

Forschungszentrum Karlsruhe

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 6563

Inversion arktischer stratosphärischer Spurengasprofile für die Ozonforschung aus Messungen eines bodengebundenen Millimeterwellenradiometers*

Gerhard Kopp

Institut für Meteorologie und Klimaforschung

* Von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH)
genehmigte Dissertation

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe
2000

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe
Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

Kurzfassung

Zahlreiche Gase der Erdatmosphäre zeigen im Millimeterwellenbereich charakteristische Spektrallinien, die von thermisch angeregten Rotationsübergängen herrühren. Das am Institut für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe und der Universität Karlsruhe entwickelte Millimeterwellenradiometer MIRA 2 mißt im Spektralbereich von 268 bis 280 GHz die Signaturen von Ozon (O_3), Chlormonoxid (ClO), Salpetersäure (HNO_3) und Distickstoffoxid (N_2O). Die hohe spektrale Auflösung erlaubt es, die Druckverbreiterung auszunutzen und so Höhenprofile der einzelnen Konstituenten im Bereich von etwa 17 bis 55 km zu gewinnen. Im Mittelpunkt des Interesses steht hierbei aufgrund seiner zerstörerischen Wirkung auf Ozon das Chlormonoxid, das allerdings im hier betrachteten Spektralbereich nur eine sehr schwache Signatur bei 278,631 GHz besitzt und dessen Messung hohe Ansprüche sowohl an das Radiometer als auch die Auswerteverfahren stellt.

Ziel dieser Arbeit war die Weiterentwicklung der Algorithmen zur Inversion der gemessenen Spektren und die Auswertung der auf den arktischen Meßkampagnen von 1996 bis 2000 in Kiruna, Nordschweden, und Ny-Ålesund, Spitzbergen, gesammelten Daten.

Zunächst wird ein Verfahren zur effizienten Bestimmung der Perioden von durch Stehwellen verursachten sinusförmigen Störungen in den Spektren vorgestellt, was eine Voraussetzung für deren Korrektur bei der Inversion darstellt. Weiterhin wird eine Methode beschrieben, die es erlaubt, bei der Korrektur der Spektren um den störenden Anteil des troposphärischen Kontinuums die Filtercharakteristik des Seitenbandfilters zu berücksichtigen, die andernfalls das Inversionsergebnis in der unteren Stratosphäre verfälschen würde.

Anschließend werden die Ergebnisse der Meßkampagnen vorgestellt und in die meteorologische Gesamtsituation eingeordnet. Die zum Teil kontinuierlichen Zeitreihen ermöglichen hierbei einen vertieften Einblick in das stratosphärische Geschehen über einen längeren Zeitraum. Dabei werden die aus den verschiedenen meteorologischen Verhältnissen der einzelnen Winter resultierenden Unterschiede in der chemischen Entwicklung der Stratosphäre deutlich. Einige Ergebnisse werden zusätzlich einem Vergleich mit den Resultaten anderer Meßgeräte und mit Modellrechnungen unterzogen, wobei sich im allgemeinen eine gute Übereinstimmung zeigt.

Abstract

Inversion of arctic stratospheric trace gas profiles for ozone research from measurements of a ground based millimeter wave radiometer

Numerous gases of the earth's atmosphere show characteristic spectral lines in the millimeter wave range due to thermally excited rotational transitions. The millimeter wave radiometer MIRA 2 has been developed at the Institute of Meteorology and Climate Research of the Forschungszentrum Karlsruhe and the University Karlsruhe and measures signatures of ozone (O_3), chlorine monoxide (ClO), nitric acid (HNO_3) and nitrous oxide (N_2O) in the frequency range from 268 to 280 GHz. The high spectral resolution enables the evaluation of pressure broadening for profile retrieval of the particular constituents in the altitude range from about 17 to 55 km. Chlorine monoxide is of particular interest due to its destructive effect on ozone. Unfortunately it has only a very weak signature in the tuning range of MIRA 2 at 278.631 GHz and requires high effort on both the radiometer and the methods for data evaluation.

The objective of this work was the further development of the algorithms for inversion of the measured spectra and the evaluation of the data measured during the arctic measurement campaigns from 1996 to 2000 at Kiruna, northern Sweden, and at Ny-Ålesund, Svalbard.

At first an efficient procedure to determine the periods of sinusoidal undulations in the spectra caused by standing waves is presented which is a precondition to fit these within the inversion process. Furthermore a new method is described which enables the consideration of the filter characteristics of the sidebandfilter in the correction of the spectra for the disturbing part of the tropospheric continuum. This reduces errors in the inverted profiles in the lower stratosphere.

Following the results of the measurement campaigns are presented and correlated to the meteorological situations. The in part continuous timeseries enable a deeper insight into the stratospheric processes over longer periods. This clarifies the differences in the chemical development of the stratosphere resulting from varying meteorological conditions during the particular winters. In addition some results are compared to results of other instruments and model calculations showing in general a good agreement.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Die Erdatmosphäre	4
2.1	Aufbau der Erdatmosphäre	4
2.2	Dynamik des Polarwirbels	6
2.3	Ozonchemie der Stratosphäre	6
2.3.1	Ozonchemie der ungestörten Stratosphäre	6
2.3.2	Ozonchemie der gestörten Stratosphäre	8
3	Millimeterwellenstrahlung der Atmosphäre	10
3.1	Entstehung der Spektrallinien	10
3.2	Intensität der Spektrallinien	12
3.3	Linienverbreiterung	13
3.4	Strahlungstransport in der Atmosphäre	16
3.4.1	Die Strahlungsübertragungsgleichung	16
3.4.2	Der Airmass-Faktor	17
3.5	Helligkeitstemperatur	18
4	Grundlagen der Millimeterwellenradiometrie	20
4.1	Das Heterodynprinzip	20
4.2	Die Radiometerformel	21
4.3	Kalibrierung	22
4.3.1	Hot-Cold-Kalibrierung	22
4.3.2	Balancierte Kalibrierung	22
4.4	Stehende Wellen	24
4.5	Das 268–280 GHz Radiometer MIRA 2	25
4.6	Der Spektralbereich 268–280 GHz	27
5	Auswertung	29
5.1	Linearisierung der Strahlungsübertragungsgleichung	29
5.2	Methode der kleinsten Quadrate	32

5.3	Regularisierung	32
5.3.1	Tikhonov-Phillips-Regularisierung	33
5.3.2	Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit	34
5.3.3	Vertikale Auflösung der invertierten Profile	35
5.3.4	Abschätzung des Fehlers	36
5.3.5	Simultane Inversion von Höhenprofilen	37
5.3.6	Berücksichtigung von stehenden Wellen	38
5.4	Bestimmung der Periode der stehenden Wellen	40
5.5	Berücksichtigung des troposphärischen Wasserdampfs	43
5.5.1	Zweischichten- und Mehrschichtenmodell	43
5.5.2	Berücksichtigung des Seitenbandfilters	45
6	Die Meßkampagnen 1996 bis 2000	49
6.1	Die Meßkampagne 1996 in Kiruna	50
6.1.1	Fehlerbetrachtung	52
6.1.2	Ozon	58
6.1.3	Chlormonoxid	63
6.1.4	Distickstoffoxid	69
6.1.5	Salpetersäure	72
6.2	Die Meßkampagne 1997 in Ny-Ålesund	75
6.3	Die Meßkampagne 1998 in Kiruna	80
6.4	Die Meßkampagne 1999 in Kiruna	85
6.5	Die Meßkampagne 1999/2000 in Kiruna	87
6.5.1	Phase 1: Bildung des polaren Vortex (November/Dezember 1999)	89
6.5.2	Phase 2: Ozonverlust Mitte des Winters, PSC-Untersuchung (Januar/Februar 2000)	93
6.5.3	Phase 3: Spätwinterlicher Ozonverlust, Aufbrechen des polaren Vortex (Februar bis April 2000)	100
6.5.4	Ozonabbau im Winter 1999/2000	106
6.5.5	Messungen von Ozon an der Doppellinie oberhalb 279 GHz	107
7	Zusammenfassung und Ausblick	109
	Literaturverzeichnis	114
A	Potentielle Temperatur und potentielle Vorticity	120
	Symbolverzeichnis	122
	Liste der Abkürzungen	129

Inhaltsverzeichnis	vii
Abbildungsverzeichnis	131
Tabellenverzeichnis	134
Danksagung	135

Kapitel 1

Einleitung

Die Entdeckung des antarktischen Ozonlochs 1985 durch Farman et al. [8] lenkte erstmals das öffentliche Interesse auf die Bedeutung der Ozonschicht für die Flora und Fauna der Erde. Seither wurden verstärkte Anstrengungen unternommen, die in der Erdatmosphäre ablaufenden chemischen Prozesse zu verstehen und Modelle zu entwickeln, die eine Prognose zukünftiger Entwicklungen erlauben.

