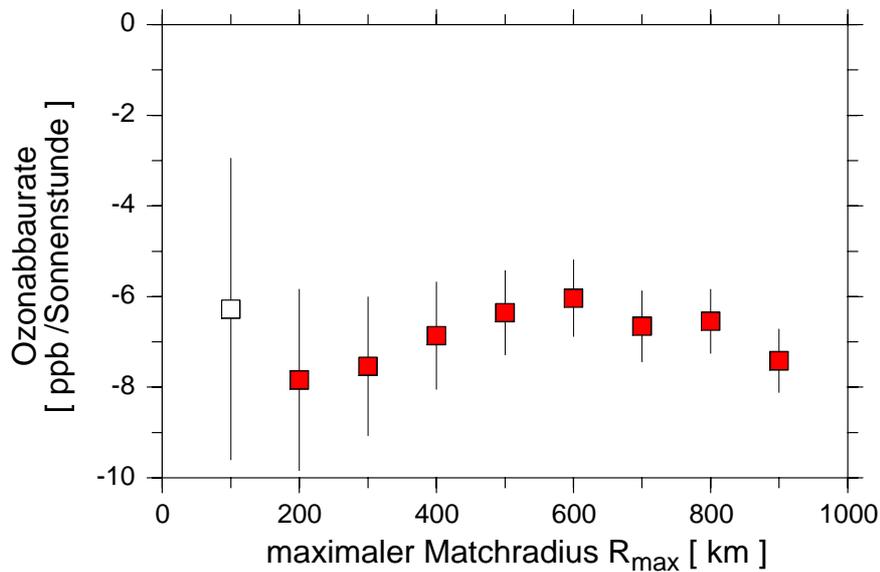


Abbildung 5.21: Berechnete Ozonabbaurate in Abhängigkeit von der Wahl des maximal zulässigen Matchradius. Das Diagramm beruht auf der gleichen Untergruppe von Matches wie Abbildung 5.22. Die Methode, mit der die Abbauraten aus den Matchdaten berechnet wurden, wird in Kapitel 7 beschrieben. Die Fehlerbalken geben die statistische Unsicherheit als einfache Standardabweichung an.

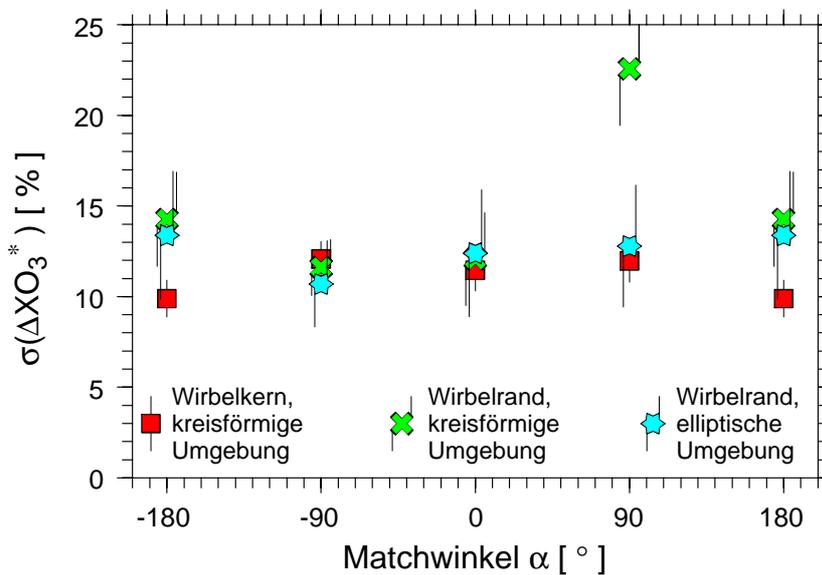


Abbildung 5.22: Streuung der Einzelmatche als Funktion des Matchwinkels. Jeder Punkt gibt $\sigma(\Delta X O_3^*)$ in einem 90° Sektor des Matchwinkels an. Der Sektor ist jeweils zentriert um den auf der x-Achse angegebenen Wert. Das Diagramm beruht auf der Untergruppe von Matches, die zwischen dem 15. Januar und dem 10. Februar 1995 im Höhenbereich 470 bis 500 K stattgefunden haben. Die verschiedenen Farben/Symbole beziehen sich auf verschiedene Definitionen der Matchumgebung (siehe Legende am unteren Bildrand). Um den Effekt deutlicher hervortreten zu lassen, wurden mit 700 km Radius für die kreisförmige Matchumgebung und 700 / 300 km große- / kleine Halbachse für die elliptische Umgebung etwas größere Bereiche gewählt als in der restlichen Auswertung.

ge Verteilung der Streuung zu erreichen, wurde im Wirbelrand die oben beschriebene elliptische Matchumgebung verwendet, während im Wirbelkern eine kreisförmige Matchumgebung am besten geeignet ist.

Abbildung 5.23 zeigt die Streuung der Einzelmatche über der PV Änderung entlang der Trajektorie (genaue Definition siehe Abschnitt 5.5.2). Es ist deutlich zu erkennen, daß Matche mit einer PV Änderung größer als 25% eine deutlich größere Streuung aufweisen und deshalb aus der Auswertung herausgenommen werden sollten.

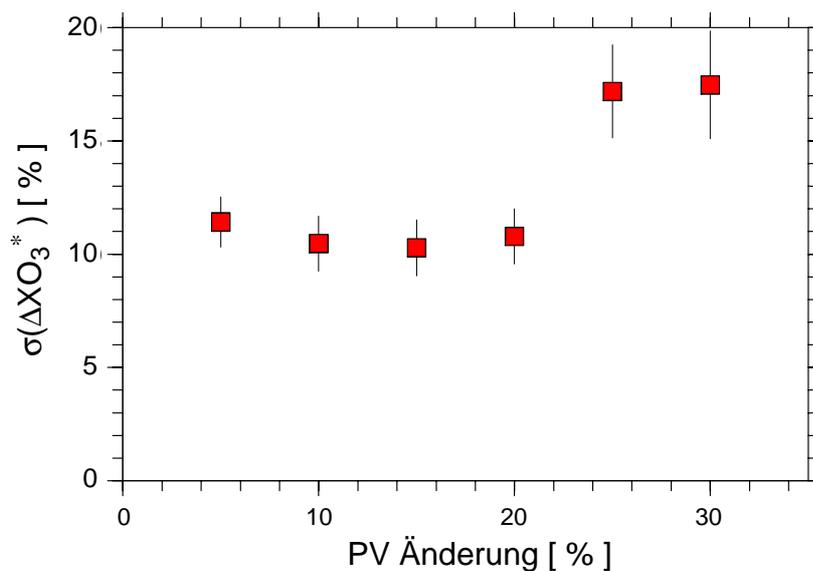


Abbildung 5.23: Streuung der Einzelmatche als Funktion der PV Änderung entlang der Trajektorie (Definition siehe Abschnitt 5.5.2). Jeder Punkt gibt $\sigma(\Delta X O_3^*)$ in einem 10% Intervall der PV Änderung an. Das Diagramm beruht auf der Untergruppe von Matchen, die zwischen dem 15. Januar und dem 10. Februar 1995 im Höhenbereich 470 bis 500 K stattgefunden haben.

Kapitel 6

Meteorologie der arktischen Winter 1991/92, 1994/95 und 1995/96

Aus Kapitel 3 geht hervor, welche wichtige Rolle die meteorologische Situation eines Winters für das Zustandekommen chemischen Ozonabbaus spielt. Für den Ozonabbau sind besonders Temperatur, Lage und Stabilität des Polarwirbels ausschlaggebend. Aus diesen Größen geht hervor, welches Potential für PSC-Bildung in dem Winter vorhanden war und wieviel Sonnenlicht die im Wirbel eingeschlossenen Luftmassen während der verschiedenen Phasen des Winters erhalten haben.

6.1 Definition des Polarwirbels

Zunächst soll in diesem Abschnitt eine Abgrenzung des Bereichs vorgenommen werden, der in der vorliegenden Arbeit als Polarwirbel bezeichnet wird. Wie in Kapitel 3 beschrieben, bildet der Polarwirbel eine zu einem gewissen Grade von der Umgebung isolierte Luftmasse. Der Bereich des maximalen horizontalen PV Gradienten (ΔPV_{\max}) stellt die Begrenzung dar, die den turbulenten Luftmassenaustausch am effektivsten unterdrückt. Zur Berechnung der Lage von ΔPV_{\max} wurde täglich für eine große Anzahl von PV-Isolinien der Radius (r) des Kreises berechnet, der den gleichen Flächeninhalt umschließt wie die Isolinie. Die Fläche innerhalb einer gegebenen PV Isolinie wurde aus den EZMW Analysen in $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ Auflösung berechnet, indem die Fläche aller Gitterzellen mit größeren PV Werten als der PV Wert der jeweiligen Isolinie aufintegriert wurden. Der PV Wert bei ΔPV_{\max} wird von dem PV Wert angenähert, bei dem die Ableitung dPV/dr ihr Maximum annimmt.

Tabelle 6.1 zeigt die zeitliche Entwicklung der Lage von ΔPV_{\max} , ausgedrückt in nPV, auf der 475 K Isentrope für die drei untersuchten Winter. Es zeigt sich, daß die Lage von ΔPV_{\max} zeitlich verhältnismäßig konstant ist und sich meist zwischen 38 s^{-1} und 41 s^{-1} nPV Werten befindet.

Tabelle 6.2 zeigt beispielhaft für eine Phase des EASOE Winters wie die Lage von ΔPV_{\max} mit der Höhe variiert. Die Lage von ΔPV_{\max} oberhalb von 400 K ist auch relativ höhenkonstant, wenn sie in nPV angegeben wird. Dieses Verhalten bestätigt sich auch für andere untersuchte Zeiträume. Es legt nahe, bei der Definition der Wirbelkante einen höhenunabhängigen nPV Wert zu verwenden.

Im Gegensatz zu vielen anderen Methoden zur Bestimmung von Ozonverlusten ist die Match Methode nicht darauf angewiesen, daß der untersuchte Bereich gut gegen Austauschprozesse isoliert ist. Daher kann in dieser Arbeit die Definition des Untersuchungsgebiets frei vorgenommen werden. Die Bereiche, in denen die Temperaturen tief genug werden, um PSC-Bildung zu

Datum [Tag des Jahres]	nPV bei ΔPV_{\max} [s^{-1}]	Anteil des Wirbels, der von nPV bei ΔPV_{\max} eingeschlossen wird [%]
1991/92		
7	40.3 ± 0.7	87
21	39.3 ± 1.2	89
35	37.5 ± 1.0	92
49	37.4 ± 1.4	91
63	39.4 ± 0.6	84
77	38.1 ± 1.9	83
1994/95		
7	41.4 ± 0.7	84
21	41.4 ± 0.8	82
35	37.3 ± 0.9	94
49	38.9 ± 0.7	81
63	41.0 ± 0.7	76
77	38.9 ± 1.0	76
1995/96		
7	38.2 ± 0.5	93
21	38.6 ± 0.5	92
35	38.7 ± 0.8	90
49	36.7 ± 0.8	95
63	36.3 ± 0.8	99
77	39.3 ± 1.3	71

Tabelle 6.1: Zeitliche Variation der Position des maximalen horizontalen PV Gradienten in nPV. Weiterhin ist der prozentuale Anteil der Wirbelfläche (definiert als die Fläche innerhalb von $36 s^{-1}$ nPV) gegeben, die von der zum maximalen PV Gradienten gehörenden PV Isolinie umschlossen wird.

Potentielle Temperatur [K]	nPV beim maximalen PV Gradienten [s ⁻¹]
350	kein ausgeprägtes Maximum
380	43.6 ± 0.6
400	40.9 ± 0.8
425	38.9 ± 0.4
450	38.5 ± 0.3
475	38.8 ± 0.3
500	38.6 ± 0.5
525	38.2 ± 0.5
550	37.7 ± 0.5

Tabelle 6.2: Die Lage des maximalen PV-Gradienten in normed PV für verschiedene isentrope Flächen als Mittel über den Zeitraum 1. Januar bis 9. Februar 1992

erlauben, ragen häufig etwas aus dem Bereich der am besten isolierten Luftmasse heraus. Deshalb soll hier als Untersuchungsgebiet eine Luftmasse gewählt werden, die auch den Bereich direkt außerhalb der Lage von ΔPV_{\max} umschließt. In der vorliegenden Arbeit wird einheitlich 36 s^{-1} nPV als äußere Begrenzung des Untersuchungsgebiets gewählt. Der Bereich mit nPV-Werten von mehr als 36 s^{-1} nPV wird hier als innerhalb des Polarwirbels bezeichnet. Wie aus Tabelle 6.1 ersichtlich, ist der Polarwirbel bei dieser Definition im Mittel in der Fläche etwa 10-15% größer als der Bereich innerhalb der von ΔPV_{\max} definierten PV Isolinie. Bei der Untersuchung der Ozonverluste zeigt sich, daß mit dieser Definition des Polarwirbels zumindest im Jahr 1995 im wesentlichen der gesamte polare Ozonverlust erfaßt wird. Dies wäre nicht der Fall, wenn der PV Wert bei ΔPV_{\max} als Außengrenze des Wirbels verwendet werden würde (siehe Abbildung 7.13).

6.1.1 pPV als Koordinatensystem im Wirbel

Als an den Wirbel gekoppelte Koordinate wird hier die Größe pPV eingeführt. pPV gibt an, welcher Anteil der Gesamtfläche des Polarwirbels von der dazugehörigen Isolinie von nPV umschlossen wird. Damit läuft pPV von 0% im Wirbelzentrum zu 100% bei der nPV Isolinie, die zur Definition des Wirbelrands verwendet wird. Der Vorteil von pPV ist, daß gleiche Intervalle in pPV gleichen Anteilen der Wirbelfläche entsprechen. Abbildung 6.1 zeigt für die drei behandelten Winter die Zuordnung zwischen pPV und nPV.

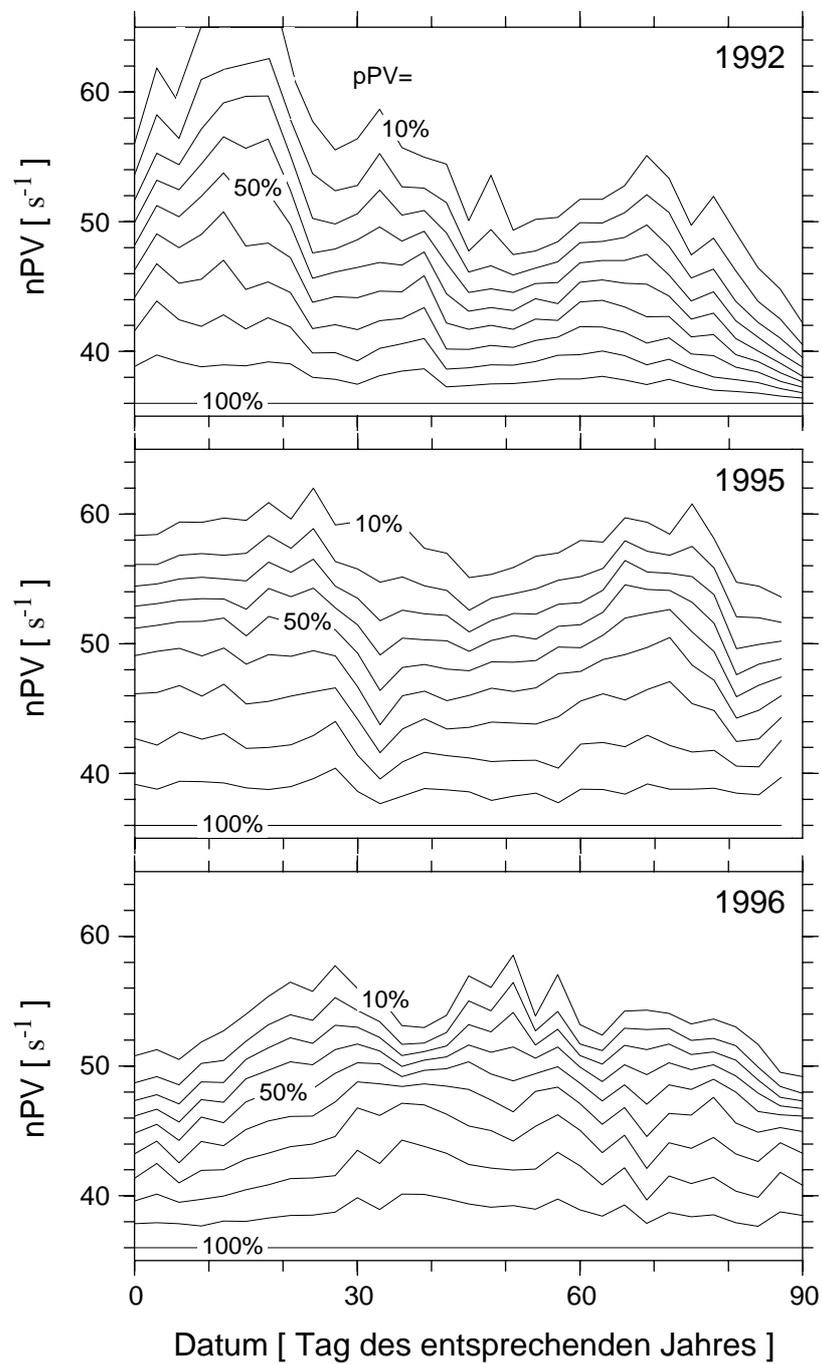


Abbildung 6.1: Die Beziehung zwischen pPV und nPV für die untersuchten Zeiträume. Dargestellt ist der Verlauf von nPV für jeweils die pPV Werte 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100%. Der nPV Wert zu 100% pPV ist definitionsgemäß 36 s^{-1} .

6.2 Abschätzung der Bereiche mit PSC-Bedingungen

Da das Auftreten von PSCs für die chemische Situation im Polarwirbel so außerordentlich wichtig ist, wurde hier als Indikator für die PSC Aktivität zu jedem Zeitpunkt und auf verschiedenen Isentropen die Fläche (A_{NAT}) berechnet, innerhalb derer die EZMW Temperaturen unterhalb von T_{NAT} lagen. Dabei wurde analog zu Pawson et al. [1995] vorgegangen, die eine ähnliche Analyse für die Winter 1984-1994 mit den Berliner Stratosphärentemperaturen durchgeführt haben. In der vorliegenden Arbeit wurden die EZMW Temperaturanalysen in einem $1.125^\circ \times 1.125^\circ$ Gitter verwendet. Die EZMW Flächen wurden zunächst auf 71 Isentropen mit 5 K vertikalem Abstand im Bereich 350 bis 700 K interpoliert. Die von Hanson und Mauersberger [1988] angegebene Formel für die NAT Gleichgewichtstemperatur wurde verwendet, um für jeden Gitterpunkt zu bestimmen, ob T_{NAT} unterschritten war. Dabei wurde ein H_2O -Mischungsverhältnis von 4.6 ppm und ein HNO_3 -Mischungsprofil verwendet, welches vom Limb Infrared Monitor of the Stratosphere (LIMS) im Januar 1978 gemessen wurde [Gille und Russell, 1984]. A_{NAT} wurde in jedem Niveau als Integral über die Flächen aller Gitterzellen bestimmt, in denen die Temperatur hinreichend kalt war. Weiterhin wurde analog die Fläche (A_{EIS}) berechnet, in der die Temperatur unterhalb von T_{EIS} lag. Die Ergebnisse dieser Berechnungen werden in den folgenden Abschnitten jeweils bei der Behandlung der einzelnen Winter gezeigt.

Die verwendete Abschätzung darf nur als grober Indikator für die Intensität des PSC Auftretens verstanden werden. Die wahre Zusammensetzung der PSC I Partikel ist Gegenstand vieler aktueller Forschungen (z.B. [Molina et al., 1993; Tolbert, 1994; Tabazadeh et al., 1994; Toon und Tolbert, 1995; Tabazadeh et al., 1996]). Vieles spricht dafür, daß PSC-Partikel häufig nicht aus NAT bestehen, sondern eine ganze Anzahl verschiedener Kondensate aus H_2O , HNO_3 , und H_2SO_4 stabil vorkommen können. Dabei liegen anscheinend die meisten Kondensationstemperaturen dieser Kondensate etwas unterhalb der NAT Kondensationstemperatur. Die hier gezeigten Bereiche A_{NAT} (die im folgenden vereinfachend als Bereiche mit PSC-Bedingungen bezeichnet werden) sollten also eher als obere Grenze für die PSC-Bildung aufgefaßt werden.

Natürlich zeigen auch die atmosphärischen Konzentrationen von H_2O und HNO_3 eine räumliche und zeitliche Variabilität. Dies gilt insbesondere für HNO_3 , dessen Konzentration sich im Verlauf eines Winters deutlich ändern kann. Die hier verwendeten Werte geben bestenfalls typische Werte der H_2O und HNO_3 -Mischungsverhältnisse an. Demnach können die tatsächlichen Flächen mit NAT-Bedingungen teilweise beträchtlich von den hier berechneten Werten abweichen. Genauere Untersuchungen über den Einfluß der verwendeten Annahmen für die H_2O und HNO_3 -Konzentrationen auf das Potential zur PSC-Bildung in der Nordhemisphäre finden sich z.B. in [Newman et al., 1993] und [Pawson et al., 1995].

Als weitere Unsicherheit in der Bestimmung der Bereiche mit PSC-Bedingungen kommt noch der Fehler der EZMW Temperatur hinzu. Durch die geringe Modellauflösung werden lokale Temperaturfluktuationen nicht erfaßt, was an einem gegebenen Ort zu Abweichungen von der wahren Temperatur um einige Kelvin führen kann. [Knudsen et al., 1996].

6.3 Abschätzung des diabatischen Absinkens im Wirbel

Um das mittlere diabatische Absinken der Luftmassen im Polarwirbel abzuschätzen, wurden dieselben diabatischen Erwärmungsraten ($d\Theta/dt$) von SLIMCAT verwendet, die auch in Abschnitt 5.5.1.2 der vertikalen Korrektur der Trajektorien dienten. Eine Beschreibung der Berechnung von $d\Theta/dt$ findet sich dort.

Auf allen Flächen, auf denen $d\Theta/dt$ gegeben war, wurde der zugehörige PV-Wert durch vierdimensionale Interpolation aus den vom EZMW auf Gitterpunkten bereitgestellten PV-Daten ausgelesen. Dann wurde täglich das mit der Fläche der jeweiligen Gitterzelle gewichtete Mittel über alle $d\Theta/dt$ -Werte gebildet, die an diesem Tag im Wirbel lagen. Dabei wurde auch über alle vier pro Tag vorliegenden $d\Theta/dt$ -Felder gemittelt, so daß das Ergebnis dieser Operation Tagesmittel der über den Wirbel gemittelten diabatischen Raten waren. Diese Mittelung wurde für alle Flächen durchgeführt, auf denen $d\Theta/dt$ vorlag. Abschließend wurde für verschiedene Startflächen das diabatische Absinken aus den täglichen Profilen des mittleren $d\Theta/dt$ integriert. Dabei wurde zwischen den Flächen der Profile linear interpoliert, um $d\Theta/dt$ am jeweils aktuellen Ort der Luftschicht zu erhalten. Dieser über den Wirbel gemittelte Ansatz berücksichtigt eventuelle Unterschiede der diabatischen Erwärmungsraten zwischen verschiedenen Wirbelbereichen nicht. Das integrierte mittlere Absinken sollte also nur als eine Abschätzung verstanden werden, wobei einem bewußt sein muß, daß einzelne Luftmassen eine von dieser mittleren Abwärtsbewegung abweichende Geschichte haben können. Die Ergebnisse der Abschätzungen sind in den Abschnitten angegeben, die die Polarwirbel der jeweiligen Winter beschreiben.

6.4 Berechnung der mittleren Sonnenscheindauer pro Tag im Polarwirbel

Die über den Polarwirbel gemittelte Sonnenscheindauer pro Tag (S_{WIRBEL}) ist eine wichtige Größe zur Interpretation der Ozonabbauraten. Sie wurde täglich auf den Isentropen 350, 380, 400, 435, 475, 550 und 665 K bestimmt.

S_{WIRBEL} ist jeweils identisch mit dem 24-Stundenmittel des Flächenanteils des Wirbels, der in der Sonne liegt. Es wurde stündlich für alle im Polarwirbel gelegenen Gitterpunkte der EZMW Daten in $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ Auflösung berechnet, ob sie in der Sonne liegen oder nicht. Zur Bestimmung des PV Wertes wurde dazu zwischen den zeitlich nächstliegenden Daten der alle 24 Stunden vorliegenden PV Werte interpoliert. Zur Berechnung des Beleuchtungszustands des Gitterpunktes wurde die gleiche Methode eingesetzt, die bei der Berechnung von t_s verwandt worden war. Für die dafür benötigte geometrische Höhe der Gitterpunkte wurde der in Tabelle 2.1 angegebene Zusammenhang verwendet. Es wurde dann sowohl die Gesamtfläche des Wirbels als auch die sonnenbeschienene Fläche über die Flächen der einzelnen Gitterzellen aufintegriert. Der Quotient aus beiden Flächen wurde über 24 Stunden gemittelt.

Das gleiche Verfahren wurde verwendet, um die über die inneren 50 Flächenprozent des Wirbels gemittelte Sonnenscheindauer pro Tag (S_{KERN}) zu berechnen sowie die entsprechende Größe für die äußeren 50 Flächenprozent (S_{RAND}).

6.5 Stabilität des Polarwirbels, QBO und Solarzyklus

Wie von Labitzke und van Loon [1988] gezeigt, besteht ein statistisch signifikanter Zusammenhang zwischen der Stabilität des Polarwirbels und den jeweiligen Phasen der Quasi-Biennial Oszillation (QBO)¹ und des etwa 11-jährigen Solarzyklusses². Labitzke und van Loon [1988] zeigten, daß sich im solaren Minimum und QBO Westphase (definiert am 50 hPa Wind über Singapur) regelmäßig stabile Polarwirbel bilden. Demgegenüber kommt es bei QBO Ostphase im solaren Minimum bis auf wenige Ausnahmen zu mittwinterlichen großen Stratosphären-

-
1. siehe Naujokat und Marquardt [1992] für eine zusammenfassende Darstellung der QBO
 2. siehe Labitzke und van Loon [1992] für eine zusammenfassende Darstellung des Einflusses des Solarzyklusses auf die Stratosphäre

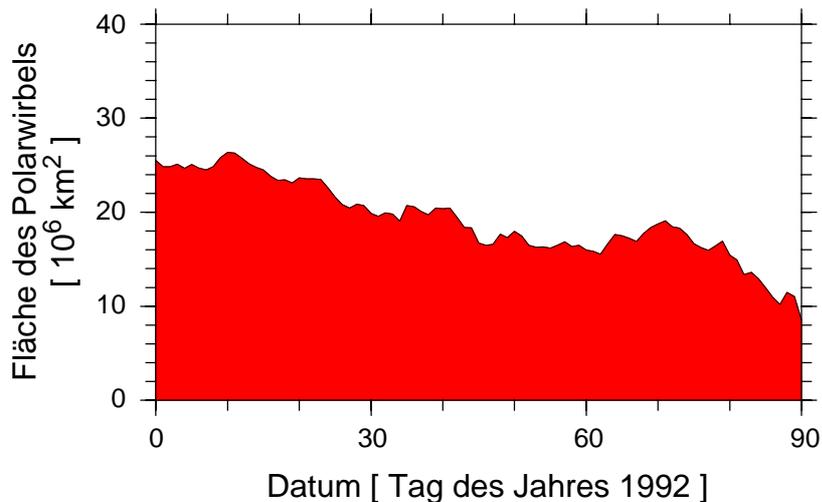


Abbildung 6.2: Fläche des Polarwirbels in der 475 K Isentrope während Januar bis März 1992.

wärmungen. Im solaren Maximum dreht sich diese Korrelation um und die mittwinterlichen Stratosphärenenerwärmungen sind in der Regel bei QBO Westphase beobachtet worden. Die Korrelation bestätigte sich auch in den auf Labitzke und van Loon, 1988] folgenden Jahren [Labitzke und van Loon, 1992; Labitzke und van Loon, 1993; Naujokat et al., 1995].

Durch ein zufälliges Zusammentreffen kam es in dem Zeitraum 1991/92 bis 1995/96 nur zu Konstellationen, in denen das Auftreten von großen mittwinterlichen Stratosphärenenerwärmungen nach dieser Statistik unwahrscheinlich ist, und tatsächlich wurde in keinem Winter seit 1991/92 eine solche beobachtet - also auch in keinem der hier untersuchten Winter.

6.6 Die Polarwirbel der drei untersuchten Winter

6.6.1 Winter 1991/92

1991 bildete sich bereits im Frühwinter ein starker, kalter Polarwirbel aus. Ein Wärmeevorstoß Mitte Dezember in der oberen Stratosphäre machte sich in der Zirkulation der hier betrachteten unteren Stratosphäre kaum bemerkbar, so daß bei weiterer Abkühlung ab der letzten Dezemberwoche die PSC-Temperaturen unterschritten wurden. In der ersten Januarhälfte begann mit einer starken Erhöhung der Amplitude der planetarischen Welle 1 eine kräftige Stratosphärenenerwärmung, die ihren Höhepunkt Mitte Januar erreichte, jedoch nicht zu einem Zusammenbruch des Polarwirbels führte. Es wurden sogar im Zuge der Hebungs Vorgänge bei der Erwärmung kurz vor Mitte Januar die kältesten Temperaturen im Polarwirbel erreicht. Danach stiegen die Temperaturen im Wirbel zügig an und ab der zweiten Januarhälfte waren kaum noch Existenzbedingungen für PSCs gegeben [Naujokat et al., 1992]. Abbildung 6.2 zeigt, daß der Polarwirbel im Zuge der Erwärmung Mitte Januar deutlich an Masse verloren hat, danach jedoch mit nahezu unveränderter Fläche bis Mitte März weiterbestand. Da die Erwärmung im Januar nicht zu einem Zusammenbruch des Polarwirbels führte, wird sie nicht als große mittwinterliche Stratosphärenenerwärmung klassifiziert. Sie war dennoch ein ausgeprägtes 'minor warming' [Naujokat et al., 1992].

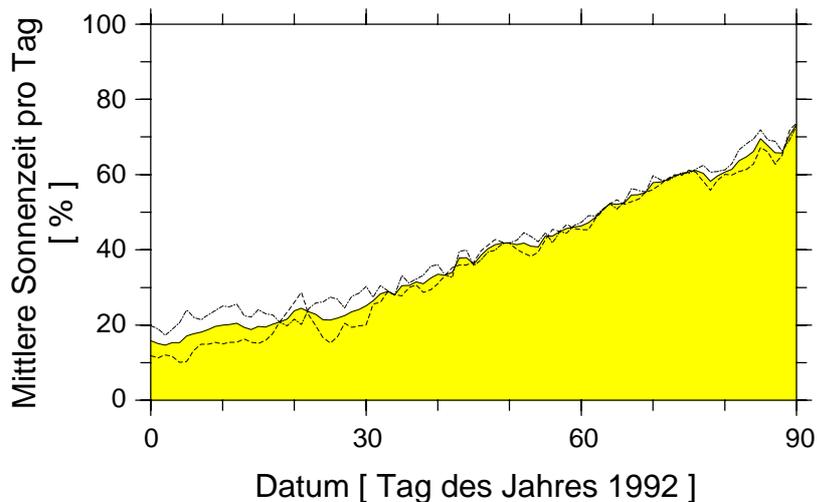


Abbildung 6.5: Ausgefüllte Fläche: Über den Polarwirbel gemittelte Tageslänge in Prozent von 24 Stunden während Januar bis März 1992. Gestrichelte Linie: Die gleiche Größe für die inneren 50 Flächen-% des Wirbels. Strichpunktierte Linie: Desgleichen für die äußeren 50 Flächenprozent.

Abbildung 6.3 zeigt A_{NAT} für den Winter 1991/92 im Höhen-/Zeitschnitt. Die PSC-Periode dauerte von Ende Dezember bis in die zweite Januarhälfte. Die Bereiche mit möglicher PSC Bildung erreichten dabei eine vertikale Ausdehnung von etwa 400 K bis 530 K mit einem ausgeprägten Maximum um 475 K. Aufgrund der baroklinen Lage während der Erwärmung waren die Flächen mit PSC-Bedingungen während des gesamten Januars vom Kern des Wirbels verschoben. Sie erstreckten sich meist in einem Sektor des Wirbels von der Wirbelaußenkante bis zum Wirbelkern. Dieser Bereich lag dabei relativ konstant über einer blockierenden troposphärischen Antizyklone über dem Nordatlantik. Abbildung 6.4a zeigt den Wirbel und den Bereich mit PSC-Bedingungen beispielhaft an einem Tag dieser Phase. Aufgrund der zyklonalen Strömung im Wirbel durchströmen in einer solchen Situation innerhalb einiger Tage große Teile der Luftmasse innerhalb des Polarwirbels die Bereiche mit PSC-Bedingungen. Newman et al. [1993] haben mit Trajektorienrechnungen gezeigt, daß auf der 460 K Isentrope bis zum 15. Januar über 90% der Luftmasse innerhalb des Polarwirbels durch Bereiche mit PSCs geströmt sind. Newman et al. [1993] benutzen 25 PVU in 460 K als Außenkante des Wirbels; das entspricht ca. 30 nPV. Für die spätere Interpretation des Ozonabbaus ist zu beachten, daß auch das letzte Auftreten von PSC-Bedingungen an der äußeren Wirbelkante stattfand (Abbildung 6.4b).

Der zeitliche Verlauf von S_{WIRBEL} in 475 K ist in Abbildung 6.5 als ausgefüllte Fläche dargestellt. Zusätzlich sind S_{KERN} (gestrichelt) und S_{RAND} (strichpunktiert) in die Abbildung eingetragen. S_{WIRBEL} nimmt von etwa 15% Anfang Januar auf etwa 60-70% Ende März zu. Die bereits vor Äquinox auf über 50% angestiegenen Werte kommen dadurch zustande, daß in 475 K (ca. 20 km Höhe) die Sonne bereits bei einem szw von etwa 95° sichtbar wird. Größere Abweichungen von der gleichmäßigen mittleren Zunahme kommen durch Verschiebungen des Wirbels vom Pol oder starke Verformungen des Wirbels zustande. So zeichnet sich die Verschiebung während der Erwärmung um den 20. Januar hier als eine positive Abweichung von S_{WIRBEL} vom mittleren Verlauf ab. S_{RAND} ist Anfang Januar etwa 1,5 bis 2 mal größer als S_{KERN} . Dieser Unterschied geht im Laufe von Februar/März langsam zurück. Zu beachten ist,

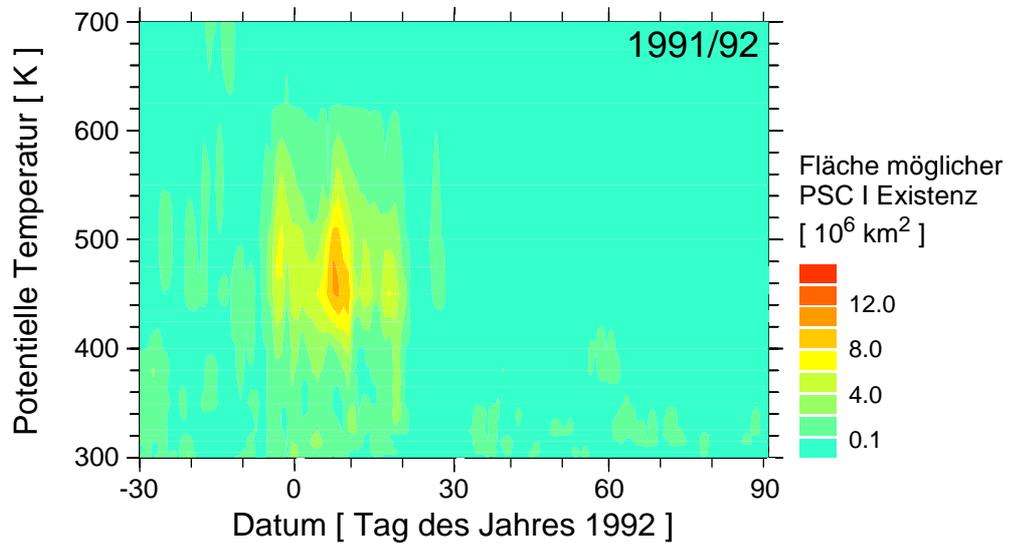


Abbildung 6.3: Höhen-/Zeitschnitt von A_{NAT} während Dezember 1991 bis März 1992.

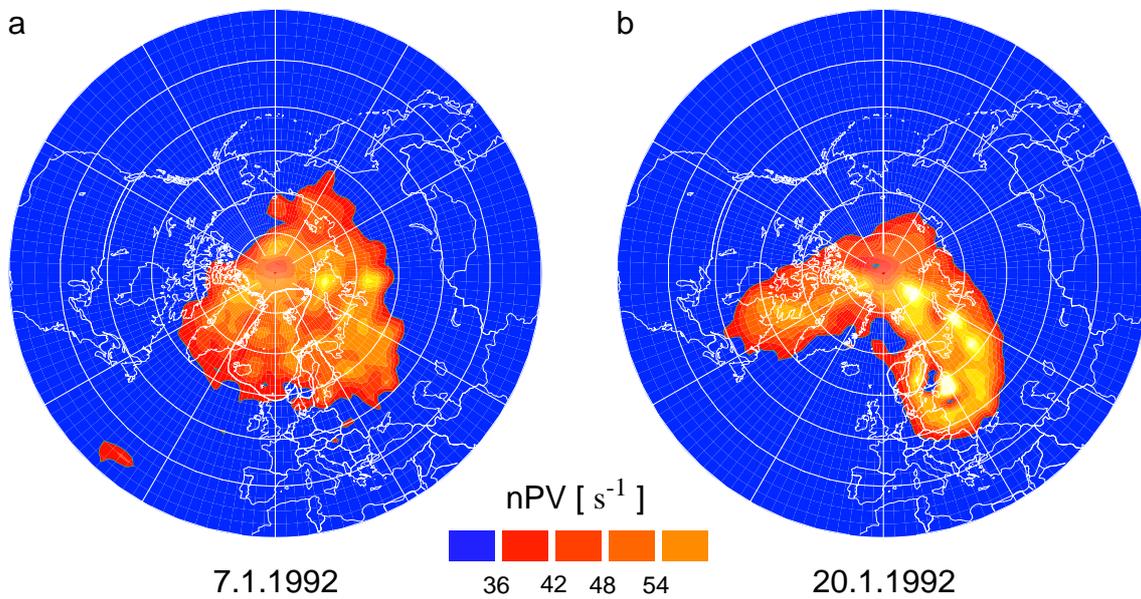


Abbildung 6.4: Karten von nPV auf der 475 K Isentropenfläche an zwei Tagen während 1992. Die Karten zeigen den Ausschnitt nördlich von 30°N , der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Der Bereich innerhalb des Polarwirbels ist orange dargestellt. Die Bereiche mit möglicher PSC Existenz sind mit einer dickeren weißen Linie umrandet.

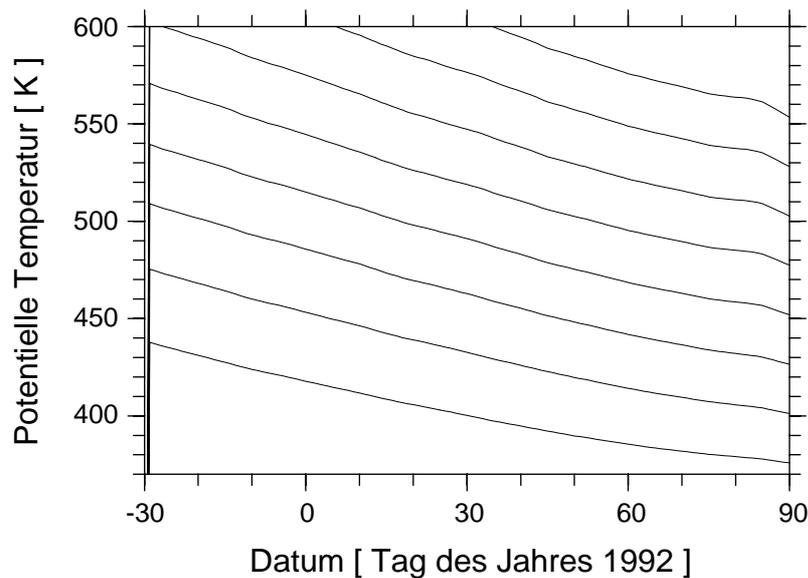


Abbildung 6.6: Über den Polarwirbel gemittelte diabatische Abstiegsbewegung der Luftmassen während Dezember 1991 bis März 1992.

daß sich dieses Verhältnis während stark gestörter Lagen auch umdrehen kann. So ist während einer sehr kurzen Periode um den 20. Januar die mittlere Tageslänge im Wirbelkern länger als im Wirbelrand.

Abbildung 6.6 zeigt das mittlere diabatische Absinken einiger Luftschichten im Wirbel.

6.6.2 Winter 1994/95

Der Polarwirbel entwickelte sich bereits im Herbst 1994 stärker und kälter als normal. Eine schwache Kanadische Erwärmung um den Monatswechsel November/Dezember änderte daran wenig. In dem weiterhin außergewöhnlich kalten und starken Wirbel wurden die PSC Temperaturen in der ersten Dezemberhälfte unterschritten. In der hier betrachteten unteren Stratosphäre folgte eine sehr kalte ungestörte mittwinterliche Phase bis in die zweite Januarhälfte. Eine Störung in der oberen Stratosphäre um den Jahreswechsel setzte sich nicht nach unten durch. Während einiger Tage dieser Periode traten die jeweils an diesem Datum tiefsten Minimumtemperaturen in der 30-jährigen Berliner Reihe auf. Ein zweiter Erwärmungsimpuls begann Mitte Januar mit einer Erhöhung der Amplitude der planetarischen Welle 1. Diese Erwärmung setzte sich bis Ende Januar in die untere Stratosphäre durch und führte zum vorläufigen Ende der PSC-Periode in der ersten Februarwoche und einer Schwächung des Wirbels verbunden mit einem deutlichen Substanzverlust Anfang Februar (Abbildung 6.7). Während der Erwärmungsphase wurde der Wirbel ungewöhnlich weit nach Sibirien abgedrängt. Der Wirbel stabilisierte sich jedoch im weiteren Verlauf wieder und begann erneut abzukühlen, so daß in der ersten Märzhälfte erneut PSC Temperaturen unterschritten wurden. Diese Phase wurde jedoch bald von der endgültigen Erwärmung beendet, die Anfang März in der oberen Stratosphäre begann und sich gegen Mitte März bis in die untere Stratosphäre durchsetzte. Die Auflösung des Polarwirbels und Umstellung auf Sommerzirkulation vollzog sich langsam während des Aprils [Naujokat et al., 1995; Naujokat und Pawson, 1996].

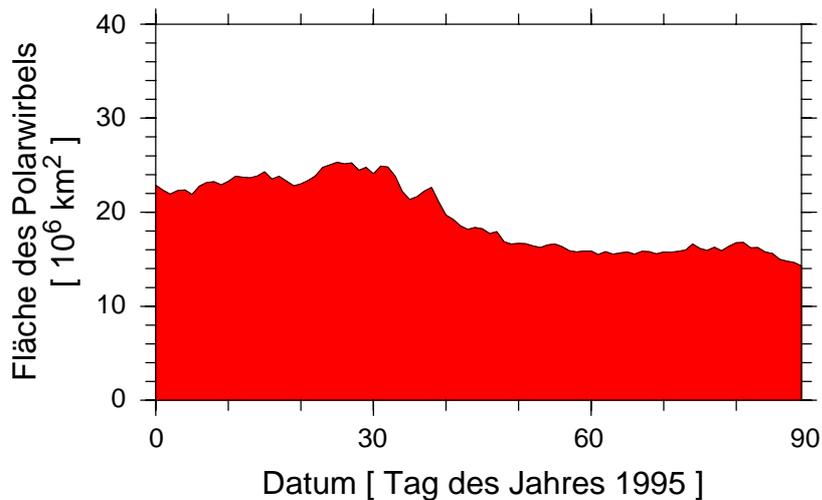


Abbildung 6.7: Fläche des Polarwirbels in der 475 K Isentrope während Januar bis März 1995.

Der Höhen-/Zeitschnitt der Bereiche mit PSC-Bedingungen während dieses ungewöhnlich kalten Winters wird in Abbildung 6.8 gezeigt. Die PSC-Periode setzte in 410-500 K in der ersten Dezemberwoche ein. Im Laufe des Dezembers wuchs die vertikale Ausdehnung der PSC-Bedingungen nach oben an und reichte kurz vor der Jahreswende bis über 600 K. Nur durch die Erwärmung um die Jahreswende im oberen Bereich kurzzeitig unterbrochen, dauerte diese Situation bis Mitte Januar an. Die Flächen mit PSC-Bedingungen gingen dann im oberen Bereich beginnend zurück und die erste PSC-Periode endete in 410 K in der ersten Februarwoche. In dieser ersten Phase waren die Flächen mit PSC-Bedingungen sehr groß und meistens deutlich vom Wirbelkern verschoben. Abbildung 6.9a zeigt ein typisches Beispiel. Die bereits erwähnte zweite PSC-Phase des Winters begann Anfang März und blieb auf den Bereich von ca. 400 K bis 480 K beschränkt. Die während dieser Phase aufgetretenen Flächen mit PSC-Bedingungen waren jedoch im Vergleich zu der ersten Phase viel kleiner. Im Gegensatz zu der früheren PSC-Phase waren die Bereiche mit PSC-Bedingungen im März nahezu konzentrisch um den Wirbelkern angeordnet (Abbildung 6.9b, 7.3.).