Der Grund für das wachsende Interesse liegt begründet in den wichtigen Funktionen, die Ozon in der Stratosphäre erfüllt. Dies ist zum einen die Absorption der harten UV-Strahlung der Sonne mit Wellenlängen zwischen 230 und 310 nm, zum anderen erfüllt Ozon auch eine wichtige Aufgabe für den Strahlungshaushalt der Erdatmosphäre, da durch die Absorption der solaren Strahlung das Temperaturprofil der Stratosphäre bestimmt wird. Ein fortschreitender Ozonabbau würde zu schweren Zellschädigungen bei allen der Strahlung ausgesetzten Lebewesen führen. Neben gehäuftem Auftreten von Hautkrebs beim Menschen wären auch schwerwiegende Veränderungen des gesamten Ökosystems der Erde zu befürchten.

Immer mehr rückt bei der Erforschung des Ozonabbaus die Frage in den Mittelpunkt, inwieweit die gestörte stratosphärische Chemie, wie sie mittlerweile alljährlich im antarktischen Frühjahr beobachtet wird, auch ein mögliches Szenario für die Arktis darstellt. Es gilt heute als gesichert, daß vor allem das Chlor für den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre verantwortlich ist. Dieses wird hauptsächlich durch den Menschen freigesetzt und kann in Form von weitgehend inerten Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen (FCKWs) bis in die Stratosphäre gelangen. Dort werden die Chlorverbindungen photochemisch aufgebrochen und das Chlor kann auf katalytischem Wege Ozon zerstören. Aufgrund der im Vergleich zur Antarktis unterschiedlichen geographischen und meteorologischen Bedingungen auf der Nordhemisphäre ist die mittlere Temperatur der Stratosphäre im arktischen Frühjahr höher als im antarktischen, weshalb auf der Nordhalbkugel noch nicht derartig hohe Abbauraten von Ozon beobachtet wurden wie über der Antarktis.

Zur weiteren Erforschung dieser Problematik werden neben in situ-Messungen

Fernerkundungsverfahren eingesetzt. Diese erfolgen von Satelliten, Flugzeugen und Ballonen aus oder bodengebunden. Für bodengebundene Messungen bietet die Millimeterwellenradiometrie günstige Voraussetzungen für zeitlich kontinuierliche Messungen, da die Atmosphäre, abgesehen von starken Absorptionslinien und der meist vernachlässigbar kleinen Streuung, eine relativ gute Transparenz für Millimeterwellen besitzt. Weiterhin wird für die Millimeterwellenradiometrie keine externe Strahlungsquelle wie die Sonne benötigt, was tageszeitlich unabhängige Messungen ermöglicht und auch für Messungen in Polargebieten während des Winterhalbjahres von entscheidender Bedeutung ist. Aus der Linienform der in den gemessenen Spektren vorhandenen Signaturen können mit geeigneten mathematischen Methoden Rückschlüsse auf die Höhenverteilung der stratosphärischen Spurengase gezogen werden.

Das Ziel dieser Arbeit war die Weiterentwicklung der vorhandenen Algorithmen zur Inversion von Höhenprofilen aus den aufgenommenen Spektren und die Auswertung der auf den verschiedenen Meßkampagnen mit dem am IMK entwickelten Millimeterwellenradiometer MIRA 2 gemessenen Daten. Im Mittelpunkt des Interesses stand hierbei wegen seiner zerstörerischen Wirkung auf Ozon (O_3) das Chlormonoxid (ClO), das eine sehr schwache Signatur im vom Meßsystem erfaßbaren Frequenzbereich von 268 bis 280 GHz besitzt. Außerdem wurden zahlreiche Messungen an starken Ozonlinien durchgeführt, ergänzt durch Messungen an den Signaturen von Distickstoffoxid (N_2O), auch Lachgas genannt, und Salpetersäure (HNO_3).

In Kapitel 2 dieser Arbeit wird zunächst Grundlegendes zur Erdatmosphäre dargestellt. Neben dem Temperatur- und Druckverlauf wird hier auch kurz auf die Dynamik des Polarwirbels eingegangen. Weiterhin sind die natürlichen Zyklen des Ozons und die chemischen Prozesse, die zum anthropogenen Ozonabbau führen, Gegenstand dieses Kapitels.

Im 3. Kapitel wird auf die Entstehung der Spektrallinien im Millimeterwellengebiet und die verschiedenen Formen der Linienverbreiterung eingegangen. Weiterhin wird hier der Strahlungstransport in der Erdatmosphäre besprochen und der Begriff der Helligkeitstemperatur erläutert.

Das 4. Kapitel beschäftigt sich mit den Grundlagen der Millimeterwellenradiometrie. Hier wird die Funktionsweise eines Superheterodynempfängers beschrieben und speziell auf MIRA 2 und seine Besonderheiten eingegangen.

Die Auswertemethoden für die gemessenen Spektren sind schließlich Thema von Kapitel 5. Hierzu wird zunächst einmal auf die Linearisierung der Strahlungsübertragungsgleichung eingegangen. Es folgt eine kurze Einführung in die Theorie der Inversion schlecht gestellter Probleme und anschließend werden die Tikhonov-Phillips-Regularisierung und das Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit vorgestellt. In den gemessenen Spektren treten gleichzeitig Linien verschiedener Spezies auf und die Spektren sind insgesamt gestört durch stehende Wellen, die durch multiple Reflexio-

nen im Meßgerät verursacht werden. Die Behandlung dieser Probleme ist ebenfalls Gegenstand von Kapitel 5. Es folgen Überlegungen zur Korrektur der Spektren um störende troposphärische Einflüsse und um die Filtercharakteristik des Seitenbandfilters.

In Kapitel 6 werden dann die Ergebnisse der Meßkampagnen 1996 bis 2000 in Kiruna (Nordschweden) und Ny-Ålesund (Spitzbergen) präsentiert. Diese werden, soweit möglich, mit anderen Messungen verglichen und es wird eine Fehlerbetrachtung für jedes Spurengas durchgeführt.

Das Kapitel 7 gibt eine Zusammenfassung der Arbeit, Vorschläge für zukünftige Fortentwicklungen und einen Ausblick.

Kapitel 2

Die Erdatmosphäre

2.1 Aufbau der Erdatmosphäre

Die Atmosphäre (grch. atmos = „Dunst, Dampf“ und sphaira = „Kugel, Erdkugel“) der Erde lässt sich anhand ihres vertikalen Temperaturverlaufs in verschiedene Bereiche unterteilen (Abbildung 2.1).

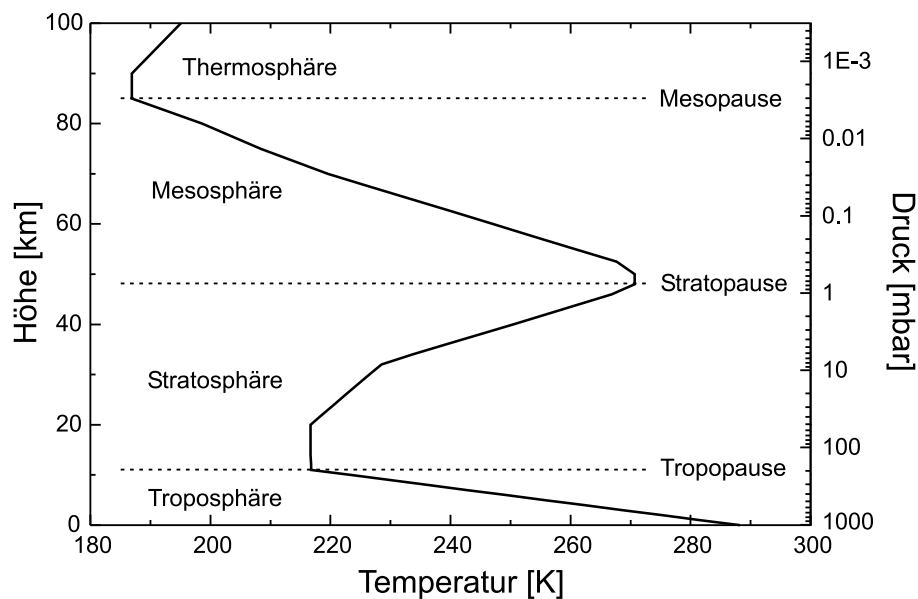


Abb. 2.1: Temperaturverlauf in der Erdatmosphäre entsprechend der US-Standardatmosphäre für mittlere Breiten und daraus folgende Einteilung der Höhenschichten

Die unterste Schicht wird Troposphäre genannt (grch. trope = „Wende, Kehre,

Wendung“) und zeichnet sich durch einen negativen Temperaturgradienten aus, weshalb sie vertikal gut durchmischt ist. In ihr spielt sich das Wettergeschehen ab. Die Troposphäre wird nach oben hin durch die Tropopause begrenzt, die sich in einer Höhe von ca. 9 km in polaren Breiten bis zu einer Höhe von ca. 17 km in den Tropen befindet. Daran schließt sich die Stratosphäre (lat. stratum = „Decke“) an, in der vor allem durch die Absorption der kurzwelligeren Sonnenstrahlung durch Ozon ein starker Temperaturanstieg nach oben hin zu verzeichnen ist. Durch diesen positiven Temperaturgradienten ist die Stratosphäre stabil geschichtet und der Temperaturverlauf ist fast vollständig durch die Strahlungsbilanz bestimmt. Weiterhin bewirkt diese stabile Schichtung eine lange Verweildauer der chemischen Komponenten in der Stratosphäre. In Höhen um 50 km bildet die Stratopause die obere Grenze der Stratosphäre und es folgt die Mesosphäre, in der die Temperatur wieder abnimmt. Sie wird nach oben hin begrenzt durch die Mesopause in ca. 87 km Höhe und es folgt die Thermosphäre mit einem erneuten Temperaturanstieg.