Abbildung 6.10a zeigt den zeitlichen Verlauf der mittleren Sonnenscheindauer pro Tag im 1995er Polarwirbel. Auffällig ist die sehr starke positive Abweichung dieser Größe vom mittleren Verlauf zwischen dem 20. Januar und dem 10. Februar. So war die mittlere Tageslänge im Wirbel bereits um den 22. Januar so lang wie am 20. Februar. Abbildung 6.10b und c zeigen die mittlere Lage des Wirbels während der ungestörten Situation vom 1. bis 10. Januar (b) und während der gestörten Lage vom 22. bis 25. Januar (c). Der Vergleich dieser Teilbilder verdeutlicht das Zustandekommen der starken Anomalie der mittleren Tageslänge durch die Verschiebung des Wirbels vom Pol und seine längliche Verformung. Die in Abbildung 6.10a eingezeichneten mittleren Tageslängen im Wirbelkern und im Wirbelrand unterscheiden sich um den 20. Januar herum nicht. Um den 28. Januar herum weisen sie dann kurzzeitig das normale Verhältnis mit längeren Tageslängen im Wirbelrand auf, welches sich vom 2. Februar an für eine längere anormale Periode bis zum 12. Februar umkehrt. Im Mittel kann also davon ausgegangen werden, daß der Wirbelkern zwischen Ende Januar und Mitte Februar 1995 nicht weniger Sonnenlicht erhalten hat als der Wirbelrand.

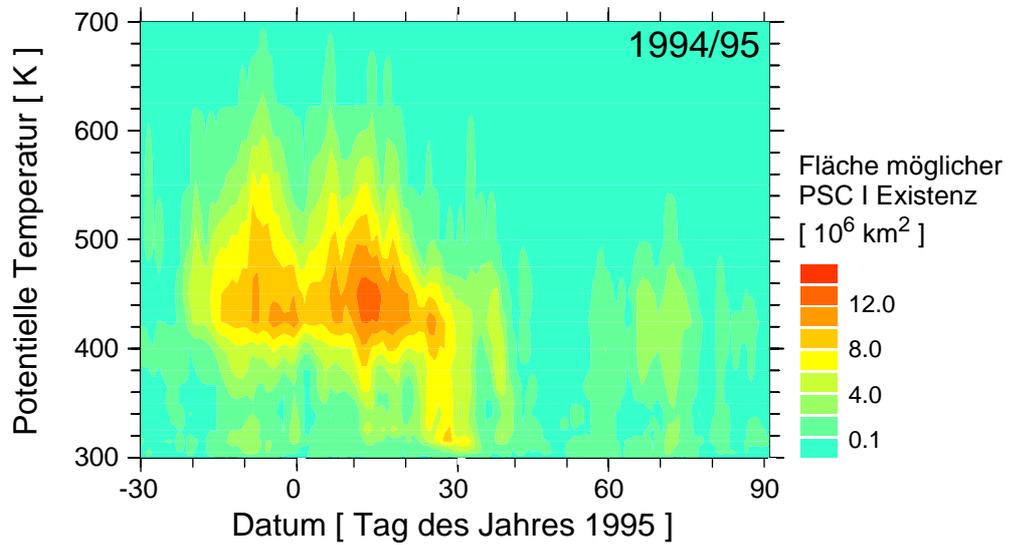


Abbildung 6.8: Höhen-/Zeitschnitt von A_{NAT} während Dezember 1994 bis März 1995.

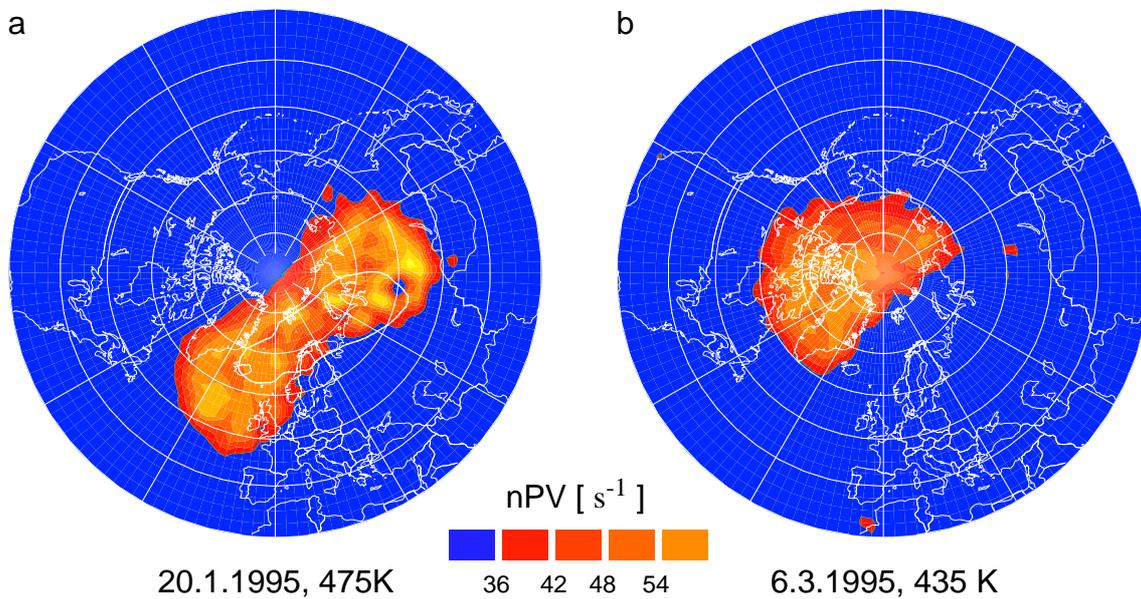


Abbildung 6.9: Karten von nPV auf der 475 K Isentropenfläche an zwei Tagen während 1995. Die Karten zeigen den Ausschnitt nördlich von $30^{\circ}N$, der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Der Bereich innerhalb des Polarwirbels ist orange dargestellt. Die Bereiche mit möglicher PSC Existenz sind mit einer dickeren weißen Linie umrandet.

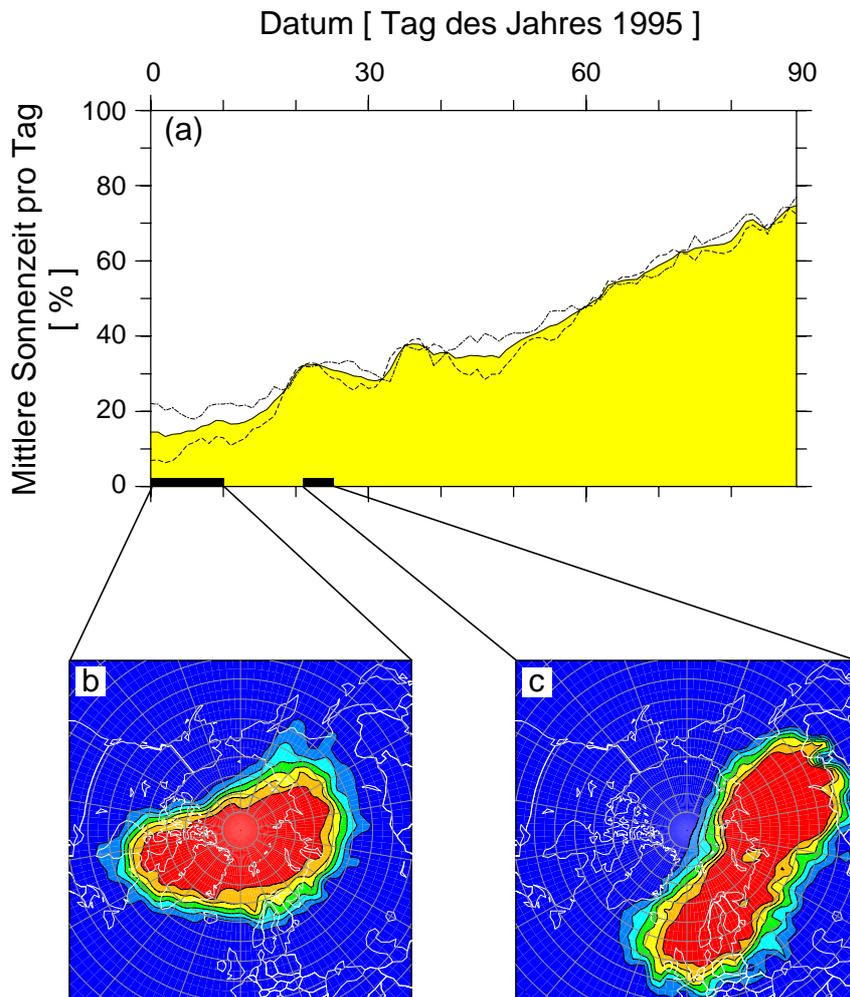


Abbildung 6.10: (a) ausgefüllte Fläche: Über den Polarwirbel gemittelte Tageslänge in Prozent von 24 Stunden während Januar bis März 1995. Gestrichelte Linie: Die gleiche Größe für die inneren 50 Flächen-% des Wirbels. Strichpunktierte Linie: Desgleichen für die äußeren 50 Flächenprozent. (b) über den ersten der in (a) durch schwarze Balken angedeuteten Zeiträume gemittelte Lage des Polarwirbels. Der Wirbelrandbereich ist in Hellgrau dargestellt. (c) wie (b) aber für den zweiten in (a) angedeuteten Zeitraum.

Das mittlere diabatische Absinken im Wirbel 1994/95 ist in Abbildung 6.11 dargestellt.

6.6.3 Winter 1995/96

Auch 1995/96 entwickelte sich der Polarwirbel bereits im Herbst stärker und kälter als normal. Der Wirbel blieb dabei während des gesamten Winters bis zum März nahezu ungestört, wenn man von zwei schwachen Stratosphärenenerwärmungen im Februar mit nur geringem Einfluß absieht. Dies ermöglichte eine fortgesetzte Abkühlung des Wirbels während des Dezembers und der ersten Januarhälfte, die um Mitte Januar extrem kalte Temperaturen verursachte. Dabei wurden über längere Zeiträume die jeweils kältesten Minimumtemperaturen der 30-jährigen Berliner Reihe gemessen. Nach einer kürzeren leichten Temperaturerhöhung im Wirbel um Ende Januar wurden Mitte Februar wiederum kurz Rekordkälten gemessen. Während des gesamten Zeitraums bis Ende Februar wuchs dabei die Fläche des Wirbels weiter an, was Ende Februar

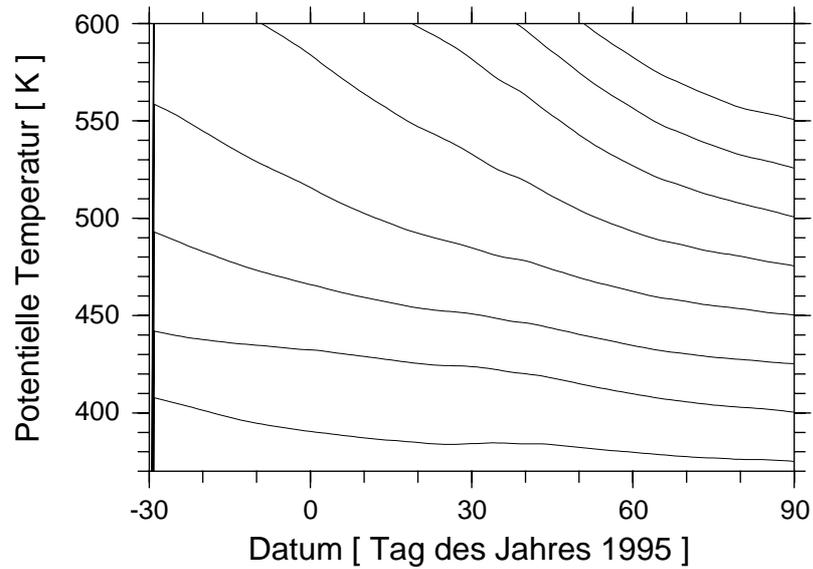


Abbildung 6.11: Über den Polarwirbel gemittelte diabatische Abstiegsbewegung der Luftmassen während Dezember 1994 bis März 1995.

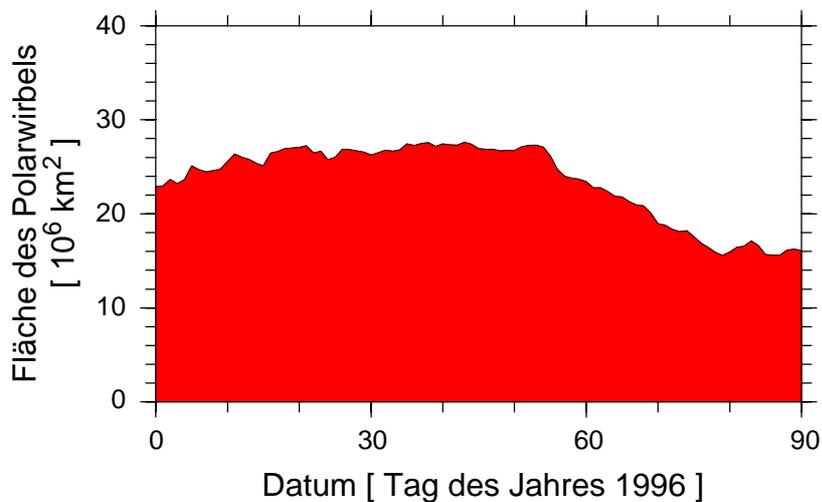


Abbildung 6.12: Fläche des Polarwirbels in der 475 K Isentrope während Januar bis März 1996.

zu einem extrem großen Polarwirbel führte (Abbildung 6.12). Anfang März setzte die Frühjahrsumstellung mit einer Stratosphärenenerwärmung ein, die jedoch durch die damit verbundenen Hebungsvorgänge bei anwachsender Baroklinität im Polarwirbel zunächst noch einmal extrem kalte Temperaturen in der ersten Märzwoche verursachte. Danach stiegen die Temperaturen im Wirbel schnell an. Die Auflösung des Wirbels vollzog sich jedoch erst im April [Geb und Naujokat, 1995; Geb und Naujokat, 1996a; Geb und Naujokat, 1996b; Geb und Naujokat, 1996c] und [Kuhlbarsch und Naujokat, 1996].

Abbildung 6.13 zeigt analog zu den Vorjahren die Bereiche mit PSC-Bedingungen. Auf den ersten Blick fällt auf, daß in diesem Jahr von den hier untersuchten Wintern die ausgeprägteste PSC-Aktivität stattfand. Auch im langjährigen Vergleich rangiert der 1995/96 Winter unter den Wintern mit den ausgeprägtesten PSC-Bedingungen [Naujokat und Pawson, 1996]. Die PSC-Periode begann Mitte Dezember ungewöhnlich hoch in 520 K. Die PSC-Bedingungen setzten sich im Verlauf des Dezembers nach unten durch. Zur Jahreswende war der gesamte Bereich zwischen etwa 420 K und 600 K mit großen Flächen möglicher PSC Existenz erfüllt. Diese Situation hielt nahezu unverändert bis Ende Januar an. Das Maximum der Fläche mit PSC-Bedingungen wurde dabei in der ersten Januarhälfte um 520 K erreicht. Nach nur kurzer Unterbrechung zum Monatswechsel setzte sich die PSC-Periode mit leicht reduzierter vertikaler Mächtigkeit zwischen 400 K und 550 K fort. Die Flächen mit möglichen PSC-Bedingungen waren dabei im Januar und Februar in den meisten Höhenbereichen so groß, daß sie schon bei leichter Verschiebung vom Wirbelkern bis zum Wirbelrand reichten. Abbildung 6.14a zeigt eine typische Situation dieser Periode. Es kann also davon ausgegangen werden, daß es im Wirbel kaum Luftmassen gab, die nicht zumindest periodisch PSC-Bedingungen ausgesetzt waren. Ende Februar reduzierte sich die Fläche mit möglicher PSC-Existenz drastisch. Kleinere Bereiche bestanden bis in die erste Märzwoche fort. Das letzte Auftreten von PSC-Bedingungen lag eindeutig im Wirbelrandbereich (siehe Abbildung 6.14b). Ab dem 11. März blieben die EZMW Temperaturen überall mindestens 4 K über der NAT Kondensationstemperatur. Ab diesem Zeitpunkt ist auch eine lokale PSC-Bildung durch lokale Temperaturfluktuationen sehr unwahrscheinlich und wäre höchstens sehr lokal im Bereich starker Leewellenaktivität noch denkbar.

Im Zuge dieses extrem kalten Winters traten auch signifikante Flächen mit PSC II Bedingungen auf. Ein Höhen-/Zeitschnitt dieser Bereiche ist in Abbildung 6.15 gegeben. Zu beachten ist die gegenüber Abbildung 6.13 geänderte Farbskala. Die längste Periode mit möglicher PSC II Bildung trat ca. vom 8.1. bis zum 27.1. in 500 K - 510 K auf.

Wie für diesen ungewöhnlich ungestörten Winter nicht anders zu erwarten, weicht die mittlere Sonnenscheindauer pro Tag im Wirbel kaum vom mittleren zeitlichen Verlauf ab (Abbildung 6.16). Dabei erhält der Wirbelrand zu allen Zeiten deutlich mehr Sonne, als der Wirbelkern.

Abbildung 6.17 zeigt das mittlere diabatische Absinken der Luftmassen im Wirbel 1995/96.

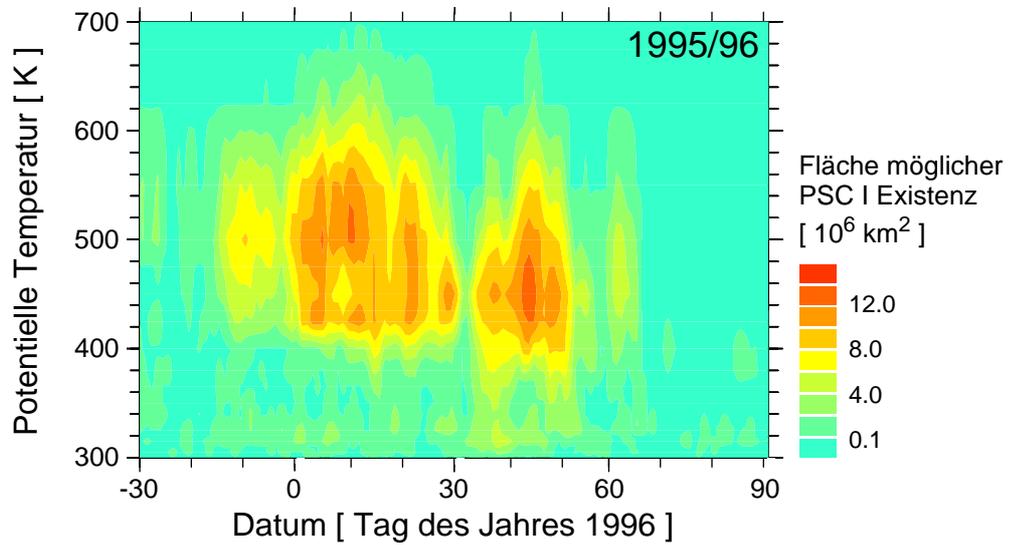


Abbildung 6.13: Höhen-/Zeitschnitt von A_{NAT} während Dezember 1995 bis März 1996.

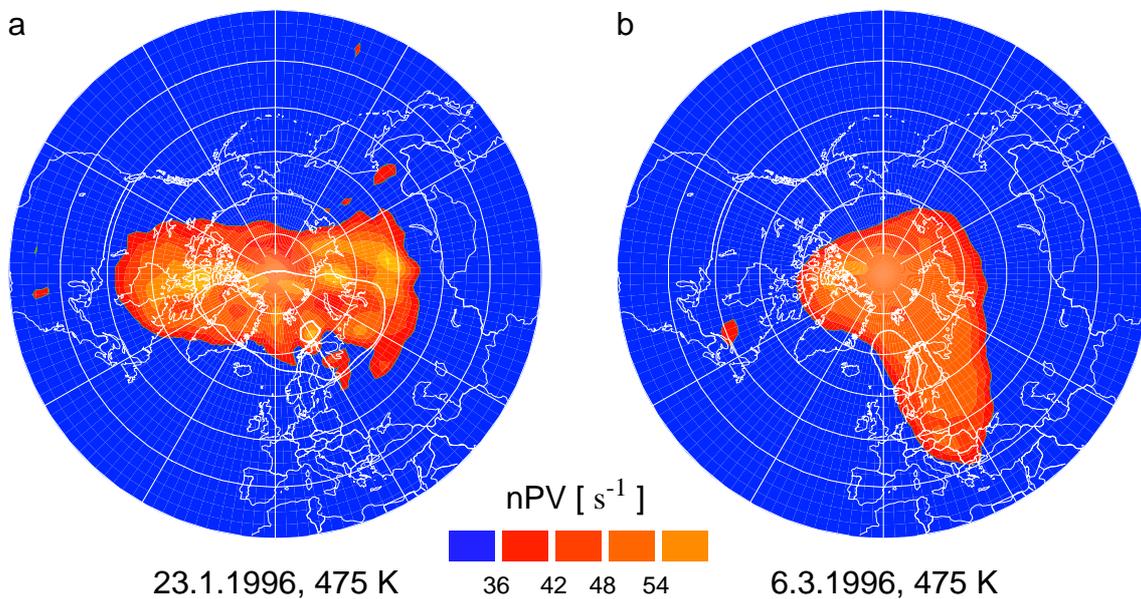


Abbildung 6.14: Karten von nPV auf der 475 K Isentropenfläche an zwei Tagen während 1996. Die Karten zeigen den Ausschnitt nördlich von $30^\circ N$, der Greenwich Meridian zeigt nach unten. Der Bereich innerhalb des Polarwirbels ist orange dargestellt. Die Bereiche mit möglicher PSC-Existenz sind mit einer weißen Linie umrandet. Die Bereiche mit möglicher PSC II Bildung sind mit einer dickeren weißen Linie angedeutet.

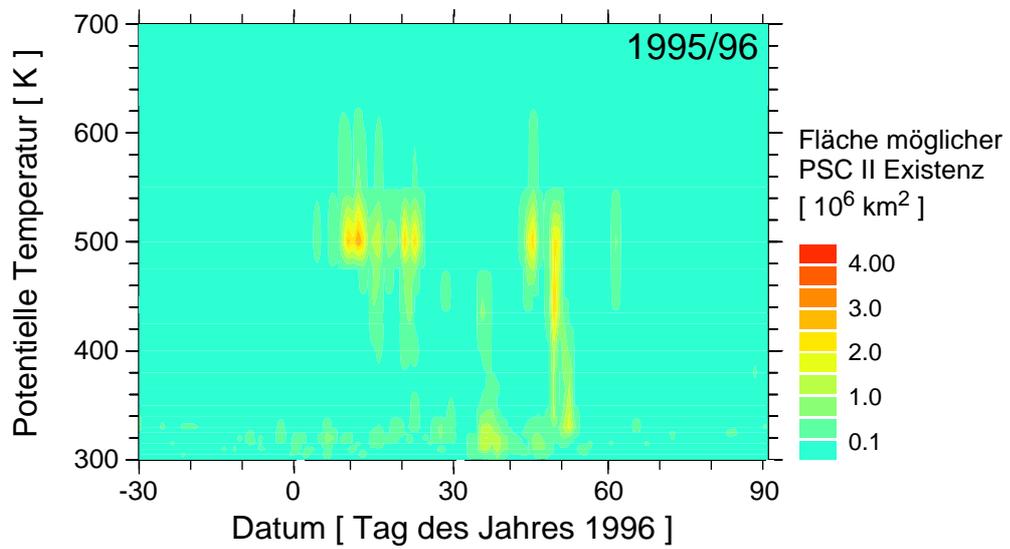


Abbildung 6.15: Höhen-/Zeitschnitt von A_{EIS} während Dezember 1995 bis März 1996.

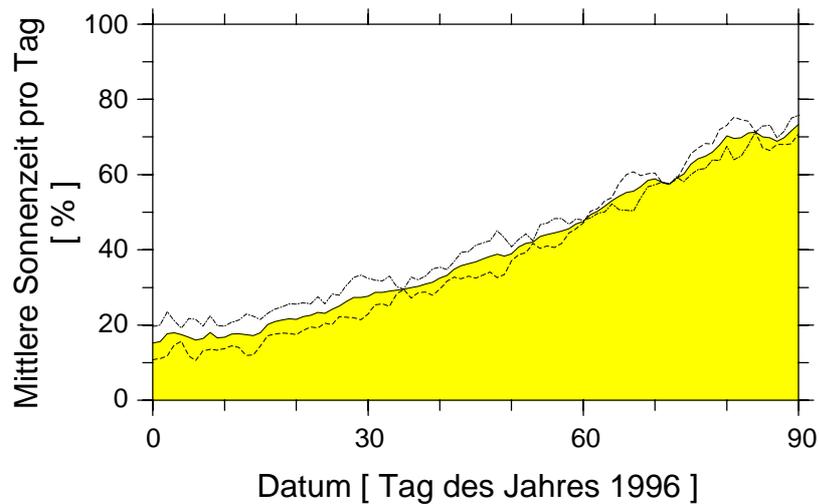


Abbildung 6.16: Ausgefüllte Fläche: Über den Polarwirbel gemittelte Tageslänge in Prozent von 24 Stunden während Januar bis März 1992. Gestrichelte Linie: Die gleiche Größe für die inneren 50 Flächen-% des Wirbels. Strichpunktierte Linie: Desgleichen für die äußeren 50 Flächenprozent.

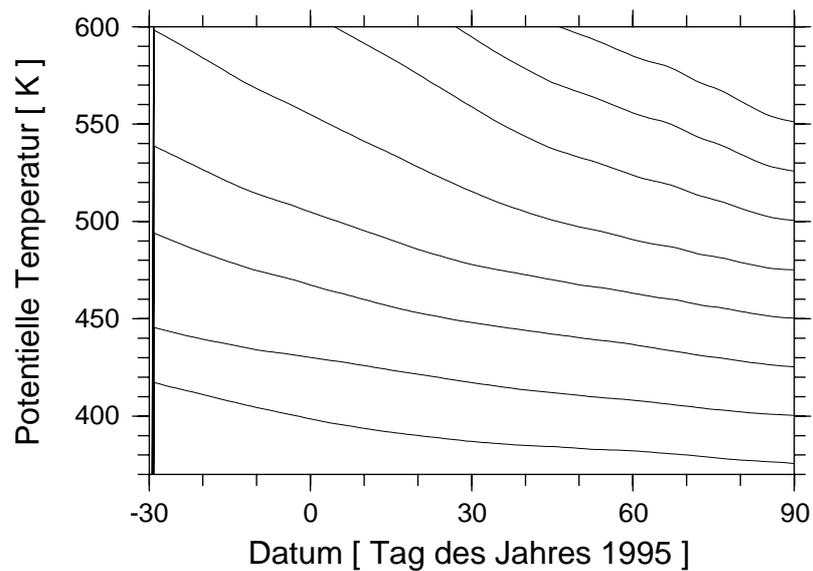


Abbildung 6.17: Über den Polarwirbel gemittelte diabatische Abstiegsbewegung der Luftmassen während Dezember 1994 bis März 1995.

Kapitel 7

Chemische Ozonverluste in den Wintern 1991/92, 1994/95 und 1995/96

7.1 Berechnung der Ozonverlustraten während sonnenbeschienener Zeiten

In diesem Abschnitt wird erläutert, wie aus dem mit den Auswahlkriterien gefilterten Satz von Matchen (Kapitel 5) chemische Ozonverlustraten berechnet wurden.

Signifikanter chemischer Ozonabbau sollte nach Kapitel 3 nur während Zeiten ablaufen, in denen das Luftpaket von der Sonne beschienen wird. Dieses Verhalten kann auch aus den Match-Daten selbst gezeigt werden, wie später in Abschnitt 7.6 gezeigt wird. Es kann demnach für jeden Match folgende Beziehung aufgestellt werden:

$$\Delta X_{O_3} = L_s \cdot t_s + e \quad (11)$$

wobei L_s die Ozonänderung pro sonnenbeschienener Zeit angibt und e den statistischen Fehler bezeichnet, der mit dem Match verknüpft ist. Dabei sind die statistischen Unsicherheiten in der Größenordnung des chemischen Ozonabbaus selbst. Ein einzelnes Match Ereignis läßt daher keine Rückschlüsse auf den chemischen Ozonabbau zu.

Eine Ableitung chemischer Ozonverlustraten wird erst möglich, wenn die Matche zu Untergruppen zusammengefaßt werden, wobei jeder Untergruppe jeweils die Matche eines eingeschränkten zeitlichen und vertikalen Intervalls angehören. Die chemische Ozonabbaurate in diesem Zeitraum und Höhenintervall ergibt sich dann aus der Statistik über alle Matche der Untergruppe:

$$[\Delta X_{O_3}]_v = L_s \cdot [t_s]_v + e_v \quad (12)$$

v indiziert die verschiedenen Matche (= verschiedenen Luftvolumina) der Untergruppe, e_v gibt den statistischen Fehler des Matches v an. Bei Ozonverlusten ist L_s negativ; es wird hier analog zu vielen anderen Arbeiten dennoch als Ozonabbaurate bezeichnet, wobei die Inkonsistenz dieser Bezeichnung mit dem Vorzeichen in Kauf genommen wird. Wird (12) für alle Matche einer Untergruppe aufgestellt, ergibt sich ein weit überbestimmtes lineares Gleichungssystem für L_s , dessen least square Lösung (Lösung, welche Summe der e_v^2 minimiert) durch lineare Regression berechnet werden kann. In [Rex,1993] wurde gezeigt, daß dynamisch bedingte Einflüsse auf das Ozonmischungsverhältnis im Luftpaket statistisch verteilt sind und somit den Erwartungswert von L_s nicht beeinflussen. Die Rate L_s wird hier also als chemisch bedingte Ozonabbaurate interpretiert. Statistisch signifikante Ergebnisse ergeben sich nur, wenn L_s auf einer Statistik über viele Matche beruht.

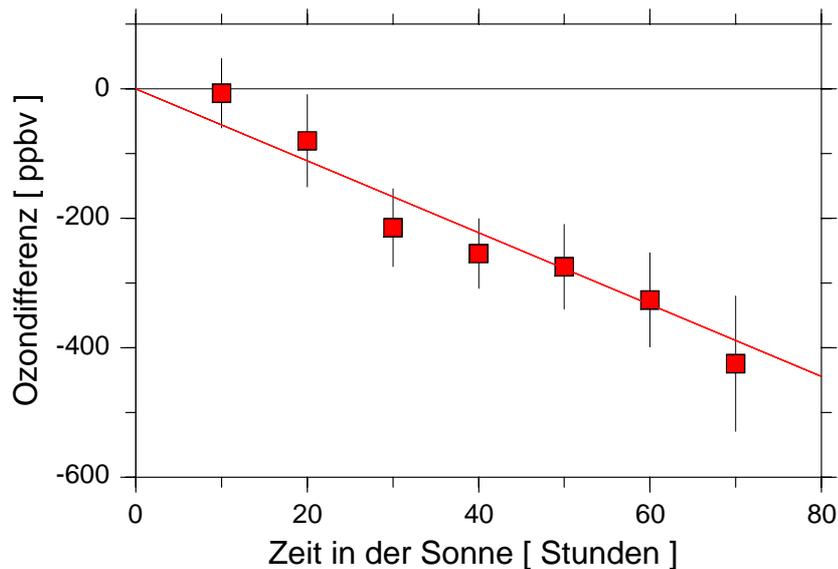


Abbildung 7.1: Differenz der beiden Ozonsondenmessungen (zweite Messung minus erste Messung) gegen die Zeit, die das Luftpaket zwischen beiden Messungen in der Sonne verbracht hat. Die eingetragenen Punkte stellen Mittelwerte dieser Differenz dar, wobei jeweils über alle Matche gemittelt wurde, die Sonnenzeiten in einem ± 10 Stunden Intervall um den jeweils auf der x-Achse angegebenen Wert aufweisen. Das Diagramm beruht auf der Untergruppe von Matchen, die zwischen dem 15. Januar und dem 10. Februar 1995 im Höhenbereich 470 bis 500 K stattgefunden haben. Die lineare Regression ergibt eine Ozonverlustrate von -5.5 ± 0.75 ppbv/Sonnenstunde. Die Fehlerbalken geben die einfache Standardabweichung an.

Die Ozonabbaurate variiert prinzipiell auch innerhalb einer Untergruppe noch räumlich und zeitlich. Daher müßte in (12) eigentlich auch L_s den Index v erhalten. L_s soll hier den Mittelwert der verschiedenen $[L_s]_v$ bezeichnen. In Abschnitt 7.6 wird untersucht, welche Voraussetzungen nötig sind, damit die Regressionsanalyse den Mittelwert der $[L_s]_v$ ergibt.

In einer Untergruppe von Matchen gibt es häufig Sondenpaarungen, die mehrmals, jeweils auf verschiedenen Niveaus, als Match vorkommen. Von allen diesen Matchen mit gleicher Sondenpaarung wurde in der Auswertung jeweils nur derjenige mit dem kleinsten Matchradius R berücksichtigt. So wurde sichergestellt, daß pro Untergruppe jede Sondenpaarung nur höchstens einmal Verwendung fand und somit die in einer Regression verwendeten Matche statistisch unabhängiger voneinander sind. Eine gewisse statistische Abhängigkeit der einzelnen Matche untereinander verbleibt dennoch, da einzelne Ozonsonden mehrmals auftreten können, wenn sie in einer Untergruppe mit mehreren verschiedenen Sonden gepaart als Match vorkommen. Wegen dieser möglichen statistischen Abhängigkeit einiger für die Regression verwendeter Punkte untereinander, können die im Folgenden gezeigten Fehlerbalken den wahren statistischen Fehler zum Teil etwas unterschätzen.

Abbildung 7.1 zeigt eine lineare Regression für eine Untergruppe von Matchen des Winters 1994/95. Wie später gezeigt wird, ist die hier verwendete Untergruppe so gewählt, daß sie den Zeitraum des maximalen Ozonverlusts dieses Winters erfaßt. Der lineare Zusammenhang zwischen Ozondifferenz und Sonnenzeit, der schon von Rex [1993] für den Ozonabbau im Jahr 1992 gefunden wurde, bestätigt sich hier sehr gut. Ähnliche lineare Zusammenhänge finden sich auch während aller anderen Zeiten und Höhenbereiche, in denen Ozonabbau festgestellt wurde.

Der Ozonabbau pro sonnenbeschienener Zeit (L_s) ist besonders geeignet, um die chemische Situation (speziell den Grad der Aktivierung des Chlors) im Wirbel zu beurteilen. Im Vergleich zum mittleren Ozonabbau pro Tag (L_t) ist er weniger davon abhängig, wieviel Sonne der Wirbel aufgrund der Jahreszeit und seiner Lage erhält. Gerade die sich schnell ändernde Lage des Wirbels kann zu schnellen Änderungen in der Rate L_t führen, auch wenn sich der Grad der Chloraktivierung nicht verändert. Allerdings hängt auch L_s bei gleicher Chloraktivierung etwas von den Beleuchtungsverhältnissen im Wirbel ab, wenn auch wesentlich schwächer als L_t . Da bei kleineren szw die aktuelle Ozonverlustrate größer ist als bei tiefen Sonnenständen, findet während gleich langer sonnenbeschienener Zeiten bei kleineren szw mehr Ozonabbau als bei großen szw statt. Dies führt bei gleichem Grad der Chloraktivierung zu größeren Raten L_s , wenn während sonnenbeschienener Zeiten der mittlere szw größer ist. Dies ist in der Regel der Fall, wenn S_{WIRBEL} größer ist. Bei einer differenzierten Interpretation von L_s muß demnach auch die Verteilung der entlang der Trajektorien aufgetretenen szw betrachtet werden.

Um bei der Angabe von L_s jeweils darauf aufmerksam zu machen, daß der Ozonabbau pro sonnenbeschienener Zeit gemeint ist, wird im Folgenden L_s in ppbv pro Sonnenstunde (ppbv/h_s) angegeben, obgleich 'Sonnenstunde' eigentlich keine physikalische Einheit ist.

7.2 Berechnung von Tagesmitteln der Ozonverlustraten

Die über den Tag gemittelte Ozonverlustrate (L_t) ist dennoch die für eine Bewertung des Ozonverlusts ausschlaggebende Größe. Speziell wenn der über einen gewissen Zeitraum akkumulierter Ozonverlust berechnet werden soll, muß über L_t integriert werden. In diesem Abschnitt wird erläutert, wie L_t in der vorliegenden Arbeit aus L_s berechnet wurde und welche Vorteile dieses Verfahren hat.

L_t wurde bestimmt, indem L_s mit der mittleren Sonnenscheindauer pro Tag multipliziert wurde, die für das jeweilige Zeit- und Höhenintervall für Luftmassen innerhalb des Polarwirbels berechnet wurde. Dazu wurde S_{WIRBEL} (vgl. Abbildungen 6.5, 6.10 und 6.16) für alle isentropen Niveaus bestimmt und entsprechend der für die Interpolation benutzten vertikalen und zeitlichen Intervalle gemittelt. Tests haben ergeben, daß im Ergebnis keine merklichen Unterschiede auftreten, wenn statt dieser Reihenfolge der Mittelung zunächst für jeden Match das bei diesem Match aufgetretene ΔXO_3 mit dem zum Zeitpunkt des Matches und im Niveau des Matches gültigen S_{WIRBEL} multipliziert wird und erst danach L_s als Regression über diese Werte berechnet wird.

Eine naheliegendere Methode, Ozonverluste pro Tag zu berechnen, wäre, L_t als least square Lösung folgenden Gleichungssystems zu berechnen:

$$[\Delta\text{XO}_3]_v = L_t \cdot [t]_v + e_v \quad (13)$$

Das tatsächlich angewendete Verfahren hat demgegenüber aber zwei wesentliche Vorteile. Da der Ozonverlust tatsächlich nur während t_s auftritt, weist der pro Flugzeit bei den verschiedenen Matches aufgetretene Ozonverlust schon allein durch die statistische Streuung von $[t_s]_v/[t]_v$ eine beträchtliche Streuung auf, selbst wenn L_s bei allen Matches gleich wäre. Diese Streuung tritt bei der Lösung von (13) als statistischer Fehler im Ergebnis auf, während sie durch das hier verwendete Verfahren das Ergebnis nicht beeinflusst. Weiterhin wird auf diese Weise der Einfluß der Stichprobe geringer gehalten. Weicht das über v gemittelte $[t_s]_v/[t]_v$ bei den beprobten Luftpaketen von S_{WIRBEL} ab, würde L_t weniger für den Wirbel repräsentativ sein, wenn es als Lösung von (13) berechnet würde. Wenn z.B. die beprobten Luftpakete im Mittel

mehr Sonne erhalten haben, als der gesamte Wirbel, würde L_t als Lösung von (13) die mittlere Ozonabbaurate im Wirbel überschätzen. Eine solche Abweichung könnte durch ein ungleichmäßiges Beprobieren des Wirbels auftreten, wenn etwa Bereiche stärker beprobt werden, in denen mehr Sonne vorhanden ist. Bei der in der tatsächlich gewählten Methode L_t zu berechnen, wird sichergestellt, daß der pro sonnenbeschienener Zeit aufgetretene Ozonverlust korrekt mit der im Mittel im Wirbel vorherrschenden Sonnenzeit pro Tag auf mittlere Ozonverluste pro Tag umgerechnet wird.

Eine Ausnahme bilden Analysen, bei denen die Unterschiede der Ozonabbaurate in verschiedenen Wirbelbereichen untersucht werden. Bei diesen Untersuchungen wurde L_t jeweils als least square Lösung von (13) berechnet, da bei dieser Analyse auch die Korrelation des Ozonabbaus mit den unterschiedlichen Tageslängen in den verschiedenen Wirbelbereichen untersucht werden sollte. Dies wäre nicht sinnvoll, wenn diese Korrelation von vorneherein als Annahme in die Analysen einfließen würde.

In den folgenden Abschnitten werden die Ozonverluste während der untersuchten Winter detailliert beschrieben. Soweit nicht anders vermerkt, handelt es sich bei allen Angaben um Ozonabbauraten bei denen über den gesamten Polarwirbel gemittelt wurde. Die Fehlerbalken und Fehlerangaben beziehen sich jeweils auf die einfache Standardabweichung. Eine gemeinsame Interpretation und Diskussion der Ergebnisse aller Winter folgt im Kapitel 8.

7.3 Der Winter 1991/92

Der Winter 1991/92 wurde schon in [Rex, 1993] behandelt. Seitdem wurde jedoch der gesamte Ozonsondendatensatz aus den Rohdaten mit einem einheitlichen Programm neu berechnet und einer einheitlichen Qualitätskontrolle unterzogen. Weiterhin wurden zusätzlich zu den in [Rex, 1993] verwendeten drei Schichten auf weiteren 8 Niveaus Trajektorien gerechnet. Die in [Rex, 1993] beschriebene Auswertung wurde mit dem homogenisierten Sondendatensatz und dem ergänzten Trajektorien datensatz nochmals durchgeführt, wobei jetzt der gesamte Zeitraum Januar bis März und der Höhenbereich 350 K bis 550 K berücksichtigt wurden. Die Ergebnisse dieser vollständigeren Auswertung werden hier mit der gegenüber [Rex, 1993] veränderten Definition des Polarwirbels dargestellt, um mit den Ergebnissen der folgenden Winter besser vergleichbar zu sein.

7.3.1 Zeitlicher Verlauf der Ozonabbaurate

Die Abbildungen 7.2 und 7.3 zeigen den zeitlichen Verlauf L_s und von L_t auf der 475 K Isentrope während Januar bis März 1992. Zusätzlich ist jeweils die Fläche möglicher PSC-Existenz (A_{NAT}) auf dieser Isentrope mit eingezeichnet. Die Ozonverlustrate stieg im Laufe des Januars schnell an und erreichte gegen Ende Januar mit $L_s = -10,1 \pm 1,3$ ppbv/h_s bzw. $L = -54 \pm 7$ ppbv/Tag ($= -1,7 \pm 0,2$ %/Tag) ein Maximum. Im Laufe des Februars fiel sie wieder auf nicht signifikante Werte ab. Während des gesamten März blieben die Werte dann unterhalb der Nachweisgrenze. Der zeitliche Verlauf der Ozonabbaurate stimmt gut mit dem Auftreten von PSC-Bedingungen überein, ist jedoch gegenüber diesem deutlich verzögert. A_{NAT} erreicht schon in der ersten Januarhälfte ihr Maximum und wird bereits nach der Erwärmung um den 20. Januar schnell kleiner. Ab Ende Januar sind dann keine PSC-Bedingungen mehr aufgetreten. Die Maxima der Ozonabbauraten, sowohl von L_t als auch von L_s , stimmen zeitlich also etwa mit dem Ende der PSC-Periode überein. Danach geht der Ozonverlust innerhalb von etwa zwanzig Tagen auf insignifikante Werte zurück.

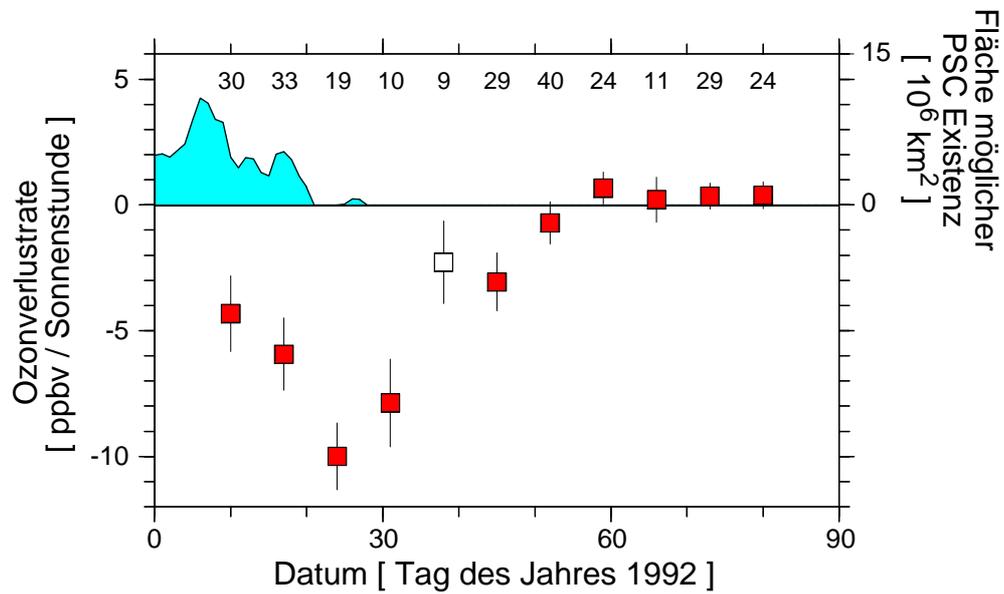


Abbildung 7.2: Zeitlicher Verlauf der Ozonabbaurate L_s im 465-485 K Höhenbereich während Januar bis März 1992. Die Punkte stellen jeweils Ergebnisse von Regressionen über Matche aus einer ± 7 Tage Umgebung dar. Am oberen Bildrand ist die Anzahl der pro Punkt verwendeten Matche vermerkt. Der Punkt, der auf weniger als zehn Matchen beruht, wurde nicht ausgefüllt. Die ausgefüllte Fläche gibt A_{NAT} auf der 475 K Isentrope an.

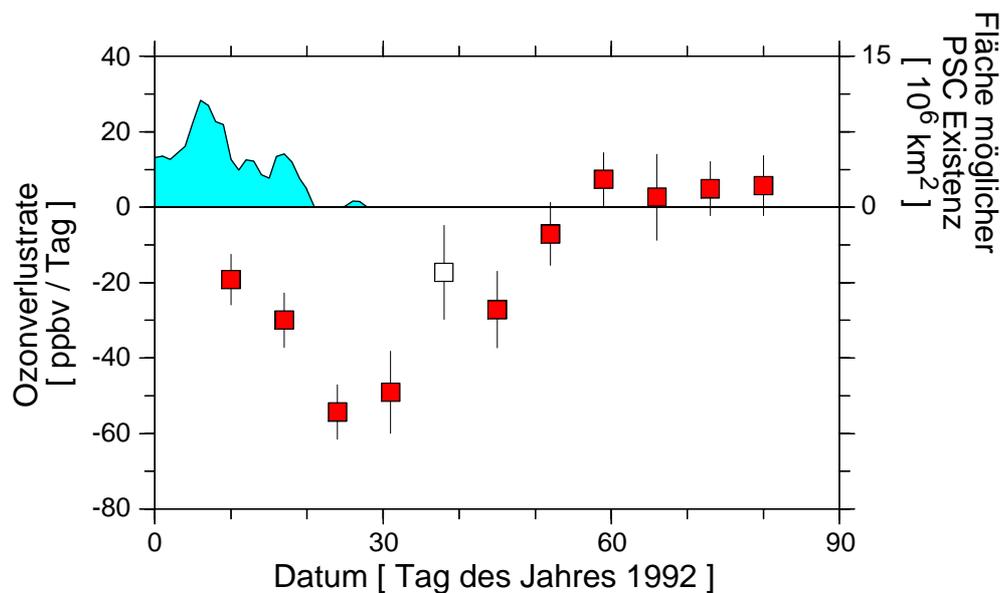


Abbildung 7.3: Wie Abbildung 7.2, aber für die Ozonabbaurate L_t .

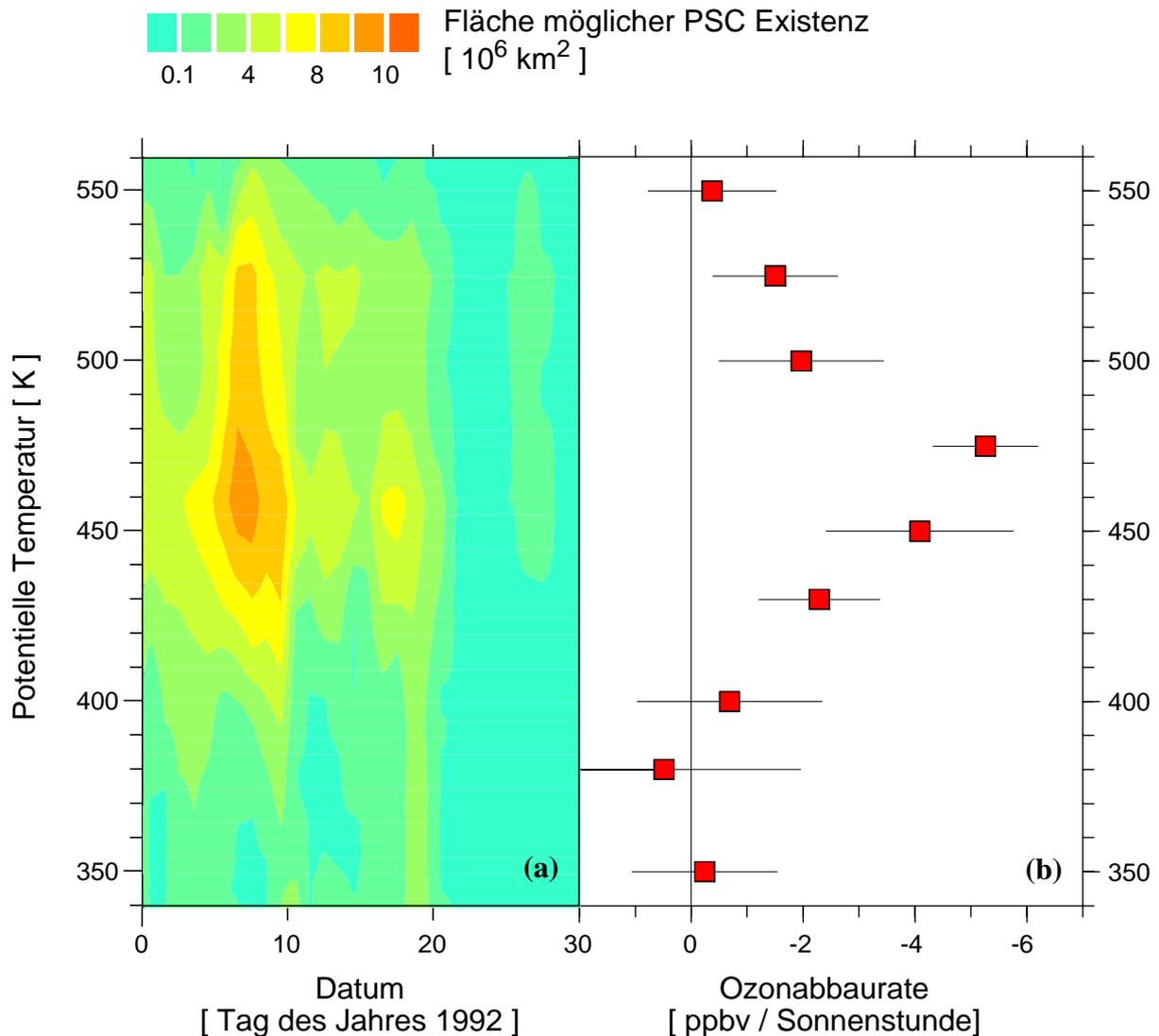


Abbildung 7.4: (a) Höhen-/Zeitschnitt von A_{NAT} während Januar 1992 (Ausschnitt aus Abbildung 6.3). (b) Profil der Ozonabbaurate L_s während des Zeitraums 1. Januar bis 9. Februar 1992.

7.3.2 Höhenprofil der Ozonabbaurate

Das Höhenprofil der Rate L_s während der Hauptabbauphase (1. Januar bis 9. Februar 1992) wird in Abbildung 7.4 gezeigt und dem Höhen-Zeitschnitt von A_{NAT} im Januar gegenübergestellt. L_s nimmt in 475 K ein ausgeprägtes Maximum an und nimmt darüber sehr schnell ab, wobei insignifikante Werte ab 550 K erreicht werden. In Abbildung 7.4 nicht gezeigt, ist ein weiterer Meßwert bei 700 K, wo ebenfalls keine signifikante Abbaurate gefunden wurde. Unterhalb von 475 K nimmt L_s kontinuierlich ab und bei 400 K und darunter wurde kein signifikanter Abbau mehr gefunden. Das Höhenprofil von L_s stimmt sehr gut mit dem Höhenprofil von A_{NAT} überein. Sowohl die Lage des Maximums von L_s trat in der Höhe auf, in der die größten Flächen mit PSC Temperaturen lagen, als auch die Ober- und Unterkante des Ozonabbaubereichs stimmen mit der oberen und unteren Begrenzung des nach EZMW Temperaturen möglichen PSC Bereichs überein. Sogar ein gewisses Plateau der Ozonabbaurate bei 500 K -

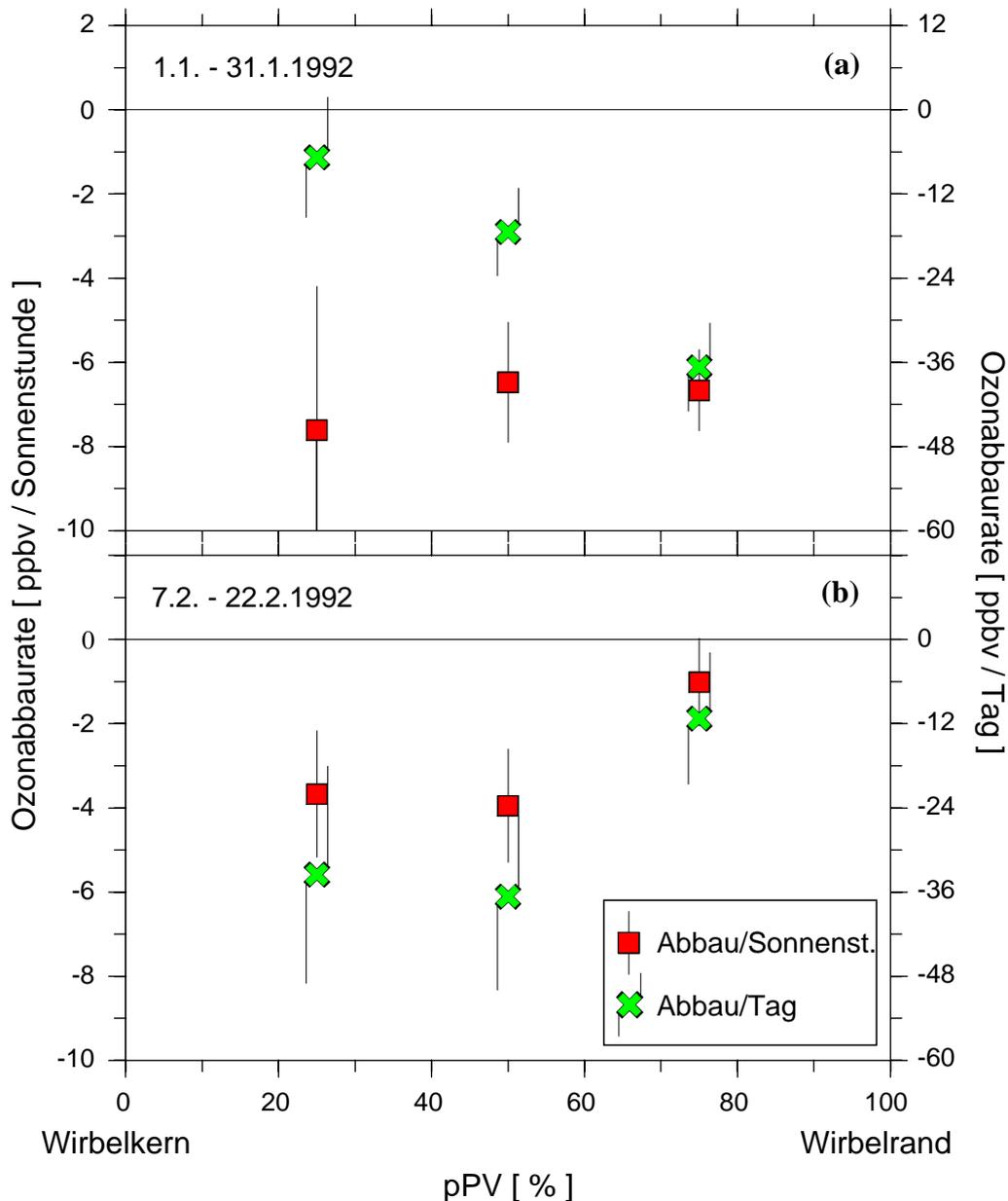


Abbildung 7.5: Die Ozonabbauraten L_s und L_t im 465-485 K Höhenbereich als Funktion von pPV während zweier Perioden des Winters 1991/92. (a) 1. bis 31. Januar vor und im Maximum des Ozonverlusts, (b) 7. bis 22. Februar während der Erholungsphase.

525 K kann man in A_{NAT} erkennen. Eine solche Übereinstimmung sollte allerdings bei Berücksichtigung der Fehlerbalken der Ozonverlustraten und der beträchtlichen Unsicherheiten, die mit der Bestimmung von PSC Bildung verbunden sind, nicht überinterpretiert werden.

7.3.3 PV-Profil der Ozonabbauraten

Abbildung 7.5 zeigt für zwei Zeiträume, wie sich jeweils der über den Polarwirbel gemittelte Ozonverlust auf den Rand und den Kern des Polarwirbels aufteilt. Wie erwähnt, wurde für diese Abbildung L_t ausnahmsweise durch Lösen von (13) bestimmt. Während des Januars ist L_s in beiden Wirbelbereichen nicht signifikant verschieden. L_t ist jedoch im Wirbelrand wesentlich

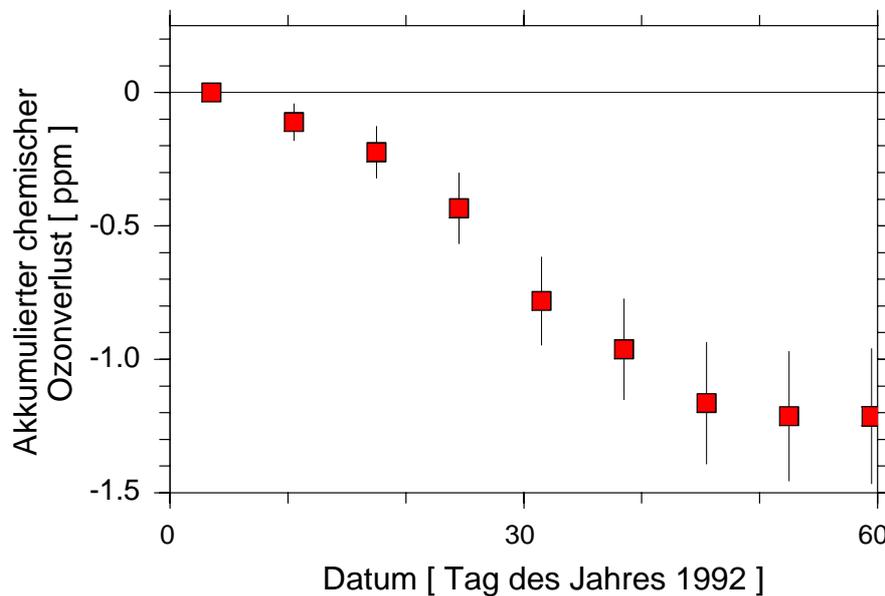


Abbildung 7.6: Akkumulierter chemischer Ozonverlust für die Luftschicht, die vom 1. Januar bis zum 29. Februar 1992 von 500 K auf 460 K absinkt.

größer als im Wirbelkern, was konsistent mit der in diesem Zeitraum dort längeren mittleren Tageslänge ist (vgl. Abbildung 6.5). Während der Erholungsphase im Februar hat sich dieses Bild deutlich verändert. L_s geht im Wirbelrand wesentlich schneller zurück als im Wirbelkern. Dieser schnellere Rückgang von L_s zusammen mit der Tatsache, daß die Unterschiede im Beleuchtungsverhältnis zwischen Wirbelrand und Wirbelkern mit der Rückkehr der Sonne abnehmen, führt dazu, daß nun sogar die täglichen Ozonverluste im Wirbelkern größer sind, als im Wirbelrand.

7.3.4 Über den Winter akkumulierter Ozonverlust

Soll das Ausmaß des Ozonabbaus bewertet werden, ist der über den Winter akkumulierte Ozonverlust die entscheidende Größe.

Für die Berechnung des akkumulierten Ozonverlusts in einer bestimmten Luftmasse muß das langsame diabatische Absinken der Luftmassen über die isentropen Flächen hinweg berücksichtigt werden. Die zeitliche Integration der Ozonabbauraten muß also entlang eines langsam absteigenden Pfades in der Theta-Datum Fläche erfolgen (siehe Abbildung 6.6). Um das zu ermöglichen, müßte zu jedem Zeitpunkt ein vollständiges Höhenprofil der Ozonabbaurate bekannt sein. Die Anzahl der Matche während des EASOE Winters läßt jedoch nur die Berechnung eines über den gesamten Zeitraum gemittelten Höhenprofils sowie zeitlich aufgelöster Ozonabbauraten in nur einer isentropen Fläche zu. Um den akkumulierten Abbau berechnen zu können, sind demnach zusätzliche Annahmen über die zeitliche Variation des Höhenprofils der Abbaurate erforderlich. Hier wird angenommen, daß die Form des Höhenpro-

filis zeitlich konstant war und nur durch die Ozonabbaurate in 475 K moduliert wurde. Mit dieser Annahme durchquerten die Luftmassen den Bereich des maximalen Abbaus im Laufe der Zeit. Das andere Extrem wäre die Annahme, daß das Höhenprofil der Abbaurate mit den Luftmassen absank und es somit eine Luftmasse gibt, die sich permanent im Maximum des Profils befand. Dieses Maximum hätte dann Anfang Januar etwas oberhalb von 475 K und Mitte Februar etwas darunter gelegen, so daß sich im Mittel über den Zeitraum ein Maximum in 475 K ergäbe. Diese Annahme wäre demnach ebenfalls mit den in Abbildung 7.4 gezeigten Meßergebnissen konsistent. Mit dieser Annahme ergäbe sich ein größerer Abbau, so daß die hier vorgestellten Werte eher als untere Grenze anzusehen sind.

Abbildung 7.6 zeigt den akkumulierten Ozonabbau für die Luftschicht, die von 500 K Anfang Januar auf 460 K Ende Februar absank. Dies ist die Luftschicht, für die der größte akkumulierte Abbau gefunden wurde. In dieser Luftschicht wurde ein über den Wirbel gemittelter chemischer Ozonverlust von $-1,2 \pm 0,2$ ppbv zwischen dem 1. Januar und dem 29. Februar 1992 berechnet. Dies entspricht einem Abbau von 34 ± 6 %, wenn es auf das mittlere Ozonmischungsverhältnis bezogen wird, welches am 1. Januar in der Luftschicht geherrscht hat. Das als Bezugsgröße verwendete mittlere Ozonmischungsverhältnis wurde als Mittel über alle Ozonsondenmessungen bestimmt, die zwischen dem 27. Dezember 1991 und dem 14. Januar 1992 in der entsprechenden Luftschicht stattgefunden haben.

7.4 Der Winter 1994/95

7.4.1 Zeitlicher Verlauf der Ozonabbauraten

Durch die im Winter 1994/95 erstmalig durchgeführte Match-Kampagne ist die Anzahl der zur Verfügung stehenden Matche in diesem Winter wesentlich größer als in 1991/92 und läßt eine deutlich detailliertere Auswertung zu. Zunächst ist in Abbildung 7.7 und 7.8 zur einfacheren Vergleichbarkeit zum Winter 1991/92 der zeitliche Verlauf von L_s und L_t sowie jeweils der von A_{NAT} ähnlich wie in den Abbildungen 7.2 und 7.3 dargestellt. Die Raten sind jeweils auf den drei isentropen Flächen 440 K, 475 K und 490 K angegeben. Im Winter 1994/95 lassen sich zwei zeitlich deutlich getrennte Phasen schnellen Ozonverlusts erkennen. Die erste Phase erstreckte sich von Mitte Januar bis Mitte Februar und fand in allen drei hier gezeigten Schichten statt, wobei die größten Raten in der obersten Schicht (490 K) auftraten. Während des zweiten Ereignisses Mitte März wurde signifikanter Ozonverlust nur in den beiden unteren Schichten (440 K und 475 K) gefunden, wobei die größten Raten in der untersten Schicht auftraten. In 475 K betrug das Maximum der Ozonabbaurate während des ersten Ereignisses: $L_s = -7,2 \pm 1,5$, $L_t = -53 \pm 11$ ppbv/Tag ($= -1,6 \pm 0,4$ %/Tag). Nur 15 K darüber, in 490 K, ergaben sich deutlich größere maximale Raten: $L_s = -9,5 \pm 1,4$, $L_t = -71 \pm 10$ ppbv/Tag ($= -2,1 \pm 0,3$ %/Tag). Für beide Ozonverlustphasen dieses Jahres galt wiederum, daß der Ozonabbau stets vom Auftreten tiefer Temperaturen eingeleitet wurde und während der Erwärmung innerhalb von etwa zwei Wochen wieder zurückging. Besonders deutlich wird dies während der zweiten Ozonverlustphase im März, wo in 490 K die PSC-Temperaturen kaum unterschritten wurden und analog dazu auch kein erneuter Ozonabbau stattfand. A_{NAT} war während dieses zweiten Ereignisses in der untersten Schicht am größten und dort fanden sich auch die größten Ozonabbauraten.

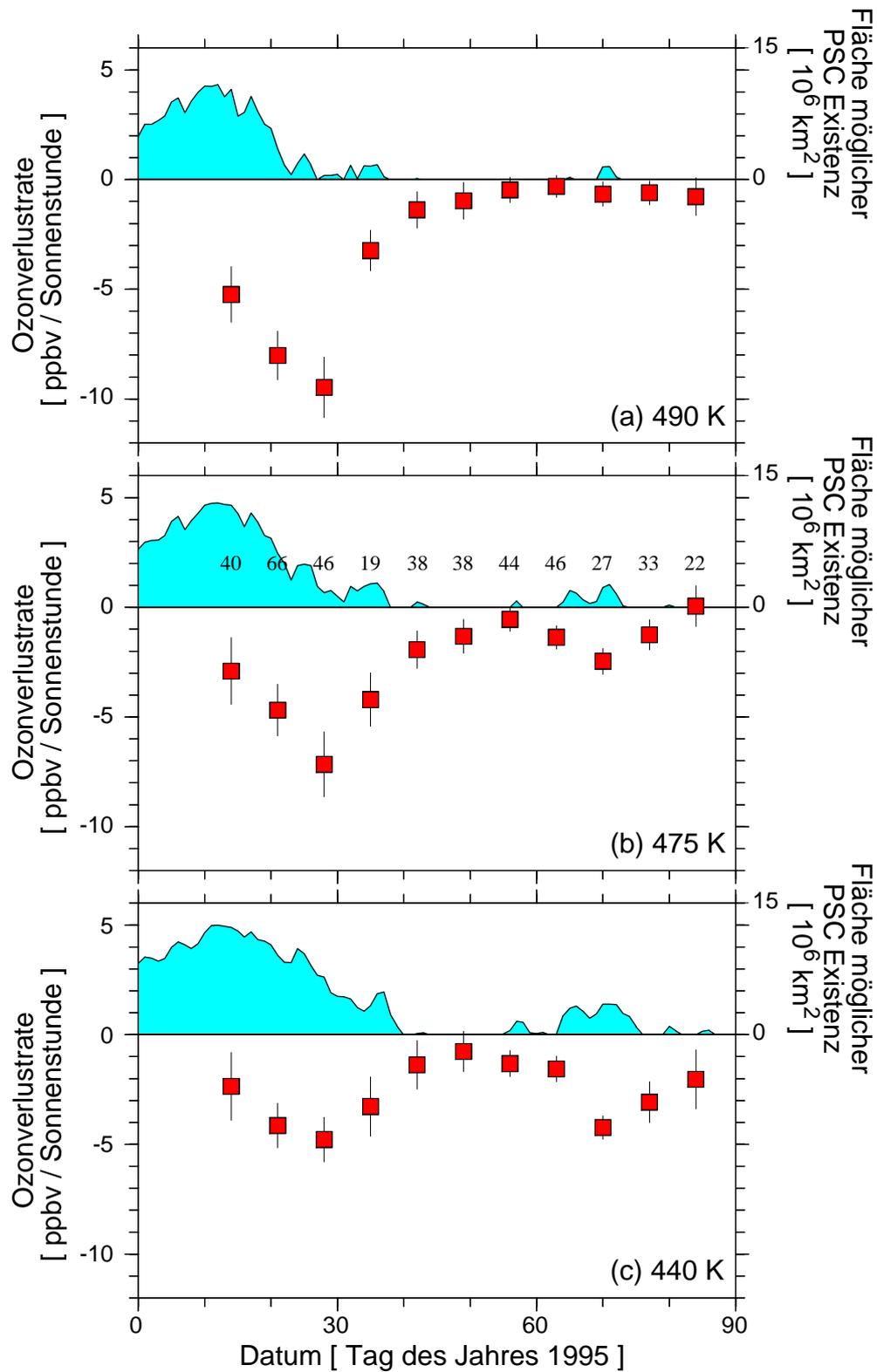


Abbildung 7.7: Wie Abbildung 7.2 für drei Höhenbereiche während Januar bis März 1995. (a) 480-500 K, (b) 470-480 K, (c) 430-450 K. Die unterschiedliche vertikale Auflösung wurde gewählt, um jeweils eine befriedigende statistische Signifikanz zu erreichen.

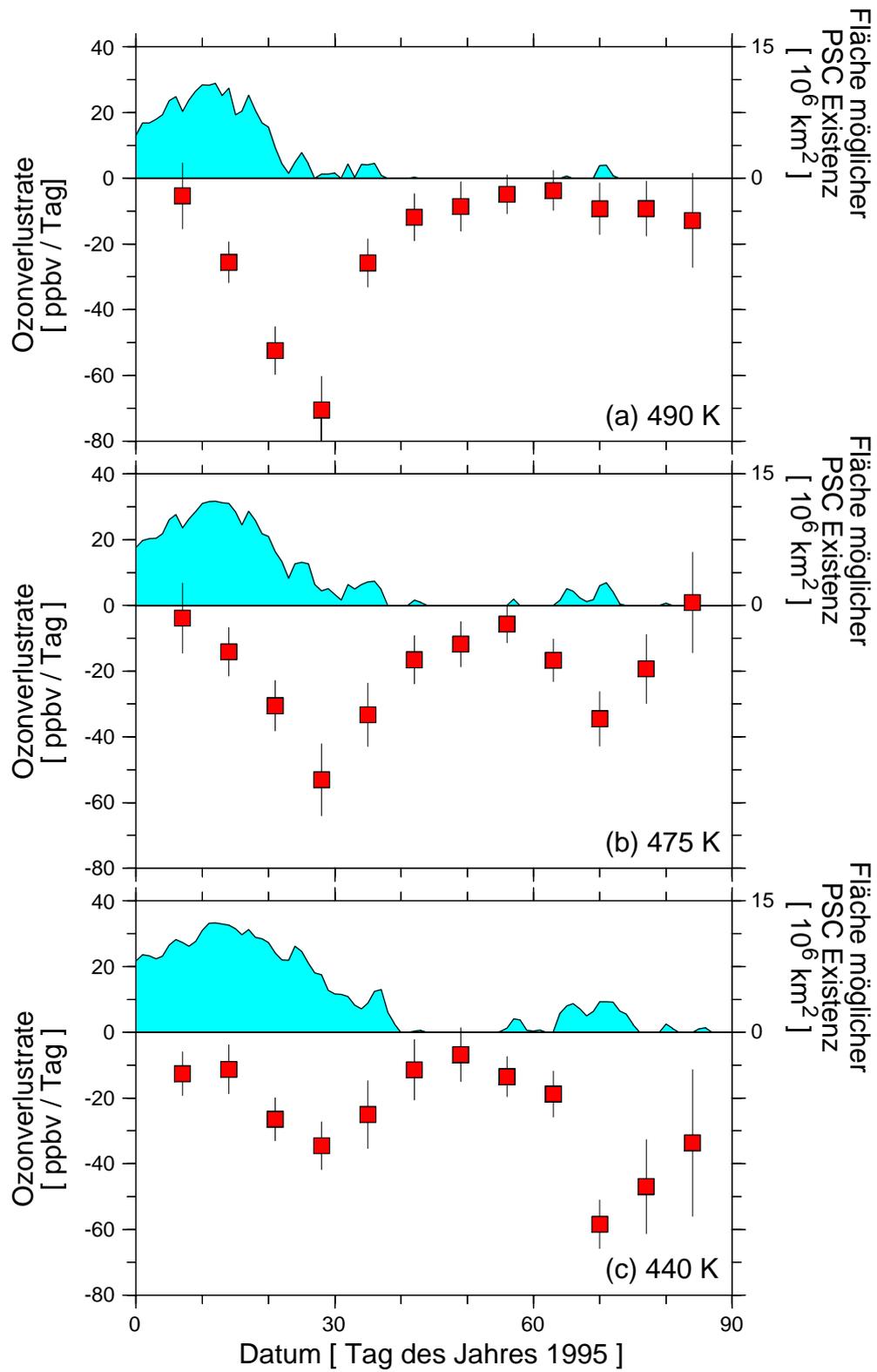


Abbildung 7.8: Wie Abbildung 7.7, aber für die Ozonabbaurate L_{r} .

7.4.2 Höhen/Zeitschnitt der Ozonabbaurate

Durch die große Anzahl von Matches kann die Ozonverlustrate in diesem Winter in kontinuierlicher Höhengauflösung angegeben werden. Abbildung 7.9a zeigt einen Höhen/Zeitschnitt von L_s . Die Abbildung beruht auf 600 linearen Regressionen über jeweils verschiedene Untergruppen von Matches, wobei jede Untergruppe Matche aus einem gewissen Zeit- und Theta-Intervall umfaßt. Die Mitten der verwendeten Intervalle sind am linken und unteren Bildrand durch Punkte angedeutet. Die verwendeten Intervallbreiten sind ± 7 Tage bzw. ± 10 K in 520 K und darunter. In 535 K und darüber wurde in der Vertikalen stattdessen eine Intervallbreite von ± 15 K verwendet. Diese Die horizontalen und vertikalen Mittelungsbereiche sind durch die beiden Kästen nahe der linken Skala illustriert. In beiden Richtungen überlappen die Intervalle benachbarter Regressionen. Es sind also sowohl in vertikaler als auch in zeitlicher Richtung gleitende Mittel dargestellt. Für die flächige, farbkodierte Darstellung wurde zwischen den Ergebnissen der Regressionen linear interpoliert.

Drei Isolinien von A_{NAT} sind zur einfacheren Orientierung mit eingezeichnet. Ein vollständiger und übersichtlicher Höhen/Zeitschnitt der möglichen PSC-Flächen findet sich in Abbildung 6.8. Weiterhin ist das über den Wirbel gemittelte diabatische Absinken der Luftmassen durch die gepunkteten Linien angedeutet. Diese Linien sind analog zu denen in Abbildung 6.11.

Der Fehler der sich aus den Regressionen ergibt, ist in Abbildung 7.10 gezeigt. Hier ist die gegenüber Abbildung 7.9a geänderte Farbskala zu beachten, die gewählt wurde, damit die Strukturen erkennbar bleiben.

In Abbildung 7.9 ist die vertikale Erstreckung der beiden Ozonverlustphasen gut zu erkennen. Während der Ozonverlustphase Ende Januar fand in der Säule von ca. 420 K bis 590 K chemischer Ozonverlust statt. Dieser vertikale Bereich stimmt gut mit dem Bereich der PSC-Temperaturen im Januar überein. Bezogen auf die hier betrachteten Ozonmischungsverhältnisse waren die Verlustraten oberhalb von 475 K deutlich größer als im Bereich darunter. Wie an A_{NAT} sichtbar, begann die Erwärmung im oberen Bereich und führte dort bereits Mitte Januar zu einem Ende der Periode mit PSC-Temperaturen. Die Erwärmung setzte sich dann im Verlauf von etwa zwei Wochen nach unten durch, so daß unterhalb von etwa 500 K die PSC-Temperaturen noch bis in den Februar hinein anhielten. Demgegenüber geht der Ozonabbau in der gesamten Säule von 420-590 K im wesentlichen gleichzeitig zurück und erreicht insignifikante Werte in den ersten Februartagen. So hält der Abbau also in 550-590 K noch ca. 10 Tage nach dem Ende der PSC-Phase an, während er in 420-500 K bereits einige Tage vor dem theoretischen Ende der PSC-Phase abklingt. Diese Unterschiede sind durch die gewählte zeitliche Auflösung der Analyse gerade noch signifikant.

Im Bereich von 380-420 K begann der Ozonverlust erst Anfang Februar, nachdem auch dort kurz größere Bereiche mit PSC-Temperaturen aufgetreten waren. Zunächst endet er in diesem Bereich bereits wenige Tage später.

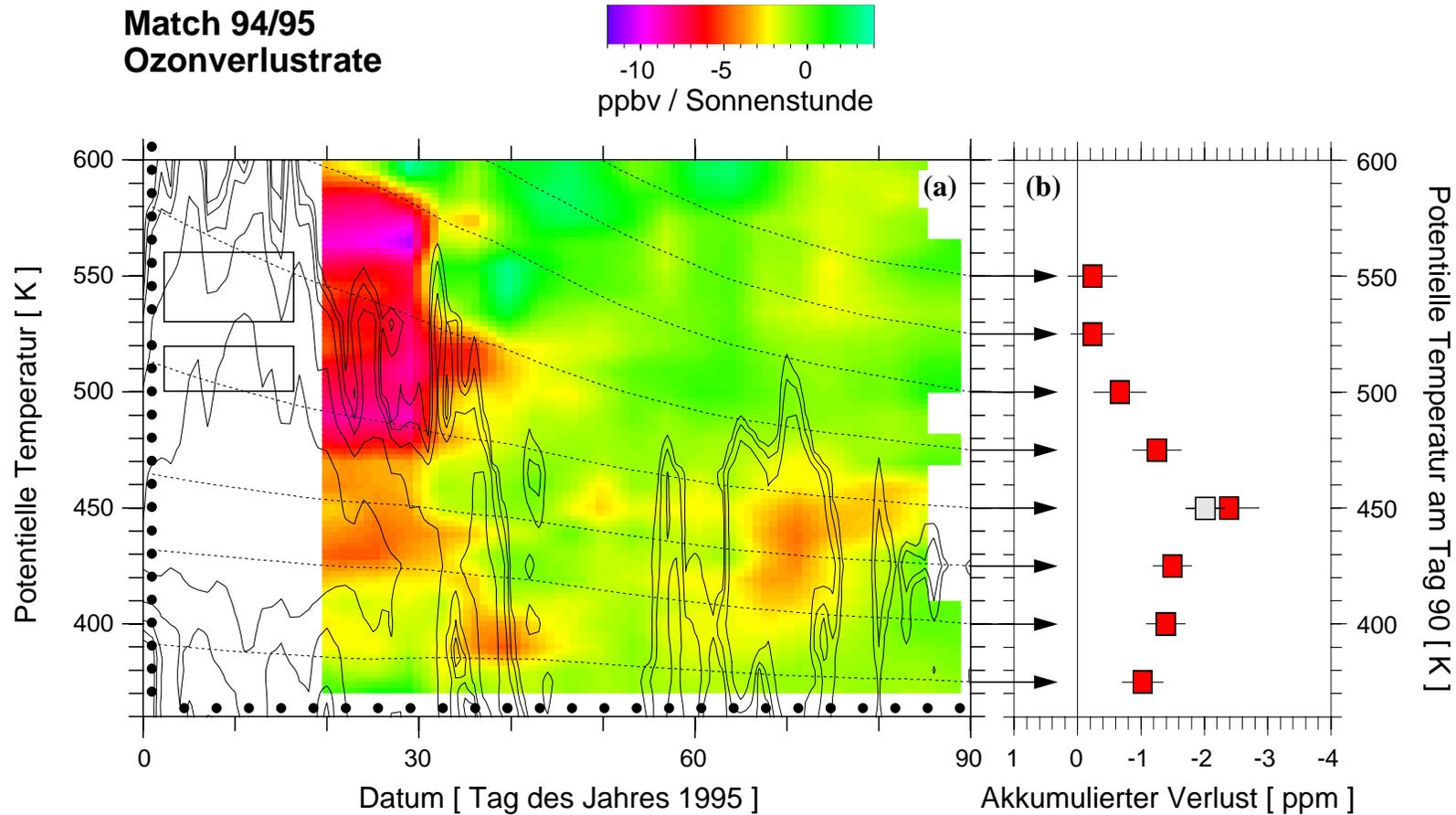


Abbildung 7.9: (a) Höhen-/Zeitschnitt der Ozonabbaurate L_s während Januar bis März 1995. Vor dem 20. Januar sind die täglichen Sonnenzeiten sehr kurz und L_s deswegen schlecht definiert. Die Abbildung beruht auf vielen Regressionen über insgesamt 1470 unterschiedliche Match Ereignisse. Die Kästen nahe der linken Skala geben die zeitliche und vertikale Auflösung an, Details siehe Text. Zusätzlich sind die $0,3$, $0,7$ und $1,5 \cdot 10^6$ km Isolinien von A_{NAT} zur Orientierung als durchgezogene Konturlinien mit eingezeichnet. Eine übersichtlichere Darstellung von A_{NAT} findet sich in Abbildung 6.8. Die gepunkteten Linien geben die diabatische Absinkbewegung im Wirbel an (vgl. Abbildung 6.11).

(b) Profil des akkumulierten chemischen Ozonabbaus zwischen 1. Januar und 31. März, welches sich aus einer Integration von L_t entlang der gepunkteten Linien in (a) ergibt. L_t ist auch vor dem 20. Januar gut definiert und wurde auch in dieser Zeit für die Berechnung des akkumulierten Abbaus verwendet (vgl. auch Abbildung 7.11). Die graue Markierung gibt den akkumulierten Ozonabbau zwischen 1. Januar und 20. März an (siehe Text).

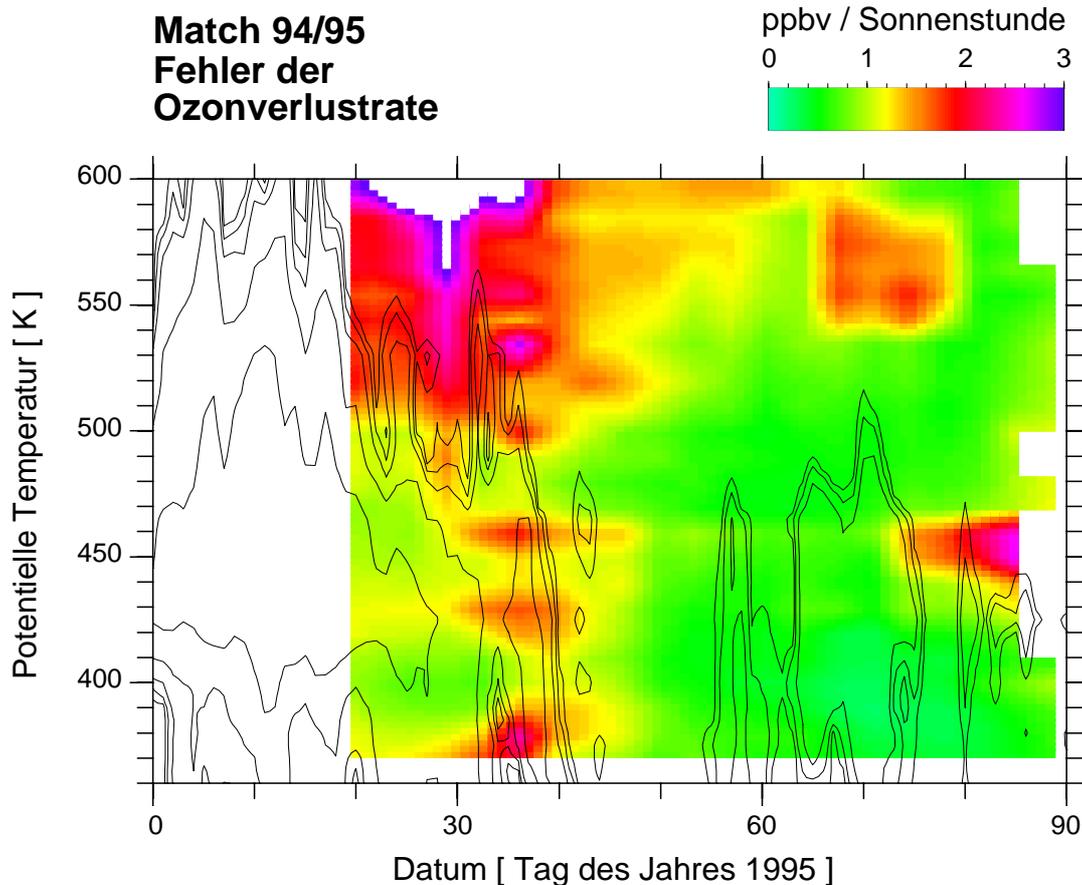


Abbildung 7.10: Zu Abbildung 7.9a gehörender statistischer Fehler der Ozonverlustrate L_s .

Die zweite Ozonverlustphase erstreckte sich von den ersten Märztagen bis etwa Mitte März. Der Ozonverlust bleibt dabei auf den Bereich von ca. 400-470 K beschränkt. Dieser Zeitraum und Höhenbereich stimmt wiederum sehr gut mit dem Bereich überein, in dem im März PSC-Temperaturen erreicht wurden. Die Rate L_s ist während dieser zweiten Phase jedoch wesentlich kleiner, als die maximalen L_s , die im Januar auftraten.

Für die Beurteilung der Auswirkungen der Ozonverlustraten sind jedoch die Raten L_t ausschlaggebend. Die Verlustrate der Ozonsäulendichte ergibt sich aus der vertikalen Verteilung der Verlustrate der Ozonkonzentration. Letztere ist in Abbildung 7.11a dargestellt, die zugehörigen statistischen Fehler sind in Abbildung 7.12 gegeben. Die Konzentration ist anders als das Mischungsverhältnis keine physikalische Erhaltungsgröße, sondern neben der chemisch bedingten Änderung der Konzentration können in einer Luftmasse auch Konzentrationsänderungen durch Expansion oder Kompression hervorgerufen werden. Um nur den chemisch bedingten Anteil der Konzentrationsänderung zu erfassen, wurde zunächst wie bisher die Verlustrate des Ozonmischungsverhältnisses bestimmt. Diese wurde dann mit zeitlich variablen mittleren Temperatur- und Druckprofilen auf die Verlustrate der Konzentration umgerechnet. Die mittleren Profile wurden aus allen im Wirbel erfolgten Ozonsondenmessungen bestimmt.

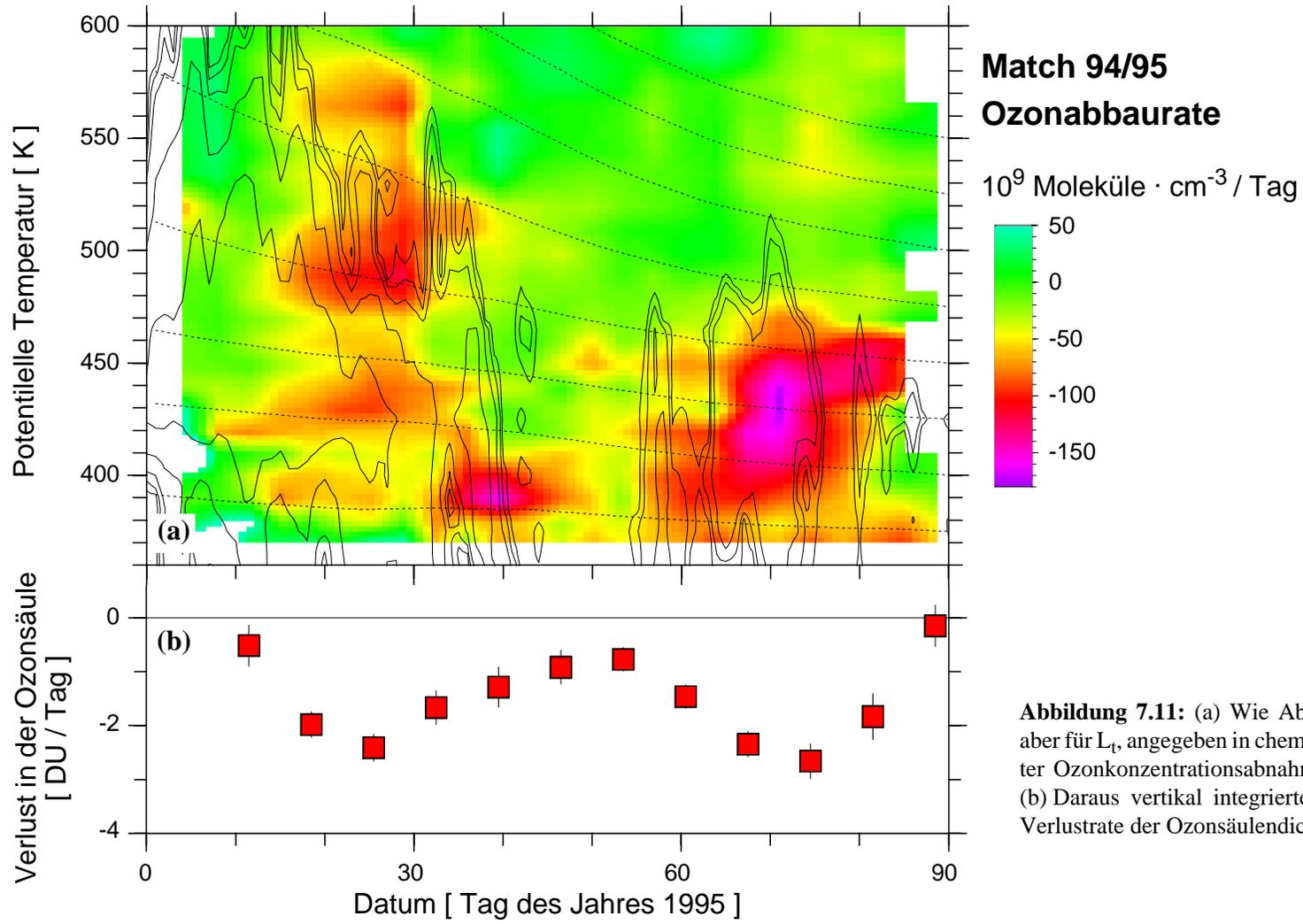


Abbildung 7.11: (a) Wie Abbildung 7.9. aber für L_{c} angegeben in chemisch bedingter Ozonkonzentrationsabnahme pro Tag. (b) Daraus vertikal integrierte chemische Verlustrate der Ozonsäulendichte.