Der Druckverlauf in der Erdatmosphäre läßt sich mit folgender Überlegung bestimmen: Für eine Luftschicht infinitesimaler Höhe dh gilt im hydrostatischen Gleichgewicht

$$dp(h) = -\rho(h) g(h) dh, \quad (2.1)$$

wobei $p(h)$ der Druck, $\rho(h)$ die Dichte, $g(h)$ die Erdbeschleunigung und h die Höhe ist. Luft verhält sich annähernd wie ein ideales Gas:

$$\rho(h) = \frac{Mp(h)}{RT(h)}$$

M ist in dieser Gleichung die molare Masse, R die Gaskonstante und $T(h)$ die Temperatur in der Höhe h . Einsetzen in 2.1 und Integrieren liefert

$$p(h) = p(h_0) e^{-\int_{h_0}^h \frac{Mg(h')}{RT(h')} dh'}.$$

Für konstante Temperatur und konstantes g liefert die Integration bei Bezug auf den Druck in einer bestimmten Höhe h_0 die barometrische Höhenformel

$$p(h) = p(h_0) e^{-\frac{h-h_0}{H}}, \quad (2.2)$$

mit der Skalenhöhe

$$H = \frac{RT}{gM}, \quad (2.3)$$

in welcher der Druck auf $1/e$ des Druckes in der Höhe h_0 abgefallen ist. Für Luft bei 0°C ergibt sich eine Skalenhöhe von etwa $H \approx 8000\text{ m}$.

2.2 Dynamik des Polarwirbels

Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben wird die Stratosphäre durch Absorption der solaren UV-Strahlung erwärmt. Fehlt diese, wie dies in der Polarnacht der Fall ist, kühlen die stratosphärischen Luftmassen durch Strahlungsverluste erheblich ab und beginnen abzusinken. Aus niedrigeren Breiten strömen Luftmassen nach und werden durch die Corioliskraft nach Osten abgelenkt. Dadurch entsteht in den Wintermonaten über den Polarregionen ein stabiler Luftwirbel, der Polarwirbel oder Vortex. Gegenüber den umgebenden Luftmassen ist der Bereich innerhalb des Vortex recht gut abgeschlossen, so daß es nur noch zu geringem Luftaustausch zwischen den Luftmassen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels kommt. Im Frühjahr erwärmen sich die eingeschlossenen Luftmassen mit zunehmender Sonneneinstrahlung und die Zirkulation bricht zusammen.

Störungen des Polarwirbels werden durch planetare Wellen verursacht, die an großskaligen Unregelmäßigkeiten der Orographie und der Temperaturverteilung an der Erdoberfläche angeregt werden und sich durch die Troposphäre bis in die Stratosphäre ausbreiten. Sie können insbesondere über der Arktis zu einer Einmischung subpolarer Luftmassen in den Vortex, einer Erwärmung des Polarwirbels und sogar zu seinem frühen Aufbrechen gegen Ende des polaren Winters führen. Extreme Formen dieser planetaren Wellen führen zu stratosphärischen Erwärmungen im Spätwinter, die bis zu 30 K innerhalb eines Tages und über 50 K innerhalb mehrerer Tage ausmachen können [46]. Insgesamt führt die deutlichere Ausprägung planetarer Wellen auf der Nordhalbkugel zu einer stärkeren Einmischung subpolarer Luftmassen in den Vortex und im Mittel zu höheren Temperaturen in der Stratosphäre. Dies ist auch der Grund, weshalb über der Arktis kein derart drastischer Ozonabbau stattfindet, wie man ihn alljährlich über der Antarktis beobachtet.

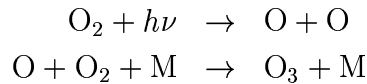
2.3 Ozonchemie der Stratosphäre

In diesem Abschnitt soll näher auf die Ozonchemie in der Stratosphäre eingegangen werden. Die Bedeutung der Ozonschicht wurde schon in Kapitel 1 und in Abschnitt 2.1 erläutert. Hier sollen nun die Entstehungs- und Abbaumechanismen von Ozon sowohl in der ungestörten als auch in der durch heterogene chemische Prozesse im Winter und Frühjahr gestörten Stratosphäre beschrieben werden.

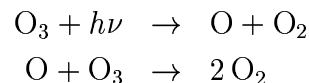
2.3.1 Ozonchemie der ungestörten Stratosphäre

Chapman stellte 1930 als erster eine Theorie über das Zustandekommen der Ozonschicht auf [7]. Der sog. Chapman-Zyklus basiert auf einer reinen Sauerstoffchemie für die Erzeugung und Zerstörung von Ozon. Die Bildung von Ozon erfolgt nach

Chapman über folgende Reaktionen:

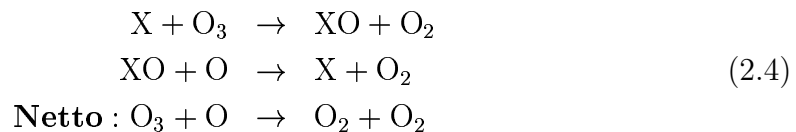


Der neutrale Stoßpartner M (meist N_2 oder O_2) ist für die Energie- und Impulsbilanz notwendig. Das Gleichgewicht wird durch die Abbaureaktionen

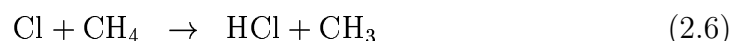
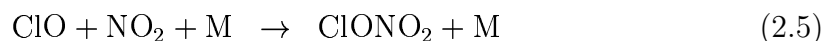


hergestellt.

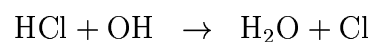
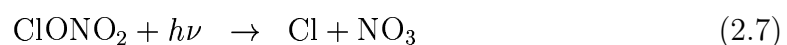
Diese Reaktionen können zwar die Bildung von Ozon in der Stratosphäre erklären, jedoch zeigt eine genauere Untersuchung, daß sich eine zu hohe Gesamtkonzentration einstellen würde. Es müssen also noch weitere Abbaumechanismen existieren. In den sechziger und siebziger Jahren wurden deshalb Reaktionszyklen vorgeschlagen, die Ozon auf katalytischem Wege zerstören. Im Prinzip laufen die Reaktionen wie folgt ab:



Der Katalysator X wird in der zweiten Reaktion regeneriert, weshalb seine Konzentration unverändert bleibt. Er kann auf diese Weise viele Ozonmoleküle zerstören, weshalb schon geringe Mengen ausreichen, um eine nennenswerte Ozonreduzierung zu erzielen. Die wichtigsten Katalysatoren in Gleichung 2.4 sind OH, NO, Cl und Br. Diese Radikale entstehen aus den sogenannten Quellgasen wie N_2O , H_2O , FCKWs und den Halonen, die in der Troposphäre sehr langlebig und natürlichen oder anthropogenen Ursprungs sind. Gelangen diese in die Stratosphäre, werden sie von der UV-Strahlung photolysiert und setzen die Radikale frei. In der unteren Stratosphäre liegen die Radikale jedoch nur in geringer Konzentration vor, da sie zum größten Teil in inaktiven Reservoirgasen gebunden sind. Die wichtigsten Reservoirgase für Chlor sind Chlornitrat (ClONO_2) und Salzsäure (HCl), die nach folgenden Reaktionen gebildet werden:



Die wichtigsten Rückreaktionen in die aktive Form sind:



Bei ungestörter Chemie der Stratosphäre erfolgt die Freisetzung von Chlor jedoch sehr langsam, so daß der Einfluß von Chlor auf den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre unter diesen Bedingungen lediglich etwa 10 % beträgt.

2.3.2 Ozonchemie der gestörten Stratosphäre

Bei gestörter Chemie der Stratosphäre verbleibt das Chlor nicht in den Reservoirgasen, sondern wird durch heterogene Reaktionen an den Oberflächen von Partikeln der sogenannten polaren stratosphärischen Wolken (engl. Polar Stratospheric Clouds, PSCs) freigesetzt. Für deren Bildung sind extrem niedrige Temperaturen erforderlich, die innerhalb des Polarwirbels erreicht werden. Man unterscheidet zwei Typen, deren wichtigste Eigenschaften in Tabelle 2.1 zusammengefaßt sind.

PSC-TYP	Bildungstemperaturen	Zusammensetzung	mittlere Teilchengröße	Sedimentationsgeschwindigkeit
I	$T \leq 195 \text{ K}$	NAT ^a , SAT ^b oder STS ^c	ca. $1 \mu\text{m}$	$\sim 10 \text{ m/Tag}$
II	$T \leq 187 \text{ K}$	Eiskristalle	$\geq 10 \mu\text{m}$	$\sim 1,5 \text{ km/Tag}$

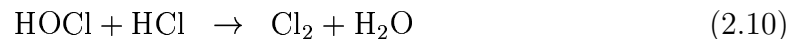
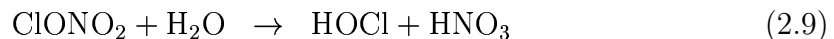
^aNitric Acid Trihydrate, $\text{HNO}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$

^bSulphuric Acid Trihydrate, $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$

^cSupercooled Ternary Solution, Phasengemisch aus HNO_3 , H_2SO_4 und Wasser

Tabelle 2.1: Eigenschaften der PSC-Typen

An den Oberflächen der Wolkenpartikel laufen folgende chemischen Reaktionen ab, die in der Gasphase aufgrund der fehlenden Aktivierungsenergie nicht möglich sind:



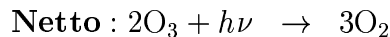
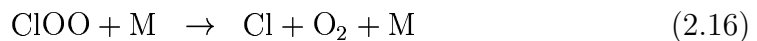
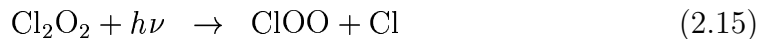
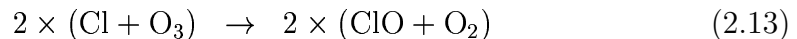
Die entscheidende Rolle spielt dabei die Reaktion 2.8 vor allem auf Partikeln der PSCs vom Typ I. Falls die PSCs über längere Zeit bestehen, kann es zu einem Absinken und damit zu einer Dehydratisierung und Denitrifizierung der Luftmassen kommen, was die Deaktivierung des Chlors verhindert. Das für die Reaktion 2.5 benötigte NO_2 wird nämlich durch Photolyse aus HNO_3 gebildet. Fehlt aufgrund der Denitrifizierung HNO_3 in der Stratosphäre, so kann Chlor nur noch durch die viel langsamere Reaktion 2.6 deaktiviert werden, was vor allem in der Antarktis aufgrund der tieferen Temperaturen und damit verbunden einer fast vollständigen Denitrifizierung der unteren Stratosphäre der Fall ist. Weiterhin wurde in der Antarktis zeitweise im Frühjahr in manchen Höhenbereichen ein fast vollständiger Ozonabbau beobachtet. In diesem Falle fehlt das Ozon, das zur Bildung von ClO nötig

ist, weshalb auch dann eine Deaktivierung des Chlors nur noch über die Reaktion 2.6 möglich ist. Vor allem PSC II-Partikel können aufgrund ihrer Größe innerhalb weniger Tage um einige Kilometer absinken und große Mengen molekularen Chlors zurücklassen. Aufgrund der im allgemeinen tieferen stratosphärischen Temperaturen ist dieser Prozeß in der Antarktis ausgeprägter als in der Arktis.

Diese Vorgänge werden als Vorkonditionierung des Polarwirbels bezeichnet und finden in Höhen zwischen 12 km und 25 km statt. Gegen Ende der Polarnacht bei beginnender Sonneneinstrahlung wird das Chlor dann durch Photolyse aus den Cl_2 - und HOCl -Molekülen aktiviert:



Das Chlor könnte nun nach den Reaktionen 2.4 Ozon katalytisch zerstören, jedoch ist dieser Zyklus aufgrund des geringen Vorkommens von atomarem Sauerstoff in der unteren Stratosphäre nur von untergeordneter Bedeutung. Molina und Molina [35] schlagen deshalb einen weiteren Abbauzyklus, den ClO-Dimerprozeß, vor, der ohne atomaren Sauerstoff auskommt:



Dieser ClO-Dimerzyklus ist vor allem in der unteren Stratosphäre wirksam, da hier mehr Stoßpartner M zur Verfügung stehen. Das ClO-Dimer ist bei niedrigen Temperaturen relativ stabil und wird erst bei Sonnenaufgang nach Reaktion 2.15 photolytisiert, wobei sukzessive das Monomer freigesetzt wird. Fehlt das Sonnenlicht, überwiegt Reaktion 2.14 und das ClO wird im Dimer gebunden, wodurch Ozon nicht mehr nach diesem Reaktionszyklus zerstört werden kann. Man findet daher in der unteren Stratosphäre, in der der stärkste Ozonabbau zu beobachten ist, einen starken Tagesgang von ClO.

Für die Bildung von PSCs sind, wie oben erwähnt, extrem niedrige Temperaturen notwendig. Manchmal können jedoch auch PSCs beobachtet werden, obwohl die mittlere Temperatur der unteren Stratosphäre die Bildungstemperatur für PSCs nicht unterschreitet. Dies kann durch die Ausbildung von sog. Leewellen erklärt werden: Treffen advehierte Luftmassen auf hohe Berge, können sich in Leelage Wellen ausbilden, die sich bis in die Stratosphäre fortpflanzen und dort lokal zur Abkühlung bis unter die Grenztemperatur für PSCs führen können.

Kapitel 3

Millimeterwellenstrahlung der Atmosphäre

Die Moleküle der Atmosphäre führen aufgrund thermischer Anregung Rotationsübergänge aus und strahlen dabei im Mikrowellenbereich, also im Frequenzbereich zwischen 1–300 GHz, was Wellenlängen vom Zentimeter- bis zum Millimeterwellengebiet entspricht. Dieser Frequenzbereich eignet sich aufgrund der dort hohen Transparenz der Troposphäre sehr gut für bodengebundene Fernerkundung. In diesem Kapitel soll die Entstehung der Linien im Millimeterwellengebiet, die Linienform und der Strahlungstransport durch die Atmosphäre beschrieben werden.

3.1 Entstehung der Spektrallinien

Nach den Gesetzen der Quantenmechanik findet Emission und Absorption von elektromagnetischer Strahlung in genau festgelegten Energiebeträgen statt. Gemäß dem zweiten Bohrschen Postulat gilt für die Frequenz ν_{mn} der emittierten Strahlung beim Übergang von einem Energiezustand E_m zum niedrigeren Energiezustand E_n

$$E_m - E_n = h\nu_{mn} . \quad (3.1)$$

Hierbei ist h das Plancksche Wirkungsquantum. Damit ein Molekül mit einem elektromagnetischen Wellenfeld durch Rotationsübergänge in Wechselwirkung treten kann, muß es allerdings ein elektrisches oder magnetisches Dipolmoment aufweisen. Für einen zweiatomigen starren Rotor, der als Modell beispielsweise für ClO dienen kann, erhält man als Lösung der stationären Schrödingergleichung für die Energie eines Rotationszustandes mit der Drehimpulsquantenzahl J :

$$E_J = \hbar^2 \frac{J(J+1)}{2I} = BhJ(J+1)$$

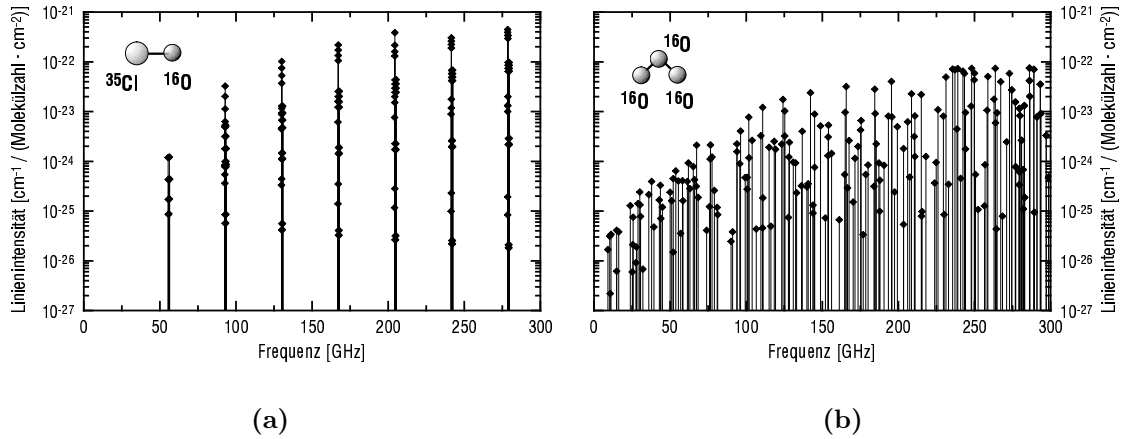


Abb. 3.1: Spektrallinien von Chlormonoxid (a) und Ozon (b) im Mikrowellenbereich (aus [25]). In beiden Spektren sind jeweils nur die Linien des am häufigsten vorkommenden Isotops dargestellt