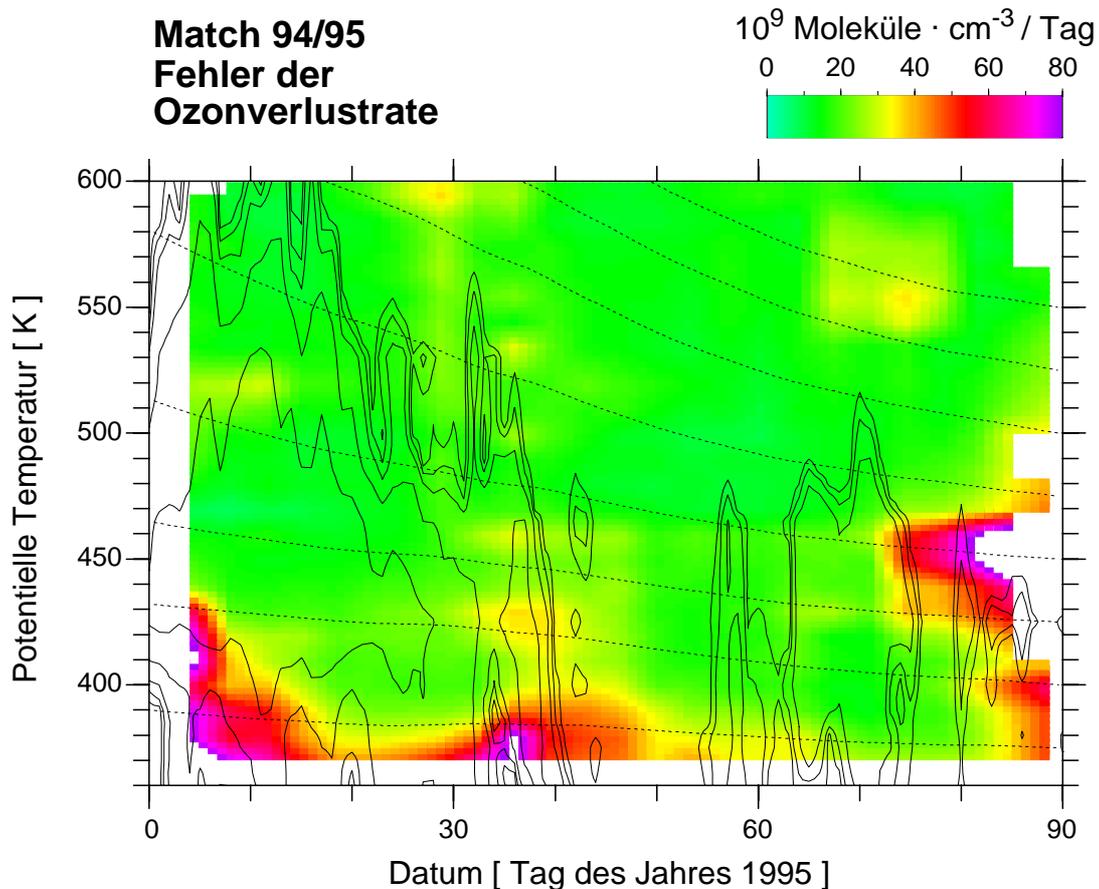


Abbildung 7.12: Zu Abbildung 7.11a gehörender statistischer Fehler der Ozonverlustrate L_t

Abbildung 7.11a zeigt, daß in diesen Einheiten in der Ozonverlustperiode im März deutlich größere Raten vorkommen, als während der früheren Verlustperiode. Das ist zum Teil durch die im März längeren Sonnenscheindauern pro Tag begründet. Ein weiterer Grund ist, daß dieser Ozonverlust weiter unten und somit im Bereich größerer Luftdichte stattfand, wo das Verhältnis Ozonkonzentration zu Ozonmischungsverhältnis größer ist.

7.4.3 Verlust in der Ozonsäule

Aus den Daten der Abbildung 7.11a wurde mit (3) die Verlustrate der Ozonsäule aufintegriert. Dabei wurde für die nötige Umrechnung von Theta auf geometrische Höhe das mittlere, zeitlich veränderliche Profil $h(\Theta)$ verwendet, welches für einige Niveaus in Tabelle 2.1 gegeben ist. Die für die Ozonsäule gefundenen Verlustraten in DU pro Tag sind in Abbildung 7.11b gegeben. Streng genommen beziehen sich diese Säulenverlusten nur auf die Säule zwischen 380 K und 600 K. Da aber weder im oberen noch im unteren Randbereich der Abbildung 7.11a noch größerer Ozonverlust beobachtet wird und auch außerhalb dieses Bereichs folglich Abbildung 6.8 das Auftreten von PSCs und damit signifikantem Ozonabbau sehr unwahrscheinlich ist, kann davon ausgegangen werden, daß diese Säulenverluste den Verlust in der Gesamtsäule gut wiedergeben.

Die beiden Ozonverlustperioden in Januar/Februar und im März haben auf den Verlust in der Ozongesamtsäule sehr ähnliche Auswirkungen gehabt. Während beider Perioden wurden Verlusten von knapp 3 DU pro Tag erreicht.

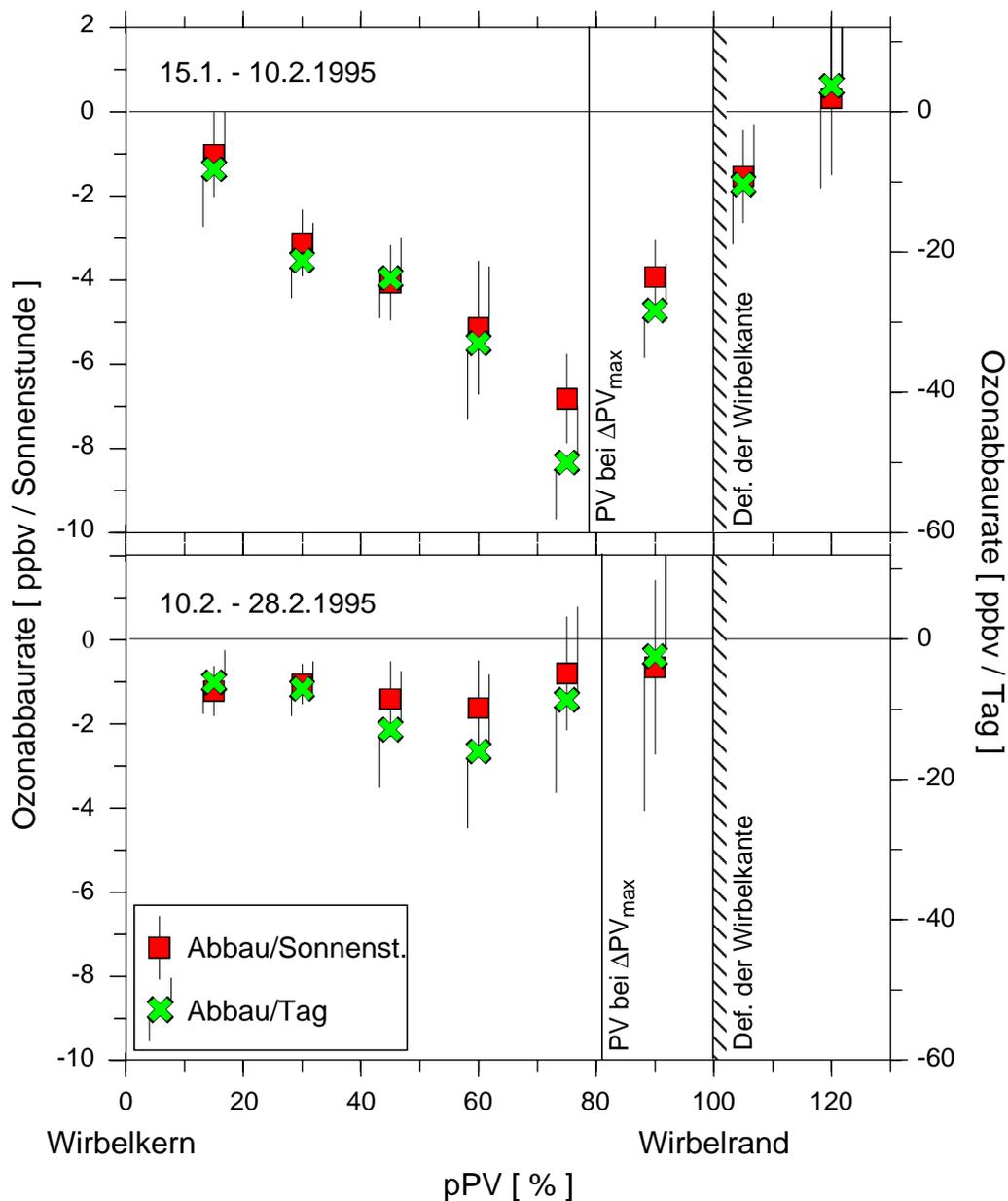


Abbildung 7.13: Wie Abbildung 7.5, aber für zwei Zeiträume im Winter 1994/95. Hier ist auch der pPV Bereich 100-130% mit dargestellt, welcher die direkte Umgebung des Wirbels darstellt. Zusätzlich ist der Bereich des größten horizontalen PV Gradientens (ΔPV_{max}) eingezeichnet.

7.4.4 PV-Profil der Ozonabbaurate

Abbildung 7.13 zeigt, wie die Ozonabbaurate während zweier Zeiträume vom Wirbelkern zum Wirbelrand hin variiert. Dargestellt sind L_s und L_t , wobei letzteres aus dem in Abschnitt 7.2 genannten Grund für diese Abbildung aus Regressionen Ozondifferenz gegen Flugzeit berechnet wurde. Während des ersten Zeitraums, der die Hauptphase des Ozonverlusts umfaßt, wurden im Wirbelrandbereich deutlich größere Abbauraten beobachtet als im Wirbelkern. Dabei unterscheidet sich die Form der beiden Kurven L_s (PV) und L_t (PV) in diesem Jahr kaum. Dies ist konsistent mit den in dieser Phase nur geringen Unterschieden der mittleren täglichen Sonnenzeiten zwischen Wirbelrand und Wirbelkern. Diese ungewöhnliche Situation ist durch die stark vom Pol verschobene Lage des Wirbels in dieser Periode begründet (siehe Abschnitt 6.6.2 und Abbildung 6.10). Im zweiten Zeitraum ist der Ozonabbau im gesamten Wirbel deutlich zurückgegangen. Die verbleibenden kleinen Abbauraten L_s zeigen keine signifikanten Unterschiede zwischen den verschiedenen Teilen des Wirbels. L_t hingegen scheint nach wie vor im Wirbelrandbereich (um 60% pPV) etwas größer zu sein als im Wirbelkern. Die Werte über 70% pPV lassen aufgrund der Länge ihrer Fehlerbalken keine Interpretation mehr zu.

In Abbildung 7.13a ist der Ring, der den Wirbel von außen umschließt, mit aufgenommen worden. Die Abbildung zeigt, das im Mittel über den angegebenen Zeitraum kein signifikanter Ozonabbau direkt außerhalb des Wirbels nachgewiesen werden konnte.

7.4.5 Über den Winter akkumulierter Ozonverlust

Auch für diesen Winter wurde der über den Winter akkumulierte chemische Ozonverlust berechnet. Da für dieses Jahr ein vollständiger Höhen-/Zeitschnitt der Ozonverlustrate berechnet werden konnte, sind dafür keine weiteren Annahmen nötig. Die akkumulierten Verluste wurden für acht mit den jeweiligen Luftmassen absinkende Flächen im Zeitraum 1. Januar - 31. März 1995 berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7.9b enthalten. Man erkennt ein deutliches Maximum des akkumulierten Verlusts in der Luftschicht, die von 510 K Anfang Januar auf 450 K Ende März absinkt. In dieser Luftschicht berechnet sich der akkumulierte Ozonabbau zu 2.4 ± 0.5 ppmv, wobei allerdings 0,4 ppmv dieses Abbaus durch die hohen Werte von L_t um 450 K in den letzten zehn Märztagen hervorgerufen werden. Gerade in diesem Bereich tritt aber auch ein sehr großer statistischer Fehler auf (vgl. Abbildung 7.12), so daß diese letzten Raten nicht signifikant sind. Die Ergebnisse der Regressionen in diesem Bereich sind auch konsistent mit der Annahme, daß L_t hier wie in den benachbarten Niveaus bis zum 20. März auf Null zurückgegangen ist. Dies liegt bei Berücksichtigung von A_{NAT} nahe. Da der tatsächliche zeitliche Verlauf von L_t nach dem 20. März aus den Daten nicht geklärt werden kann, ist der oben angegebene akkumulierte Abbau nicht gesichert, was sich auch in seinem relativ großen Fehlerbalken widerspiegelt. Statt dieses Werts soll hier der akkumulierte Abbau zwischen Anfang Januar und dem 20. März betrachtet werden. Dieser betrug $2,0 \pm 0,3$ ppmv. Der Verzicht auf die letzten zehn Tage ermöglicht einen deutlich reduzierten Fehlerbalken. Unter der Annahme, das L_t sich in 450 K wie in den Nachbarniveaus verhalten hat, gibt dieser Wert auch den akkumulierten Abbau bis Ende März an. Er ist zusätzlich in Abbildung 7.9b als graue Markierung eingetragen. Dieser Abbau entspricht etwa 59 % des mittleren Ozonmischungsverhältnisses, welches Anfang Januar in der Luftschicht herrschte. Abbildung 7.14 zeigt den zeitlichen Verlauf des akkumulierten Ozonverlusts in dieser Luftschicht.

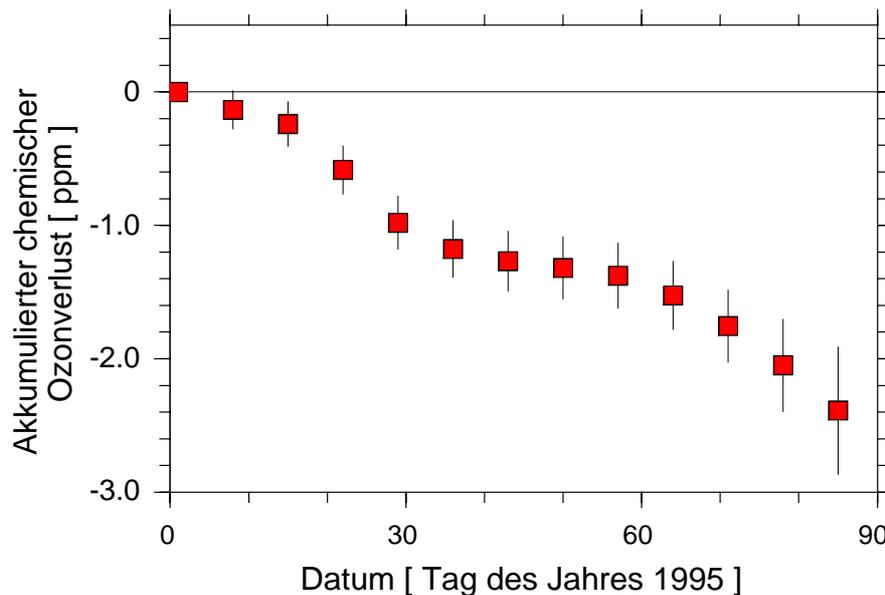


Abbildung 7.14: Wie Abbildung 7.6 für die Luftschicht, die von 507 K am 1. Januar bis 450 K am 31. März 1995 absinkt.

Der chemische Verlust in der Ozongesamtsäule akkumuliert über den Winter zu 127 ± 14 DU. Die mittleren Ozonsäulendichten im Polarwirbel betragen Anfang Januar 1995 etwa 350 DU. (Abbildung 3.8 und [Goutail et al., 1997]). Bezogen auf diesen Wert entspricht der angegebene Verlust 36 ± 4 %.

7.5 Der Winter 1995/96

Im Winter 1995/96 wurden durch die geringere Anzahl an verwendeten Sonden deutlich weniger Matche als 1994/95 erzielt. Aus diesem Grund muß die Auswertung auf einen kleineren Höhenbereich beschränkt bleiben und die zeitliche Mittelung auf ± 10 Tage vergrößert werden, um statistisch signifikante Ergebnisse zu erhalten.

7.5.1 Höhen/Zeitschnitt der Ozonabbaurate

Abbildung 7.15 zeigt den Ozonabbau im Bereich zwischen 410 K und 530 K. Diese Abbildung ist analog zu Abbildung 7.9 erzeugt, nur daß, wie erwähnt, die zeitliche Auflösung etwas schlechter gewählt wurde. Zusätzlich zu A_{NAT} (dünne Konturlinien) sind in der Abbildung auch die Bereiche mit möglicher PSC II Existenz A_{EIS} (dicke Konturlinien) eingetragen. Die statistischen Fehler zu Abbildung 7.15 sind in Abbildung 7.16 enthalten. Abbildung 7.17 zeigt die Ozonverlustrate in Ozonkonzentration pro Tag (analog zu Abbildung 7.11) und Abbildung 7.18 die dazu gehörigen statistischen Fehler.

Generell läßt sich auch 1995/96 wieder das bereits aus den hier untersuchten Vorwintern bekannte Verhalten der Ozonverlustrate erkennen. In Übereinstimmung mit den ausgedehnten Bereichen mit PSC I Bedingungen findet man im Januar wieder schnelle Ozonabbauraten. Die Werte sind vergleichbar den jeweils im Januar in den untersuchten Vorjahren aufgetretenen Abbauraten. Der Ozonabbau dauert auch in diesem Jahr bis zum Ende der PSC Periode an und geht in den meisten Höhenbereichen danach sehr schnell auf insignifikante Werte zurück.

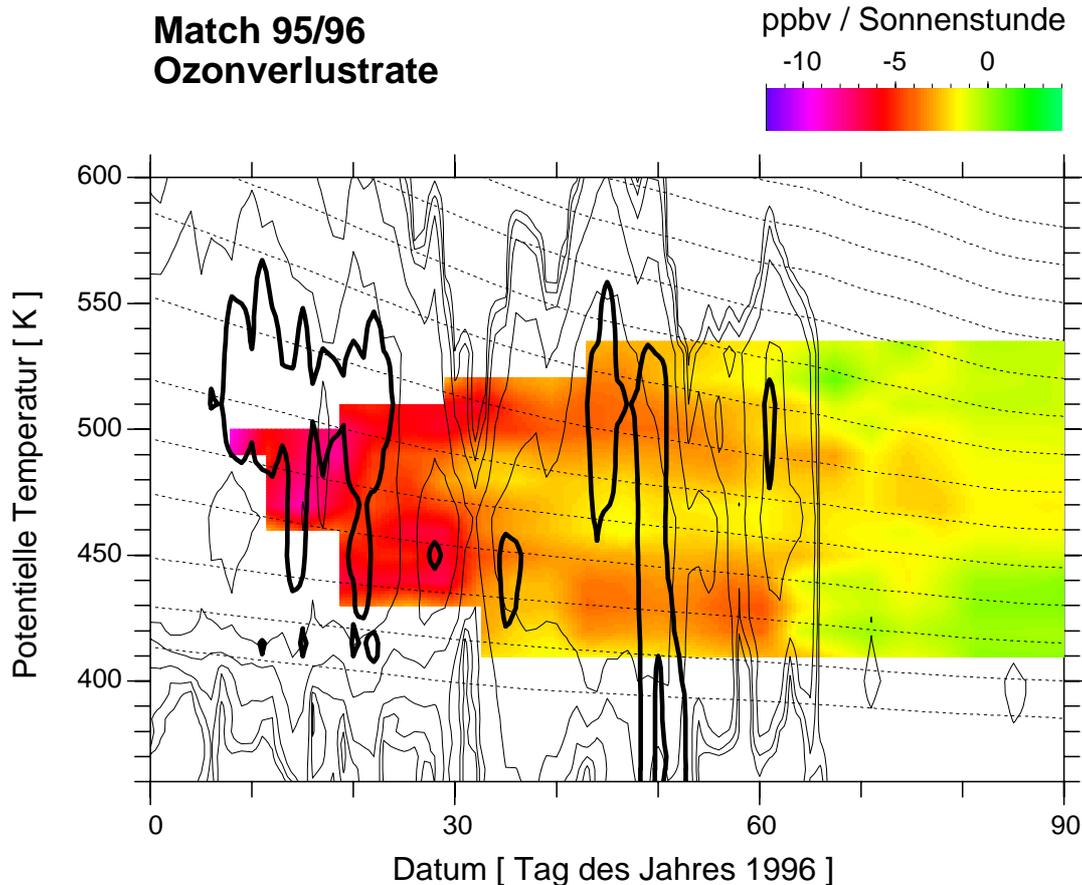


Abbildung 7.15: Wie Abbildung 7.9a für Januar bis März 1996. Zusätzlich gibt die dickere schwarze Konturlinie die $0,3 \cdot 10^6 \text{ km}^2$ Isolinie von A_{EIS} an.

Zusätzlich zu diesem bereits aus den Vorjahren bekannten generellen Verhalten findet man jedoch in diesem extrem kalten Winter drei zunächst überraschende weitere Effekte:

1. In einem schmalen vertikalen Bereich um 470 K hält der Ozonabbau nach dem Ende der PSC-Periode in den ersten Märztagen bis in den April hinein an. Dabei geht L_s im März nur noch leicht zurück, während L_t sogar bis zum Ende der Kampagne am 15. April auf konstantem Niveau andauert. Dieser Effekt ist besonders deutlich in der Luftschicht, die von 545 K Anfang Januar auf 470 K Ende März absinkt. Die Ozonverlustraten L_s und L_t für diese Luftschicht sind in Abbildung 7.19 dargestellt.
2. Im gesamten Höhenbereich nimmt die Ozonabbaurate L_s bereits im Februar ab, obwohl A_{NAT} sich bis Ende Februar kaum ändert. Um diesen Effekt zu verdeutlichen, ist in Abbildung 7.20 L_s auf einer Fläche dargestellt, die mit einer Luftschicht von 490 K Anfang Januar auf 440 K Ende März absinkt.
3. In einem schmalen Band um etwa 465 K ist die Abnahme von L_s im Februar schneller als in den darüber und darunter liegenden Niveaus. Die schnellere Abnahme von L_s erfolgt demnach in der Luftmasse direkt unterhalb der Luftschicht in welcher im März verlängerter Ozonabbau beobachtet wird.

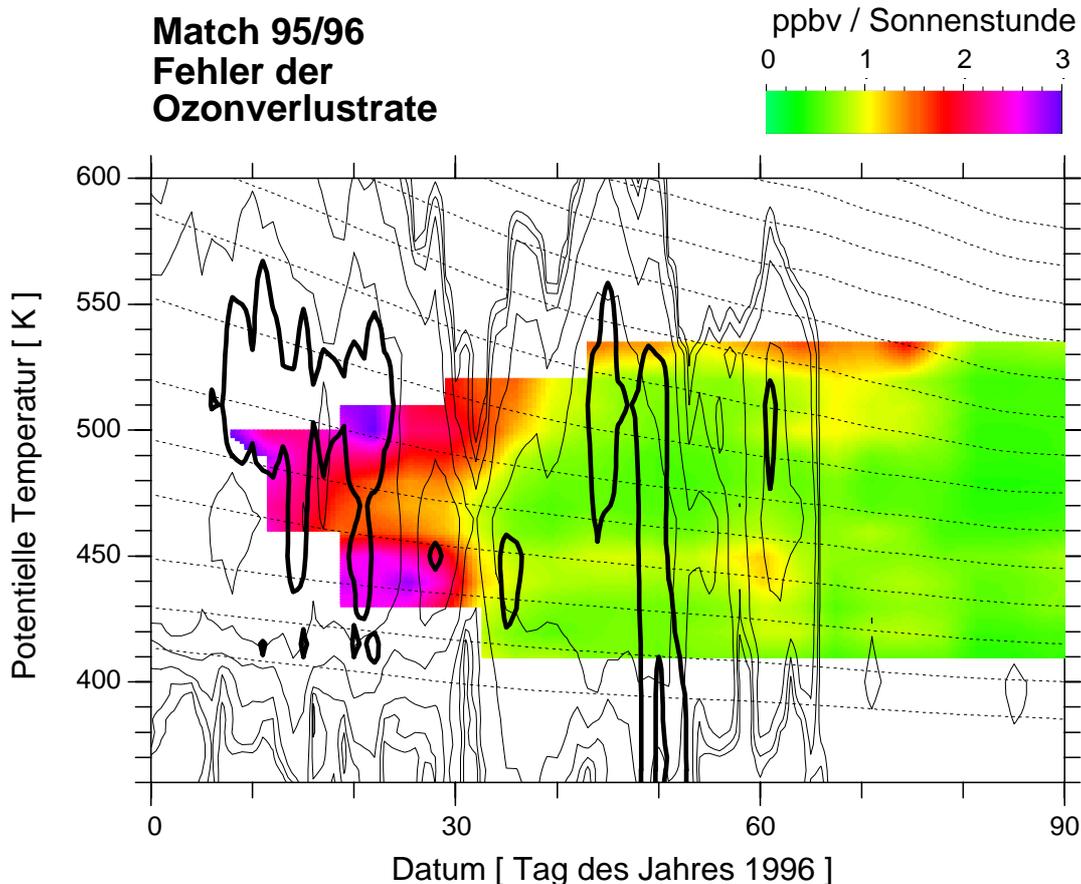


Abbildung 7.16: Zu Abbildung 7.15a gehörender statistischer Fehler der Ozonverlustrate L_s .

7.5.2 PV-Profil der Ozonabbaurate

Abbildung 7.21 zeigt die Ozonverlustraten L_s und L_t (in dieser Abbildung wieder als Regression der Ozondifferenzen über die Flugzeiten berechnet) in den verschiedenen Bereichen des Polarwirbels während der Phase maximaler Raten und während der Erholungsphase danach. Um beide Graphen besser vergleichen zu können, ist das L_s der früheren Phase im unteren Bild nochmal durch nicht ausgefüllte Markierungen wiederholt. Man erkennt so sehr deutlich, wie während der Erholungsphase L_s vom Wirbelrand her abnimmt.

7.5.3 Über den Winter akkumulierter Ozonverlust

Abbildung 7.22 zeigt den akkumulierten Ozonverlust in der von 545 K auf 440 K absinkenden Fläche sowie die zeitliche Entwicklung des mittleren Ozonmischungsverhältnisses auf der gleichen Fläche. Dies ist die Luftschicht in welcher der verlängerte Ozonabbau (oberer Punkt 2.) gefunden wurde. Der vom 20. Januar bis zum 10. April akkumulierte Verlust beträgt in dieser Luftschicht $2,4 \pm 0,3$ ppmv, was etwa 75 % des Ozonmischungsverhältnisses vom 20. Januar entspricht. Hier muß eine Anmerkung zur Verwendung von Prozentzahlen für akkumulierten Ozonverlust gemacht werden. Da in dem betrachteten Zeitraum Ozon in den Wirbel eingemischt wird, ist es nicht ganz klar, worauf die prozentuale Angabe bezogen werden sollte. Wird

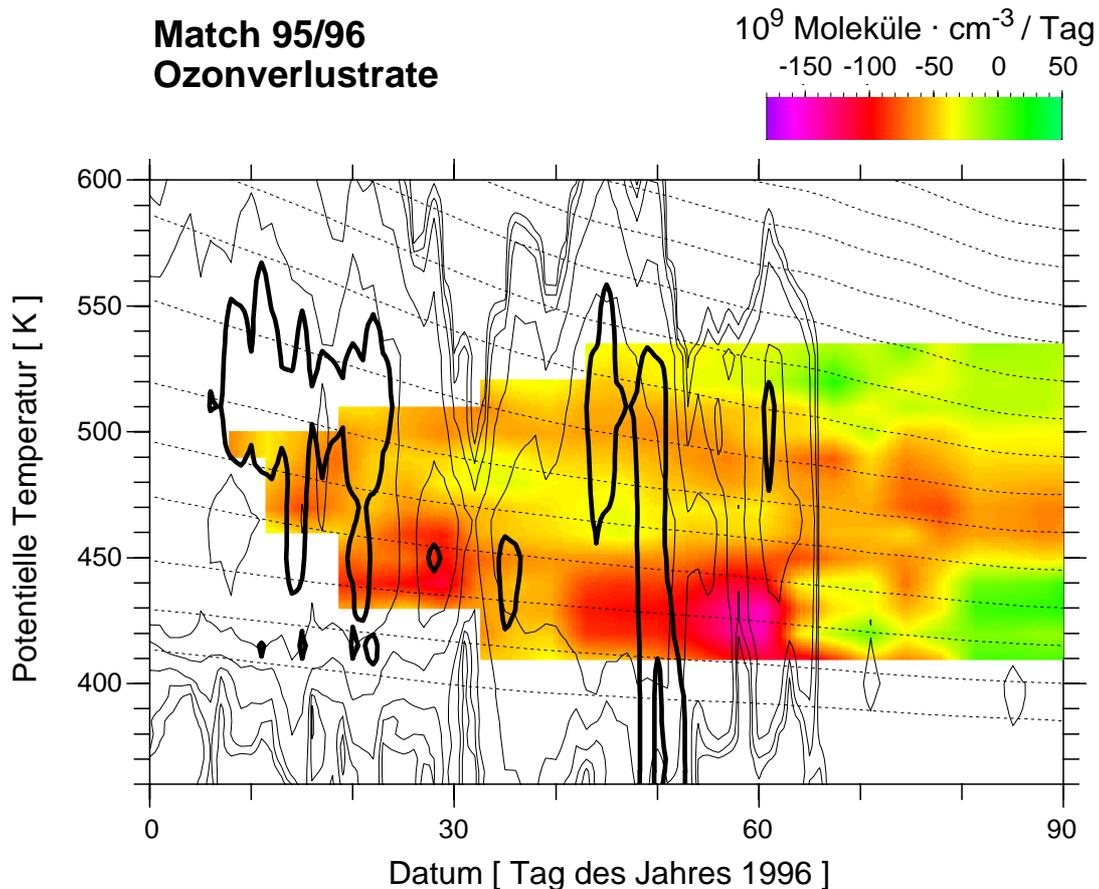


Abbildung 7.17: Wie Abbildung 7.15 aber für L_t , angegeben in chemisch bedingter Ozonkonzentrationsabnahme pro Tag.

sie bezogen auf das Ozonmischungsverhältnis, welches sich zu Beginn des Zeitraums in der Luftschicht befand, können theoretisch prozentuale Verluste von über 100 % vorkommen. Statt dieser zunächst naheliegenden Bezugsgröße ist es sinnvoller, die prozentualen Verluste auf die Summe des anfangs vorhandenen Ozons zuzüglich der während des Zeitraums eingeströmten Menge zu beziehen. Bei oberflächiger Betrachtung gibt das Ergebnis dann den Ozonverlust in Prozent der Ozonmenge an, die am Ende des Zeitraums vorliegen würde, wenn kein Ozonverlust stattgefunden hätte. Bei genauerem Hinschauen stimmt dies jedoch nicht, da die diffusive Einmischung von Ozon in den Wirbel erst durch das vom Ozonverlust hervorgerufene Ozonminimum im Wirbel verursacht wird. Die Menge des eingemischten Ozons läßt sich aus der am 10. April vorliegenden Differenz der beiden Kurven in Abbildung 7.22 grob abschätzen. Der auf die Summe des eingemischten und anfangs vorhandenen Ozons bezogene prozentuale Abbau beträgt im gleichen Zeitraum etwa 64 %. Bei der Bewertung dieses Ergebnisses sollte man sich bewußt sein, daß der angegebene Wert nur für den Bereich mit verlängertem Ozonabbau gilt, welcher nach Abbildung 7.17 nur eine geringe vertikale Ausdehnung hat.

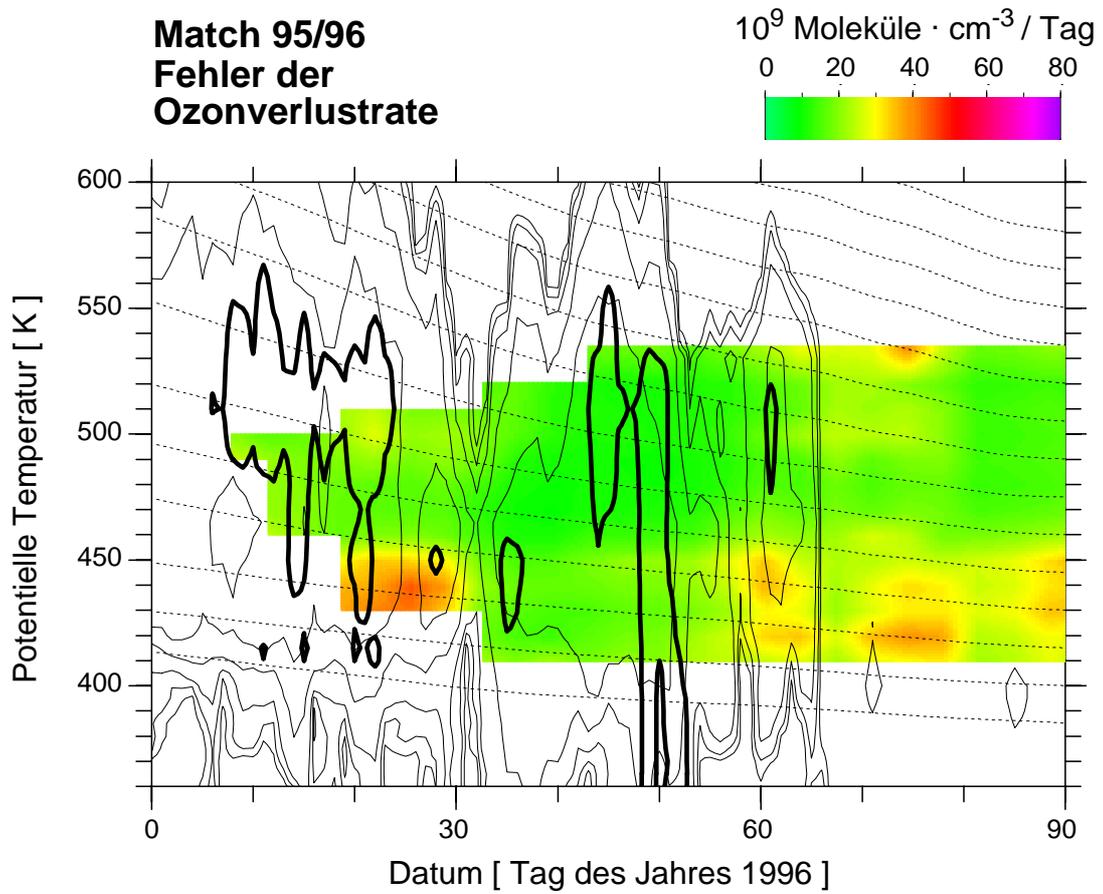


Abbildung 7.18: Zu Abbildung 7.17 gehörender statistischer Fehler der Ozonabbaurate L_t .

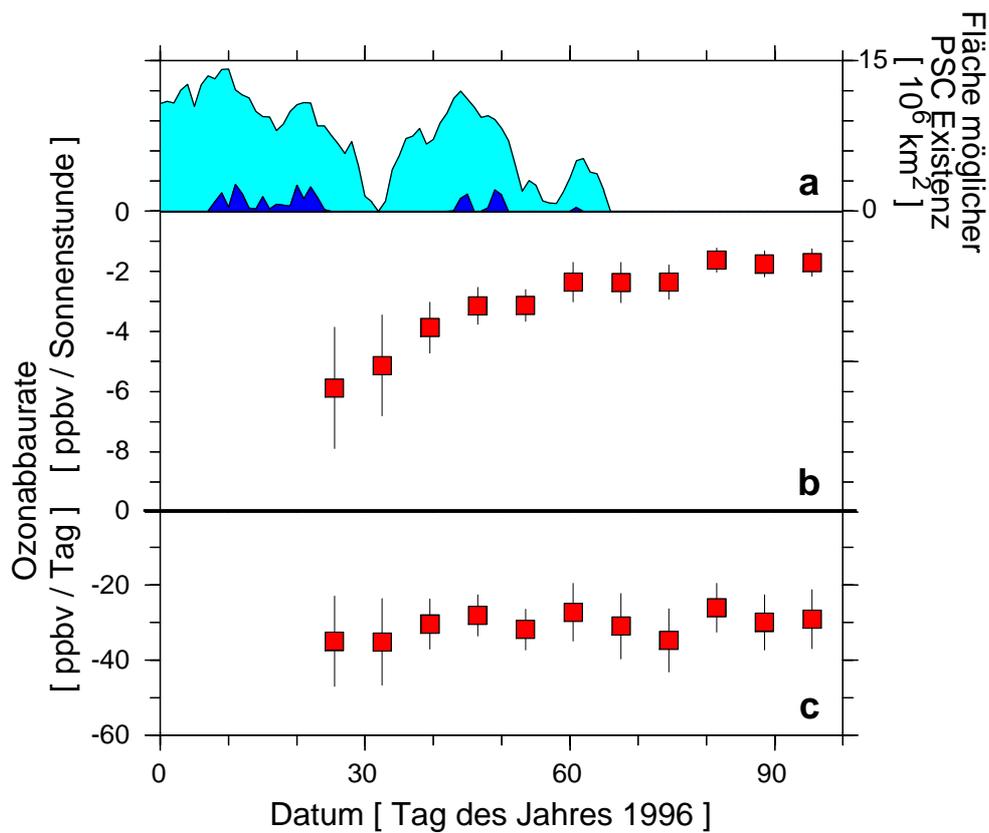


Abbildung 7.19: Die zeitliche Variation der Ozonabbauraten L_s (Teilbild b) und L_t (Teilbild c) in der Luftschicht, die von 535 K am 1. Januar auf 470 K am 31. März 1996 absinkt. In (a) ist A_{NAT} (hellgrau) und A_{EIS} (dunkelgrau) für diese Luftmasse angegeben.

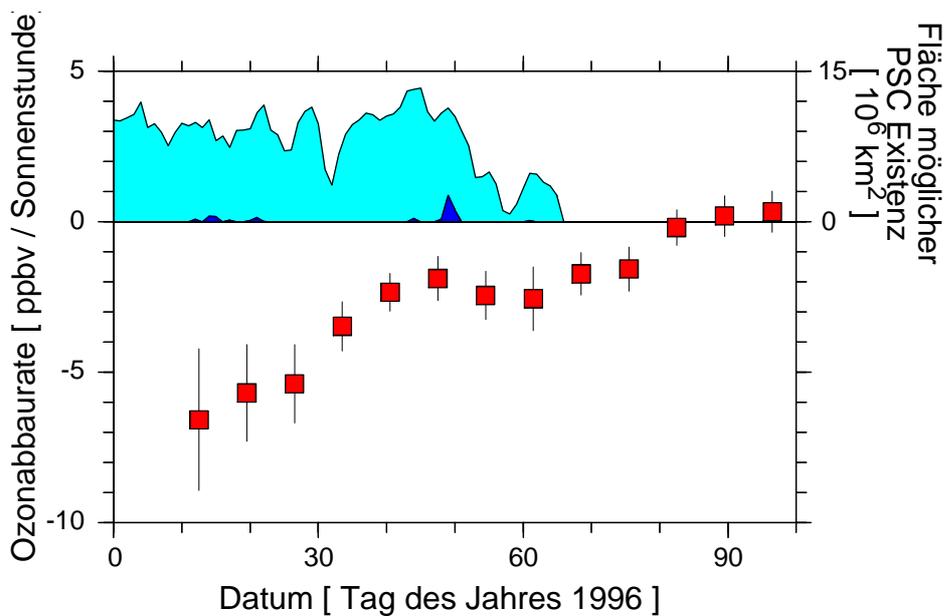


Abbildung 7.20: Die zeitliche Variation der Ozonabbaurate L_s in der Luftschicht, die von 485 K am 1. Januar auf 440 K am 31. März 1996 absinkt. Sonst wie Abbildung 7.19.

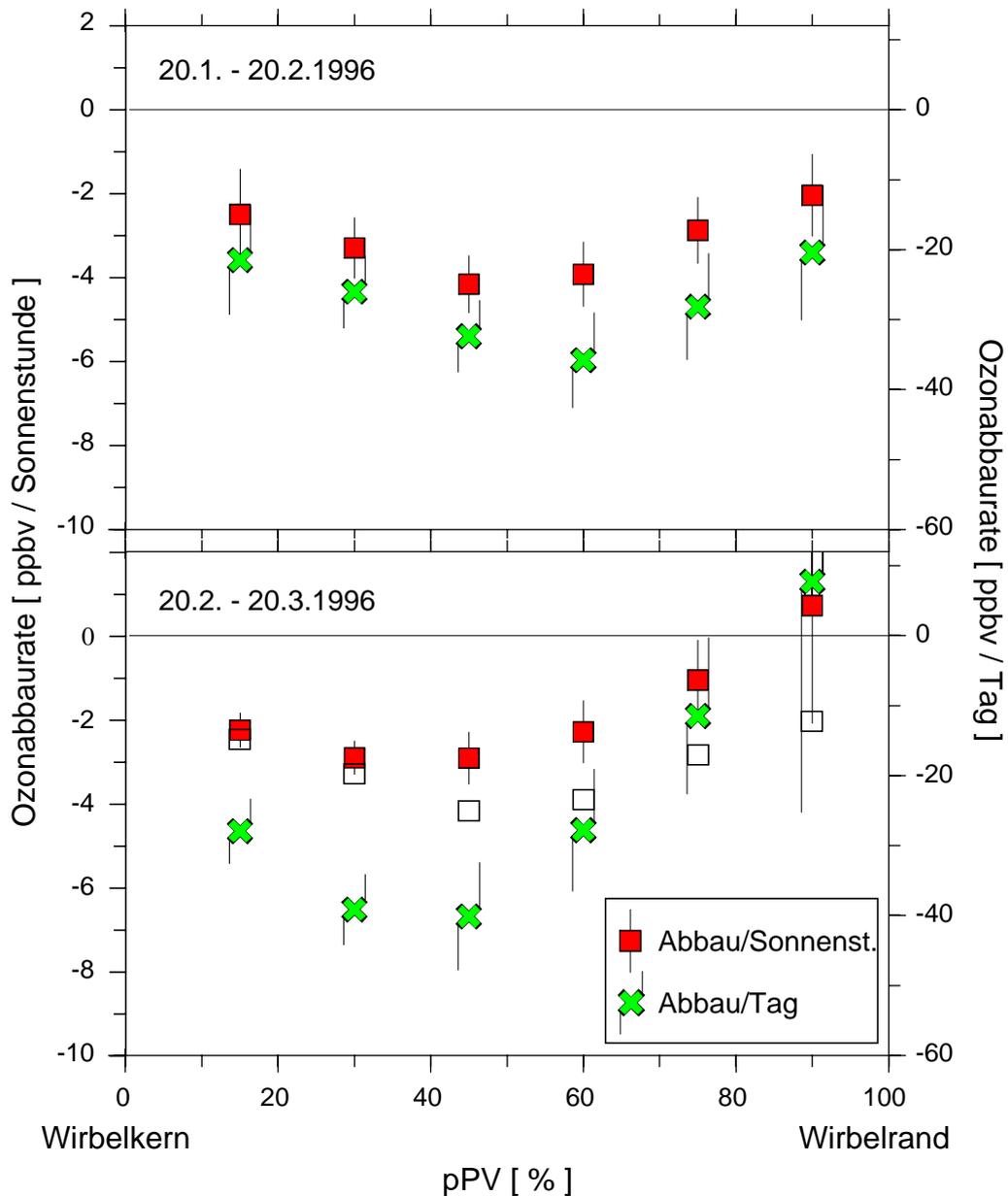


Abbildung 7.21: Wie Abbildung 7.5, aber für zwei Zeiträume im Winter 1995/96. (a) 20. Januar bis 20. Februar während der Hauptphase des Ozonverlusts, (b) 20. Februar bis 20. März während der Erholungsphase. Die Daten von L_s aus (a) sind in (b) zur besseren Vergleichbarkeit als nicht ausgefüllte Markierungen wiederholt.

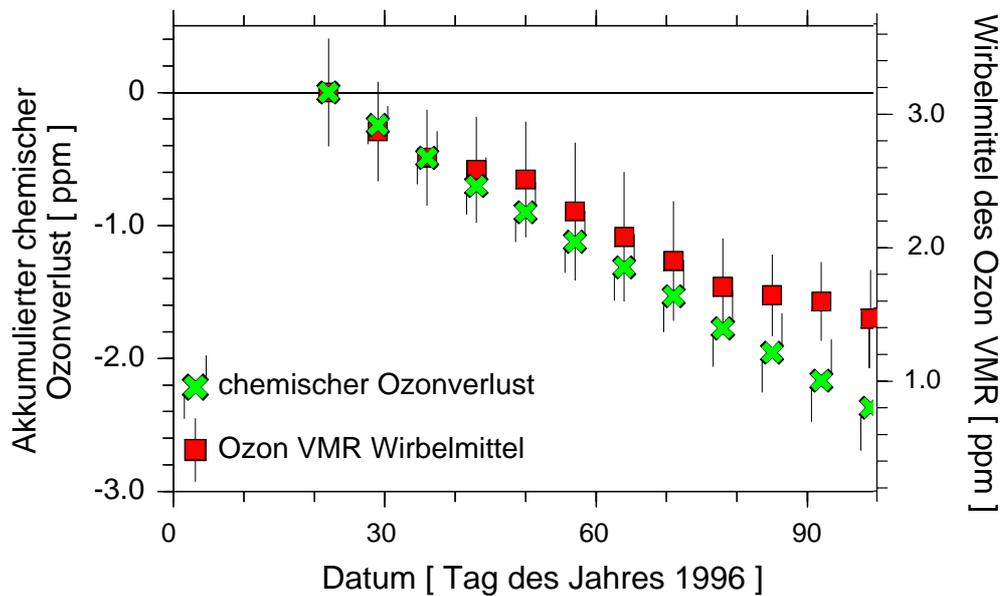


Abbildung 7.22: Wie Abbildung 7.6 für die Luftschicht, die von 535 K am 1. Januar bis 470 K am 31. März 1996 absinkt. Zusätzlich ist auch das über den Wirbel gemittelte Ozonmischungsverhältnis in der gleichen absinkenden Luftschicht eingetragen. Dieses mittlere Ozonmischungsverhältnis wurde aus allen Ozonsondenmessungen bestimmt, die im Polarwirbel stattgefunden haben. Die Fehlerbalken geben die Streuung der Meßwerte als einfache Standardabweichung an. Die Skalen beider Kurven sind um das mittlere Ozonmischungsverhältnis gegeneinander verschoben, welches Anfang Januar in der Luftschicht geherrscht hat. Von dieser Verschiebung der Skalen abgesehen sollten bei Abwesenheit von Mischungsprozessen beide Kurven identisch sein. Aus der Differenz der Kurven läßt sich die Menge des während des Winters eingemischten Ozons grob abschätzen.

7.6 Tagesgang der Ozonabbaurate

Im ersten Teil dieses Abschnitts soll qualitativ untersucht werden, ob während der dunklen Phasen entlang der Trajektorien meßbarer Ozonabbau stattgefunden hat. Eine Untersuchung, welche quantitativen Rückschlüsse die Match-Daten auf den Tagesgang der Ozonabbaurate erlauben, folgt im zweiten Teil dieses Abschnitts.

Für die Untersuchung des Ozonverlusts in der Dunkelheit wird ausgenutzt, daß das Verhältnis t_s zu t (oder auch t_s zu t_d wobei $t_d = t - t_s$ die dunkle Zeit entlang der Trajektorie bezeichnet) der verschiedenen Trajektorien beträchtlich streut. Abbildung 7.23 zeigt t_s über t_d für die bereits in Abbildung 7.1 benutzte Untergruppe von Matches aus 1995. Die statistische Streuung des Verhältnisses t_s/t_d läßt folgendes Gleichungssystem linear unabhängig werden:

$$[\Delta\text{XO}_3]_v = [t_s]_v \cdot L_s + [t_d]_v \cdot L_d \quad (14)$$

wobei der Index v die Trajektorie (bzw. den Match oder das Luftvolumen) indiziert und L_d die Ozonabbaurate im Dunklen bezeichnet. Die Fehlerterme e_v werden hier der Übersichtlichkeit halber weggelassen, womit das Gleichheitszeichen streng genommen nur für die Erwartungswerte der jeweiligen Größen stimmt. Das Gleichungssystem ist überbestimmt sobald mehr als zwei Matche vorliegen; die least square Lösungen für die beiden Raten L_s und L_d ergeben sich aus einer bivariaten linearen Regressionsanalyse. Da t_s und t_d jedoch trotz der Streuung miteinander korreliert sind, ist die Matrix $[t_s, t_d]_v$ schlecht konditioniert, wenn nur wenige Matche zur Verfügung stehen. Ein befriedigender Fehler im Ergebnis wird nur bei einer großen Anzahl von Matchen erreicht. Die bivariate Regression ergibt für die in Abbildung 7.23 dargestellten Matche folgende Werte:

$$L_s = -7.1 \pm 2.6 \text{ ppbv/h}$$

$$L_d = 0.7 \pm 1.0 \text{ ppbv/h}$$

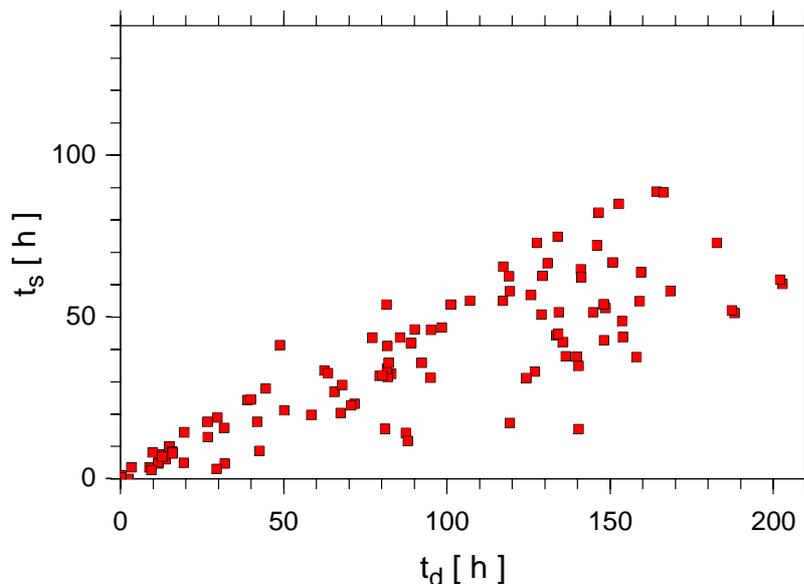


Abbildung 7.23: t_s über t_d für alle Matche in 470-500 K im Zeitraum 15. Januar bis 10. Februar 1995.

Anschaulich kann man sich die Ozondifferenzen der einzelnen Matche auf einer Achse aufgetragen vorstellen, die senkrecht zu der in Abbildung 7.23 dargestellten Ebene steht. Durch diese Ozondifferenzen wurde von der bivariaten Regression eine Ebene angepaßt, wobei L_s und L_d die Neigungen dieser Ebene in die beiden Koordinatenrichtungen t_s und t_d angeben. Die erhaltenen Ergebnisse zeigen, daß diese Ebene nur in t_s Richtung geneigt ist, also Ozonabbau im Rahmen der Fehlerbalken nur während sonnenbeschienener Zeiten stattfindet. Eine quantitative Interpretation der Rate L_s ist nicht besonders sinnvoll, da sie stark von der Definition der Sonnenzeiten abhängt. Wird z. B. statt der hier verwendeten Definition (Sonne sichtbar vom Ort des Luftpakets) 90° szw als Grenze zwischen dunklen Zeiten (dann als t_{d90° bezeichnet) und sonnenbeschienenen Zeiten (t_{s90°) verwendet, ergeben sich folgende Ergebnisse der bivariaten Regression:

$$\begin{aligned} L_{s90^\circ} &= -11.1 \pm 2.9 \text{ ppbv/h} \\ L_{d90^\circ} &= 1.7 \pm 2.4 \text{ ppbv/h} \end{aligned}$$

Auch während t_{d90° tritt kein signifikanter Ozonabbau auf, was ein Hinweis darauf ist, daß auch im szw-Bereich 90° bis zum geometrischen Sonnenuntergang kein wesentlicher Ozonabbau mehr stattfindet. Die Rate L_{s90° ist aber wesentlich größer als L_s , was einfach daran liegt, daß t_{s90° deutlich kürzer als t_s ist. Aufgrund dieser ausgeprägten Abhängigkeit der Rate L_s von der Definition der Sonnenzeiten, muß bei einer Angabe von L_s genau vermerkt werden, auf welcher Definition sie beruht. In der vorliegenden Arbeit wird L_s in der Diskussion nur qualitativ, zur Interpretation zeitlicher Veränderungen oder als Vergleich verschiedener Jahre untereinander, verwendet.

Die Abwesenheit von Ozonabbau im Dunkeln scheint ein allgemeingültiges Merkmal zu sein, welches sich jedenfalls in allen hier untersuchten Perioden gefunden hat. Hier werden noch die Ergebnisse weiterer bivariater Regressionen über Matche aus den Perioden mit dem jeweiligen maximalen Ozonverlusten der beiden anderen Winter angegeben:

1.1. - 9.2.1992, 465 - 485K:

$$\begin{aligned} L_s &= -7.0 \pm 1.5 \text{ ppbv/h} \\ L_d &= 0.4 \pm 0.4 \text{ ppbv/h} \end{aligned}$$

25.1. - 20.2.1996, 465 - 485K:

$$\begin{aligned} L_s &= -5.2 \pm 2.2 \text{ ppbv/h} \\ L_d &= 1.0 \pm 1.2 \text{ ppbv/h} \end{aligned}$$

Im zweiten Teil dieses Abschnitts soll untersucht werden, unter welchen Voraussetzungen die Abhängigkeit der Ozonverlustrate vom Sonnenzenitwinkel quantitativ aus den Daten ermittelt werden kann. Die möglichen Ergebnisse beruhen dabei auf den least square Lösungen von überbestimmten Gleichungssystemen, die sich in allgemeiner Form folgendermaßen schreiben lassen:

$$[\Delta\text{XO}_3]_v = \sum_{n=1}^N t_{n,v} \cdot L_n \quad (15)$$

wobei der Index n verschiedene Intervalle des Sonnenzenitwinkels indiziert und N angibt, wieviele Intervalle unterschieden werden. Alle Intervalle $n=1, \dots, N$ zusammen überdecken den gesamten Bereich von 0° - 180° , die Intervalleinteilung kann später so vorgenommen werden, daß

die statistische Signifikanz befriedigend wird. $t_{n,v}$ bezeichnet die gesamte Zeit, die das Volumen v im Sonnenzenitwinkelintervall n verbracht hat, es läßt sich aus den Trajektorien Daten berechnen. Dazu wurde analog zur Berechnung von t_s vorgegangen. Prinzipiell ist für das System (15) eine least square Lösung für L_n definiert, sobald $V > N$ gilt, wenn V die Zahl der verwendeten Matche bezeichnet. Die Lösung für L_n läßt sich dann mittels multivariater linearer Regressionsanalyse berechnen. Wegen der schlechten Kondition von $t_{n,v}$ ist das allerdings in der Praxis nur für $V \gg N$, also kleine N möglich. Welche physikalische Bedeutung die bei der Regressionsanalyse erhaltenen L_n haben, muß sorgfältig geklärt werden, bevor sie quantitativ interpretiert werden können. Die folgende Betrachtung zeigt, daß diese L_n nicht etwa den mittleren Ozonabbau in dem szw Intervall n angeben.

Hier wird zunächst der Ozonabbau entlang einer Trajektorie geschrieben als:

$$\Delta XO_3 = \int_0^t \lambda(\tau) d\tau \quad (16)$$

τ bezeichnet die Zeit entlang der Trajektorie, $\lambda(\tau)$ die jeweils aktuelle Ozonabbaurate. Das Integral wird nun derart in I einzelne Abschnitte aufgeteilt, daß auf jedem Abschnitt die Funktion $\tau_i(\text{szw})$ existiert (d.h. die anschaulichere Funktion $\text{szw}_i(\tau)$ sei eineindeutig auf jedem Abschnitt). Es läßt sich dann schreiben:

$$\Delta XO_3 = \sum_{i=1}^I \int_{ta_i}^{te_i} \lambda(\tau_i) d\tau_i \quad (17)$$

mit $ta_1 = 0$, $te_I = t$, $ta_{i+1} = te_i$ für i aus $(1, \dots, I-1)$. Dabei ist die Funktion $\tau_i(\text{szw})$ im allgemeinen für verschiedene i unterschiedlich. Nun kann in jedem Abschnitt τ durch szw substituiert werden:

$$\Delta XO_3 = \sum_{i=1}^I \int_{\text{szw}_{1_i}}^{\text{szw}_{2_i}} \lambda_i(\text{szw}) \left| \frac{d\tau_i}{d\text{szw}} \right| d\text{szw} \quad (18)$$

mit $\text{szw}_{1_i} = \min\{\text{szw}(ta_i), \text{szw}(te_i)\}$, $\text{szw}_{2_i} = \max\{\text{szw}(ta_i), \text{szw}(te_i)\}$, d.h., wenn $\frac{d\tau_i}{d\text{szw}} < 0$, werden die Integrationsgrenzen vertauscht. Daher steht $\frac{d\tau_i}{d\text{szw}}$ im Integral als Betrag. $\frac{d\tau_i}{d\text{szw}}$ ist zunächst nur auf $[\text{szw}_{1_i}, \text{szw}_{2_i}]$ definiert. Hier wird die Funktion $\rho_i(\text{szw})$ auf $[0^\circ, 180^\circ]$ eingeführt:

$$\begin{aligned} \rho_i &\equiv 0, & \text{szw} &\in [0^\circ, \text{szw}_{1_i}) \\ \rho_i &= \left| \frac{d\tau_i}{d\text{szw}} \right|, & \text{szw} &\in [\text{szw}_{1_i}, \text{szw}_{2_i}] \\ \rho_i &\equiv 0, & \text{szw} &\in (\text{szw}_{2_i}, 180^\circ] \end{aligned}$$

$\rho_i(\text{szw})$ gibt an, wie lange sich der i -te Trajektorienabschnitt bei den verschiedenen szw aufgehalten hat. Weiterhin wird noch die später benötigte Funktion $\rho^*(\text{szw})$ auf $[0^\circ, 180^\circ]$ definiert,

$$\rho^*(szw) = \sum_{i=1}^I \rho_i(szw) \quad (19)$$

welche angibt, wie lange sich die Trajektorie insgesamt bei den verschiedenen szw aufgehalten hat.

Mit $\rho_i(szw)$ läßt sich (18) schreiben als:

$$\Delta XO_3 = \sum_{i=1}^I \int_{0^\circ}^{180^\circ} \lambda_i(szw) \cdot \rho_i(szw) dszw \quad (20)$$

Vertauschung von Summation und Integralbildung und Aufspaltung des Integrals in verschiedene szw Intervalle ergibt:

$$\Delta XO_3 = \sum_{n=1}^N \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \sum_{i=1}^I \lambda_i(szw) \cdot \rho_i(szw) dszw \quad (21)$$

mit $\text{minszw}_1 = 0^\circ$, $\text{maxszw}_N = 180^\circ$, $\text{minszw}_{n+1} = \text{maxszw}_n$ für n aus $(1, \dots, N-1)$.

Es wird nun für jedes szw Intervall die Größe λ_n^* definiert:

$$\lambda_n^* = \frac{1}{t_n} \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \sum_{i=1}^I \lambda_i(szw) \cdot \rho_i(szw) dszw \quad (22)$$

Die λ_n^* sind nur für die n definiert, für die t_n ungleich Null ist. Sie sind ein in bestimmter Weise gewichtetes Integralmittel der Ozonabbauraten $\lambda_i(szw)$ über das szw Intervall n . Die genaue physikalische Bedeutung von λ_n^* wird später noch diskutiert. Zunächst ergibt sich formal mit (22) aus (21):

$$\Delta XO_3 = \sum_{n=1}^N t_n \cdot \lambda_n^* \quad (23)$$

Dies gilt für alle Trajektorien, wobei allerdings sowohl λ_n^* als auch t_n für alle Trajektorien unterschiedlich sind:

$$[\Delta XO_3]_v = \sum_{n=1}^N t_{n,v} \cdot \lambda_{n,v}^* \quad (24)$$

Da hier auch die $\lambda_{n,v}^*$ von v abhängen, ist noch nicht die Form von (15) erreicht. Eine Regressionsanalyse von (15) liefert in dieser Situation die L_n als Linearkombinationen der V verschiedenen $\lambda_{n,v}^*$, wobei alle $\lambda_{n,v}^*$ mit Wichtungsfaktoren eingehen, welche nichtlineare Funktionen aller $t_{1,v}, \dots, t_{N,v}$ ($v=1, \dots, V$) sind [Lehmann, 1997]. Diese Linearkombinationen sind nicht interpretierbar. Als weiterer Schritt wird nach zusätzlichen Annahmen gesucht, unter

denen sich die Ausdrücke für die L_n zu interpretierbaren Zusammenhängen vereinfachen. Zunächst wird die v -Abhängigkeit von $\lambda_{n,v}^*$ separiert:

$$\lambda_{n,v}^* = L_n + \Delta\lambda_{n,v}^* \quad (25)$$

wobei L_n als Mittelwert von $\lambda_{n,v}^*$ über alle Trajektorien gewählt wird, für die $t_{n,v}$ nicht Null ist. V_n bezeichnet die Anzahl dieser Trajektorien:

$$L_n = \frac{1}{V_n} \sum_{v=1}^{V_n} \lambda_{n,v}^* \quad (26)$$

Damit verschwindet der Mittelwert von $\Delta\lambda_{n,v}^*$:

$$\sum_{v=1}^{V_n} \Delta\lambda_{n,v}^* = 0 \quad (27)$$

Aus (24) folgt:

$$[\Delta XO_3]_v = \sum_{n=1}^N t_{n,v} \cdot (L_n + \Delta\lambda_{n,v}^*) \quad (28)$$

Wird die Annahme gemacht, daß $\Delta\lambda_{n,v}^*$ und $t_{n,v}$ für verschiedene v unkorreliert seien (Annahme I), gilt unter Berücksichtigung von (27), daß der Erwartungswert von

$$\sum_v t_{n,v} \cdot \Delta\lambda_{n,v}^* \quad (29)$$

verschwindet. Dieser Summand in (28) verhält sich also wie ein Fehlerterm und beeinflusst das Ergebnis der linearen Regression nicht. Mit Annahme I stellen sich also die bei der Regression erhaltenen L_n als arithmetische Mittel der $\lambda_{n,v}^*$ über alle Trajektorien für die $t_{n,v}$ nicht Null ist dar.

Die Gültigkeit der Annahme wird weiter unten diskutiert. Die Mittelwerte der $\lambda_{n,v}^*$ lassen sich unter Verwendung von (22) schreiben als:

$$L_n = \frac{1}{V_n} \cdot \sum_{v=1}^{V_n} \left(\frac{1}{t_{n,v}} \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \sum_{i=1}^I \lambda_{i,v}(\text{szw}) \cdot \rho_{i,v}(\text{szw}) \, \text{dszw} \right) \quad (30)$$

In dieser Form lassen sich die L_n weiterhin nur schwer physikalisch interpretieren. Daher werden hier zusätzliche Annahmen gemacht, um (30) zu vereinfachen. Zunächst werden die $\lambda_{i,v}(\text{szw})$ für jedes Luftvolumen geschrieben als:

$$\lambda_{i,v}(\text{szw}) = \bar{\lambda}_v(\text{szw}) + \delta_{i,v}(\text{szw}) \quad (31)$$

wobei $\bar{\lambda}_v(\text{szw})$ der über alle i gemittelte Wert von $\lambda_{i,v}(\text{szw})$ ist:

$$\bar{\lambda}_v(\text{szw}) = \frac{1}{I_v} \cdot \sum_{i=1}^{I_v} \lambda_{i,v}(\text{szw}) \quad (32)$$

$\bar{\lambda}_v(\text{szw})$ ist das Mittel über alle bei einem bestimmten szw in den verschiedenen Trajektorienabschnitten der Trajektorie v aufgetretene $\lambda_{i,v}$. $\bar{\lambda}_v(\text{szw})$ kann für diese Trajektorie als universeller Anteil der Abhängigkeit der Ozonabbaurate vom szw angesehen werden und stellt somit die in diesem Abschnitt gesuchte Größe dar, während die δ_i die lokalen Abweichungen von dieser Funktion beschreiben. Betrachtet man nur den Zyklus Z5 würden diese Abweichungen bei konstantem ClO_x im wesentlichen durch chemisches Ungleichgewicht verursacht sein. Für hohe Sonnenstände ist die Aufteilung der Spezies im ClO_x zwar gut im Gleichgewicht, bei tiefen Sonnenständen gilt dies nicht mehr. Cl_2O_2 hat bei einem szw von 87° eine Lebensdauer von ca. 0,5 h [Lehmann, 1997]. Es braucht also bei Sonnenaufgang eine merkliche Zeit, bis die hohen Cl_2O_2 -Konzentrationen, die sich über Nacht gebildet haben, abgebaut sind. In dieser Zeit ist die Ozonabbaurate etwas größer als bei gleichem szw unter Gleichgewichtsbedingungen. Bei Sonnenuntergang gilt aufgrund ähnlicher Überlegungen, daß die Ozonabbaurate bei gleichem szw etwas kleiner ist, als im Gleichgewicht. Nur am Rande sei hier bemerkt, daß beide Effekte asymmetrisch sind und sich im allgemeinen im Integral über die Trajektorie nicht aufheben. D. h., entlang von zwei Trajektorien kann unterschiedlicher Ozonabbau stattfinden auch wenn sich beide gleichlang bei den verschiedenen szw aufhalten und ClO_x für beide Trajektorien gleich und konstant war.

Da sich nun in der Realität auch ClO_x entlang der Trajektorie ändert, enthält δ_i nicht nur die Effekte des chemischen Ungleichgewichts, sondern auch die Änderung der Ozonabbaurate, die auf der Änderung der ClO_x -Konzentration beruht.

Nach (31) und (32) gilt für $\delta_{i,v}(\text{szw})$:

$$\sum_{i=1}^I \delta_{i,v}(\text{szw}) = 0 \quad (33)$$

Aus (30) folgt mit (31):

$$L_n = \frac{1}{V_n} \cdot \sum_{v=1}^{V_n} \left(\frac{1}{t_{n,v}} \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \left(\bar{\lambda}_v(\text{szw}) \cdot \sum_{i=1}^I \rho_{i,v}(\text{szw}) + \sum_{i=1}^I \delta_{i,v}(\text{szw}) \cdot \rho_{i,v}(\text{szw}) \right) dszw \right) \quad (34)$$

oder:

$$L_n = \frac{1}{V_n} \cdot \sum_{v=1}^{V_n} \left(\frac{1}{t_{n,v}} \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \bar{\lambda}_v(\text{szw}) \cdot \sum_{i=1}^I \rho_{i,v}(\text{szw}) dszw \right) + \frac{1}{V_n} \cdot \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \sum_{i=1}^I \sum_{v=1}^{V_n} \left(\delta_{i,v}(\text{szw}) \cdot \frac{\rho_{i,v}(\text{szw})}{t_{n,v}} \right) dszw \quad (35)$$

Nun wird angenommen, daß die $\delta_{i,v}$ und $\frac{\rho_{i,v}}{t_{n,v}}$ für verschiedene v unkorreliert seien (Annahme II). Mit (33) ist dann der Erwartungswert von

$$\sum_{v=1}^V \left(\delta_{i,v}(\text{szw}) \cdot \frac{\rho_{i,v}(\text{szw})}{t_{n,v}} \right)$$

gleich Null. Damit ändert der zweite Summand im Mittel nicht den Wert von L_n , sondern geht ausschließlich in den statistischen Fehler von L_n ein. (35) läßt sich demnach schreiben als:

$$L_n = \frac{1}{V_n} \cdot \sum_{v=1}^{V_n} \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \bar{\lambda}_v(\text{szw}) \cdot \sum_{i=1}^I \frac{\rho_{i,v}(\text{szw})}{t_{n,v}} \cdot \text{dszw} \quad (36)$$

Mit (19) wird daraus:

$$L_n = \frac{1}{V_n} \cdot \sum_{v=1}^{V_n} \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \bar{\lambda}_v(\text{szw}) \cdot \frac{\rho_v^*(\text{szw})}{t_{n,v}} \cdot \text{dszw} \quad (37)$$

Wobei für alle v gilt:

$$\int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \rho_v^*(\text{szw}) \cdot \text{dszw} = t_{n,v} \quad (38)$$

es handelt sich bei dem Faktor $\frac{\rho_v^*(\text{szw})}{t_{n,v}}$ also um eine auf eins normierte Wichtungsfunktion.

L_n hat somit die Form eines über alle Trajektorien gemittelten Integralmittels der Ozonabbaurate über das szw Intervall n . Dabei geht die Ozonabbaurate bei jedem szw mit der relativen Dauer gewichtet ein, die sich diese Trajektorie bei dem szw aufgehalten hat. Die Reihenfolge der Mittelung über die verschiedenen Trajektorien und der Wichtung der Ozonabbauraten ist nicht vertauschbar. Nur wenn zusätzlich vorausgesetzt wird, daß die Abweichungen der $\bar{\lambda}_v(\text{szw})$ (die Abweichungen werden hier als $\bar{\lambda}'_v(\text{szw})$ bezeichnet) von einem über v gemittelten $\bar{\lambda}^*(\text{szw})$ nicht mit den $\rho_v^*(\text{szw})/t_{n,v}$ korrelieren (Annahme III), läßt sich (37) wegen der dann verschwindenden Erwartungswerte von

$$\sum_{v=1}^V \left(\bar{\lambda}'_v(\text{szw}) \cdot \frac{\rho_v^*(\text{szw})}{t_{n,v}} \right)$$

schreiben als:

$$L_n = \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \bar{\lambda}^*(\text{szw}) \cdot \frac{1}{V_n} \sum_{v=1}^{V_n} \frac{\rho_v^*(\text{szw})}{t_{n,v}} \cdot \text{dszw} \quad (39)$$

Mit der Definition (40)

$$w_n(\text{szw}) = \frac{1}{V_n} \sum_{v=1}^{V_n} \frac{\rho_v^*(\text{szw})}{t_{n,v}} \quad (41)$$

ist (39):

$$L_n = \int_{\text{minszw}_n}^{\text{maxszw}_n} \bar{\lambda}^*(\text{szw}) \cdot w_n(\text{szw}) \cdot \text{dszw} \quad (42)$$

Unter den erwähnten Voraussetzungen stellen die L_n also Integralmittel über das szw-Intervall n der über die Trajektorien gemittelten Ozonabbaurate dar, wobei diese mit der mittleren relativen Aufenthaltsdauer aller Trajektorien bei dem entsprechenden szw gewichtet sind.

Die Wichtungsfunktion $w_n(\text{szw})$ kann aus den Trajektorien Daten berechnet werden und muß jedenfalls bei der Angabe der L_n mit angegeben und bei der Interpretation berücksichtigt werden.

Um eine ausreichende Datenbasis für eine multivariate Regression zu erhalten, wurden die Untergruppen von Matches aus den verschiedenen Jahren zusammengefaßt, die für die jeweilige bivariate Regression des Jahres verwendet worden waren. Es wurden folgende drei szw Intervalle unterschieden (also $N = 3$):

$$\begin{aligned} n = 1: \text{minszw}_1 &= 0^\circ, & \text{maxszw}_1 &= 85^\circ \\ n = 2: \text{minszw}_2 &= 85^\circ, & \text{maxszw}_2 &= 95^\circ \\ n = 3: \text{minszw}_3 &= 95^\circ, & \text{maxszw}_3 &= 180^\circ \end{aligned}$$

Eine feinere Einteilung lieferte keine statistisch signifikanten Ergebnisse. Als Ergebnis ergab sich:

$$\begin{aligned} L_{0^\circ-85^\circ} &= -11.2 \pm 2.4 \text{ ppbv/h} \\ L_{85^\circ-95^\circ} &= -1.2 \pm 2.7 \text{ ppbv/h} \\ L_{95^\circ-180^\circ} &= -0.5 \pm 0.4 \text{ ppbv/h} \end{aligned}$$

Die Wichtungsfunktionen $w_{0^\circ-85^\circ}(\text{szw})$ und $w_{85^\circ-95^\circ}(\text{szw})$ sind in Abbildung 7.24 angegeben. $w_{95^\circ-180^\circ}$ ist nicht von Bedeutung, da $L_{95^\circ-180^\circ}$ nicht signifikant von Null verschieden ist und hier angenommen wird, daß $\bar{\lambda}^*(\text{szw})$ für szw größer als 95° identisch Null ist. Abbildung 7.24 zeigt, daß $L_{0^\circ-85^\circ}$ im wesentlichen die Ozonabbaurate im Bereich $80^\circ-85^\circ$ angibt. In $L_{85^\circ-95^\circ}$ gehen die Ozonabbauraten bei szw größer als 90° mit deutlich mehr Gewicht ein, als die Raten bei kleineren szw.

Die Annahmen I bis III sind nur erfüllt, wenn die Streuung der $t_{n,v}$ rein statistischer Natur ist, oder die Ozonabbaurate über den gesamten Wirbel konstant ist. Beides ist in der Realität häufig nicht der Fall. Für kleine szw sind die $t_{n,v}$ im Wirbelrand systematisch länger als im Wirbelkern, während für große szw das Gegenteil gilt. Wenn nun auch die Ozonabbaurate im Wirbelkern sich systematisch vom Wirbelrand unterscheidet, sind die in den Annahmen I bis III geforderten statistischen Unabhängigkeiten nicht erfüllt. Abbildung 7.25 zeigt in den oberen drei Teilbildern die Variation der $t_{0^\circ-80^\circ,v}$, $t_{0^\circ-85^\circ,v}$ und $t_{85^\circ-180^\circ,v}$ mit pPV. Besonders $t_{0^\circ-80^\circ,v}$ korreliert sehr stark mit pPV, da kleine szw im Wirbelkern nur selten vorkommen. Aus diesem Grund wurde diese szw Einteilung nicht verwendet. Allerdings zeigen auch $t_{0^\circ-85^\circ,v}$ und $t_{85^\circ-180^\circ,v}$ eine deutliche Korrelation bzw. Antikorrelation mit pPV. Im unteren Teilbild ist die Variation von L_s mit pPV für die hier verwendete Daten dargestellt. Auch L_s hängt von pPV ab, was ein starkes Indiz dafür ist, daß auch die Ozonabbaurate bei festem szw eine pPV Abhängigkeit aufweist. Eine solche Abhängigkeit kann durch eine Variation der ClO_x -Konzentration von pPV zustandekommen. Dies bewirkt zusammen mit der Abhängigkeiten der $t_{n,v}$ von pPV, daß obige

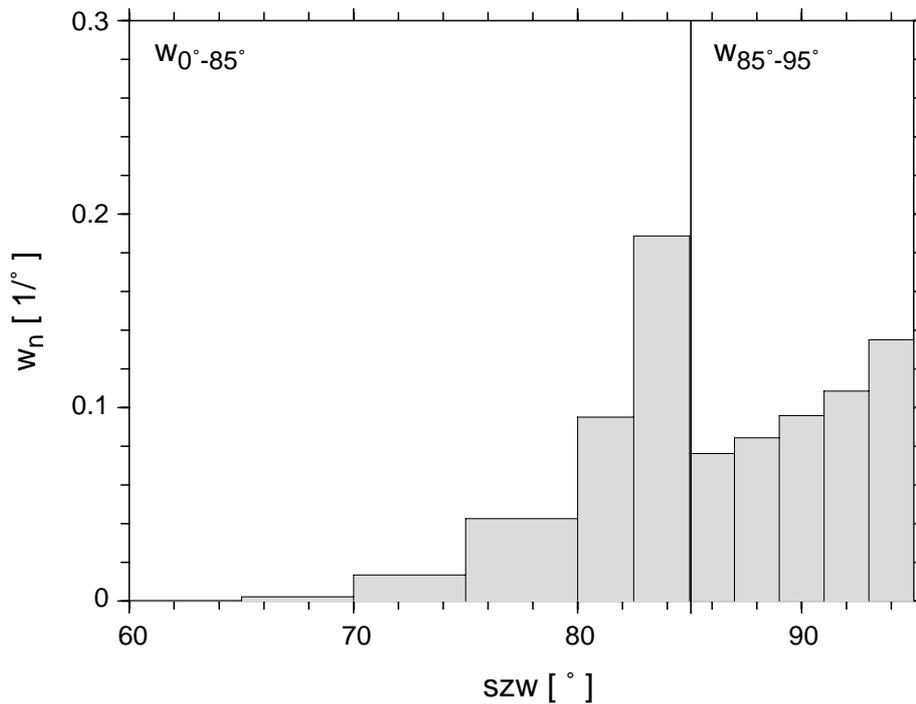


Abbildung 7.24: Die Wichtungsfunktionen $w_{0^{\circ}-85^{\circ}}$ und $w_{85^{\circ}-95^{\circ}}$ für die im Text beschriebene Gruppe von Matchen.

Annahmen I-III nur schlecht erfüllt sind. Bei dem gefundenen Vorzeichen der Abhängigkeiten von pPV bewirkt dies, das $L_{0^{\circ}-85^{\circ}}$ überschätzt wird, da die hohen Ozonabbauraten des Wirbelrands hier überproportional eingehen.

Die statistischen Fehler, die sich aus der multivariaten Analyse der vorliegenden Daten ergeben, sind so groß, daß eine quantitative Aussage über die szw Abhängigkeit der Ozonabbaurate sehr ungenau bleiben muß. Diese Situation könnte sich in kommenden Jahren ändern, wenn durch weitere Matchkampagnen mehr Daten vorliegen, die zusammen ausgewertet werden können. Sollte der statistische Fehler dabei beträchtlich abnehmen, müssen die Fehler, die auf den Abweichungen von den in der Herleitung gemachten Voraussetzungen beruhen, quantifiziert werden, bevor zuverlässige quantitative Angaben über die szw Abhängigkeit des Ozonverlusts gemacht werden können.

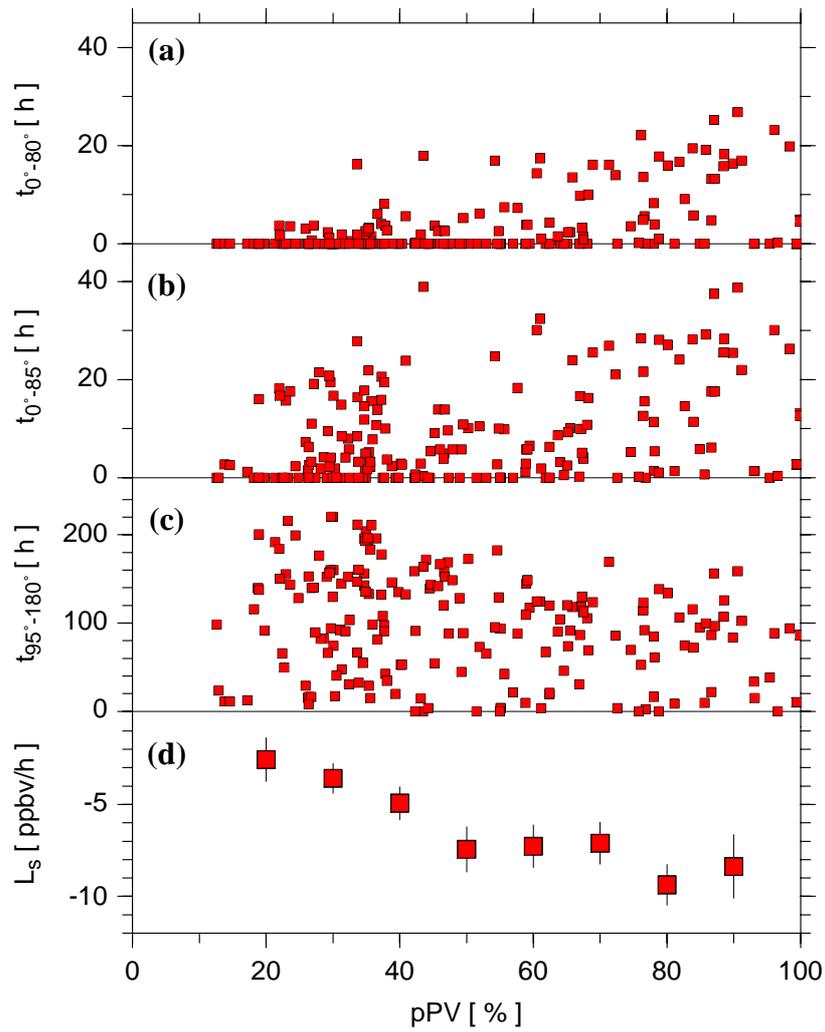


Abbildung 7.25: (a)-(c): Verschiedene $t_{n,v}$ für über pPV, für alle Matche der im Text beschriebenen Gruppe. (d) L_s über pPV für die gleiche Gruppe von Matchen.

Kapitel 8

Diskussion

Nachdem im vorangegangenen Kapitel die Ozonverluste der einzelnen Winter detailliert beschrieben wurden, schließt in diesem Kapitel eine Diskussion der beobachteten Effekte an. Eine Fehlerbetrachtung folgt im Kapitel 9.

In der Diskussion werden zunächst wesentliche Merkmale des gefundenen Ozonverlusts herausgestellt sowie ihre generelle Konsistenz mit der Theorie des arktischen Ozonverlusts überprüft (Abschnitt 8.1.1). Sodann werden aus den beobachteten Ozonverlusten Rückschlüsse auf den Verlauf der chemischen Aktivierung im Wirbel gezogen (Abschnitte 8.1.2 und 8.1.3). Die während der Deaktivierungsphase gefundenen Effekte erfordern eine eingehendere Betrachtung, der der gesonderte Abschnitt 8.1.4 gewidmet wird. Im Abschnitt 8.1.5 schließen sich einige Modellstudien an, die zur Untermauerung der im vorhergehenden Abschnitt vorgeschlagenen Mechanismen dienen. Die Ergebnisse der Analyse der Deaktivierungsphase legen eine Modifikation unseres Bildes von dem saisonalen Verlauf des Ozonabbaus in kalten arktischen Wintern nahe. Das erhaltene Gesamtbild wird in Abschnitt 8.2 zusammengefaßt und dem Verlauf des antarktischen Ozonverlusts gegenübergestellt.

8.1 Diskussion der beobachteten Ozonverluste

8.1.1 Diskussion des generellen Verlaufs des gefundenen Ozonabbaus anhand der grundlegenden Mechanismen polaren Ozonverlusts

Die auffälligste Eigenschaft des beobachteten chemischen Ozonverlusts ist, daß er ausnahmslos in allen Wintern und allen Höhenbereichen von dem Vorhandensein von PSC-Bedingungen eingeleitet wurde. Weiterhin führte das Auftreten von signifikanten Bereichen mit PSC-Bedingungen ausnahmslos zu schnellem Ozonverlust, sobald die betroffene Luftmasse der Sonne ausgesetzt wurde. Es zeigte sich auch die Umkehrung, daß der Ozonabbau zu allen untersuchten Zeiträumen auf die sonnenbeschienenen Zeiten in den einzelnen Lufpaketen beschränkt war. In dem hier untersuchten Höhenbereich hat sich demnach in allen drei Wintern bestätigt, daß das Auftreten von PSC-Bedingungen und Sonnenlicht eine notwendige und hinreichende Bedingung zur Einleitung von schnellem Ozonabbau in der Arktis ist.

Der beobachtete Ozonabbau stimmt demnach ausgesprochen gut mit dem Verhalten überein, welches von der Theorie des durch heterogene Chemie induzierten und durch Halogene katalysierten Ozonabbaus vorausgesagt wird. Zusammen mit den Ergebnissen der vielen in den letzten Jahren erfolgten Spurengasmessungen kann dieser grundlegende Mechanismus inzwischen als weitgehend gesichert betrachtet werden. Es bestehen allerdings noch Probleme der quanti-

tativen Erklärung des beobachteten Ozonabbaus, die der Klärung bedürfen. Auf diese Diskrepanzen wird bei der Diskussion der durchgeführten Modellstudien im Abschnitt 8.1.5 eingegangen.

8.1.2 Rückschlüsse auf den Grad und den Verlauf der Chloraktivierung

Da nach der gängigen Theorie die Ozonabbaurate bei konstantem szw tagsüber im wesentlichen vom Quadrat der ClO_x -Konzentration bestimmt wird (siehe Abschnitt 3.4), können aus den beobachteten Ozonabbauraten Rückschlüsse auf den Grad und den Verlauf der Chloraktivierung gezogen werden.

Trotz der bei den drei Wintern deutlich unterschiedlichen Ausdehnung der Bereiche mit PSC-Bedingungen und der Länge ihres Bestehens wurden in allen drei Wintern in 475 K ähnliche maximale Ozonabbauraten L_s um 7-10 ppbv pro Sonnenstunde oder L_t um 50-60 ppbv pro Tag gegen Mitte/Ende Januar beobachtet. Auffällig ist, daß die maximale Rate L_s im kältesten Winter 1996 am kleinsten ist - wobei der Unterschied zu den Vorjahren jedoch nicht signifikant ist - und das Maximum in diesem Jahr am frühesten erreicht wird. 1995 trat die größte Rate L_t auf, was sich jedoch allein daraus erklärt, daß in diesem Jahr zur Zeit des Maximums des Ozonabbaus im Wirbel längere Sonnenzeiten pro Tag herrschten als in den anderen Jahren.

Die Ähnlichkeit der maximalen Verlustrate L_s in allen drei Wintern und besonders die Tatsache, daß sie offensichtlich unabhängig ist, von den in den verschiedenen Wintern doch sehr unterschiedlichen räumlichen Ausmaßen der Bereiche mit PSC-Bedingungen, läßt auf eine nahezu vollständige Chloraktivierung gegen Mitte/Ende Januar in allen Wintern schließen. Die vollständige Aktivierung führt zu einer Sättigung der Ozonabbaurate. Sobald hinreichend viele PSCs existierten, um diesen Zustand zu erreichen, ist die Ozonabbaurate auch bei weiterer PSC-Aktivität nicht mehr zu steigern. HCl-Beobachtungen von HALOE fanden einen nahezu völligen Verlust von HCl im 475 K Bereich in den Wintern 1991/92 und 1994/95. Dies bestätigt das Bild einer nahezu vollständigen Chloraktivierung in diesen Wintern [Müller et al., 1996]. Dies ist auch konsistent mit Modellläufen des SLIMCAT CTM [Chipperfield et al., 1996b], die in den gleichen Wintern ebenfalls eine nahezu vollständige Aktivierung zeigen. Der Winter 1995/96 wurde bei beiden Arbeiten nicht untersucht. In diesem Winter liegen jedoch am 25. Februar 1996 Messungen von ASUR vor, die in ca. 20 km Höhe ebenfalls HCl-Konzentrationen unter der Nachweisgrenze fanden [Urban et al., 1996].

Für den Januar 1992 läßt sich zeigen, daß die vollständige Aktivierung erst gegen Ende der PSC-Periode erreicht war: Während der beiden Perioden Anfang und Ende Januar war die Verteilung der entlang der Match-Trajektorien aufgetretenen relevanten szw in diesem Winter nahezu identisch (Abbildung 8.1). Die Abbildung zeigt, daß größere Abweichung zwischen beiden Perioden nur bei szw größer als 95° auftraten. Diese szw haben keinen Einfluß auf L_s . Die beobachtete deutliche Zunahme von L_s während des Januars 1992 (Abbildung 7.2) muß also auf einer weiteren Zunahme der ClO_x -Konzentration während dieses Zeitraums beruhen. Die Chloraktivierung scheint während dieser Periode also noch anzudauern, so daß die maximale Aktivierung erst gegen Ende der PSC-Periode erreicht worden war. Dies ist eine Bestätigung des entsprechenden SLMCAT CTM Laufs [Chipperfield et al., 1996b]. Für die Zunahme von L_s im Januar 1995 kann nicht so argumentiert werden, da gleichzeitig auch die mittlere Sonnenzeit pro Tag in diesem Januar durch die Verschiebung des Wirbels drastisch zunahm. Damit ist auch eine Erhöhung des Anteils kleinerer szw während der sonnenbeschienenen Zeiten verbunden (Abbildung 8.2), so daß gegen Ende Januar eine Sonnenstunde auch bei gleicher ClO_x -Konzentration für den Ozonabbau effektiver war als gegen Anfang Januar. Zumindest ein Teil

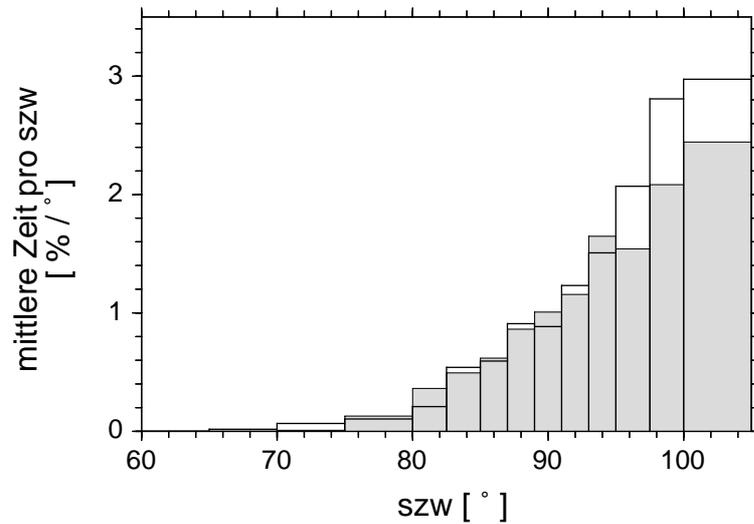


Abbildung 8.1: Relative Häufigkeiten der szw entlang der Trajektorien. Zur Berechnung wurden entlang der Trajektorien die Zeiten aufintegriert, die das Luftpaket in bestimmten szw Intervallen verbracht hat. Diese Zeiten wurden dann über alle Trajektorien aufaddiert und durch die Gesamtzeit aller Trajektorien sowie durch die Breite des szw Intervalls geteilt. Die ausgefüllten Balken geben diese Größe für die Matche an, die für den Punkt am Tag 10 der Abbildung 7.2 verwendet wurden. Die durchsichtigen Balken beziehen sich auf den Punkt am Tag 24 in Abbildung 7.2.

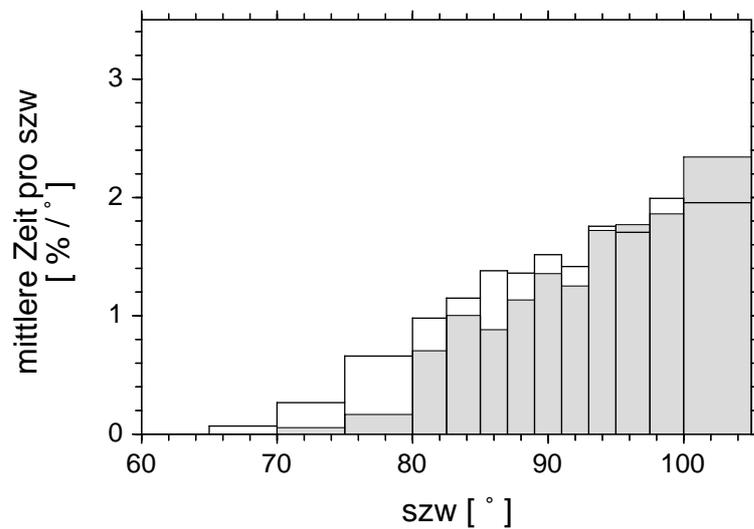


Abbildung 8.2: Wie Abbildung 8.1, aber für den Punkt am Tag 14 (ausgefüllte Balken) und am Tag 28 (durchsichtige Balken) der Abbildung 7.7.

der Zunahme von L_s während Januar 1995 muß diesem Effekt zugeschrieben werden. Es ist demnach möglich, daß 1995 die komplette Aktivierung bereits vor Ende Januar erreicht wurde. Gleiches gilt auch für 1996, wo keine Zunahme von L_s während des Januars beobachtet wurde.

8.1.3 Beobachtete Merkmale der Deaktivierungsphase

Der Rückgang der Ozonabbaurate während der Deaktivierungsphase läßt bedeutende Rückschlüsse auf die ablaufenden chemischen Mechanismen zu. In diesem Abschnitt werden die beobachteten Eigenschaften des zeitlichen Verlaufs der Deaktivierungsphase herausgestellt. Eine chemische Interpretation folgt im Abschnitt 8.1.4. Der schmale vertikale Bereich, in dem 1996 verlängerter Ozonabbau auftrat, bleibt aus der Diskussion in diesen Abschnitten ausgespart. In diesem Bereich herrschten vermutlich deutlich andere chemische Bedingungen und er wird deshalb im Abschnitt 8.1.6 gesondert behandelt.