Mit I ist hier das Trägheitsmoment des Moleküls bei Rotation senkrecht zur Figurenachse und mit $B = h/(8\pi^2 I)$ die Rotationskonstante bezeichnet. Für Dipolübergänge gilt die Auswahlregel

$$\Delta J = \pm 1 ,$$

was zusammen mit Gleichung 3.1 auf die Frequenzen der emittierten Strahlung führt:

$$\nu_{rot} = \frac{E_J - E_{J-1}}{h} = \frac{\hbar J}{2\pi I} = 2BJ$$

Die Frequenz nimmt also proportional mit J zu und die Linien liegen äquidistant. Aus dem Linienabstand läßt sich das Trägheitsmoment I ablesen. Da ClO eine ungerade Anzahl an Elektronen hat, kommt es durch die Wechselwirkung des Kernspins mit den von den Elektronen verursachten Magnetfeldern zu einer Hyperfeinaufspaltung von ≤ 100 MHz. Das ClO-Spektrum setzt sich also aus äquidistanten Liniengruppen zusammen, wobei in den gemessenen Spektren aufgrund der Linienverbreiterung und des begrenzten Auflösungsvermögens des Spektrometers die Hyperfeinaufspaltung nicht beobachtet wird.

Die bisherigen Überlegungen gelten für zweiatomige Moleküle wie ClO. Bei mehratomigen asymmetrischen Molekülen, wie beispielsweise Ozon, sind die Verhältnisse komplizierter. Seien I_x, I_y, I_z die Trägheitsmomente der Hauptträgheitsachsen. Geschlossene Lösungen der Schrödingergleichung ergeben sich nur für den Spezialfall, daß zwei der drei Trägheitsmomente gleich sind. Bei $I_x < I_y = I_z$ spricht man von prolaten, bei $I_x = I_y < I_z$ von oblaten Molekülen. Die asymmetrischen Rotoren können nun als Zwischenstufe zwischen den prolaten und oblaten Molekülen angesehen werden, wobei zur Beschreibung des Energiezustandes zu der Quantenzahl J

noch weitere Quantenzahlen der zugehörigen prolaten und oblaten Rotoren K_{-1} und K_{+1} hinzukommen.

Beim Ozon mit einem Asymmetrieparameter von -0,97 handelt es sich um einen schwach asymmetrischen prolaten Rotor. Aus den recht komplexen Auswahlregeln für die drei Quantenzahlen resultieren zahlreiche Spektrallinien, die keine klare Struktur wie im Falle eines zweiatomigen Moleküls erkennen lassen.

In Abbildung 3.1 sind zur Verdeutlichung der Unterschiede zwischen einfachen zweiatomigen Rotoren und asymmetrischen Rotoren die Spektrallinien von ClO und Ozon gegenübergestellt.

3.2 Intensität der Spektrallinien

Im thermodynamischen Gleichgewicht gilt nach Kirchhoff für die Emissivität ϵ_ν eines Gases bei der Frequenz ν

$$\epsilon_\nu = \alpha_\nu \cdot B_\nu(T) , \quad (3.2)$$

mit α_ν dem *Absorptionskoeffizienten* und $B_\nu(T)$ der *Planckfunktion* für die Frequenz ν und die Temperatur T , gegeben durch

$$B_\nu(T) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \cdot \frac{1}{e^{h\nu/k_B T} - 1} . \quad (3.3)$$

Mit k_B ist die Boltzmannkonstante und mit c die Lichtgeschwindigkeit bezeichnet. Zu den Strahlungsgesetzen siehe z. B. [9] und [14].

Bei Energieaustauschvorgängen mit Molekülen wird Strahlung emittiert oder absorbiert. Bei der Emission unterscheidet man zwischen spontaner Emission, bei der das Molekül auch ohne das vorherige Vorhandensein von Strahlung emittiert, und induzierter Emission, bei der das Molekül durch Wechselwirkung mit einem elektromagnetischen Wellenfeld zum Übergang angeregt wird. Im Falle der Millimeterwellenradiometrie spielt aufgrund der sehr geringen Strahlungsdichten innerhalb der Erdatmosphäre die spontane Emission die dominierende Rolle.

Für Wellenlängen, die groß gegenüber den Moleküldimensionen sind, wie das im Millimeterwellengebiet der Fall ist, ergibt sich für den Absorptionskoeffizienten α_{mn} eines Moleküls mit den Energiezuständen E_m und E_n für Strahlung der Frequenz ν_{mn} ([13]):

$$\alpha_{mn} = \frac{8\pi^2 n g_n}{3hcQ} \nu_{mn} |\mu_{mn}|^2 \left(e^{-E_m/k_B T} - e^{-E_n/k_B T} \right)$$

Darin bezeichnet n die Anzahldichte der Moleküle, g_n den Entartungsgrad des Energiezustandes E_n , Q die Zustandssumme und μ_{mn} das Dipolmatrixelement für den Übergang von Zustand m nach Zustand n . Die Anzahldichte n kann man durch die folgende Überlegung bestimmen: In einem gegebenen Gasvolumen V seien die

einzelnen Molekülsorten lokal entmischt. Die Molekülsorte i nehme darin das Volumen V_i ein. Die Anzahl N_i dieser Moleküle ist gegeben durch die Zustandsgleichung idealer Gase:

$$N_i = \frac{pV_i}{k_B T}$$

Hierin bezeichnen p und T den Druck bzw. die Temperatur im betrachteten Gasvolumen. Für die gesuchte Anzahldichte n_i der Molekülsorte i folgt damit

$$n_i = \frac{N_i}{V} = \frac{p}{k_B T} \frac{V_i}{V} = \frac{p}{k_B T} c_{v_i} .$$

Der Absorptionskoeffizient α_{mn} ist demnach proportional zum Volumenmischungsverhältnis c_{v_i} .

3.3 Linienverbreiterung

Bisher wurden die Spektrallinien als unendlich schmal und bei exakten Frequenzen vorgegeben betrachtet. Verschiedene Ursachen führen aber zur Verbreiterung der Spektrallinien und der Absorptionskoeffizient aus dem vorhergehenden Abschnitt muß um eine frequenzabhängige Komponente, die *Linienform* $f(\nu, \nu_{mn})$, erweitert werden:

$$\alpha_{mn}(\nu) = \alpha_{mn} f(\nu, \nu_{mn})$$

Natürliche Linienbreite

Ein angeregter Zustand eines ungestörten Teilchens hat eine endliche Lebensdauer Δt und zerfällt durch spontane Emission. Wegen der Unschärferelation

$$\Delta E \Delta t \geq \hbar \tag{3.4}$$

ist die Energie und damit auch die Frequenz des emittierten Photons unscharf. Die daraus resultierende *natürliche Linienbreite* liegt für Millimeterwellenstrahlung im Bereich von 10^{-7} Hz und ist gegenüber den folgenden Verbreiterungsmechanismen vernachlässigbar.

Dopplerverbreiterung

Aufgrund der thermischen Eigenbewegung der Moleküle sind die Frequenzen der emittierten Photonen dopplerverschoben. Bei lokalem thermodynamischen Gleichgewicht gilt die Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung und man erhält für Teilchen der Molekülmasse m die Formfunktion der *Dopplerverbreiterung*

$$f_D(\nu, \nu_{mn}) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \sigma_D} e^{-((\nu - \nu_{mn})/\sigma_D)^2} ,$$

mit

$$\sigma_D = \sqrt{\frac{2k_B T}{mc^2}} \nu_{mn} .$$

Die Halbwertsbreite einer dopplerverbreiterten Linie beträgt

$$\Delta\nu_D = 2\sigma_D \sqrt{\ln 2} = 2\nu_{mn} \sqrt{\frac{2k_B T}{mc^2} \ln 2} .$$

Die Stärke der Dopplerverbreiterung ist somit frequenzabhängig und spielt in den hier betrachteten Anwendungen der Millimeterwellenradiometrie erst in sehr großen Höhen (> 60 km) eine Rolle.

Druckverbreiterung

Für die Millimeterwellenradiometrie spielt die *Druck-* oder *Stoßverbreiterung* die dominierende Rolle: Stöße der Gasmoleküle untereinander verkürzen die Lebensdauer der Rotationszustände und führen aufgrund der Unschärferelation 3.4 zu einer Verbreiterung der Spektrallinien. Die Kollisionsrate ist umso höher, je dichter das Gas ist, weshalb Strahlungsbeiträge aus der unteren Atmosphäre stärker druckverbreitert sind als die aus höheren Atmosphärenschichten.

Van Vleck und Weisskopf [57] erhielten unter der Annahme, daß die Stoßzeit kurz ist im Vergleich zur Periodendauer des wirksamen elektromagnetischen Feldes, was im Millimeterwellengebiet der Fall ist, für die Linienform druckverbreiteter Spektrallinien:

$$f_p(\nu, \nu_{mn}) = \frac{\nu}{\pi\nu_{mn}} \left[\frac{\Delta\nu_p}{(\nu_{mn} - \nu)^2 + \Delta\nu_p^2} + \frac{\Delta\nu_p}{(\nu_{mn} + \nu)^2 + \Delta\nu_p^2} \right] \quad (3.5)$$

Die Linienbreite, definiert als die Halbwertsbreite $\Delta\nu_p$, ist gegeben durch

$$\Delta\nu_p = \frac{1}{2\pi\tau} = \gamma(T)p . \quad (3.6)$$

Mit τ ist hier die mittlere Stoßzeit bezeichnet und γ ist ein temperaturabhängiger Druckverbreiterungsfaktor ([49]):

$$\gamma(T) = \gamma(T_0) \left(\frac{T_0}{T} \right)^n$$

Der Exponent n ist stoffabhängig und liegt im Wertebereich $0,5 \leq n \leq 1,0$. Anhand der Gleichungen 3.5 und 3.6 wird die Proportionalität zwischen Druck und Linienbreite sichtbar, die die Grundlage der Höhenprofilbestimmung aus den Spektren bodengebundener Millimeterwellenradiometrie bildet.

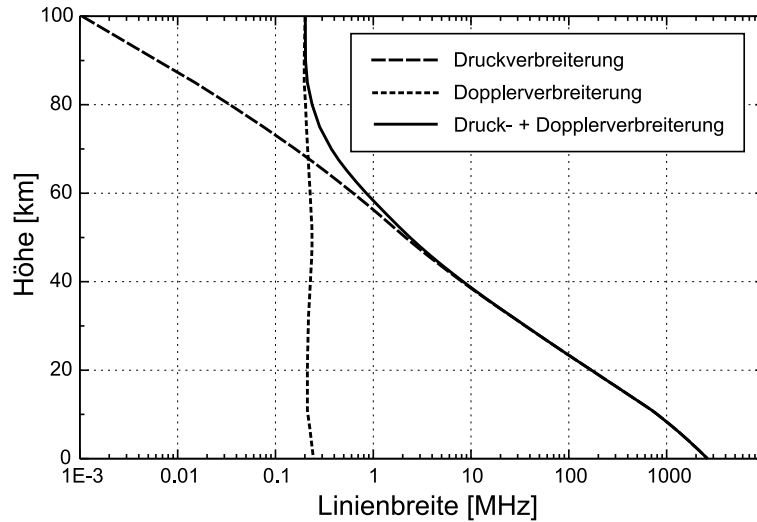


Abb. 3.2: Druck- und Dopplerverbreiterung der CIO-Liniengruppe bei 278,631 GHz, berechnet für die US Standardatmosphäre für mittlere Breiten

Die Voigtfunktion

In den Höhenbereichen, in denen die Linienbreite gleichermaßen von Doppler- und Druckverbreiterung bestimmt wird, verwendet man eine Faltung der Linienformen, die als *Voigtfunktion* bezeichnet wird:

$$f_V(\nu, \nu_{mn}) = \int_{-\infty}^{\infty} f_p(\nu', \nu_{mn}) f_D(\nu - \nu', \nu_{mn}) d\nu'$$

Abbildung 3.2 zeigt den Verlauf der Linienbreiten für CIO in Abhängigkeit von der Höhe in der Atmosphäre. In dieser Abbildung wird die starke Änderung der Druckverbreiterung mit der Höhe deutlich. Im Vergleich dazu ist bei der Dopplerverbreiterung kaum eine Variation mit der Höhe zu erkennen, was bedeutet, daß die Dopplerverbreiterung der Spektrallinien praktisch keine Information über die Höhenverteilung der Spurengase beinhaltet. Wie schon zuvor bemerkt, spielt die Dopplerverbreiterung in der Millimeterwellenradiometrie nur in sehr großen Höhen eine Rolle. So erreichen Doppler- und Druckverbreiterung erst in einer Höhe von ca. 70 km die gleiche Größenordnung, bei der die Linienbreite schon deutlich unter 1 MHz gesunken ist, also unter das spektrale Auflösungsvermögen des Radiometers (siehe dazu Tabelle 4.1). Aus diesem Grunde wird in dieser Arbeit ausschließlich die Linienform 3.5 nach Van Vleck und Weisskopf verwendet.

3.4 Strahlungstransport in der Atmosphäre

Die Strahlungsintensität ändert sich beim Durchgang durch die Atmosphäre durch Emission, Absorption und Streuung. Die Streuung kann jedoch nach [13] im Millimeterwellenbereich in den meisten Fällen vernachlässigt werden, da die Wellenlängen viel größer sind als die streuenden Teilchen. Nur bei starker Bewölkung und bei Regen darf die Streuung nicht mehr vernachlässigt werden, jedoch ist unter diesen Witterungsbedingungen ohnehin kaum noch ein sinnvoller Meßbetrieb möglich, weshalb in dieser Arbeit Streueffekte unberücksichtigt bleiben.

3.4.1 Die Strahlungsübertragungsgleichung

Eine quantitative Beschreibung des Strahlungstransports durch die Atmosphäre liefert die klassische Theorie von Chandrasekhar [6], die auf die *Strahlungsübertragungsgleichung* (SÜG) führt. Beim Durchgang durch eine atmosphärische Schicht der Dicke dh in der Höhe h ändert sich die Intensität $I_\nu(h)$ bei der Frequenz ν nach

$$\frac{dI_\nu(h)}{dh} = \underbrace{-\alpha_\nu I_\nu(h)}_{\text{Absorption}} + \underbrace{\alpha_\nu B_\nu(T(h))}_{\text{Emission}} \quad , \quad (3.7)$$

mit α_ν dem Absorptionskoeffizienten aus Gleichung 3.2 und $B_\nu(T(h))$ der Planckfunktion. Dies ist die Strahlungsübertragungsgleichung in differentieller Form. Integriert man sie über alle Höhenbereiche, so erhält man die Strahlungsübertragungsgleichung in integraler Form und damit die Intensität, die am Boden gemessen werden kann:

$$I_\nu(h_0) = I_\nu(h_\infty) e^{-\tau_\nu(h_0, h_\infty)} + \int_{h_0}^{h_\infty} \alpha_\nu(h) B_\nu(T(h)) e^{-\tau_\nu(h_0, h)} dh \quad (3.8)$$

Die *optische Dicke* $\tau_\nu(h_0, h)$, auch *Opazität* genannt, berechnet sich gemäß

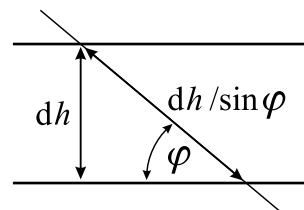
$$\tau_\nu(h_0, h) = \int_{h_0}^h \alpha_\nu(h') dh' \quad . \quad (3.9)$$

Mit h_∞ in Gleichung 3.8 ist der „obere Rand“ der Atmosphäre gemeint, der im Kontext dieser Arbeit bei 100 km angenommen wird. $I_\nu(h_\infty)$ ist die Strahlung, die von außen in die Atmosphäre eindringt, also die kosmische Hintergrundstrahlung, die der Strahlung eines Schwarzkörpers bei einer Temperatur von 2,7 K entspricht.