Das auffälligste und bemerkenswerteste Merkmal des Rückgangs der Ozonabbaurate ist, daß er in allen Wintern nahezu zeitgleich gegen Ende Januar begann und im Verlauf des Februars zu sehr kleinen Raten L_s führte. Vergleicht man den Verlauf von L_s während Januar/Februar der drei Jahre (Abbildungen 7.2, 7.7 und 7.20) stellt man eine verblüffende Übereinstimmung der Kurven fest. Dabei ist der Rückgang der Ozonabbaurate offensichtlich relativ unabhängig vom Weiterbestehen von PSC-Bedingungen.

Im Februar 1992 ist noch etwa zwei Wochen nach dem Ende der PSC-Periode Ozonabbau zu finden, während 1996 der Rückgang der Abbaurate sehr ähnlich wie in den anderen Jahren verlief, obwohl PSC-Bedingungen unvermindert anhielten. Auch Beobachtungen von PSCs bestätigen die unverminderte PSC-Aktivität im Februar 1996: Die Lidar Stationen Ny-Ålesund [Stebel et al., 1996] und Alomar [Hansen, 1996] beobachteten in nahezu allen Messungen zwischen dem 1. Januar und 29. Februar 1996 PSCs, während im März in den fortgesetzten Messungen keine PSC-Beobachtungen mehr erfolgten. MLS fand bei allen Messungen während des Januar, Februars und bis zum 3. März ein beständiges lokales Minimum der HNO_3 -Konzentrationen in dem gleichen Bereich, in dem PSC-Bedingungen herrschten. Auch dies ist ein starker Hinweis darauf, daß sich im Bereich der PSC-Bedingungen während der gesamten Periode auch wirklich PSCs bildeten [Santee et al., 1996b].

Ein weiteres Indiz für die zeitliche Unabhängigkeit der Erholungsphase vom Ende der PSC-Periode findet sich bei Betrachtung der vertikalen Verteilung der Ozonabbauraten im Winter 1994/95 (Abbildung 7.9). Obwohl die PSC-Bedingungen im oberen Bereich deutlich früher zurückgingen, als weiter unten, findet sich ein solches Verhalten bei den Ozonabbauraten nicht. Wegen der Unsicherheiten, die mit der Bestimmung des tatsächlichen Endes der PSC-Periode verbunden sind, und der begrenzten zeitlichen Auflösung der gemessenen Ozonabbauraten ist diese Beobachtung allerdings nur als zusätzlicher Anhaltspunkt zu dem im letzten Absatz geschilderten deutlichen Effekt zu werten.

Ein weiteres gemeinsames Merkmal der Erholung in 1992 und 1996 ist, daß der Rückgang der Ozonabbaurate vom Rand des Wirbels her stattfand (Abbildungen 7.5 und 7.21). In beiden Jahren waren aber gerade dort die letzten PSC-Bedingungen aufgetreten (Abbildungen 6.4b und 6.14b).

Alle diese Beobachtungen legen nahe, daß der Rückgang der Ozonabbaurate im wesentlichen an die Verfügbarkeit von Sonnenlicht geknüpft ist und von der Existenz von PSCs relativ unbeeinflusst bleibt. Wenn gegen Ende Januar vom Wirbelrand her die verfügbare Menge an Sonnenlicht langsam zunimmt, setzt von dort ausgehend der Rückgang der Ozonverlustrate ein. Für

den Februar 1995 gilt dies nicht, in diesem Jahr fand die Erholung eher gleichmäßig in allen Teilen des Wirbels statt (Abbildung 7.13). Dies ist konsistent damit, daß in diesem Jahr zumindest in der ersten Februarhälfte kaum Unterschiede in den Beleuchtungsverhältnissen zwischen den verschiedenen Teilen des Polarwirbels bestanden (Abbildung 6.10).

Zwei weitere Beobachtungen bleiben anzumerken: Erstens erfolgte 1995 nach der ersten Deaktivierung im März bei neu auftretenden PSC-Bedingungen erneuter Ozonabbau, zweitens ist 1996 nach dem Auftreten extrem kalter Temperaturen während der Erholung um den 20. Februar herum eine erneute Beschleunigung des Ozonabbaus zu beobachten. Diese beiden Effekte werden weiter unten noch eingehender behandelt.

8.1.4 Die chemischen Mechanismen der Deaktivierungsphase

Die Beobachtung, daß die Deaktivierung an das Vorhandensein von Sonnenlicht geknüpft ist, ist konsistent mit unserem Verständnis der zugrundeliegenden chemischen Mechanismen. Im Verlauf des Winters wird ein Großteil des NO_y in HNO_3 überführt. Bei Rückkehr der Sonne beginnt das HNO_3 langsam zu photolysieren und NO_2 freizusetzen (R14). Dieses NO_2 führt nun über R5 die Deaktivierung durch den Aufbau des ClONO_2 -Reservoirs herbei. Die langsamste und somit zeitbestimmende Reaktion bei diesem Ablauf ist die Photolyse von HNO_3 .

Kommt die Luftmasse jedoch weiterhin mit PSCs in Kontakt, wird bisher vielfach angenommen, daß das gebildete ClONO_2 durch heterogene Prozessierung sofort wieder aktiviert wird und es somit bei Fortbestehen der PSCs nicht zu einer Erholung kommt. Die Beobachtungen stehen in deutlichem Widerspruch zu dieser Annahme. Im Folgenden wird diskutiert, warum es nicht zu einer effektiven erneuten Aktivierung des ClONO_2 kommt.

Die in Abschnitt 8.1.2 erwähnten Hinweise deuten darauf hin, daß in allen hier untersuchten Wintern im Höhenbereich der hauptsächlichen PSC-Aktivität Cl_y nahezu vollständig in ClO_x überführt wurde. Das gilt dann natürlich insbesondere für den extrem kalten Winter 1995/96. In dieser Situation erwartet man extrem niedrige HCl-Konzentrationen, die in allen Wintern auch durch Messungen bestätigt wurden [Müller et al., 1996; Urban et al., 1996]. In dieser Situation kann R9 wegen Mangel an HCl nicht mehr ablaufen. Dieses ist ansonsten die effektivste der heterogenen Reaktionen.

Es gibt nun nur zwei bekannte heterogene Mechanismen, die ClONO_2 in dieser Situation wieder aktivieren könnten. In der Gasphase ablaufende Mechanismen, wie die Photolyse von ClONO_2 sind jedenfalls in dieser Phase des Winters nicht effektiv genug, um den Aufbau des Chlornitratreservoirs zu verhindern, da sie sonst generell einen Aufbau des ClONO_2 -Reservoirs und damit einen Rückgang der Ozonabbaurate im Februar verhindern würden, was offensichtlich in den Jahre 1992 und 1995 nicht der Fall war.

Der erste der heterogenen Mechanismen ist eine Reaktivierung des ClONO_2 über R10 auf kaltem Hintergrundaerosol oder PSC II Partikeln. R10 ist sehr stark temperaturabhängig und die Reaktionswahrscheinlichkeit ist nur schlecht bekannt [Hanson und Ravishankara, 1993; Cox et al., 1994; Hanson und Lovejoy, 1995].

Der zweite denkbare Mechanismus ist die Bildung von HCl über R6 oder R8. Dieses HCl stände dann wieder für eine Reaktivierung des ClONO_2 über R9 zur Verfügung. R6 ist jedoch bei niedrigen Sonnenständen wegen der dann geringen Cl-Konzentration (vgl. Abschnitt 3.4) nicht effektiv. Die mögliche Reaktivierung des ClONO_2 mit über R8 gebildetem HCl wird eingehend bei Lary und Chipperfield [1995] diskutiert. Die Existenz eines Kanals der Reaktion von

$\text{ClO} + \text{OH}$, der ins HCl führt (also R8) ist nicht gesichert. Laboruntersuchungen geben bisher nur eine obere Grenze für die Wahrscheinlichkeit dieses Kanals an und sind auch mit der Annahme kompatibel, daß diese Reaktion nicht existiert [Leu und Lin, 1979; Burrows und Cox, 1981; Ravishankara et al., 1983; Hills und Howard, 1984; Poulet et al., 1986; Atkinson et al., 1992; De Moore et al., 1994]. Die Bedeutung dieser Reaktion konnte daher bisher nicht endgültig geklärt werden, neuere Modellstudien legen ihre Existenz jedoch nahe [Lary et al., 1995; Chance et al., 1996; Chipperfield et al., 1996a; Michelsen et al., 1996].

Der in der vorliegenden Arbeit gezeigte Rückgang der Ozonabbaurate im Februar 1996 legt nahe, daß beide oben genannten Mechanismen nicht effektiv genug sind, das gebildete ClONO_2 wieder in ClO_x zu überführen. Trotz weiterbestehender PSCs findet dann ein beständiger Verlust von ClO_x in ClONO_2 statt. Tatsächlich zeigen Messungen eines Fourier Transform Infrared Spectrometers (FTIR) in Ny-Ålesund ein Anwachsen der ClONO_2 -Säule von $0,9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ am 31. Januar auf $4,1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ am 4. März [Notholt, 1997]. Beide Messungen fanden dabei tief im Polarwirbel statt und Rückwärtstrajektorienrechnungen [Knudsen, 1996] zeigen, daß in beiden Fällen die in 475 K gemessenen Luftmassen wenige Tage vor der Messung durch Gebiete mit PSC-Bedingungen geströmt waren.

Diese Ergebnisse lassen vermuten, daß sobald Cl_y einmal vollständig aktiviert wurde, die weitere Präsenz von PSC I nur noch eine begrenzte Auswirkung auf den weiteren Ozonverlust hat. Dies würde die erwähnte Ähnlichkeit des zeitlichen Verlaufs der Erholung in den drei Jahren 1992, 1995 und 1996 erklären.

Treten allerdings während der Erholung noch einmal sehr kalte Temperaturen im Bereich der PSC II Bildungstemperatur auf, kann durch die nun wesentlich schneller ablaufende Reaktion R10 auf dem kalten Hintergrundaerosol oder gegebenenfalls auftretenden PSC II Partikeln das gebildete ClONO_2 eventuell erneut in ClO_x überführt werden. Einen Hinweis auf diesen Effekt erkennt man möglicherweise in dem Wiederanstieg der Ozonabbaurate gegen Ende Februar 1996, nachdem um den 20.2. im Wirbel erneut PSC II Temperaturen unterschritten worden waren (Abbildung 7.20). Durch die nun sehr langen täglichen Sonnenzeiten wirkt sich dieser Wiederanstieg von L_s besonders kräftig auf L_t aus (Abbildung 7.17). Es kann hier nicht geklärt werden, warum der Wiederanstieg von L_s und damit besonders auch von L_t im unteren Teil des untersuchten Bereichs stärker ausfällt als weiter oben. Als eine mögliche Erklärung kommt ein unterschiedlich intensives Auftreten von PSC II in Betracht, welches durch den hier verwendeten groben Indikator für PSC II Bedingungen nicht wiedergegeben wird.

In etwa 465 K ist die Abnahme von L_s im Februar besonders ausgeprägt. Dieses ist der Bereich, der im Januar direkt unterhalb des PSC II Auftretens lag. Es erscheint sinnvoll anzunehmen, daß die absinkenden PSC II Partikel in diesem Bereich verdunsteten. In diesem Falle würde das aus der darüberliegenden Schicht entfernte HNO_3 in dieser Schicht deponiert werden. Nach dem oben beschriebenen Mechanismus würde die so erhöhte HNO_3 -Konzentration zu einer Beschleunigung der ClONO_2 -Bildung führen. Konsistent mit der Beobachtung würde dies zu einem schnelleren Rückgang der Ozonabbaurate in dieser Schicht führen.

Die Ozonabbauphase im März 1995 gibt vermutlich einen Hinweis auf die Bedeutung der HCl -Bildung über R6 oder R8. Bei andauernder PSC-Aktivität wird das über diese Reaktionen gebildete HCl schnell mit ClONO_2 reagieren und dabei beständig kleinere Mengen an ClO_x produzieren. Da der Ozonabbau quadratisch von der ClO_x -Konzentration abhängt, machen sich diese kleineren Mengen im Ozonabbau nur schwach bemerkbar. Sind in der Luftmasse jedoch keine heterogenen Prozesse mehr möglich, bildet sich ein langsam wachsendes HCl -Reservoir

aus. Treten dann nach einer längeren Pause erneut PSCs auf, wird das gesamte HCl-Reservoir nahezu gleichzeitig zusammen mit einer entsprechenden Menge ClONO₂ reagieren und dabei ClO_x bilden. Die erreichten ClO_x-Konzentrationen sind dabei kurzzeitig wesentlich größer, als dies der Fall wäre, wenn keine PSC-Pause aufgetreten wäre. Es liegt nahe anzunehmen, daß der Ozonabbau im März 1995 von der schnellen heterogenen Reaktion eines auf diese Weise aufgestauten HCl-Reservoirs verursacht wurde.

8.1.5 Modellstudien

In Zusammenarbeit mit Ralph Lehmann (AWI Potsdam) wurden einige beispielhafte Box-Modellläufe durchgeführt, um die Existenz der im letzten Abschnitt aus allgemeinen Überlegungen heraus vorgeschlagenen Mechanismen in dem tatsächlich komplizierteren Zusammenspiel der stratosphärischen Chemie zu überprüfen. Es wurde dabei ein Chemiemodell [Lehmann und Notholt, 1996] verwandt, daß auf dem Chemiemodul von Guy Brasseur [Brasseur et al., 1997] basiert.

Analog zu Müller [1994] und Müller et al. [1994] wurden Box-Modellläufe auf einer idealisierten Trajektorie durchgeführt. Dabei wurde eine Trajektorie verwendet, die mit einer Periode von 6 Tagen zwischen 60° und 80° nördlicher Breite oszilliert. Die Sonnenzenithwinkelverteilung entlang dieser Trajektorie ist typisch für ein Luftpaket innerhalb des Wirbels im Winter 1995/96. Während der für den jeweiligen Modellauf angenommenen Periode mit PSC-Bedingungen wurde in der Luftmasse alle 6 Tage für 12 Stunden PSC-Bildung vorgeschrieben, wobei die PSC-Bildung jeweils während der Nordexkursion der Luftmasse angenommen wurde. Somit existierten in der modellierten Luftmasse während der PSC-Periode für 8% der Zeit PSCs.

Zunächst wurde ein Modellauf mit PSCs zwischen dem 1. Dezember und dem 31. Januar durchgeführt. Die Ergebnisse ab dem 1. Januar sind in Abbildung 8.3 dargestellt. Da die ClO_x und ClONO₂-Konzentrationen sowohl einen schwach ausgeprägten Tagesgang aufweisen, als auch zu jeweils festen Uhrzeiten etwas mit der 6-tägigen Breitenexkursion der Trajektorie variieren, wurden die Mischungsverhältnisse jeweils alle sechs Tage zu einer konstanten Uhrzeit ausgelesen. Die in Abbildung 8.3 eingezeichneten Linien interpolieren linear zwischen diesen Werten. Das Ozonmischungsverhältnis wurde zu den gleichen Zeitpunkten ausgelesen. Die eingezeichnete Ozonabbaurate wurde bestimmt, indem die Differenz dieses Wertes zum Ozonmischungsverhältnis zum letzten Zeitpunkt durch die in den sechs Tagen entlang der Trajektorie aufintegrierten Sonnenzeiten geteilt wurde. Die eingezeichnete Linie interpoliert wiederum linear zwischen diesen Werten. Durch diese Methode des Auslesens tauchen die durch Tagesgang und Form der Trajektorie verursachten Variationen nicht in der Abbildung auf und der saisonale Verlauf tritt klarer hervor, so daß die Mechanismen, die zu saisonalen Variationen führen, besser studiert werden können. Für die Effekte auf kürzerer Zeitskala sei hier auf Müller [1994] verwiesen. Die Ergebnisse des Laufs mit PSCs bis zum 31.1. sind im wesentlichen mit denen von Müller [1994a] vergleichbar, nur daß die vollständige Chloraktivierung hier durch das frühere Einsetzen der PSCs bereits Anfang Januar erreicht ist. Dieser Lauf gibt den qualitativen Verlauf von L_s während der Erholungsphasen im Februar 1992 und 1995 recht gut wieder. Dabei nimmt ClO_x wie nach Kapitel 3 zu erwarten zugunsten von ClONO₂ ab, welches gegen Mitte März ein deutliches Maximum erreicht. Die HCl-Erholung setzt dann wie erwartet erst Mitte März ein. Dieser Lauf zeigt, daß das verwendete Box-Modell die Ergebnisse bisheriger Studien gut rekonstruiert und einen qualitativ mit Beobachtungen übereinstimmenden Ozonabbau produziert.

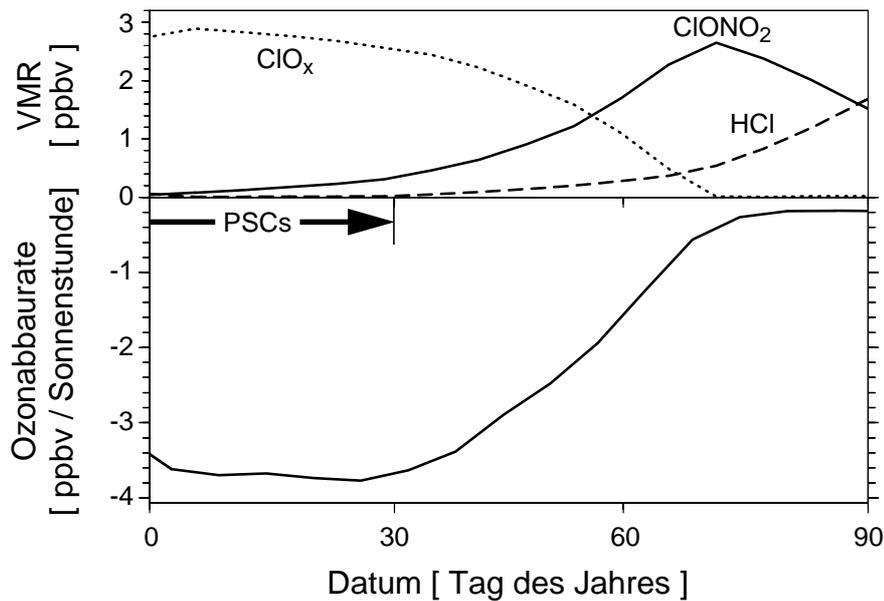


Abbildung 8.3: Ergebnisse des Modellaufs mit PSC-Bedingungen bis Ende Januar. Im oberen Teilbild sind die im Modell auftretenden zeitlichen Variationen der Mischungsverhältnisse von ClO_x (gepunktet), HCl (gestrichelt) und ClONO_2 (durchgezogen) dargestellt. Im unteren Teilbild ist die im Modell auftretende Ozonverlustrate L_s eingezeichnet.

Es muß jedoch festgestellt werden, daß das Modell quantitativ nur etwa die Hälfte der beobachteten Ozonabbaurate ergibt. Eine quantitative Übereinstimmung kann bei dieser Studie nicht unbedingt erwartet werden, da das Modell nur die Bedingungen entlang einer einzelnen künstlichen Trajektorie wiedergeben kann. Diese Art der Modellierung ist somit zwar geeignet, um grundsätzliche Mechanismen zu untersuchen, nicht jedoch um quantitative Aussagen zu machen [Müller, 1994]. Allerdings zeigen auch erste Ergebnisse zweier wesentlich umfangreicherer Arbeiten, bei denen Box-Modellläufe entlang der Trajektorien aller für Match verwendeten Luftpakete durchgeführt werden, erheblich kleinere Ozonabbauraten, als sie von Match gemessen wurden [Becker et al., 1997; Kilbane-Dawe, 1997]. Auch die Ergebnisse von Vergleichen zwischen Modellierungen mit CTMs und beobachtetem Ozonverlust zeigen, daß derzeitige CTMs den tatsächlich auftretenden Ozonverlust deutlich unterschätzen [Chipperfield et al., 1996c; Edouard et al., 1996]. Edouard et al. [1996] zeigten zwar, daß dieser Unterschied auf der zu geringen Gitterauflösung der CTMs beruhen kann, die durch die auftretende Gitterpunktdiffusion nicht in der Lage sind, lokale hohe ClO_x -Konzentrationen über längere Zeit zusammenzuhalten. Wenn sich jedoch bestätigt, daß auch Box-Modelle, bei denen dieser Effekt nicht auftritt, den Ozonabbau für die bei Match vermessenen Luftmassen nicht rekonstruieren können, scheint hier dringender weiterer Forschungsbedarf zu bestehen.

In Abbildung 8.4 sind die Ergebnisse eines Box-Modellaufs dargestellt, bei dem PSC-Bedingungen bis zum 7.3. angenommen wurden. Dieser Lauf soll die Existenz des in Abschnitt 8.1.4 vorgeschlagenen Mechanismus zur Reduktion von L_s bereits während der PSC-Periode untersuchen.

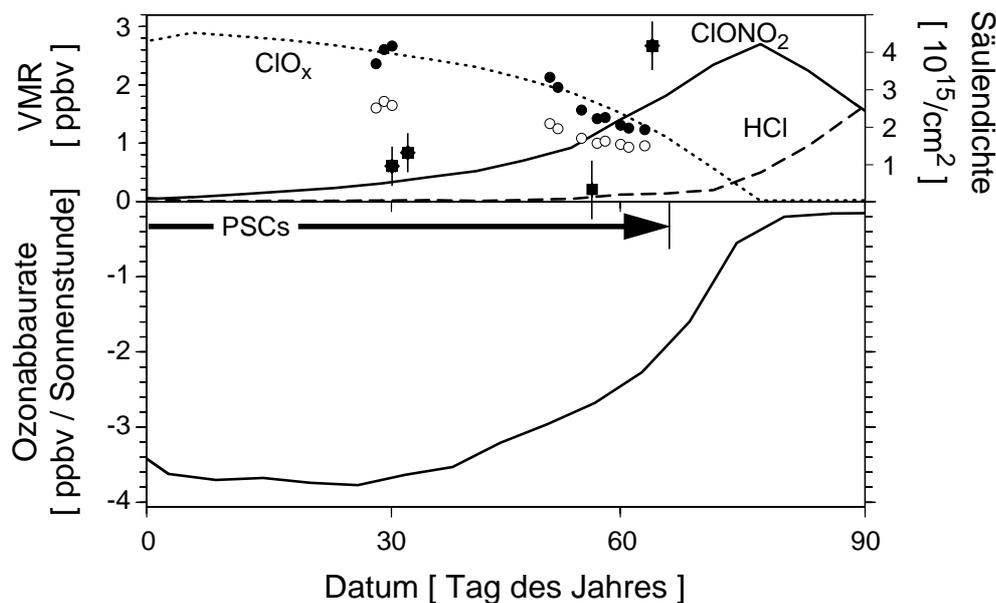


Abbildung 8.4: Die Ergebnisse des Modellaufs mit PSC-Bedingungen bis zum 7. März in gleicher Darstellung wie in Abbildung 8.3. Weiterhin sind folgende Meßwerte eingezeichnet: Wirbelmittel des ClO_x -Mischungsverhältnisses (ausgefüllte Punkte) die sich aus den MLS ClO -Daten (leere Punkte) ergeben haben; eine Messung des HCl -Mischungsverhältnisses von ASUR (ausgefülltes Quadrat) und Messungen der ClONO_2 -Säule von einem FTIR Gerät in Ny-Ålesund (ausgefüllte Sterne).

Zunächst fällt auf, daß sich L_s in diesem Lauf tatsächlich kaum von L_s im Lauf mit PSCs bis zum 31. Januar unterscheidet. L_s nimmt im Februar/Anfang März bereits deutlich ab, wobei die Abnahme gegenüber dem Lauf mit frühem PSC-Ende nur leicht verzögert ist. Die Rückbildung von ClONO_2 auf Kosten von ClO_x beginnt trotz der weiteren PSC-Aktivität bereits im Februar. Eine heterogene Reaktivierung dieses ClONO_2 ist im Modell offensichtlich nur zu einem sehr kleinen Teil möglich.

Die in Abschnitt 8.1.4 erwähnten Messungen des HCl -Mischungsverhältnisses und der ClONO_2 -Säule sind ebenfalls in Abbildung 8.4 eingezeichnet. Zusätzlich sind noch ClO -Mischungsverhältnisse eingetragen, die auf MLS Messungen beruhen [Santee et al., 1996b].

Die Orbitgeometrie des UARS Satelliten muß sorgfältig berücksichtigt werden, wenn aus den MLS Messungen Wirbelmittel gebildet werden sollen. Die Flugbahn des UARS Satelliten, auf dem MLS fliegt, ist so beschaffen, daß entlang eines Orbits zunächst nur nahezu konstante lokale Uhrzeiten auftreten. Die lokale Uhrzeit ändert sich dann beim Vorbeiflug am Pol sehr schnell, wobei sie in kurzer Zeit 12 Stunden überstreicht [Waters et al., 1993b]. Wenn also während einer Orbithälfte nahezu konstant um 11:00 Uhr lokaler Zeit gemessen wird, wird während der anderen Orbithälfte um ca. 23:00 Uhr gemessen. Die auf den beiden Orbithälften jeweils auftretenden lokalen Zeiten ändern sich dabei von Tag zu Tag langsam, so daß im Verlauf von ca. einem Monat alle lokalen Zeiten überdeckt werden. Da ClO einen ausgeprägten Tagesgang hat, hat diese Orbitgeometrie wichtige Konsequenzen für die Interpretation der ClO -Meßwerte. Santee et al. [1996b] zeigen Wirbelmittel des ClO -Mischungsverhältnisses, wobei über alle im Wirbel gelegenen Messungen des Astes des Orbits gemittelt wurde, bei dem jeweils mehr Messungen bei lokalen Uhrzeiten zwischen 6:00 Uhr und 18:00 Uhr erfolgten. Dabei wurden so-

wohl Messungen im Sonnenlicht als auch Messungen im Dunkeln verwendet. Durch die langsame Variation der lokalen Uhrzeiten entlang des Orbits und die Rückkehr der Sonne während des dargestellten Zeitraums variieren die szw, bei denen die verwendeten Messungen erfolgten, beträchtlich. Besonders deutlich wird das während der Periode Mitte Februar, während der die lokale Uhrzeit entlang der einen Orbithälfte 6:00 Uhr und auf der anderen Seite 18:00 Uhr betrug. In dieser Phase wird das Wirbelmittel von ClO nahezu nur aus Messungen in der Dämmerung und im Dunkeln gebildet. Der drastische Rückgang des in Santee et al. [1996b] dargestellten ClO-Wirbelmittels zu dieser Zeit beruht also ausschließlich auf der Orbitgeometrie.

In der vorliegenden Arbeit wurde aus den MLS Level 3A ClO-Daten [Santee, 1997] Wirbelmittel berechnet, wobei über alle im Wirbel erfolgten Messungen bei $szw < 87^\circ$ gemittelt wurde. Dabei wurde als Wirbelkante die auch sonst in der vorliegenden Arbeit verwendete Definition benutzt. Die ClO-Wirbelmittel wurden durch vertikale Interpolation in den MLS ClO-Profilen auf der gleichen diabatisch mit den Luftmassen absteigenden Fläche berechnet, auf der die in Abbildung 7.20 gezeigten Ozonverlustraten berechnet wurden. Durch die langsame Variation der lokalen Uhrzeiten entlang des UARS Orbits, ist die Überdeckung des Wirbels mit Messungen bei $szw < 87^\circ$ unterschiedlich gut. Die Wirbelmittel wurden nur an Tagen berechnet, bei denen der Wirbel ausreichend von Messungen überdeckt wurde. Daraus erklärt sich die Lücke in den Daten um Mitte Februar.

Messungen bei $szw < 60^\circ$ traten nicht auf. Die Variation der ClO-Konzentration zwischen 60° und 87° szw beträgt ca. 20 % im Gleichgewicht und bei konstantem ClO_x [Lehmann, 1997]. Es kann also nur eine im Extremfall bis zu 20 prozentige Variation in den gezeigten ClO-Daten auf die Änderung der szw während des Zeitraums am Ort der Messungen zurückgeführt werden. Da der Rückgang des ClO-Wirbelmittels (hier definiert als das Mittel über Flächen mit $szw < 87^\circ$) während des Februars 20% übersteigt, ist er nur durch ein Rückgang des mittleren ClO_x -Mischungsverhältnisses zu erklären. Dies ist ein weiterer starker experimenteller Hinweis darauf, daß im Februar 1996 die Chloraktivierung bereits während andauernder PSC-Aktivität zurückging.

Aus den ClO-Messungen mit $szw < 87^\circ$ und dem jeweiligen szw wurde unter der Annahme chemischen Gleichgewichts in dem System [$ClO + ClO \rightarrow Cl_2O_2$, $Cl_2O_2 + hv \rightarrow 2 ClO$, $Cl_2O_2 \rightarrow 2 ClO$ (thermische Zersetzung)] ClO_x berechnet. Aus den erhaltenen ClO_x -Werten wurden wiederum Wirbelmittel bestimmt und in Abbildung 8.4 eingetragen. Hier wird der Rückgang des ClO_x besonders deutlich. Die überraschend gute Übereinstimmung mit dem vom Box-Modell berechneten ClO_x zeigt, daß das Modell die Situation im Wirbel recht gut repräsentiert.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß alle Beobachtungen und das Box-Modell darauf hindeuten, daß ein beträchtlicher Teil des Cl_y Ende Februar 1996 im $ClONO_2$ gefangen war und auch bei weiterer PSC-Aktivität daraus nicht mehr freigesetzt werden konnte. Dieser Effekt, der besondere Bedeutung für den Ozonabbau der Arktis besitzt, wird hier Chlornitratfalle genannt.

8.1.6 Auswirkungen von Denitrifizierung auf den Ozonabbau in der Arktis

Während März / Anfang April 1996 wurde in ca. 470 K zum ersten Mal in der Arktis ein Andauern des Ozonverlusts noch vier Wochen nach dem letzten Auftreten von PSC-Bedingungen beobachtet (Abbildung 7.19). In diesem Abschnitt wird der Grund für dieses ungewöhnliche Verhalten diskutiert. Es soll hier nachgewiesen werden, daß es sich dabei um die Auswirkung von Denitrifizierung handelt, die in dieser Luftmasse im Januar erfolgte.

Wie in Abschnitt 6.6.3 erwähnt, lag die EZMW-Temperatur nach dem 11. März überall mindestens 4 K oberhalb der NAT-Gleichgewichtstemperatur, was weiteres signifikantes Auftreten von PSCs nahezu ausschließt. Verfolgt man die Geschichte der Luftmasse, in der der Ozonabbau bis in den April hinein andauerte, entlang der gestrichelten Linie in Abbildung 7.15 zurück, findet man, daß diese Luftmasse im Januar um 530 bis 550 K im oberen Bereich der extrem niedrigen, für PSC II Bildung ausreichend tiefen Temperaturen lag. PSC II Wolken wurden auch tatsächlich in diesem Zeitraum und Höhenbereich beobachtet. Sie fanden sich in drei von vier Messungen zwischen dem 10. und 25. Januar im Höhenbereich 525 K bis 585 K über Andøya, Norwegen [Hansen, 1996] und am 22. Januar über Sodankylä, Finnland [Vömel et al., 1997], wo PSC II in den Höhenbereichen 430 K bis 454 K und 487 K bis 547 K auftraten. Vömel et al. [1997] zeigten, daß die intensive PSC II Bildung zu einer Umverteilung von H₂O durch Absinken der großen PSC II Partikel führte. Sie fanden in 550 K eine etwa 500 m mächtige irreversibel dehydrierte Schicht. Dieses ist genau der Höhenbereich, aus dem die Luftschicht stammt, in der später der verlängerte Ozonabbau gefunden wurde. Obwohl es Hinweise gibt, daß unter bestimmten Voraussetzungen Dehydrierung auch ohne Denitrifizierung vorkommen kann [Fahey et al., 1990], ist es allgemein akzeptiert, daß in den meisten Fällen Dehydrierung mit einer Entfernung von HNO₃ aus der Luftmasse einhergeht, welches in den absinkenden PSC II Partikeln gelöst ist. Die HNO₃-Messungen von MLS geben einen weiteren allerdings schwachen Hinweis darauf, daß Denitrifizierung in diesem extrem kalten Winter stattgefunden haben könnte [Santee et al., 1996b]. Durch die geringe vertikale Auflösung der MLS HNO₃-Profile, die etwa 5 km beträgt [Santee et al., 1995], ist eine mögliche Denitrifizierung in einer ca. 500m mächtigen Schicht in diesen Daten allerdings kaum sichtbar. Denitrifizierung und Dehydrierung sind in der Antarktis in jedem Winter weit verbreitet [WMO, 1995]. Von gemessenen HNO₃-Profilen gibt es auch aus vergangenen, besonders kalten arktischen Wintern Hinweise darauf, daß begrenzte Denitrifizierung bereits früher auch in der Arktis stattgefunden hat [Hübler et al., 1990; Fahey et al., 1990; Arnold et al., 1995; Oelhaf et al., 1995]. Schwere Denitrifizierung hat einen entscheidenden Effekt auf den Ozonabbau in der betroffenen Luftmasse: wird in einer Luftmasse das HNO₃-Mischungsverhältnis stark reduziert, ist die Überführung des ClO_x in ClONO₂ während der Erholungsphase weniger effektiv, da nicht genügend NO₂ aus der Photolyse des HNO₃ freigesetzt werden kann. Wird das HNO₃-Mischungsverhältnis sogar auf Werte unterhalb des ClO_x-Mischungsverhältnisses reduziert (dies ist bei einer Denitrifizierung um etwa 80% der Fall) kann die endgültige Erholung nur noch über die erheblich langsamere HCl-Bildung im wesentlichen über die Reaktion $\text{Cl} + \text{CH}_4 \rightarrow \text{HCl} + \text{CH}_3$ erfolgen. In jedem Falle führt also eine Denitrifizierung zu einer Verlängerung der Ozonabbauperiode, wobei die Dauer der Verlängerung vom Grad der Denitrifizierung abhängt. Dieser Mechanismus ist nach allgemeinem Kenntnisstand die einzige mögliche Erklärung für eine Verlängerung des Ozonabbaus, wie sie 1996 beobachtet wurde. Da diese Verlängerung in einer Luftschicht beobachtet wurde, in der tatsächlich zuvor Dehydrierung nachgewiesen wurde, ist davon auszugehen, daß es sich dabei um die erste Beobachtung der Auswirkung von Denitrifizierung auf den Ozonabbau der Arktis handelt.

8.2 Konsequenzen für den arktischen Ozonverlust und Vergleich mit der Antarktis

Die im Maximum des chemischen Ozonverlusts im arktischen Polarwirbel gefundenen täglichen Ozonabbauraten bewegen sich in der gleichen Größenordnung wie die Raten, die für den antarktischen Polarwirbel berichtet wurden [Hofmann, 1996]. Dabei erreicht der antarktische Ozonabbau seine maximalen täglichen Raten um Äquinox, während in der Arktis das Maximum der Abbauraten im Mittel deutlich früher erreicht wird. Aufgrund der in der Arktis stärker verschobenen Lage des Wirbels wird jedoch ein mit der Antarktis vergleichbarer Sonnenanteil im Wirbel früher erreicht. Die Übereinstimmung der Abbauraten ist konsistent mit der Annahme, daß im Maximum des Ozonabbaus sowohl in der Antarktis als auch in der Arktis ein Großteil des Cl_y als ClO_x vorliegt. Die Situation in der Arktis im Maximum der Ozonabbaurate erscheint also zunächst genauso dramatisch zu sein, wie in der Antarktis, wo es dann im weiteren Verlauf des Winters zu der Ausbildung des Ozonlochs kommt. Der Hauptunterschied zwischen beiden Hemisphären ist die Zeitspanne, während der der Ozonabbau im Frühjahr anhält.

Diese Zeitspanne war in der Arktis bislang deutlich kürzer als in der Antarktis. In der Antarktis ist sowohl das Ende der Periode mit PSC Temperaturen im Frühjahr deutlich später, als auch das Auftreten von extrem tiefen Temperaturen (unterhalb des Frostpunktes) wesentlich verbreiteter. Die Erkenntnisse der letzten Abschnitte deuten darauf hin, daß dabei der zweite Punkt der Hauptgrund für den Unterschied des antarktischen Ozonabbaus zu dem der Arktis ist. Das längere Anhalten von PSC-Temperaturen allein, wenn dabei nicht der Frostpunkt erreicht wird, scheint den Beobachtungen nach nur eine mäßige Verlängerung des Ozonabbaus der Arktis bewirken zu können.

Die Überlegungen des letzten Abschnittes legen die Chlornitratfalle als plausiblen Mechanismus für diese Begrenzung des Abbaus auch bei verlängerten PSC I Bedingungen nahe. Dieser Effekt ist aus der Antarktis bislang unbekannt, da dort der Wirbel gegen Ende des Winters immer großflächig zu einem hohen Anteil denitrifiziert ist [WMO, 1995]. Daher ist der Aufbau des ClONO_2 -Reservoirs dort nicht möglich und der Rückgang der Ozonabbaurate findet erst spät durch die Bildung von HCl statt, die bei völligem Verlust von Ozon beschleunigt ist [Douglas et al., 1995; Santee et al., 1996a].

Das generelle Verhalten des Ozonabbaus muß durch die oben beschriebenen Unterschiede in der Arktis als qualitativ anders angesehen werden als das Verhalten des antarktischen Ozonabbaus. Der Verlauf des antarktischen Ozonverlusts ist typisch für einen katalytischen Abbau. Da der Katalysator ClO_x sich bei der Reaktion nicht verbraucht und da die Geschwindigkeit des Abbaus nach Z5 nicht von der Konzentration des Ozons abhängt, verläuft der Ozonabbau mit konstanter Geschwindigkeit, bis nahezu das gesamte Ozon zerstört ist, solange die äußeren Bedingungen unverändert sind. Die Ozonkonzentration nimmt also in diesem idealisierten Bild linear bis kurz vor dem völligen Ozonverlust ab. Erst dann ändert sich die Chemie derart, daß nun ClO_x durch Bildung von HCl verloren geht (Abschnitt 3.4).

Nach den Erkenntnissen der Abschnitte 8.1.3 bis 8.1.5 verhält sich der Ozonabbau in der Arktis demgegenüber deutlich anders. Der zeitliche Verlauf des Abbaus ist eher vergleichbar dem eines Abbrandprozesses, bei dem sich ein Brennstoff verbraucht. ClO_x ist natürlich nach wie vor ein bei dem Ozonabbauzyklus selbst unverbrauchter Katalysator. Sonneneinstrahlung scheint jedoch unter den bislang in der Arktis aufgetretenen Bedingungen unweigerlich einen Abbau von ClO_x zu bewirken. Der sonnenbedingte Abbau von ClO_x scheint in der Arktis auch bei weiter bestehenden PSCs stattzufinden, jedenfalls solange sich die Temperaturen in dem Bereich

bewegen, die im Winter 1995/96 aufgetreten sind. Da jedoch der Ozonabbau genauso wie der Abbau von ClO_x an die Sonne gekoppelt ist, können beide nur gleichzeitig stattfinden. Durch die Sonnenbestrahlung als gemeinsame Ursache ist der Verbrauch des den Ozonabbau treibenden ClO_x eng an den Ozonabbau selbst gekoppelt. Obwohl diese Koppelung nicht wie bei einem Abbrandprozeß kausaler Natur ist, erhält der zeitliche Verlauf des Prozesses damit eine gewisse Ähnlichkeit mit dem zeitlichen Verlauf eines Brandes. Beiden Prozessen gemeinsam ist, daß der Prozeß nach einer gewissen Zeit wegen Mangel an Brennstoff (bzw. ClO_x) von selbst zum Erliegen kommt. Der Vergleich wird sinnvoll, da die Länge dieser Zeit bei beiden Prozessen von der Geschwindigkeit des Ablaufs des Prozesses bestimmt wird.

Gäbe es einen universellen quantitativen Zusammenhang zwischen den Geschwindigkeiten des ClO_x -Abbaus und des Ozonabbaus, wäre die Gesamtmenge an Ozon, die von einer bestimmten Menge ClO_x in einem arktischen Winter zerstört wird, konstant und berechenbar. Dabei ist die Menge an ClO_x , die maximal durch Chloraktivierung zur Verfügung steht, durch Cl_y nach oben begrenzt. Die Kinetik des Ozonabbauzyklusses unterscheidet sich jedoch von der der Photolyse des HNO_3 , welche für den ClO_x -Abbau ausschlaggebend ist. Die genauen zeitlichen Verläufe des ClO_x -Abbaus und des Ozonabbaus sind von der genauen szw-Geschichte der einzelnen Luftmassen abhängig. Weiterhin sorgen die beiden in Abschnitt 8.1.4 erwähnten Mechanismen der Reaktivierung von ClONO_2 für ein Abweichen von diesem Bild. Modellrechnungen zufolge kann die Reaktivierung von ClONO_2 über R10 einen erheblichen Einfluß haben, wenn Temperaturen nahe des Frostpunktes auftreten [Portman et al., 1996]. Hinweise darauf finden sich wie erwähnt auch in den Matchdaten. Die Bildung von HCl über R6 oder R8 kann wie erwähnt hauptsächlich dann einen Einfluß haben, wenn sich in einer längeren PSC freien Periode ein HCl Vorrat ansammeln kann, der bei erneuter PSC-Bildung schlagartig hohe ClO_x -Konzentrationen hervorrufen kann.

Jedes Luftpaket erhält bei der Chloraktivierung im Laufe des Winters seinen individuellen Vorrat an ClO_x , wobei der Zeitpunkt dessen Verbrauchs von der szw-Geschichte des Luftpakets abhängt. Da die verschiedenen Luftvolumina des Wirbels unterschiedlich früh der Sonne ausgesetzt werden, findet der gekoppelte Ozon- und ClO_x -Abbau in den Luftpaketen zu verschiedenen Zeiten statt. Zu einem gegebenen Zeitpunkt befinden sich alle Luftpakete in unterschiedlichen Phasen des „Abbrennens“. Die in der vorliegenden Arbeit betrachteten Mittelwerte des Ozonabbaus mitteln über diese verschiedenen Luftpakete. Die Abklingrate dieser gemittelten Ozonabbaurate darf daher nicht mit dem Rückgang des Ozonabbaus in den einzelnen Luftpaketen verwechselt werden - genausowenig, wie die Dauer eines Scheunenbrands mit der Zeit verwechselt werden darf, die der einzelne Strohhallen in der Scheune brennt.

Dieses der Arktis eigene Verhalten des Ozonabbaus hat auch in dem ungewöhnlich langen arktischen Winter 1995/96 die Bildung eines Zustands verhindert, der mit dem antarktischen Ozonloch der letzten Jahre vergleichbar gewesen wäre.

Für eine Vergrößerung des über den Winter akkumulierten Ozonverlusts scheint eine reine Verlängerung der Periode mit PSC I Bedingungen in einem Winter nicht sehr effektiv zu sein. Die Beobachtung der Auswirkung von Denitrifizierung in einem engen Höhenbereich im arktischen Winter 1995/96 weist jedoch darauf hin, daß eine signifikante Verlängerung des Ozonverlusts auch in der Arktis eintreten kann, wenn die Temperatur in einem Winter längere Zeit unter die PSC II Bildungstemperatur fällt. Dieser Mechanismus könnte auch in der Arktis prinzipiell zu einem Zustand führen, der dem antarktischen Ozonloch vergleichbar wäre, wenn in einem zukünftigen Winter noch weiter ausgedehnte Bereiche mit Temperaturen unterhalb der PSC II Bildungstemperatur vorkommen. Solche Temperaturverhältnisse in der arktischen Stratosphäre

finden sich aber in der dreißigjährigen Berliner Reihe bisher nicht [Naujokat et al., 1996]. Für die weitere Entwicklung der arktischen Ozonschicht ist demnach von entscheidender Bedeutung, ob sich gewisse Hinweise auf einen Abkühlungstrend der stratosphärischen Temperaturen [Gelman et al., 1996] in Zukunft bestätigen.

8.3 Bewertung der arktischen Ozonverluste

Mit um 65% lokalem chemischen Ozonverlust, der nahezu zweifelsfrei auf die Wirkung der von FCKWs und Halonen freigesetzten Halogenverbindungen zurückzuführen ist, ist in der arktischen Ozonschicht eines der stärksten anthropogenen Signale in der Atmosphäre zu finden. Die Luftmassen in denen sich dieser Verlust abspielt, liegen nicht fern von Europa und driften in den meisten Wintern auch für kürzere Zeiten direkt über Europa hinweg. Spätestens bei der Auflösung des Polarwirbels im Zuge der Frühjahrsumstellung der Zirkulation werden diese Luftmassen über große Teile der Nordhemisphäre verteilt und beeinflussen mit hoher Wahrscheinlichkeit den Ozontrend über mittleren Breiten.

Die hohen Ozonverluste haben sich jedoch bisher nur in einem begrenzten Höhenbereich abgepielt und der Gesamtverlust in der Ozonsäule fiel mit 35% bislang wesentlich kleiner aus als der lokale Verlust in einer bestimmten Höhe. Zudem erreicht der Ozonverlust sein größtes Ausmaß zur Zeit des klimatologischen jahreszeitlichen Maximums der Ozonsäule. Abbildung 3.8 zeigt, daß der Verlust dieses Maximum bisher nur eingeebnet hat, so daß am Ende des Winters die Ozonsäulen im Mittel kaum kleiner waren als im Herbst. Die größere Variabilität im Frühjahr kann jedoch an einzelnen Tagen zu niedrigeren Werten führen. Eine Einschätzung, welche Auswirkung diese Einebnung des jahreszeitlichen Ozonmaximums auf die Biosphäre hat, ist zur Zeit wahrscheinlich nicht möglich und ginge jedenfalls über den Rahmen dieser Arbeit hinaus.

Kapitel 9

Fehlerdiskussion

9.1 Statistische Fehler

Alle in dieser Arbeit präsentierten Ergebnisse beruhen auf einer statistischen Analyse jeweils vieler Matchereignisse. In [Rex 1993] wurde gezeigt, daß der mit einem einzelnen Match verknüpfte statistische Fehler ($\Delta X O_3^*$) normalverteilt ist. Unter dieser Voraussetzung liefert die statistische Analyse auch Schätzungen für den statistischen Fehler des jeweilig berechneten Ergebnisses, der sich aus der Streuung der Daten ergibt. Diese Schätzungen für den statistischen Fehler sind bei allen Ergebnissen mit angegeben. Die in Abschnitt 5.5.3 beschriebenen Auswahlkriterien wurden eingeführt, um den statistischen Fehler so klein wie möglich zu halten. Aus den Abbildungen 5.19, 5.22 und 5.23 kann abgeschätzt werden, daß der statistische Fehler für ein den Auswahlkriterien entsprechendes Matchereignis etwa 10% beträgt.

9.2 Systematische Fehler

Mögliche systematische Fehler lassen sich nicht aus den Matchdaten selbst ableiten und wurden bislang nicht in der Darstellung der Ergebnisse berücksichtigt. In den folgenden Abschnitten folgt eine Abschätzung des Einflusses dieser Fehlerquellen.

9.2.1 Fehler der diabatischen Erwärmungsraten

Sind die in der Korrektur der diabatischen vertikalen Bewegung der Trajektorie verwendeten Erwärmungsraten ($d\Theta/dt$) systematisch falsch, führt das dazu, daß im zweiten Ozonsondenprofil systematisch in einem etwas über oder unter der wahren Position des Luftpakets gelegenen Niveau abgelesen wird. Da das Ozonmischungsverhältnis im Mittel nach oben ansteigt, würde dies zu einem systematischen Effekt auf den bestimmten Ozonabbau führen. Da der mittlere vertikale Gradient im Ozonmischungsverhältnis im untersuchten Bereich nach oben abnimmt, wäre dieser Effekt in den unteren Schichten stärker ausgeprägt. In den drei hier untersuchten Jahren war der mittlere vertikale Gradient des Ozonmischungsverhältnisses im Jahr 1992 am größten. Aus bislang unbekanntem Gründen war dieser Gradient im Jahr 1995 und besonders im Jahr 1996 bereits im Frühwinter wesentlich schwächer als in früheren Jahren [von der Gathen et al., 1996].

Um die Sensitivität der gefundenen Ozonabbauraten auf mögliche Fehler der verwendeten $d\Theta/dt$ zu untersuchen, wurde die Auswertung mit variiertem $d\Theta/dt$ wiederholt. Dabei wurden auf 150% vergrößerte und auf 50% verkleinertes $d\Theta/dt$ verwendet. Eine weitere Auswertung wurde ganz ohne Berücksichtigung der diabatischen Abkühlung durchgeführt. Abbildung 9.1 zeigt für den Winter 1992 die Ergebnisse dieser Berechnungen im Vergleich zu der Originalrechnung. Die Rechnung ohne diabatische Abkühlung produziert scheinbare Ozonproduktion

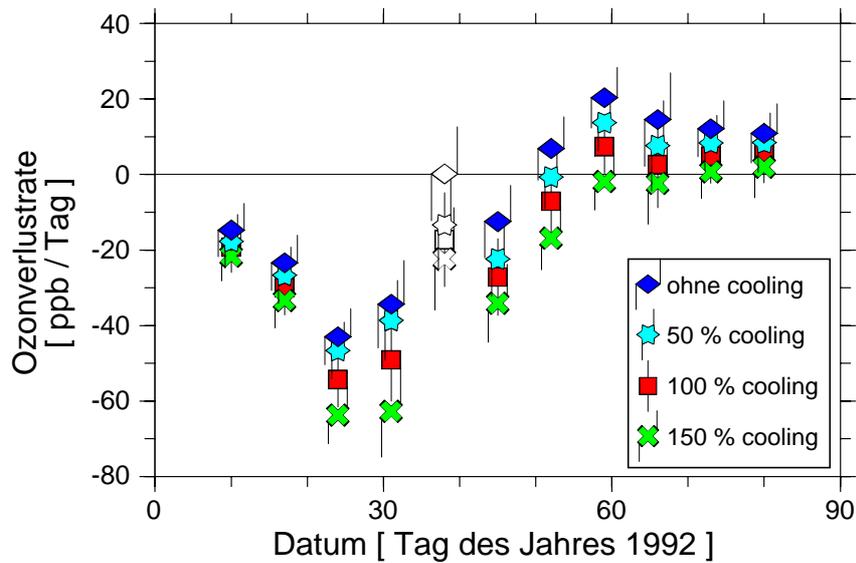


Abbildung 9.1: Wie Abbildung 7.3 mit zusätzlich eingezeichneten Ozonabbauraten, die sich ergeben, wenn die bei der Berechnung verwendeten diabatischen Raten (in der Legende kurz 'cooling' genannt) um die Hälfte vergrößert, halbiert oder ganz auf Null gesetzt werden.

Ende Februar und im März, was sehr unwahrscheinlich erscheint. Es ist demnach davon auszugehen, daß der wahre auf dem Fehler der verwendeten diabatischen Erwärmungsraten beruhende Fehler in der Ozonabbaurate deutlich kleiner ist, als die Spreizung der Kurven in Abbildung 9.1.

Abbildung 9.2 zeigt das Ergebnis der gleichen Rechnung für das Jahr 1995. Aus den oben geschilderten Gründen ist der Einfluß der verwendeten $d\Theta/dt$ auf den berechneten Ozonverlust in diesem Jahr nur minimal. Ein sehr ähnliches Ergebnis findet man auch für das Jahr 1996.

Die Raten $d\Theta/dt$ berechnen sich aus der Summe der Absorption solarer Einstrahlung und dem Nettoeffekt aus Emission und Absorption infraroter Strahlung. Dabei weist der solare Term einen ausgeprägten Tagesgang auf. Kurzwellige und infrarote Strahlungsterme werden bei der Berechnung der Erwärmungsraten getrennt behandelt und können unterschiedliche Fehler aufweisen, was zu einem Tagesgang im systematischen Fehler der Erwärmungsraten führen kann. So ein Effekt könnte Einfluß auf die bivariate Regression haben, die verwendet wurde, um zu zeigen, daß kein Ozonabbau in dunklen Bereichen entlang der Trajektorien auftritt. Auch hier wurde die Sensitivität des Ergebnisses auf gerade noch realistische Annahmen untersucht. Dabei wurde die Untersuchung auf den Winter 1991/92 beschränkt, der diesem Effekt gegenüber am sensitivsten sein sollte. Die bivariate Regression wurde auf die Ergebnisse folgender zusätzlicher Auswertungen angewandt, bei denen jeweils die verwendeten $d\Theta/dt$ während sonnenbeschienener Zeiten und während dunkler Zeiten einzeln variiert wurden:

1. 2 K / 24 h zusätzliche diabatische Erwärmung während sonnenbeschienener Zeiten.
2. 2 K / 24 h zusätzliche diabatische Abkühlung während sonnenbeschienener Zeiten.
3. 2,43 K / 24 h zusätzliche diabatische Erwärmung während sonnenbeschienener Zeiten und 0,5 K / 24 h zusätzliche diabatische Abkühlung während dunkler Zeiten.
4. 2,43 K / 24 h zusätzliche diabatische Abkühlung während sonnenbeschienener Zeiten und 0,5 K / 24 h zusätzliche diabatische Erwärmung während dunkler Zeiten.

Die Fälle 3 und 4 lassen das mittlere $d\Theta/dt$ in den verwendeten Luftmassen unverändert. Die Ergebnisse der bivariaten Regression ergaben sich wie folgt:

1. $L_s = -5,5 \pm 1,5$ ppb/Stunde
 $L_d = 0,4 \pm 0,4$ ppb/Stunde
2. $L_s = -8,6 \pm 1,7$ ppb/Stunde
 $L_d = 0,5 \pm 0,4$ ppb/Stunde
3. $L_s = -5,6 \pm 1,5$ ppb/Stunde
 $L_d = 0,2 \pm 0,4$ ppb/Stunde
4. $L_s = -8,1 \pm 1,6$ ppb/Stunde
 $L_d = 0,7 \pm 0,4$ ppb/Stunde

Es wurde demnach kein realistischer Fall gefunden, bei dem scheinbarer Ozonabbau im Dunkeln stattfindet.

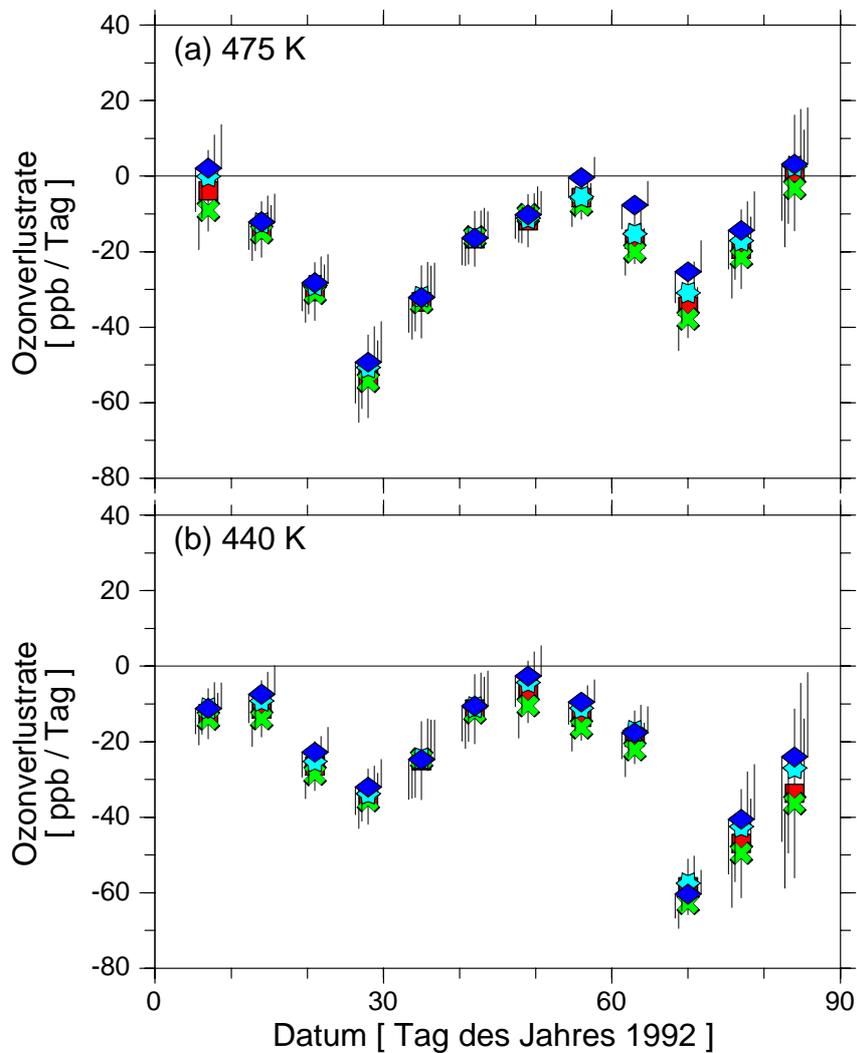


Abbildung 9.2: Wie Abbildung 9.1, jedoch für die Januar bis März 1995 erhaltenen Ozonabbauraten.

9.2.2 Überdeckung des Wirbels

Die vorgestellten Ergebnisse verstehen sich jeweils als über den Polarwirbel gemittelte Ozonabbauraten. Tatsächlich wurde aber natürlich nur entlang der verwendeten Trajektorienabschnitte gemittelt. Sind die Trajektorienabschnitte nicht gleichmäßig im Wirbel verteilt, gehen verschiedene Wirbelbereiche mit unterschiedlicher Wichtung in das Mittel ein. Da die Ozonabbauraten L_s häufig nicht über den Wirbel konstant sind, führt das zu einer Verfälschung der Mittelwerte. Da bei den Matchereignissen das jeweils vermessene Luftpaket zwischen beiden Messungen den Wirbel normalerweise ein- bis zweimal umrundet, ist die Mittelung entlang der PV Isolinien bei der Matchmethode automatisch sehr gut. Eine ungleichmäßige Beprobung der verschiedenen PV Intervalle ist jedoch möglich. In den Abbildungen 9.3, 9.4 und 9.5 sind die pPV-Werte der in verschiedenen Niveaus verwendeten Matchereignisse für alle untersuchten Zeiträume aufgetragen. Da in gleichen Intervallbreiten von pPV jeweils eine gleiche Teilfläche des Wirbels liegt, sollten bei gleichmäßiger Beprobung die Matchereignisse gleichmäßig über die in den Abbildungen gezeigte pPV / Datum-Fläche verteilt sein.

Während des Winters 1991/92 war die Beprobung des Wirbels während des Januars sehr gleichmäßig. Während Februar und März sind die innersten 20 Flächenprozent des Wirbels im Ergebnis unterrepräsentiert. Abbildung 7.5 zeigt, daß während des Februars L_s im Wirbelrand signifikant kleiner ist, als im erfaßten Teil des Wirbelkerns. Sollten auch die nicht berücksichtigten innersten 20% ein über dem Wirbelmittel liegendes L_s aufweisen, wird das Wirbelmittel der Ozonabbaurate in den Abbildungen 7.2 und 7.3 während des Februars eventuell leicht unterschätzt.

Auch im Winter 1994/95 wurde der Wirbel während Januar/Anfang Februar in allen Niveaus wieder recht gleichmäßig beprobt, wobei nur die innersten 10% (440 K) bzw. innersten 20% (475 und 490 K) des Wirbels unterrepräsentiert sind. Ein Vergleich mit dem in diesem Zeitraum

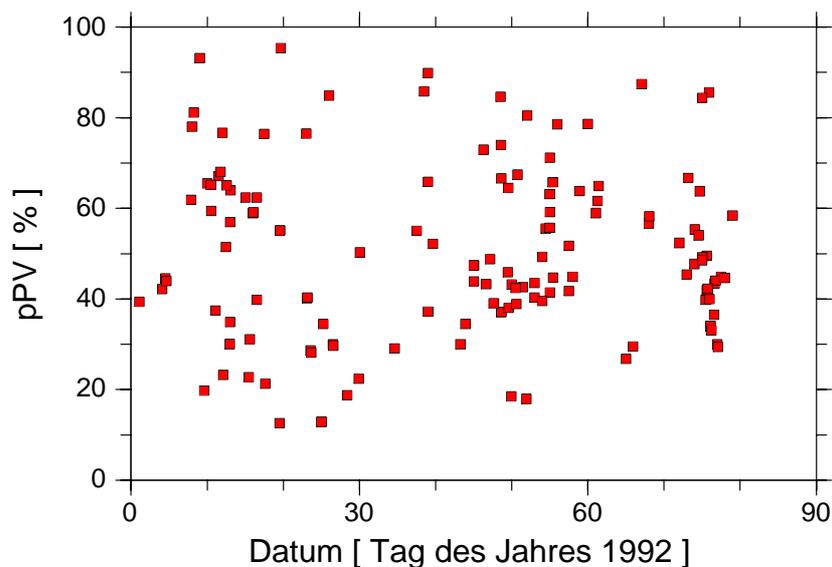


Abbildung 9.3: Die Lage aller in Abbildung 7.2 verwendeten Matche in der pPV/Datum-Fläche.

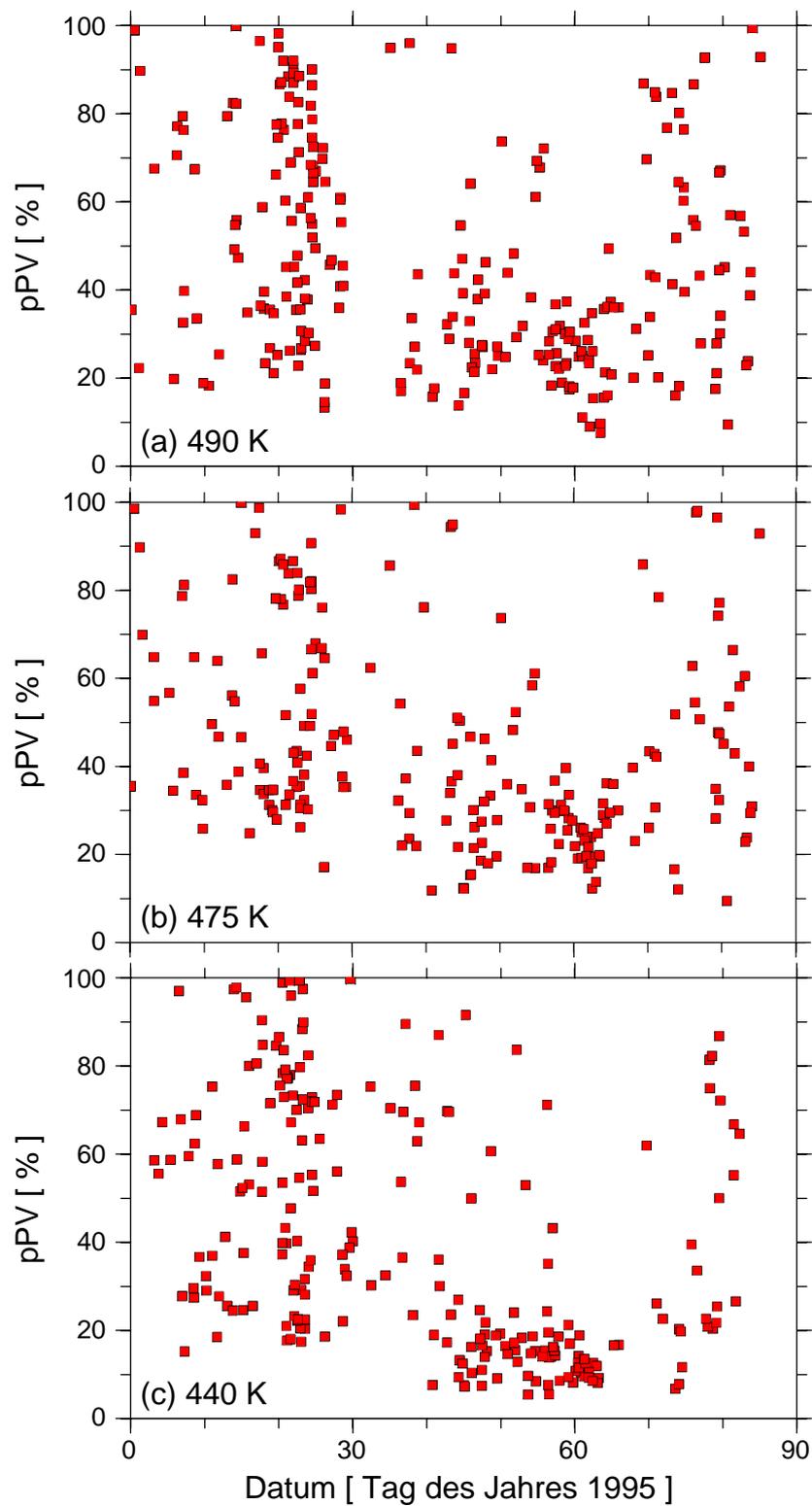


Abbildung 9.4: Die Lage aller in Abbildung 7.7(a-c) verwendeten Matche in der jeweiligen pPV/Datum-Fläche.

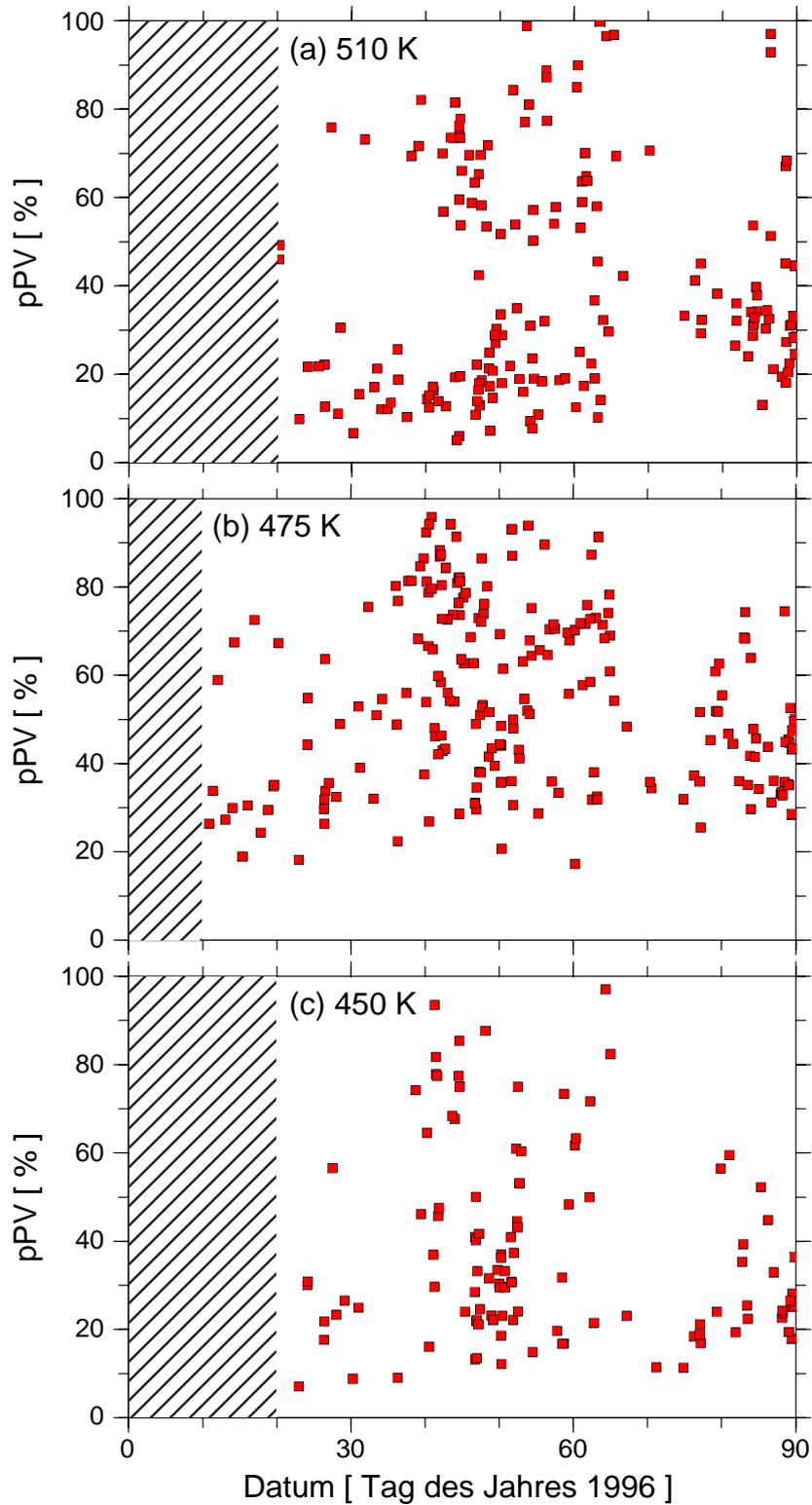


Abbildung 9.5: Für drei in Abbildung 7.15 dargestellte vertikale Bereiche die Lage der jeweilig verwendeten Matche in der pPV/Datum-Fläche. Bereiche, die wegen ungenügender Dichte an Matchen nicht ausgewertet wurden, sind hier schraffiert.

in den verschiedenen Wirbelbereichen gemessenen L_s (Abbildung 7.13a) zeigt, daß dadurch das Wirbelmittel der Ozonverlustrate in diesem Zeitraum eventuell leicht überschätzt wird. Während einer kürzeren Phase zum Monatswechsel Februar/März beruhen die Ergebnisse fast ausschließlich auf Matchereignissen in den inneren 50% des Wirbels. Da aber bereits vorher L_s schon in allen Bereichen des Wirbels sehr weit zurückgegangen war (Abbildung 7.13b), dürfte das keine Auswirkung auf das sehr kleine Wirbelmittel von L_s während dieser Periode haben. Im März ist die Beprobung des Wirbels oberhalb von 440 K wieder sehr gleichmäßig. In 440 K ist allerdings der Wirbelkern im Ergebnis etwas überrepräsentiert. Da in dieser Phase des Winters die PSC-Bedingungen im wesentlichen im Wirbelkern unterschritten wurden, erscheint es plausibel, daß L_s in diesem Zeitraum dort größer war als im Wirbelmittel. Es existieren während dieser Phase jedoch nicht genügend Matche, um diese Vermutung aus den Matchdaten überprüfen zu können. Sollte L_s während dieses Zeitraums tatsächlich zum Wirbelkern hin zugenommen haben, würden die Wirbelmittel von L_s in dieser Phase etwas überschätzt werden.

Im Winter 1995/96 wurde während des Januars in 475 K sowohl der äußere Wirbelrand, als auch der innerste Kern schwächer beprobt. In den anderen Niveaus kamen in diesem Zeitraum nicht genügend Matche für eine sinnvolle Auswertung zusammen. Im Februar wurde der Wirbel in allen Niveaus recht gleichmäßig abgedeckt, wobei nur in 475 K der innerste Wirbelkern nicht erfaßt wurde. Da L_s in diesem Zeitraum aber nur wenig mit PV variierte (Abbildung 7.21a), dürfte dies kaum Einfluß auf das berechnete Wirbelmittel von L_s haben, welches in 475 K allenfalls leicht überschätzt wurde. Im März sind dann in allen Niveaus sowohl Wirbelrand als auch Wirbelkern in den Daten unterrepräsentiert. Nach Abbildung 7.21b dürfte das erneut zu einer leichten Überschätzung des Wirbelmittels der Ozonabbaurate führen.

9.2.3 Mögliche Drift der Trajektorien

Da das mittlere Ozonmischungsverhältnis im Wirbel in der Regel eine gewisse Korrelation mit PV aufweist (welche sich aber durchaus in verschiedenen Phasen des Winters ändern kann), würde ein systematischer Effekt auf die berechneten Ozonabbauraten zu erwarten sein, falls die für Match verwendeten Trajektorien systematisch zu kleineren oder größeren PV Werten drifteten. In [Rex, 1993] wurde gezeigt, daß die während des Winters 1991/92 verwendeten Trajektorien kein systematisches Driften über PV-Isolinien hinweg zeigten.

Auch die während 1994/95 und 1995/96 verwendeten Trajektorien wurden einem solchen Test unterzogen. Dabei wurde für unterschiedliche Zeit- und Höhenintervalle jeweils für alle Match-Ereignisse in dem entsprechenden Intervall die Differenz des PV-Wertes auf der Trajektorie zum Zeitpunkt der ersten und der zweiten Ozonsondenmessung gebildet. Die Mittelwerte und Streuungen dieser Differenzen wurden untersucht. Dabei fand sich in keinem Fall ein signifikant von Null verschiedener Mittelwert der Differenzen. Für 92 Matche im Januar 1995 zwischen 470 und 480 K betrug der Mittelwert der nPV Differenz zwischen End- und Anfangspunkt z.B. $-0,36 \text{ s}^{-1}$, die Streuung der Mittelwerte betrug $3,15 \text{ s}^{-1}$. Aus dieser Streuung wird der 1σ Fehler des Mittelwerts zu $\pm 0,33 \text{ s}^{-1}$ abgeschätzt.

9.3 Vergleich der Ergebnisse mit anderen Arbeiten

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit mit denen anderer Studien verglichen. Wegen der starken vertikalen und zeitlichen Variabilität der Ozonabbauraten ist bei einem solchen Vergleich auf eine genaue Übereinstimmung der jeweiligen Untersuchungsgebiete und Zeiträume zu achten. Die Match-Methode erlaubte die Bestimmung der Abbauraten in relativ großer vertikaler und zeitlicher Auflösung. Die gefundenen maximalen Raten wirken

daher auf den ersten Blick häufig größer als die anderer Arbeiten. Dies ist jedoch meist darauf zurückzuführen, daß in diesen Arbeiten über längere Zeiträume gemittelt wird, wodurch kleinere maximale Raten auftreten. In diesem Abschnitt werden daher die Ergebnisse von Match jeweils in gleicher Weise gemittelt, bevor sie mit denen anderer Arbeiten verglichen werden. Die jeweils verwendeten Methoden der anderen Arbeiten sind in Kapitel 4 beschrieben.

Für den Winter 1991/92 können die Match-Ergebnisse mit dem von Browell et al. [1993] aus Lidardaten abgeschätzten akkumulierten Ozonverlust verglichen werden. Browell et al. [1993] schätzen den chemischen Ozonverlust in 460 K innerhalb des Polarwirbels zwischen dem ersten Satz ihrer Messungen (14. Januar bis 23. Januar 1992) und ihrem zweiten Meßdatensatz (19. und 20. März 1992) mit 23 % innerhalb des Polarwirbels ab. Ihre Definition des Polarwirbels ($PV > 27,5$ PVU in 460 K, das entspricht 33 s^{-1} nPV) umfaßt einen etwas größeren Bereich als die in der vorliegenden Arbeit verwendete Definition. Sie machen keine Aussage darüber, auf welche Referenzgröße sich ihre prozentuale Angabe bezieht. Wird das von ihnen angegebene mittlere Januarprofil als Referenz verwendet, erhält man aus der prozentualen Angabe in dem angegebenen Zeitraum einen akkumulierten Verlust von etwa 0,72 ppmv Ozon. Die Match-Analyse ergab in dem gleichen Zeitraum und Höhenbereich einen Verlust von 0,89 ppmv. Bei Berücksichtigung der Tatsachen, daß die verwendeten Definitionen des Wirbelrand etwas unterschiedlich sind und daß Browell et al. [1993] nur einen kleinen Teil der innerhalb des Wirbels gelegenen Luftmassen beprobt haben, sind diese beiden Ergebnisse konsistent.

Für den Winter 1994/95 sind mehrere Abschätzungen des chemischen Ozonverlusts veröffentlicht bzw. zur Veröffentlichung eingereicht worden. Manney et al. [1996b] verwendete Daten von MLS und Transportrechnungen. Sie definieren den Polarwirbel in 465 K als den Bereich mit PV Werten größer als 30 PVU. Dies sind etwa 34 s^{-1} nPV was der in der vorliegenden Arbeit verwendeten Definition recht gut entspricht. Manney et al. [1996b] fanden einen chemischen Ozonverlust von 0,5 ppmv auf der 465 K Isentrope zwischen dem 21. Dezember 1994 und dem 1. Februar 1995. Werden die Ozonverlustraten von Match auf dem gleichen Niveau zwischen dem 1. Januar und dem 1. Februar 1995 integriert, ergibt sich ein Ozonverlust von $0,55 \pm 0,15$ ppmv. Nimmt man an, daß kein wesentlicher Ozonverlust zwischen dem 21. und 31. Dezember 1994 stattgefunden hat, stimmen die Werte beider Methoden sehr gut überein. Die Annahme ist aufgrund des in dieser Zeit mangelnden Sonnenlichtes sehr plausibel. Über den Februar 1995 schätzten Manney et al. [1996b] einen akkumulierten Verlust von 0,3 bis 0,4 ppmv auf der 465 K Isentropen ab. Die Match-Analyse ergibt im gleichen Zeitraum und Höhenbereich einen Ozonverlust von $0,41 \pm 0,24$ ppmv. Die Analyse von Manney et al. [1996b] endet am 8. März. Für die ersten acht Märztag fanden sie in 465 K keinen signifikanten Ozonverlust. Die Matchanalyse findet in diesem Zeitraum $0,16 \pm 0,09$ ppmv Ozonverlust auf der 465 K Isentropen. Der weitaus größere Teil des Ozonverlusts, der im März von der Match-Analyse gefunden wurde, fand nach dem 8. März statt. Zusammenfassend kann die Übereinstimmung der Ergebnisse der vorliegenden Arbeiten mit denen von Manney et al. [1996b] als sehr gut bezeichnet werden.

Braathen et al. [1996] verwenden das über den Wirbel gemittelte Ozonmischungsverhältnis, welches von Ozonsonden gemessen wurde. Als Polarwirbels wird in 475 K der Bereich mit PV Werten größer als 42 PVU bezeichnet, was 42 s^{-1} nPV entspricht. Dies sind etwa die inneren 80 Flächenprozent des in der vorliegenden Arbeit als Polarwirbel bezeichneten Bereichs. Braathen et al. [1996] zeigten, daß das von den Sonden gemessene mittlere Ozonmischungsverhältnis im Wirbel in 475 K zwischen dem 18. Januar und dem 24. Februar 1995 mit einer durchschnittlichen Rate von $1,1 \pm 0,1$ %/Tag abnahm. Auf den gleichen Zeitraum und Höhenbereich bezogen betrug die mittlere von Match gemessene prozentuale Ozonabbaurate $0,82 \pm 0,17$ %/Tag. Auf

der 435 K Isentrope fanden Braathen et al. [1996] einen Rückgang des Ozonmischungsverhältnisses mit einer mittleren Rate von $1,0 \pm 0,1$ %/Tag zwischen dem 10. Januar und dem 10. April 1995. In der kürzeren Periode vom 1. März bis zum 21. März 1995 fanden sie eine mittlere Rate der Ozonabnahme von $2,5 \pm 0,6$ %/Tag. Werden die chemischen Ozonverlustraten von Match auf dieser Isentrope über die gleichen Zeiträume gemittelt, ergeben sich $1,2 \pm 0,2$ %/Tag bzw. $2,9 \pm 0,4$ %/Tag. Im allgemeinen ergibt sich während der hier betrachteten Zeiträume eine recht gute Übereinstimmung zwischen den chemischen Ozonverlustraten und der Abnahme des Ozonmischungsverhältnisses auf einer Isentrope im Wirbel. Dabei sind jedoch im unteren Bereich die Ozonabnahmeraten etwas kleiner, als die in der vorliegenden Arbeit berichteten chemischen Ozonverluste. Der Hauptgrund hierfür ist höchstwahrscheinlich diabatischer vertikaler Transport von höherem Ozonmischungsverhältnis in die Isentrope hinein. Der Austausch von Luftmassen über den Wirbelrand ist als weiterer schwer kalkulierbarer Faktor zu berücksichtigen.

Müller et al. [1996] verwenden die Korrelation von Ozon mit Methan zur Bestimmung chemischer Ozonverluste. Sie berichten konsistent mit dem hier gezeigten Ergebnis lokale Ozonverluste von 'über 50 %' bis Ende März 1995. Als Verlust in der Ozonsäule erhalten sie bis Ende März 85 ± 16 DU. Dieser Wert ist signifikant kleiner als der in der vorliegenden Arbeit berichtete chemische Verlust in der Gesamtsäule, welcher 127 ± 14 DU beträgt. Als Grund für diese Diskrepanzen kommen eine ungleichmäßige Beprobung des Polarwirbels durch die bei Müller et al. [1996] verwendeten HALOE Daten oder Mischungsprozesse über den Wirbelrand in Betracht. Diese können einen schwer einschätzbaren Effekt auf die Analyse von Müller et al., [1996] haben (siehe Kapitel 4). Ein kleinerer Teil der Abweichung kann auch darauf beruhen, daß Müller et al. [1996] nur die in der Säule zwischen 350 K und 550 K auftretenden Ozonverluste erfaßt, während in der vorliegenden Arbeit auch der Bereich 550 bis 600 K noch mit einem kleinen Teil am Verlust in der Gesamtsäule beteiligt war.

Goutail et al. [1997] verknüpften SAOZ Messungen mit Transportmodellrechnungen. Wie Braathen et al. [1996] verwenden sie 42 PVU in 475 K als Außengrenze des Polarwirbels. Sie berichten einen akkumulierten Verlust in der Ozongesamtsäule von 160 ± 20 DU von Ende Dezember bis Ende März. Der in der vorliegenden Arbeit erhaltene Wert für den chemischen Verlust der Ozongesamtsäule im gleichen Zeitraum beträgt 127 ± 14 DU. Der von Goutail et al. [1997] angegebene Wert ist größer, die Fehlerbalken überlappen jedoch noch.

Die chemischen Ozonverluste des Winters 1995/96 wurden bisher von zwei Arbeiten behandelt. Manney et al. [1996a] untersuchten den Zeitraum 29. Januar bis 3. März mit MLS-Daten und Transportrechnungen und fanden in 465 K eine über diesen Zeitraum gemittelte chemische Ozonabbaurate von 22 ppbv/Tag. Werden die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit in der gleichen Isentrope über den gleichen Zeitraum gemittelt, ergibt sich eine mittlere Rate von 20 ± 4 ppbv/Tag, also eine sehr gute Übereinstimmung.

Müller et al. [1997] untersuchten die Ozon/Methan Korrelation in den Daten von HALOE und berichten vom Winter 1995/96 ca. 2,9 ppmv in 450 K als maximalen chemischen Verlust in einer Höenschicht zwischen Ende Januar und dem 10. April 1996. Dieser Wert liegt merklich über dem Verlust von $2,4 \pm 0,3$ ppmv im gleichen Zeitraum und Höhenbereich, der sich in der vorliegenden Arbeit aus einer Analyse der Matchdaten ergab. Als mögliche Ursachen für die Differenz kommen die bereits oben genannten Gründe in Betracht.

Als Fazit dieses Abschnitts kann festgestellt werden, daß in der Regel recht gute Übereinstimmungen vorliegen, wo ein Vergleich der vorliegenden Ergebnisse mit denen anderer Studien möglich ist, die Chemie und Dynamik quantitativ trennen. Dies gilt besonders für Vergleiche der Ergebnisse mit denen, die mit dem Verfahren von Manney et al. [1996] und Manney et al. [1996b] gewonnen wurden. Da sich bei diesem Verfahren sowohl die Art der Ozonbeobachtung als auch die der Auswertung der Daten beträchtlich von den Mitteln unterscheiden, die in der vorliegenden Arbeit verwendet wurden, läßt diese Übereinstimmung das Vertrauen in die Ergebnisse wachsen. Merkliche, teilweise signifikante Abweichungen der Ergebnisse treten allerdings zu den Arbeiten auf, die Ozonabbau mit Hilfe von Tracerkorrelationen bestimmen.

Fazit und Ausblick

Die in der vorliegenden Arbeit eingeführte Match-Methode hat sich als sehr gut geeignet zur Bestimmung von chemischen Ozonabbauraten im arktischen Polarwirbel herausgestellt. Die von einer umfangreichen Match-Kampagne erhaltenen Ergebnisse erlauben es, den Ozonabbau innerhalb des Polarwirbels detailliert in zeitlicher, vertikaler und bedingt auch in radialer Richtung aufgelöst zu bestimmen. Da die verwendeten Luftmassen genau identifiziert werden, erlaubt die Match-Methode darüberhinaus prinzipiell weitere Analysen, wie die Bestimmung von separaten Ozonabbauraten während dunkler und heller Perioden. Die von Match gefundenen Ozonverlustraten lassen sich mit denen anderer Analysen vergleichen, wenn sie über längere Zeiträume gemittelt werden. Die Übereinstimmung der so erhaltenen Werte ist generell sehr gut. Die Größe der von Match ermittelten Ozonverluste liegt im Mittelfeld der anderen Abschätzungen.

Trotz der verhältnismäßig hohen Kosten einer Match-Kampagne stellt diese Methode eine sehr effektive Nutzung der eingesetzten Mittel dar. Viele der für Match eingesetzten Ozonsonden wären zur regelmäßigen nationalen Überwachung der Ozonschicht auch unabhängig von einer Kampagne eingesetzt worden. Durch die Koordinierung in einer Match-Kampagne kann der wissenschaftliche Wert dieser Ozonsondenmessungen erheblich gesteigert werden.

Als hauptsächliche wissenschaftliche Erkenntnisse der vorliegenden Arbeit sind zwei Punkte herauszuheben: Bei der Analyse der Ozonverlustraten wurde ein Mechanismus gefunden, der unter arktischen Bedingungen den insgesamt während eines Winters auftretenden Ozonverlust zu begrenzen scheint, selbst wenn es zu einer späten Erwärmung kommt. Es wurden im extrem kalten Winter 1995/96 jedoch auch Signaturen im Ozonverlust gefunden, die zeigen, daß diese Begrenzung des Ozonabbaus auch in der Arktis, ähnlich wie in der Antarktis, versagen kann, wenn während des Winters extrem tiefe Temperaturen auftreten. Dies zeigt, daß sich auch in der Arktis prinzipiell ein Ozonloch bilden kann. Dazu müßte jedoch ein kälterer Winter auftreten, als er während der letzten dreißig Jahren beobachtet wurde.

Die Match-Kampagnen haben sich in den letzten Jahren als Werkzeug zur Diagnose von Ozonverlusten im arktischen Polarwirbel fest etablieren können. Auf die beiden in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Kampagnen folgte bereits im Winter 1996/97 eine erneute Match-Kampagne, deren Auswertung zur Zeit läuft. Weitere Kampagnen sind in den kommenden Wintern geplant und bereits finanziell gesichert. Die Möglichkeit der Erweiterung des Einsatzes von Match auf Lidar-Messungen wird derzeit geprüft. Ziel der zukünftigen Kampagnen soll auch sein, eventuellen chemischen Ozonabbau in-situ über mittleren Breiten zu untersuchen. Erste Analysen einiger während des Winters 1994/95 auch in mittleren Breiten koordinierter Match-Ereignisse lassen dies möglich erscheinen. Bei weiter zunehmender Datenbasis soll der Tagesgang der Ozonverlustrate mit den Match-Daten untersucht werden. Eine Auswertung des gemessenen Tagesgangs kann prinzipiell dazu verwendet werden, die relative Bedeutung der verschiedenen Abbauzyklen untereinander zu klären.

Anhang A

Tabelle der Stationen

In der Tabelle auf den folgenden Seiten sind die genauen Stationskoordinaten und die Teilnahme der Stationen an EASOE und die Startbereitschaftszeiträume der Stationen während Match 1994/95 und Match 1995/96 zusammengefaßt. Änderte sich der Startbereitschaftszeitraum einer Station während der Kampagnen, ist der Zeitraum eingetragen, der die längste Zeit gültig war. Die Startbereitschaftszeiträume waren im allgemeinen vom Wochentag abhängig, so daß sie in der Tabelle für alle Wochentage getrennt angegeben sind.

Station	Kürzel	nördl. Breite [°]	östl. Länge [°]	EASOE	Match Startbereitschaftszeiträume [UT]						
					Mo	Di	Mi	Do	Fr	Sa	So
Aberystwyth	AB	52.4	355.9	x	8-19	8-19	8-19	8-19	8-19	8-19	8-19
Alert	AL	82.5	297.7	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Andøya	AN	69.3	16.0	-	7-15	7-15	7-15	7-15	7-15	-	-
Athens	AT	37.9	23.8	x	8-22	8-22	8-22	8-22	8-22	8-22	8-22
Bear Island	BI	74.3	19.0	x	12	12	12	12	12	12	12
San Pietro Capofiume	CA	44.7	11.6	x	12	12	12	12	12	12	12
Churchill	CH	58.8	265.9	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
De Bilt	DB	52.1	5.2	-	0, 6, 12, 18	0, 6, 12, 18	0, 6, 12, 18	0, 6, 12, 18	0, 6, 12, 18	0, 6, 12, 18	0, 6, 12, 18
Dikson	DI	73.5	80.3	x	-						
Edmonton	ED	53.6	245.9	x	0, 12	0, 12	0, 12	0, 12	0, 12	0, 12	0, 12
Egedesminde	EG	68.7	307.3	x	-						
Eureka	EU	80.0	274.6	-	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Gardermoen	GA	60.1	11.0	x	0-4, 7-24	0-4, 7-24	0-4, 7-24	0-4, 7-24	0-4, 7-24	0-4, 7-24	0-4, 7-24
Goose Bay	GB	53.3	299.6	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Heiss Island	HI	80.6	58.1	x	-						
Hohenpeißenberg	HO	47.5	11.0	x	7-14	7-14	7-14	7-14	7-14	-	-
Haute Provence	HP	43.9	5.7	-	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Iqaluit	IQ	63.8	291.5	x	-						

Station	Kürzel	nördl. Breite [°]	östl. Länge [°]	EASOE	Match Startbereitschaftszeiträume [UT]						
					Mo	Di	Mi	Do	Fr	Sa	So
Jägersborg	JA	55.8	12.5	-	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23
Jokionen	JO	60.8	23.5	-	7-19	7-19	7-19	7-19	7-19	7-19	7-19
Jülich	JU	50.8	6.1	x	-						
Kiruna	KI	67.9	21.1	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Lerwick	LE	60.1	358.8	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Lindenberg	LI	52.2	14.1	x	6, 12, 18	6, 12, 18	6, 12, 18	6, 12, 18	6, 12, 18	6, 12, 18	6, 12, 18
Legionowo	LE	52.4	21.0	-	12, 18	12, 18	12, 18	12, 18	12, 18	12, 18	12, 18
Ny-Ålesund	NA	78.9	11.9	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Orland	OR	63.4	9.2	-	23-24,0-11	23-24,0-11	23-24,0-11	23-24,0-11	23-24,0-11	23-24,0-11	23-24,0-11
Payerne	PA	46.8	6.9	x	-	9-20	9-20	9-20	-	-	-
Polarfront (Schiff)	PO	~66.0	~2.1	x	-						
Keflavik	RE	64.0	337.4	x	9-18	9-18	9-18	9-18	9-18	9-18	9-18
Resolute	RS	74.7	265.0	-	0-6, 12-18	6-24	0-6, 18-24	18-24	-	-	6-24
Rylsk	RY	51.6	35.1	-	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Scoresbysund	SC	70.5	338.0	x	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23	11, 23
Sodankylä	SO	67.2	26.4	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Sondre Strømfjord	SS	67.0	309.4	-	14-19	14-19	14-19	14-19	14-19	14-19	14-19
Thule	TH	76.5	291.3	x	14-19	14-19	14-19	14-19	14-19	14-19	14-19

Station	Kürzel	nördl. Breite [°]	östl. Länge [°]	EASOE	Match Startbereitschaftszeiträume [UT]						
					Mo	Di	Mi	Do	Fr	Sa	So
Thessaloniki	TL	40.6	23.0	-	7-19	7-19	7-19	7-19	7-19	7-19	7-19
Tsukuba	TS	36.0	140.1	-	6	6	6	6	6	-	-
Uccle	UC	50.8	4.4	x	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24	0-24
Valentia	VA	51.9	349.8	-	9-18	9-18	9-18	9-18	9-18	9-18	9-18
Yakutsk	YA	62.0	129.7	-	15-24	0-15	-	15-24	0-15	-	-

Literaturverzeichnis

- Aimedieu, W. A., W. A. Matthews, W. Attmanspacher, R. Hartmanngreber, J. Cisneros, W. D. Komhyr und D. E. Robbins, Comparison of in situ stratospheric ozone measurements obtained during the MAP/GLOBUS 1983 Campaign, *Planet. Space Sci.*, 35, 563-585, 1987.
- Andrews, D., J. Holton und C. Leovy, Middle Atmosphere Dynamics, Academic Press, Orlando, 1987.
- Arnold, F., K. Gollinger und S. Spreng, Balloon-based mass spectrometric measurements of stratospheric nitric acid in middle latitudes and in the late winter arctic vortex, in: Proc. of the third European workshop on polar stratospheric ozone, Schliersee, 1995.
- Atkinson, R., D. I. Baulch, R. A. Cox, R. F. Hampson, J. A. Kerr und J. Troe, Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry-Supplement IV, IUPAC Subcommittee on Gas Kinetic Data Evaluation for Atmospheric Chemistry, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 21, 1125, 1992.
- Bates, D. R. und M. Nicolet, The photochemistry of atmospheric water vapor, *J. Geophys. Res.*, 55, 301, 1950.
- Becker, G., R. Müller, D. S. McKenna und M. Rex, Modelled ozone loss rates compared to results of the Match experiment 1991/92, Fourth European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Schliersee, eingereicht, 1997.
- Beekmann, M., G. Ancellet, G. Mégie, H. G. J. Smit und D. Kley, Intercomparison campaign of vertical ozone profiles including electrochemical sondes of ECC and Brewer-Mast type and a ground based UV-differential absorption lidar, *J. Atmos. Chem.*, 19, 259-288, 1994.
- Beyerle, G., Untersuchungen stratosphärischer Aerosole vulkanischen Ursprungs und polarer stratosphärischer Wolken mit einem Mehrwellen-Lidar auf Spitzbergen (79°N, 12°E), Dissertation, Universität Bremen, Berichte zur Polarforschung, Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung (Hrsg.), 138, 1994.
- Braathen, G. O., M. Rummukainen, E. Kyrö, H. Gernandt, I. S. Mikkelsen und M. Gil, Ozone trends and PSC incidence in the Arctic vortex during the seven winters from 1988-89 to 1994-95, *J. Atmos. Chem.*, eingereicht, 1996.
- Brasseur, G. P. und S. Solomon, Aeronomy of the Middle Atmosphere, Reidel, Dordrecht, 1986.
- Brasseur, G. P., X. X. Tie, P. J. Rasch, F. Lefèvre, A three-dimensional simulation of the Antarctic ozone hole: Impact of anthropogenic chlorine on the lower stratosphere and upper troposphere, *J. Geophys. Res.*, 102, 8909-8930, 1997.
- Browell, E.V., C. F. Butler, M. A. Fenn, W. B. Grant, S. Ismail, M. R. Schoeberl, O. B. Toon, M. Loewenstein, J. R. Podolske, Ozone and aerosol changes during the 1991-1992 Airborne Arctic Stratospheric Expedition, *Science*, 261, 1155-1158, 1993.