3.4.2 Der Airmass-Faktor

Bei den bisherigen Betrachtungen wurde eine orthogonale Beobachtungsgeometrie angenommen. Beobachtet man jedoch nicht unter 90° , sondern unter einem Elevationswinkel φ , verlängert sich der Weg ds durch eine Atmosphärenschicht der Dicke dh bei Vernachlässigung der Erdkrümmung um den Faktor $1/\sin \varphi$, wie Abbildung 3.3 verdeutlicht. Für nicht allzu flache Elevationswinkel und nicht allzu große Höhen liefert diese Näherung ausreichende Genauigkeit (Fehler $< 5\%$ für $\varphi > 20^\circ$ in 40 km Höhe).

Abb. 3.3: Änderung der Weglänge bei nichtorthogonaler Beobachtungsgeometrie



Im Falle einer gekrümmten Atmosphäre muß der sogenannte *Airmass-Faktor* A verwendet werden, der sich wie folgt berechnet:

$$A = \frac{ds}{dh} = \frac{R + h}{\sqrt{(R + h)^2 - (R \cos \varphi)^2}} \quad (3.10)$$

Hierin bezeichnet R den Erdradius und h die Höhe, in der sich die betrachtete Atmosphärenschicht befindet (Abbildung 3.4).

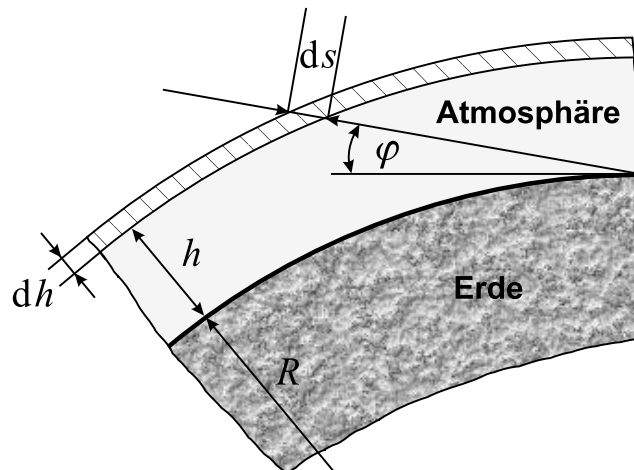


Abb. 3.4: Beobachtung der Erdatmosphäre unter flachem Elevationswinkel

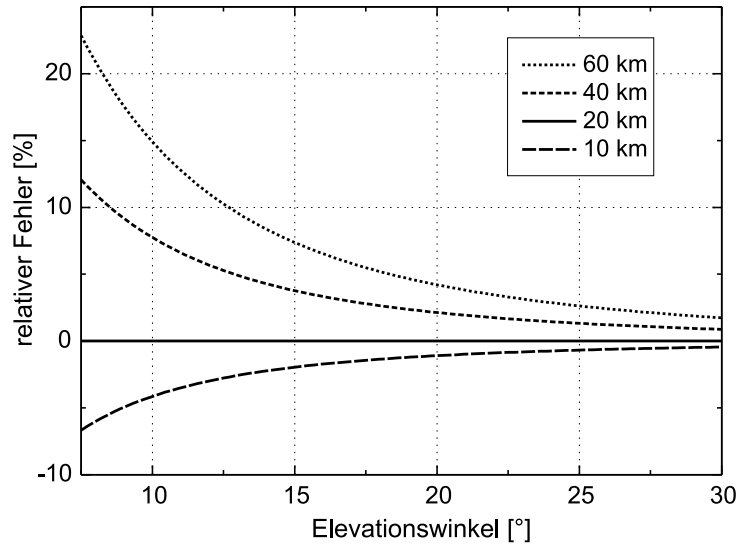


Abb. 3.5: Relative Fehler bei der Umrechnung der Spektren auf Zenitrichtung. Die Referenzhöhe beträgt 20 km

Abbildung 3.5 zeigt exemplarisch für eine Referenzhöhe h von 20 km die relativen Fehler, die bei Umrechnung der Spektren auf Zenitrichtung durch die Höhenabhängigkeit des Airmass-Faktors in Kauf genommen werden müssen. Hieran wird deutlich, daß nach Möglichkeit nur Spektren, die unter ähnlichen Elevationswinkeln gemessen wurden, addiert werden sollten, wobei es günstig ist, diese auf einen gemeinsamen mittleren Elevationswinkel umzurechnen.

3.5 Helligkeitstemperatur

Für $h\nu \ll k_B T$, was in der Millimeterwellenradiometrie häufig gegeben ist, kann die Planckfunktion 3.3 durch die *Rayleigh-Jeans-Näherung* ersetzt werden:

$$B_\nu(T) \approx \frac{2\nu^2 k_B T}{c^2}$$

Wird diese Gleichung nach T aufgelöst, erkennt man, daß Strahlungsintensitäten wie $B_\nu(T)$ oder I_ν durch eine Temperatur, die sogenannte *äquivalente Helligkeitstemperatur* $T_b(\nu)$ (engl. Brightness Temperature) ausgedrückt werden können:

$$T_b(\nu) = \frac{c^2}{2\nu^2 k_B} I_\nu$$

In der Millimeterwellenradiometrie werden Strahlungsintensitäten praktisch ausschließlich in Helligkeitstemperaturen angegeben, auch dann, wenn die Rayleigh-

Jeans-Näherung nicht mehr zulässig ist. Es ist dann allerdings zu beachten, daß die Helligkeitstemperatur nicht mehr mit der physikalischen Temperatur übereinstimmt. Wie Abbildung 3.6 zeigt, liegen die Werte für die Helligkeitstemperatur immer unter denen der physikalischen Temperatur, bei den für die Atmosphäre relevanten Temperaturen und in dem für diese Arbeit relevanten Frequenzbereich um ca. 6,5 K.

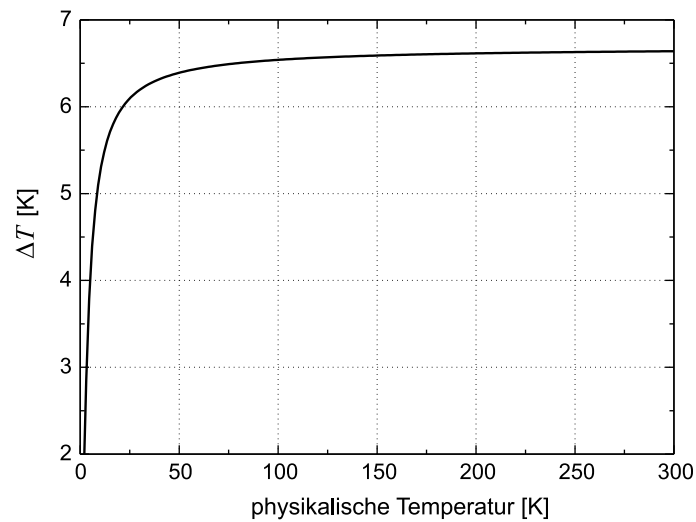


Abb. 3.6: Differenz $\Delta T = T - T_b$ der physikalischen Temperatur zur Helligkeitstemperatur, berechnet für 278,631 GHz

Kapitel 4

Grundlagen der Millimeterwellenradiometrie

4.1 Das Heterodynprinzip

Die in der Atmosphäre emittierte Millimeterwellenstrahlung ist sehr schwach und muß zur genauen Analyse verstärkt werden. Da jedoch die Frequenzen vergleichsweise hoch sind (im Falle des in dieser Arbeit verwendeten Radiometers 268 bis 280 GHz), muß das Signal vor der Verstärkung erst auf eine niedrigere Frequenz, die sogenannten Zwischenfrequenz (ZF), umgesetzt werden. Dies geschieht nach dem Heterodynprinzip, bei dem der zu messenden Strahlung das Signal eines Lokaloszillators (LO) überlagert wird (Abbildung 4.1).

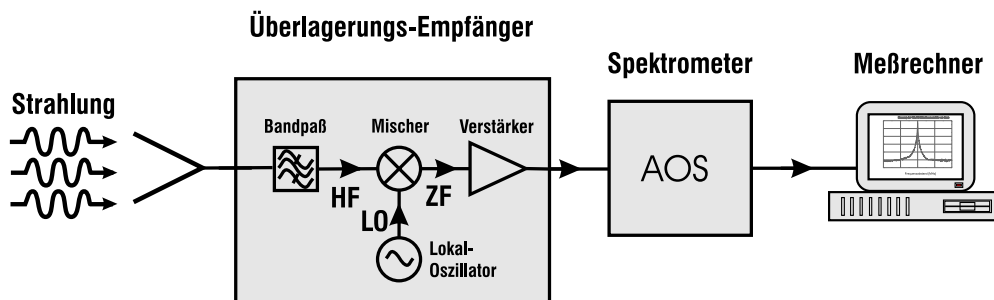


Abb. 4.1: Funktionseinheiten eines Radiometers

Im Mischer, der ein nichtlineares elektronisches Bauelement enthält, wird die Signalfrequenz auf die Zwischenfrequenz umgesetzt, die gerade der Differenz zwischen Signal- und LO-Frequenz entspricht. Es gibt jedoch zwei Frequenzbereiche, die diese Bedingung erfüllen, das untere (Lower Sideband, LSB) und das obere Seitenband

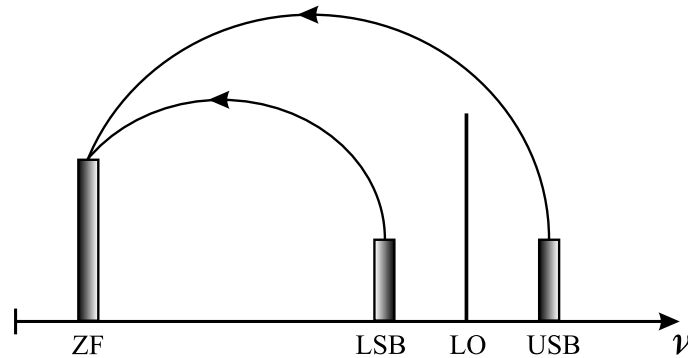


Abb. 4.2: Frequenzumsetzung der beiden hochfrequenten Seitenbänder auf das Zwischenfrequenzband

(Upper Sideband, USB), die symmetrisch zur LO-Frequenz liegen:

$$\nu_{\text{LSB/USB}} = \nu_{\text{LO}} \mp \nu_{\text{ZF}}$$

Ein Heterodynempfänger empfängt also zunächst zwei Frequenzbereiche gleichzeitig (Doppelseitenbandbetrieb, DSB). Interessiert man sich nur für ein Seitenband, muß das andere mit einem Bandpaß unterdrückt werden (Single Sideband Mode, SSB). Diese Zusammenhänge sind in Abbildung 4.2 veranschaulicht.

4.2 Die Radiometerformel

Die gemessenen Spektren sind durch atmosphärisches und das um ein vielfaches höhere im Radiometer generierte Rauschen gestört. Um ein akzeptables Signal- zu Rauschverhältnis (engl. Signal-to-Noise Ratio, SNR) zu erhalten, werden die Spektren über einen längeren Zeitraum gemittelt. Die nach der Integrationszeit t_{int} erreichbare Auflösung ΔT_b in der Helligkeitstemperatur ist gegeben durch die sogenannte *Radiometerformel* ([55]):

$$\Delta T_b = \frac{T_{b,\text{atm}} + T_{\text{rec}}}{\sqrt{B t_{\text{int}}}} \quad (4.1)$$

Hierin bezeichnen $T_{b,\text{atm}}$ die Helligkeitstemperatur der zu messenden Strahlung, T_{rec} die Empfängerrauschtemperatur und B die spektrale Bandbreite, über die gemessen wird. Für eine Verringerung des Rauschens steigen die Integrationszeiten also quadratisch an. Hieran wird deutlich, wie wichtig eine niedrige Empfängerrauschtemperatur für die Qualität der Spektren ist, da sonst unakzeptabel lange Meßzeiten in Kauf zu nehmen sind. In Gleichung 4.1 sind allerdings zeitliche Schwankungen ΔG

des Gewinns G vernachlässigt. Bezieht man diese auch mit in die Betrachtungen ein, so erhält man für die Helligkeitstemperaturauflösung ([55])

$$\Delta T_b = (T_{atm} + T_{rec}) \sqrt{\frac{1}{B t_{int}} + \left(\frac{\Delta G}{G}\right)^2}.$$

4.3 Kalibrierung

Die radiometrisch gemessenen Spektren beinhalten neben dem eigentlich interessierenden Signal auch einen dominierenden Anteil systembedingter Effekte. Die Kalibrierung der Spektren dient neben der absoluten Zuordnung von detektierter Signalstärke und Helligkeitstemperatur der Elimination dieser Systemeffekte aus den Rohspektren.

4.3.1 Hot-Cold-Kalibrierung

Bei der Hot-Cold-Kalibrierung mißt man zu Beginn der Messung erst auf eine warme Eichlast der Temperatur T_h und der daraus folgenden Helligkeitstemperatur T_{b_h} (beim in dieser Arbeit verwendeten Radiometer liegt T_h bei Raumtemperatur) und auf eine kalte Eichlast der Temperatur T_c und der Helligkeitstemperatur T_{b_c} . Die kalte Eichlast wird entweder mit flüssigem Stickstoff gekühlt ($T_c \approx 77$ K) oder befindet sich im Kryostaten. Unter der Annahme linearer Komponenten und der Vernachlässigung von Verstärkungsschwankungen ergibt sich aus den Empfängerausgangsleistungen $P_h(\nu)$, $P_c(\nu)$ und $P_{obj}(\nu)$ für die Helligkeitstemperatur des unbekanntes Meßobjekts

$$T_{b_{obj}}(\nu) = \frac{P_{obj}(\nu) - P_c(\nu)}{P_h(\nu) - P_c(\nu)} \cdot (T_{b_h} - T_{b_c}) + T_{b_c}.$$

Die Hot-Cold-Kalibrierung eignet sich vor allem zur Messung sehr starker Signaturen wie die von Ozon.

4.3.2 Balancierte Kalibrierung

Bei den bisherigen Betrachtungen wurde von einem linearen Zusammenhang zwischen der Empfängerausgangsleistung und der Helligkeitstemperatur ausgegangen. Dies ist aber nicht exakt der Fall: Vor allem, wenn sich die Helligkeitstemperatur des zu messenden Objekts von der Helligkeitstemperatur der Referenzquellen stark unterscheidet, werden die Nichtlinearitäten im Spektrum als Störungen sichtbar. Es wäre daher wünschenswert, eine Referenzquelle zu haben, deren Helligkeitstemperatur immer an die des Meßobjekts angepaßt werden kann.

Eine Realisierung einer einstellbaren Referenzquelle liefert die sog. *externe Referenzstrahlmethode* (engl. External Beam Switching), die ausführlich in [36] beschrieben ist. Bei dieser Abgleichmethode dient als Referenz eine Messung, die unter steiler Elevation in die Atmosphäre erfolgt. Da bei dieser Messung der Weg der empfangenen Strahlung durch die Atmosphäre deutlich kürzer ist als bei der eigentlichen Signalmessung (vgl. Abschnitt 3.4.2), ist auch die empfangene Strahlungsintensität geringer. Dies wird durch Einschleiben eines geeigneten Graukörpers in Form eines verlustbehafteten dielektrischen Plättchens kompensiert, das die transmittierte Strahlung weiter schwächt und gleichzeitig durch seine thermische Emission einen eigenen Strahlungsbeitrag liefert. Um schnelle Fluktuationen des troposphärischen Kontinuums auszugleichen, werden dann für den feinen Abgleich zwischen Signal- und Referenzstrahl die jeweiligen Elevationswinkel aufeinander abgestimmt. Bei der Differenzbildung zwischen Signal- und Referenzmessung sollten dann kaum noch Nichtlinearitäten im Spektrum sichtbar sein, und auch andere gerätebedingte Störungen wie durch multiple Reflexionen verursachte Stehwellen (Abschnitt 4.4) sollten deutlich reduziert werden.

Ein Nachteil der externen Referenzstrahlmethode ist, daß im Spektrum des Referenzstrahls immer noch Reste der stratosphärischen Signaturen vorhanden sind, die bei der Differenzbildung die Stärke der Signaturen verringern und so zu einer Verschlechterung des Kontrastes führen.

Eine andere Möglichkeit, einen Abgleich zwischen Signal und Referenz herzustellen, ist die Verwendung einer einstellbaren internen Kalibrationslast, wie sie beim Radiometer des IMK eingesetzt wird und detailliert in [23], [24] und [25] beschrieben ist.

Das Funktionsprinzip basiert auf der Überlagerung der Strahlung einer warmen und einer kalten Referenzlast mittels eines drehbaren Gitters (Abbildung 4.3). Da der verwendete Empfänger nur für eine Polarisationsrichtung empfindlich ist, läßt sich durch Verstellen des Gitterwinkels praktisch jede beliebige Helligkeitstemperatur zwischen den Werten für die warme und die kalte Referenz einstellen.¹ Hot-Cold-Kalibrierungen sind jedoch zur absoluten Zuordnung von empfangener Strahlungsleistung und Helligkeitstemperatur nach wie vor in regelmäßigen Abständen erforderlich.

Der Hauptvorteil dieser Art der balancierten Kalibrierung besteht darin, daß im Referenzsignal keine Signaturen der zu messenden Spurengase enthalten sind und somit ein besserer Kontrast als mit der externen Referenzstrahlmethode erzielt wird ([25]). Weiterhin muß bei der internen Kalibrierung nicht sofort eine Korrektur um den troposphärischen