- Burrows, J. P. und R. A. Cox, Kinetics of chlorine oxide radical reactions using modulated photolysis, Part 4, - The reactions of $\text{Cl} + \text{Cl}_2\text{O} \rightarrow \text{Cl}_2 + \text{ClO}$ and $\text{ClO} + \text{H}_2\text{O}$ - products studied at 1 atm and 300 K, *J. Chem. Soc. Faraday Trans. I*, 77, 2465, 1981.
- Chance, K., W. A. Traub, D. G. Johnson, K. W. Jucks, P. Ciarpallini, R. A. Stachnik, R. J. Salawitch und H. A. Michelson, Simultaneous measurements of stratospheric HO_x , NO_x , and Cl_x : comparison with a photochemical model, *J. Geophys. Res.*, 101, 9031-9043, 1996.
- Chapman, S., A theory of upper atmospheric ozone, *Mem. R. Soc.*, 103, 1930.
- Chipperfield, M., D. Cariolle, P. Simon, R. Ramaroson und D. J. Lary, A three-dimensional modelling study of trace species in the Arctic lower stratosphere during winter 1989-90, *J. Geophys. Res.*, 98, 7199-7218, 1993.
- Chipperfield, M. P., M. L. Santee, L. Froidevaux, G. L. Manney, W. G. Read, J. W. Waters, A. E. Roche, J. M. Russell, Analysis of UARS data in the southern polar vortex in September 1992 using a chemical transport model, *J. Geophys. Res.*, 101, 18861-18881, 1996a.
- Chipperfield, M. P., A. M. Lee und J. A. Pyle, Model calculations of ozone depletion in the Arctic polar vortex for 1991/92 to 1994/95, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 559-562, 1996b.
- Chipperfield, M. P., P. Good, A. M. Lee, J. A. Pyle, J. Sessler, C. E. Blom, J. Burrows, A. Engel, B. Galle, F. Goutail, H. Oelhaf, M. Pirre, J. B. Renard, D. W. Toohey, G. Vaughan, J. W. Waters, G. Wetzel und J. Wohlgemuth, Comparison of SESAME data with 3D Chemical Transport Model, *J. Atmos. Chem.*, eingereicht, 1996c.
- Chubachi, S., A special ozone observation at Syowa station, Antarctica, from Feb. 1982 to Jan 1983, in: C. S. Zerefos und A. Ghazi, Atmospheric Ozone, D. Reidel Publ. Comp., Dordrecht, 285, 1984.
- Chubarova, N. Y., Ozone influence upon UV radiation and possible compensation of its impact by other atmospheric factors, in: Proc. of the First SPARC General Assembly, Melbourne, eingereicht, 1996.
- Coblentz, W. W. und R. Stair, Distribution of ozone in the stratosphere, *J. of Research*, 22, 573, 1939.
- Cox, R. A., A. R. MacKenzie, R. H. Müller, T. Peter und P. J. Crutzen, Activation of stratospheric chlorine by reactions in liquid sulphuric acid, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1439-1442, 1994.
- Crutzen, P. J., The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 96, 320-325, 1970.
- Crutzen, P. J., Ozone production rates in an oxygen-hydrogen-nitrogen oxide atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 76, 7311-7327, 1971.
- Crutzen, P. J. und F. Arnold, Nitric acid cloud formation in the cold antarctic stratosphere: a major cause for the springtime 'ozone hole', *Nature*, 324, 651-655, 1986.
- De Backer, H., E. Schoubs und M. Allaart, Comparison of Brewer-Mast and ECC ozone sonde profiles at Uccle and De Bilt, in: Proc. of the third European workshop on polar stratospheric ozone, Schliersee, 1995.

- De Moore, W. B., S. P. Sander, D. M. Golden, R. F. Hampson, M. J. Kurylo, C. J. Howard, A. R. Ravishankara, C. E. Kolband und M. J. Molina, Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling, JPL publication 94-26, Pasadena, 1994.
- De Muer, D. und H. De Backer, Trend analysis of 25 years of regular ozone soundings at Uccle (Belgium), Abstract, EUROTRAC meeting, Garmisch-Partenkirchen, 1994.
- Deniel, C., Persönliche Mitteilung, 1996.
- Dickinson, R. E., A method of parameterization for infrared cooling between altitudes of 30 to 70 km, *J. Geophys. Res.*, 78, 4451-4457, 1973.
- Dobson, G. M. B., D. N. Harrison und J. Lawrence, Measurements of the amount of ozone in the earth's atmosphere and its relation to other geophysical conditions: Part III, *Proc. R. Soc.*, A122, 456-486, 1929.
- Dobson, G. M. B., A photoelectric spectrometer for measuring the amount of atmospheric ozone, *Proc. Phys. Soc., London*, 43, 324, 1931.
- Douglass, A. R., M. R. Schoeberl, R. S. Stolarski, J. W. Waters, J. M. Russel III, A. E. Roche und S. T. Massie, Interhemispheric differences in springtime production of HCl and ClONO₂ in the polar vortices, *J. Geophys. Res.*, 100, 13967-13978, 1995.
- Dunkerton, T. J. und D. P. Delisi, Evolution of potential vorticity in the winter stratosphere of January-February 1979, *J. Geophys. Res.*, 91, 1199-1208, 1986.
- Dye, J. E., D. Baumgartner, B. W. Gandrud, S. R. Kawa, K. K. Kelly, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan und B. L. Gary, Particle size distribution in arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation, *J. Geophys. Res.*, 97, 8015-8034, 1992.
- Edouard, S., B. Legras, F. Lefèvre und R. Eymard, The effect of small-scale inhomogeneities on ozone depletion in the Arctic, *Nature*, 384, 1996.
- Evans, W. F. J., Ozone depletion in the Arctic vortex at Alert during February 1989, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 167-170, 1990.
- Fahey, D. W., K. K. Kelly, S. R. Kawa, A. F. Tuck, M. Loewenstein, K. R. Chan und L. E. Heidt, Observations of denitrification and dehydration in the winter polar stratospheres, *Nature*, 344, 321-324, 1990.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner und J. D. Shanklin, Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, 315, 207-210, 1985.
- von der Gathen, P., M. Rex, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, H. De Backer, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, J. Stähelin und C. Varotsos, Observational evidence for chemical ozone depletion over the Arctic winter 1991-92, *Nature*, 375, 1995.
- von der Gathen, P., H. Gernandt, R. Neuber und M. Rex, Chemically and dynamically induced ozone deficits in the lower and middle stratosphere of the Arctic Polar Vortex, Abstracts of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, l'Aquila, 1996.
- von der Gathen, P., Persönliche Mitteilung, 1996.

- Geb, M. und B. Naujokat, Nordhemisphärischer Klimabericht zum Oktober 1995, in: *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 109, 1995.
- Geb, M. und B. Naujokat, Nordhemisphärischer Klimabericht zum Dezember 1995, in: *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 21, 1996a.
- Geb, M. und B. Naujokat, Nordhemisphärischer Klimabericht zum Februar 1996, in: *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 44, 1996b.
- Geb, M. und B. Naujokat, Nordhemisphärischer Klimabericht zum März 1996, in: *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 52, 1996c.
- Gelman, M. E., V. Ramaswamy, J. Angell, J. Barnett, M. L. Chanin, J. Christy, L. Coy, D. Cullum, Y. Koshelkov, K. Labitzke, J.-J. Lin, A. J. Miller, J. Nash, A. O'Neill, A. Oort, W. Randel, K. P. Shine und R. Swinbank, Stratospheric temperature trends derived from SPARC datasets, in: Proc. of the First SPARC General Assembly, Melbourne, eingereicht, 1996.
- Gernandt, H., A. Herber, P. von der Gathen, M. Rex, A. Rinke, S. Wessel und S. Kaneto, Variability of ozone and aerosols in the polar atmosphere, Memoirs of National Institute of Polar Research, Special Issue, No. 51, in: Proc. of the International Symposium on Environmental Research in the Arctic, Tokyo, 1996.
- Gille, J. C. und J. M. Russel III, The Limb Infrared Monitor of the Stratosphere: experiment description, performance, and results, *J. Geophys. Res.*, 89, 5125-5140, 1984.
- Götz, F. W. P., Der Stand des Ozonproblems, *Vierteljahresschrift der Naturf. Gesellschaft in Zürich*, 89, 250-264, 1944.
- Goutail, F., J.-P. Pommereau, C. Phillips, F. Lefèvre, E. Kyrö, M. Rummukainen, P. Eriksen, S. B. Andersen, B.-A. Kåstad Høiskar, G. Braathen, V. Dorokhov und V. U. Khattatov, Ozone depletion in the Arctic during the winter 1994-95, *J. Atm. Chem.*, angenommen, 1997.
- Grabbe, G. C., Untersuchung des troposphärischen Ozons mit DIAL, Examensarbeit, Max-Planck-Institut für Meteorologie Hamburg, Nr. 31, 36, 1995.
- Hall, T. M. und M. J. Prather, Seasonal evolution of N₂O, O₃ and CO₂: Three-dimensional simulations of stratospheric correlations, *J. Geophys. Res.*, 100, 16699-16720, 1995.
- Hansen, G., persönliche Mitteilung, 1996.
- Hanson, D. R. und K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-858, 1988.
- Hanson, D. R., The uptake of HNO₃ onto ice, NAT, and frozen sulfuric acid, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 2063-2066, 1992.
- Hanson, D. R. und A. R. Ravishankara, Reaction of ClONO₂ with HCl on NAT, NAD, and frozen sulfuric acid and hydrolysis of N₂O₅ and ClONO₂ on frozen sulfuric acid, *J. Geophys. Res.*, 98, 22931-22936, 1993.
- Hanson, D. R. und E. R. Lovejoy, The reaction of ClONO₂ with submicrometer sulfuric acid aerosol, *Science*, 267, 1326-1328, 1995.
- Hills, A. J. und C. J. Howard, Rate coefficient temperature dependence and branching ratio for the OH - ClO reaction, *J. Chem. Phys.*, 81, 4458-4465, 1984.

- Hofmann, D. J., T. L. Deshler, P. Amedieu, W. A. Matthews, P. V. Johnston, Y. Kondo, W. R. Sheldon, G. J. Byrne und J. R. Benbrook, Stratospheric clouds and ozone depletion in the Arctic during January 1989, *Nature*, 340, 117-121, 1989.
- Hofmann, D. J. und T. Deshler, Evidence from balloon measurements for chemical depletion of stratospheric ozone in the Arctic winter of 1989-90, *Nature*, 349, 300-305, 1991.
- Hofmann, D. J., S. J. Oltmans, J. A. Lathrop, J. M. Harris und H. Voemel, Record low ozone at the South Pole in spring of 1993, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 421-424, 1994.
- Hofmann, D. J., The Antarctic ozone hole, *Nature*, 383, 1996.
- Holton, J., P. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood und L. Pfister, Stratosphere-troposphere exchange, *Reviews of Geophysics*, 33, 403-439, 1995.
- Holton, J., Middle Atmosphere Dynamics, in: The role of the stratosphere in the climate system, G. Brasseur (Editor), NATO ASI series, Springer, Hamburg, im Druck, 1997.
- Hübner, G., D. W. Fahey, K. K. Kelly, D. D. Montzka, M. A. Carroll, A. F. Tuck, L. E. Heidt, W. H. Pollock, G. L. Gregory und J. F. Vedder, Redistribution of reactive odd nitrogen in the lower Arctic stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 453-456, 1990.
- Kerr, J. B., H. Fast, C. T. McElroy, S. J. Oltmans, J. A. Lathrop, E. Kyrö, A. Paukkunen, H. Claude, U. Köhler, C. R. Sreedharan, T. Takao und Y. Tsukagoshi, The international 1991 WMO ozonesonde intercomparison at Vanscoy, Canada, *Atmosphere-Ocean*, 32, 685-716, 1994.
- Kiehl, J., Radiative transfer theory, in: The role of the stratosphere in the climate system, G. Brasseur (Editor), NATO ASI series, Springer, Hamburg, im Druck, 1997.
- Kilbane-Dawe, I., Persönliche Mitteilung, 1997.
- Knudsen, B., Trajektorien Daten, NADIR Datenbank, NILU, 1996.
- Knudsen, B., J. M. Rosen, N. T. Kjome und A. T. Whitten, Accuracy of ECMWF stratospheric temperature analyses and the implications for PSC formation in the Arctic, in: Proc. of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, l'Aquila, eingereicht, 1996.
- Komhyr, W. D. und T. B. Harris, Development of the ECC ozonesonde, NOAA Technical Report ERL 200-APCL 18, U.S. department of Commerce, NOAA Environmental Research Laboratories, Boulder, Colorado, 1971.
- Komhyr, W. D., Operations Handbook: Ozone measurements to 40 km altitude with model 4A electrochemical concentration cell (ECC) ozonesondes, NOAA Technical Memorandum, ERL ARL-149, Nat. Oceanic and Atmos. Admin., Washington D.C., 1986.
- Kuhlbarsch, T. und B. Naujokat, Nordhemisphärischer Klimabericht zum Januar 1996, in: *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 31, 1996.
- Labitzke, K. und H. van Loon, Associations between the 11-year solar cycle, the QBO and the atmosphere. Part I: the troposphere and the stratosphere in the northern hemisphere in winter, *J. A. T. Phys.*, 50, 197-206, 1988.
- Labitzke, K. und H. van Loon, Die 10-12jährige Schwingung in der Stratosphäre, *Promet, Heft 2-4*, 58-62, 1992.

- Labitzke, K. und H. van Loon, Some recent studies of probable connections between solar and atmospheric variability, *Ann. Geophys.*, *11*, 1084-1094, 1993.
- Lacis, A. A. und J. E. Hansen, A parameterization for the absorption of solar radiation in the earth's atmosphere, *J. Atmos. Sci.*, 118-113, 1974.
- Lary, D. J., M. P. Chipperfield und R. Toumi, The potential impact of the reaction $\text{OH} + \text{ClO} \rightarrow \text{HCl} + \text{O}_2$ on polar ozone photochemistry, *J. of Atmos. Chem.*, *21*, 61-79, 1995.
- Lefèvre, F., Persönliche Mitteilung, 1996.
- Lehmann R. und J. Notholt, Comparison of trace gas column densities, measured by FTIR in the Arctic, with results of a one-dimensional model including vertical transport and chemistry, in: Proc. of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, l'Aquila, eingereicht, 1996.
- Lehmann, R., Persönliche Mitteilung, 1997.
- Leu, M. T. und C. L. Lin, Rate constants for the reactions of OH with ClO, Cl₂, and Cl₂O at 298 K, *Geophys. Res. Lett.*, *6*, 425, 1979.
- van der Leun, J. C., X. Tang und M. Tevini, Environmental effects of ozone depletion: 1994 assessment, *Ambio*, *24*, 139-141, 1995.
- Manney, G. L., L. Froidevaux, J. W. Waters, R. W. Zurek, W. G. Read, L. S. Elson, J. B. Kumer, J. L. Mergenthaler, A. E. Roche, A. O'Neill, R. S. Harwood, I. MacKenzie und R. Swinbank, Chemical depletion of ozone in the Arctic lower stratosphere during winter 1992-93, *Nature*, *370*, 429-434, 1994.
- Manney, G. L., R. W. Zurek, L. Froidevaux und J. W. Waters, Evidence for Arctic ozone depletion in late February and early March 1994, *Geophys. Res. Lett.*, *22*, 2941-2944, 1995.
- Manney, G. L., M. L. Santee, L. Froidevaux, J. W. Waters und R. W. Zurek, Polar vortex conditions during the 1995-96 Arctic winter: meteorology and MLS ozone, *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 3203-3206, 1996a.
- Manney, G. L., L. Froidevaux, J. W. Waters, M. L. Santee, W. G. Read, D. A. Flower, R. F. Jarnot und R. W. Zurek, Arctic ozone depletion observed by UARS MLS during the 1994-95 winter, *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 85-88, 1996b.
- Michelsen, H. A., R. J. Salawitch, M. R. Gunson, C. Aellig, N. Kämpfer, M. M. Abbas, M. C. Abrams, T. L. Brown, A. Y. Chang, A. Goldman, F. W. Irion, M. J. Newchurch, C. P. Rinsland, G. P. Stiller und R. Zander, Stratospheric chlorine partitioning: constraints from shuttle-borne measurements of [HCl], [ClONO₂], and [ClO], *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 2361-2364, 1996.
- Molina, M. J. und F. S. Rowland, Stratospheric sink for chlorofluoromethans: Chlorine atom catalysed destruction of ozone, *Nature*, *249*, 810-812, 1974.
- Molina, L. T. und M. J. Molina, Production of Cl₂O₂ from the selfreaction of the ClO radical, *J. Phys. Chem.*, *91*, 433-436, 1987.
- Molina, M. J., R. Zhang, P. J. Woodbridge, J. R. McMahon, J. E. Kim, H. Y. Chang und K. D. Beyer, Physical chemistry of the H₂SO₄/HNO₃/H₂O system: implications for polar stratospheric clouds and heterogenous chemistry, *Science*, *261*, 1418-1423, 1993.

- Müller, R., Die Chemie des Ozons in der polaren Stratosphäre, Dissertation, Freie Universität Berlin, Shaker, Aachen, 1994.
- Müller, R., T. Peter, P. J. Crutzen, H. Oelhaf, G. P. Adrian, T. v. Clarmann, A. Wegener, U. Schmidt und D. Lary, Chlorine chemistry and the potential for ozone depletion in the arctic stratosphere in the winter 1991/92, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1427-1430, 1994.
- Müller, R., P. J. Crutzen, J. U. Grooß, C. Brühl, J. M. Russel und A. F. Tuck, Chlorine activation and ozone depletion in the Arctic vortex: Observations by the Halogen Occultation Experiment on the Upper Atmosphere Research Satellite, *J. Geophys. Res.*, *101*, 12531-12554, 1996.
- Müller, R., P. J. Crutzen, J.-U. Grooß, C. Brühl, J. M. Russell III, H. Gernandt, D. S. McKenna und A. F. Tuck, Record chemical ozone loss in the Arctic during the winter of 1995-1996, *Nature*, angenommen, 1997.
- Nagatani, R. M., A. J. Miller, M. E. Gelman und P. A. Newman, A comparison of the Arctic lower stratospheric winter temperatures for 1988-89 with temperatures since 1964, *Geophys. Res. Lett.*, *17*, 333-336, 1990.
- Naujokat, B., K. Petzold, K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner und R.-C. Wohlfart, The Stratospheric Winter 1991/92: The Winter of the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment, *Beilage zur Berliner Wetterkarte, SO 18/92*, 1992.
- Naujokat, B. und C. Marquardt, Die annähernd zweijährige Schwingung (QBO), *Promet, Heft 2-4*, 62-68, 1992.
- Naujokat, B., Stratosphärenenerwärmung: Synoptik, *Promet, Heft 2-4*, 81-89, 1992c.
- Naujokat, B., K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner und R.-C. Wohlfart, The Stratospheric winter 1994/95: A cold winter with a strong minor warming, *Beilage zur Berliner Wetterkarte, SO 24/95*, 1995.
- Naujokat, B. und S. Pawson, The cold stratospheric winters 1994/95 and 1995/96, *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 3703-3706, 1996.
- Newman, P., L. R. Lait, M. Schoeberl, E. R. Nash, K. Kelly, D. W. Fahey, R. Nagatani, D. Toohey, L. Avallone und J. Anderson, Stratospheric meteorological conditions in the Arctic Polar Vortex, 1991 to 1992, *Science*, *261*, 1143-1145, 1993.
- Notholt, J., Persönliche Mitteilung, 1997.
- Oelhaf, H., G. Wetzell, T. von Clarmann, M. Schmidt, J. B. Renard, M. Pirre, E. Lateltin, P. Amedieu, C. Phillips, F. Goutail, J.-P. Pommereau, Y. Kondo, T. Sugita, H. Nakajima, M. Koike, W. J. Williams, F. J. Mucray, P. Sullivan, A. Engel, U. Schmidt und A. M. Lee, Correlative balloon measurements of the vertical distribution of N₂O, NO, NO₂, NO₃, HNO₃, N₂O₅, ClONO₂ and total reactive NO_y inside the polar vortex during SESAME, in: Proc. of the third European workshop on polar stratospheric ozone, Schliersee, 1995.
- Pawson, S., B. Naujokat und K. Labitzke, On the polar stratospheric cloud formation potential of the northern stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *100*, 23215-23225, 1995.
- Peter, T., The Stratospheric ozone layer - an overview, *Environ. Pollut.*, *83*, 69-79, 1993.

- Petzold, K., B. Naujokat und K. Neugeboren, Correlation between stratospheric temperature, total ozone, and tropospheric weather systems, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1203-1206, 1994.
- Plumb, R. A. und M. W. K. Ko, Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents, *J. Geophys. Res.*, *97*, 10145-10156, 1992.
- Poulet, G., G. Laverdet und G. Le Bras, Rate constant and branching ratio for the reaction of OH and ClO, *J. Phys. Chem.*, *90*, 159, 1986.
- Portmann, R. W., S. Solomon, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole, M. P. McCormick, The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion in the polar regions, *J. Geophys. Res.*, *101*, 22991-23006, 1996.
- Prather, M. J., Numerical advection by conservation of second order moments, *J. Geophys. Res.*, *91*, 6671-6681, 1986.
- Proffitt, M. H., J. J. Margitan, K. K. Kelly, M. Loewenstein, J. R. Podolske und K. R. Chan, Ozone loss in the Arctic polar vortex inferred from high altitude aircraft measurements, *Nature*, *347*, 31-36, 1990.
- Proffitt, M. H., K. Aiken, J. J. Margitan, M. Loewenstein, J. R. Podolske, A. Weaver, K. R. Chan, H. Fast und J. W. Elkins, Ozone loss inside the northern polar vortex during the 1991-92 winter, *Science*, *261*, 1150-1154, 1993.
- Ravishankara, A. R., F. L. Eisele und P. H. Wine, The kinetics of the reaction of OH with ClO, *J. Chem. Phys.*, *78*, 1140-1144, 1983.
- Reid, S. J., M. Rex, P. von der Gathen, I. Fløisand, F. Stordal, G. D. Carver, E. Reimer, R. Krüger-Carstensen, F. M. O'Connor, G. O. Braathen, G. Murphy, J. Wenger, C. Zerefos und C. Varotsos, A study of ozone laminae using quasi isentropic trajectories, contour advection and photochemical trajectory model simulations, *J. Atmos. Chem.*, angenommen, 1997.
- Rex, M., Stratosphärische Ozonabbauraten aus den Ozonsondendaten der EASOE-Kampagne, Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 1993.
- Rex, M., P. von der Gathen, N. R. P. Harris, E. Reimer, A. Beck, R. Alfier, B. M. Knudsen, I. S. Mikkelsen, M. Chipperfield, D. Lucic, M. Allaart, H. De Backer, G. O. Braathen, S. J. Reid, H. Claude, F. O'Connor, H. Dier, H. Fast, A. Gamma, M. Gil, M. Guirlet, E. Kyrö, M. Rummukainen, Z. Litynska, B. Kois, G. Murphy, F. Ravegnani, C. Varotsos, J. Wenger, V. Yushkov, V. Dorokhov, C. Zerefos, D. Balis und I. Ziomias, A lagrangian approach to separate stratospheric chemical ozone loss from dynamical effects: results for the arctic winters 91/92 and 94/95, in: Abstracts of the international conference on ozone in the lower stratosphere, Halkidiki, 1995a.
- Rex, M., P. von der Gathen, N. R. P. Harris, E. Reimer, A. Beck, R. Alfier, R. Krüger-Carstensen, B. M. Knudsen, I. S. Mikkelsen, M. P. Chipperfield, D. Lucic, M. Allaart, H. De Backer, G. O. Braathen, S. Reid, H. Claude, F. O'Connor, H. Dier, H. Fast, A. Gamma, M. Gil, S. Godin, M. Guirlet, E. Kyrö, M. Rummukainen, Z. Litynska, B. Kois, G. Murphy, F. Ravegnani, C. Varotsos, J. Wenger, V. Yushkov, V. Dorokhov, C. Zerefos, D. Balis und I. Ziomias, Chemical ozone loss in the Arctic winters 1991/92 and 1994/95 (Match), in: Proc. of the third European workshop on polar stratospheric ozone, Schliersee, 1995b.

- Rex, M., P. von der Gathen, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, S. J. Reid, H. De Backer, H. Claude, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, H. G. Smit, J. Stähelin, C. Varotsos und I. Zeitcev, In-situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/92: a Lagrangian approach, *J. Geophys. Res.*, eingereicht, 1996a.
- Rex, M., P. von der Gathen, G. O. Braathen, S. J. Reid, N. R. P. Harris, M. Chipperfield, E. Reimer, A. Beck, R. Alfier, R. Krüger-Carstensen, H. De Backer, D. Balis, C. Zerefos, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, A. Gamma, M. Gil, E. Kyrö, M. Rummukainen, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. Molyneux und G. Murphy, Chemical ozone loss in the Arctic winter 1994/95 as determined by the Match technique, *J. Atm. Chem.*, eingereicht, 1996b.
- Rex, M., N. R. P. Harris, P. von der Gathen, R. Lehmann, G. O. Braathen, E. Reimer, A. Beck, M. P. Chipperfield, R. Alfier, M. Allaart, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. Molyneux, H. Nakane, J. Notholt, M. Rummukainen, P. Viatte und J. Wenger, *Nature*, eingereicht, 1996c.
- Rosenfield, J. E., P. A. Newman und M. R. J. Schoeberl, Computations of diabatic descent in the stratospheric polar vortex, *J. Geophys. Res.*, 99, 16677-16689, 1994.
- Rummukainen, M., B. Knudsen und P. von der Gathen, Dynamical diagnostics of the edges of the polar vortices, *Ann. Geophysicae*, 12, 1114-1118, 1994.
- Salawitch, R. J., M. B. McElroy, J. H. Yatteau, S. C. Wofsy, M. R. Schoeberl, L. R. Lait, P. A. Newman, K. R. Chan, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan und M. H. Proffitt, Loss of ozone in the Arctic vortex for the winter of 1989, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 561-564, 1990.
- Salawitch, R. J., S. C. Wofsy, E. W. Gottlieb, L. R. Lait, P. A. Newman, M. R. Schoeberl, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan, M. H. Proffitt, C. R. Webster, R. D. May, D. W. Fahey, D. Baumgardner, J. E. Dye, J. C. Wilson, K. K. Kelly, J. W. Elkins, K. R. Chan, J. G. Anderson, Chemical loss of ozone in the Arctic polar vortex in the winter of 1991-1992, *Science*, 261, 1146-1149, 1993.
- Santee, M. L., W. G. Reed, J. W. Waters, L. Froidevaux, G. L. Manney, D. A. Flower, R. F. Jamot, R. S. Harwood und G. E. Peckham, Interhemispheric differences in polar stratospheric HNO₃, H₂O, ClO, and O₃, *Science*, 267, 849-852, 1995.
- Santee, M. L., L. Froidevaux, G. L. Manney, W. G. Read, J. W. Waters, M. P. Chipperfield, A. E. Roche, J. B. Kumer, J. L. Mergenthaler und J. M. Russell, Chlorine deactivation in the lower stratospheric polar regions during late winter: results from UARS, *J. Geophys. Res.*, 101, 18835-18859, 1996a.
- Santee, M. L., G. L. Manney, W. G. Read, L. Froidevaux und J. W. Waters, Polar vortex conditions during the 1995-1996 Arctic winter: MLS ClO and HNO₃, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 3207-3210, 1996b.
- Santee, M. L., Persönliche Mitteilung, 1997.
- Scherhag, R., Die explosionsartige Stratosphärenenerwärmung des Spätwinters 1951-52, *Ber. Deut. Wetterdienst*, 38, 51-36, 1952.
- Schoeberl, M. R., M. H. Proffitt, K. K. Kelly, L. R. Lait, P. A. Newman, J. E. Rosenfield, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan und K. R. Chan, Stratospheric constituent trends from ER-2 profile data, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 469-472, 1990.

- Shine, K. P., The middle atmosphere in the absence of dynamical heat fluxes, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *113*, 603-633, 1987.
- Shine, K. P. und J. A. Rickaby, Solar radiative heating due to absorption by ozone, in: Proc. of Quadrennial Ozone Symposium, A. Deepak, Hampton, Va., 597-600, 1989.
- Smit, H. G., W. Sträter, M. Helten, D. Kley, D. Ciupa, H. Claude, U. Köhler, B. Hoegger, G. Levrat, B. Johnson, S. J. Oltmans, J. B. Kerr, D. Tarasick, J. Davies, M. Shitamichi, S. Srivastav und C. Vialle, JOSIE: The 1996 WMO international intercomparison of ozonesondes under quasi flight conditions in the environmental simulation chamber at Jülich, in: Proc. of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, l'Aquila, eingereicht, 1996.
- Solomon, S., R. R. Garcia, F. S. Rowland und D. J. Wuebbles, On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, *321*, 755-758, 1986.
- Solomon, S., R. R. Garcia und A. R. Ravishankara, On the role of iodine in ozone depletion, *J. Geophys. Res.*, *99*, 20491-20499, 1994.
- Solomon, S., R. W. Portmann, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole und M. P. McCormick, The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern mid-latitudes, *J. Geophys. Res.*, *101*, 6713-6727, 1996.
- Stebel, K., O. Schrems, R. Neuber, G. Beyerle, J. Biele, I. Beninga, P. Scheuch, H. Schütt und P. von der Gathen, Polar stratospheric clouds above Spitsbergen, in: Proc. of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, l'Aquila, eingereicht, 1996.
- Stolarski, R., R. Bojkov, L. Bishop, C. Zerefos, J. Stähelin und J. Zawodny, Measured trends in stratospheric ozone, *Science*, *256*, 342-349, 1992.
- Strahan, S. E., J. E. Rosenfield, M. Loewenstein, J. R. Podolske und A. Weaver, Evolution of the 1991-1992 Arctic vortex and comparison with the geophysical fluid dynamics laboratory SKYHI general circulation model, *J. Geophys. Res.*, *99*, 20713-20723, 1994.
- Tabazadeh, A., R. P. Turco und M. Z. Jacobson, A model for studying the composition and chemical effects of stratospheric aerosols, *J. Geophys. Res.*, *99*, 12897-12914, 1994.
- Tabazadeh, A., O. B. Toon, B. L. Gary, J. T. Bacmeister und M. R. Schoeberl, Observational constraints on the formation of type Ia polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 2109-2112, 1996.
- Tolbert, M. A., Sulfate aerosols and polar stratospheric cloud formation, *Science*, *264*, 527-528, 1994.
- Toon, O. B., P. Hamill, R. P. Turco und J. Pinto, Condensation of HNO₃, and HCl in the winter polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *13*, 1284-1286, 1986.
- Toon, O. B. und M. A. Tolbert, Spectroscopic evidence against nitric acid trihydrate in polar stratospheric clouds, *Nature*, *375*, 218-221, 1995.
- Urban, J., V. Eyring, H. Küllmann, K. Künzi, G. Mellmann, J. Wohlgemuth, A. Goede, A. de Jonge, Q. Kleipool, J. Mees, J. de Valk, N. Whyborn, H. Hetzheim, H. W. Hübers, G. Schwaab und M. P. Chipperfield, Observations of stratospheric ClO, HCl, O₃, N₂O, and HO₂ at high latitudes during the winters of 1995 and 1996 with the Airborne-Submillimeter-SIS-Radiometer, in: Proc. of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium, l'Aquila, eingereicht, 1996.

- Vaisala, Ozonesondes users's guide, Vaisala GmbH, Hamburg, 1991.
- Valero, F. P. J., S. Platnick, S. Kinne, P. Pielewski und A. Bucholtz, Airborne brightness temperature measurements of the polar winter troposphere as part of the Airborne Arctic Stratospheric Experiment II and the effect of brightness temperature variations on the diabatic heating in the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 2575-2578, 1993.
- Vömel, H., M. Rummukainen, R. Kivi, J. Karhu, T. Turunen, E. Kyrö, J. Rosen, N. Kjome und S. Oltmans, Dehydration and sedimentation of ice particles in the Arctic stratospheric vortex, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 795-798, 1997.
- Waters, J. W., L. Froidevaux, W. G. Read, G. L. Manney, L. S. Elson, D. A. Flower, R. F. Jarnot und R. S. Harwood, Stratospheric ClO and ozone from the Microwave Limb Sounder on the Upper Atmosphere Research Satellite, *Nature*, 362, 597-602, 1993a.
- Waters, J. W., L. Froidevaux, G. L. Manney, W. G. Read und L. S. Elson, MLS observations of lower stratospheric ClO and O₃ in the 1992 southern hemisphere winter, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 1219-1222, 1993b.
- Webster, C. R., R. D. May, D. W. Toohey, L. M. Avallone, J. G. Anderson, P. Newman, L. Lait, M. R. Schoeberl, J. W. Elkins und K. R. Chan, Chlorine chemistry on polar stratospheric cloud particles in the Arctic winter, *Science*, 261, 1130-1133, 1993.
- Wirth, M. und W. Renger, Evidence of large scale ozone depletion within the arctic polar vortex 94/95 based on airborne LIDAR measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 813-816, 1996.
- World Meteorological Organisation, Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1994, Report No. 37, 1995.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung in Potsdam (AWI) mit wissenschaftlicher Betreuung von Herrn Dr. Peter von der Gathen durchgeführt. Ihm möchte ich an dieser Stelle für die sehr gute und produktive Zusammenarbeit herzlich danken, die bereits vor dieser Arbeit entstand und nun schon fünf Jahre zurückreicht. Insbesondere verdanke ich ihm auch den ursprünglichen Anstoß des Match-Gedankens.

Bei Frau Prof. Dr. Karin Labitzke, meiner Betreuerin an der Freien Universität Berlin, möchte ich mich bedanken für die wohlwollende Begleitung der Arbeit und die vielen Anregungen, die sich im Rahmen ihres Seminars ergaben. Weiterhin stellte sie erhebliche Ressourcen ihres Institutes für die Durchführung der Match-Kampagnen zur Verfügung, wofür ich ihr ebenfalls danken möchte.

Es ist mir ein Anliegen Herrn Dr. Hartwig Gernandt für die hervorragende Führung der Arbeitsgruppe „Polare Atmosphärenforschung“ zu danken, in der die vorliegende Arbeit entstand. Die unbürokratische, Rivalitäten vermeidende und daher für die wissenschaftliche Arbeit so effektive freundschaftliche Atmosphäre unserer Arbeitsgruppe ist zu einem guten Teil sein Verdienst. Weiterhin ermöglichte er mir die Teilnahme an vielen internationalen Tagungen und Koordinationstreffen, ohne die die Durchführung der vorliegenden Arbeit gar nicht denkbar gewesen wäre.

Die Durchführung des Match-Projekts war nur durch den weit über das normale Maß hinausgehenden Einsatz vieler beteiligter Personen möglich. Für die über viele Monate ununterbrochenen Trajektorienrechnungen und die von mir oft genutzte Bereitschaft zu allen Tages- und Nachtzeiten einschließlich Feiertagen und Wochenenden tätig zu werden, wenn es irgendwo „klemmte“, danke ich Herrn Dr. Alexander Beck, Herrn Dr. Eberhard Reimer, Herrn Raimond Alfier und Frau Regina Krüger-Carstensen von der Freien Universität Berlin.

Ein großer Teil der Match-Kampagnen war die Durchführung der Ozonsondenstarts. Von diesen habe ich nur einen verschwindend geringen Anteil selbst gestartet. Die Starts erforderten von den beteiligten Personen weit mehr als den gewöhnlichen Einsatz. Mit den Sondierungen, der Datenprozessierung und der Übertragung von Daten und Informationen waren wohl im Laufe der Zeit mehr als hundert Personen befaßt, die mir nur zum Teil namentlich bekannt sind: Dr. Marc Allaart, Dr. Dimitris Balis, Dr. Geir Braathen, Dr. Hans Claude, Dr. Hugo De Backer, Lorne Compayre, Dr. Jonathan Davies, Dr. Horst Dier, Dr. Valery Dorokhov, Dr. Hans Fast, Dr. Adrian Gamma, Dr. Manuel Gil, Dr. Sophie Godin, Dr. Marielle Guirlet, Dr. Bertrand Hanchez, Sylvain Juneau, Dr. Henni Kelder, Dr. Bogumil Kois, Dr. Esko Kyrö, Dr. Niels Larsen, Rainer Lilischkes, Dr. Zenobia Litynska, Bruce Lowry, Dr. Ib Steen Mikkelsen, Dr. Mike Molyneux, Dr. Gerry Murphy, Dr. Georg Hanson, Dr. Hideaki Nakane, Fiona O'Connor, Dr. Thor Ofstadt, Dr. Conchita Parrondo, Dr. Fabrizio Ravegnani, Dr. Steve Reid, Dr. Markku Rummukainen, Ute Schwarz, Thomas Seiler, Tammy Shepherd, Dr. Herman Smit, Dr. Johannes Stähelin, Ashraf Tahir, Dr. Costas Varotsos, Dr. Geraint Vaughan, Dr. Gerard Velghe, Dr. Claude Vialle, Dr. Pierre Viatte, Dr. John Wenger, Dr. Vladimir Yushkov, Dr. Christos Zerefos und Dr. Ioannis Ziomas. All diesen Personen und vielen weiteren mir nicht bekannten Helfern gebührt Dank für ihre Teilnahme und Respekt vor ihrem Einsatz.

Von Herrn Dr. Ralph Lehmann (AWI) lernte ich viel über die chemischen Zusammenhänge und einige der in der Arbeit entwickelten Gedanken entstanden in Diskussionen mit ihm. Er stand mir als Ansprechpartner für Probleme aller Art ständig zur Verfügung. Dafür möchte ich ihm herzlich danken.

Herr Dr. Neil Harris von der European Ozone Research Coordinating Unit ist an dem ursprünglichen Anstoß des Match-Gedankens beteiligt. Nur durch seine unermüdliche Förderung des Match-Projekts konnte dieses zu einem Erfolg werden. Die Diskussionen mit ihm waren immer motivierend und ergiebig, wofür ich mich sehr bedanke.

Herrn Dr. Martyn Chipperfield von der Universität Cambridge möchte ich ebenfalls für interessante Diskussionen aber auch für die Berechnung und Bereitstellung der diabatischen Erwärmungsraten für die Winter 1994/95 und 1995/96 zu danken. Die diabatischen Erwärmungsraten, welche zur Auswertung der EASOE-Kampagne verwendet wurden, wurden freundlicherweise von Frau Dr. Diana Lucic berechnet und zur Verfügung gestellt.

In allen Fragen der Meteorologie und Trajektorienrechnungen war mir außer der Gruppe an der Freien Universität Berlin auch Herr Dr. Bjørn Knudsen vom Dänischen Meteorologischen Institut ein stets hilfreicher Ansprechpartner. Von ihm stammen auch die Trajektorienrechnungen, die zur Auswertung der EASOE-Kampagne verwendet wurden.

Herrn Dr. Esko Kyrö, Herrn Dr. Markku Rummukainen, Frau Fiona O'Connor und Herrn Dr. Geraint Vaughan danke ich außer für die Ozonsondenstarts auch für eine Qualitätskontrolle aller Ozonsondendaten und ihren Einsatz für einen einheitlichen Datensatz.

Herrn Dr. Geir Braathen und seinen Mitarbeitern ist für die Bereitstellung des Datenzentrums am Norwegian Institute for Air Research zu danken.

Herrn Dr. Jean-Pierre Pommereau und Herrn Dr. Geir Braathen danke ich für die Koordinierung der Projekte bei der Europäischen Union, aus denen ein Großteil der Mittel für die Match-Kampagnen stammten.

Herr Eduard Claudius war während der längsten Zeit der Durchführung der vorliegenden Arbeit unser immer präserter und hilfreicher Systemadministrator. Durch sein Wirken wurden alle Tücken der Computerwelt, die die Kampagne ins Stocken bringen wollten, auch zu ungewöhnlichen Zeiten meist schnell beseitigt.

Herrn Dr. Justus Notholt, Frau Dr. Gloria Manney, Frau Dr. Michelle Santee und Herrn Dr. Georg Hansen möchte ich dafür danken, daß sie unveröffentlichte Spurenstoff- bzw. Aerosolmessungen zur Verfügung stellten.

Die Trajektorienrechnungen der Freien Universität Berlin beruhten auf Daten des Europäischen Zentrums für Mittelfristige Wettervorhersage in Reading und wurden vom Deutschen Wetterdienst prozessiert und weitergeleitet.

Ich danke Friederike Kegel, meinen Eltern und Dr. Kathrin Klamroth für das sehr kurzfristige Korrekturlesen der Arbeit. Ganz herzlich möchte ich besonders meiner Freundin Friederike Kegel danken, für ihre Toleranz mir gegenüber während der langen äußerst arbeitsamen Kampagnenzeiten und der kurzen, harten Phase des Zusammenschreibens.

Lebenslauf

Name: Markus Rex
Anschrift: Weberplatz 2
14482 Potsdam

Geburt

28. Nov. 1966 in Braunschweig
Eltern: Prof. Dr. Dietrich Rex und Ursula Rex

Bildung

- 1973-1977 Grundschule in Braunschweig
- 1977-1986 Gymnasium in Braunschweig
- 1986-1987 Grundwehrdienst
- 1987-1989 Studium der Physik an der Carolo-Wilhelmina-Universität zu Braunschweig, Oktober 1989 Vordiplom in Physik.
- 1989-1993 Studium der Physik, Geophysik und Meteorologie an der Georg-August-Universität zu Göttingen, Diplomarbeit am Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung in Bremerhaven: 'Stratosphärische Ozonabbauraten aus den Ozonsondendaten der EASOE Kampagne im Winter 1991/92', September 1993 Diplom in Physik.
- 1994-1997 Doktorand am Alfred-Wegener-Institut in Potsdam.
- 1995 Teilnahme am 'Advanced Study Institute: The Stratosphere and its Role in the Climate System', 4.-15. Sept., Montreal, Kanada.

Berufliche Tätigkeiten

- 1988: Anstellung als Programmierer bei MGF Gutsche & Co.
- 1990: Industriepraktikum bei ERNO Raumflugtechnik, Bremen.
- 1991: Wissenschaftliche Hilfskraft, Institut für Bioklimatologie, Univ. Göttingen.
- 1991: Anstellung als Programmierer bei MGF Gutsche & Co.
- 1992: Wissenschaftliche Hilfskraft, Institut für Umweltphysik Bremen. Teilnahme am 'European Arctic Stratospheric Ozone Experiment' (EASOE).
- 1993: Wissenschaftliche Hilfskraft, Institut für Bioklimatologie, Univ. Göttingen.
- 1994: Wissenschaftliche Hilfskraft, Institut für Geophysik, Univ. Frankfurt. Teilnahme an der XI. Antarktisexpedition mit FS Polarstern in die Bellinghausen und Amundsen See.

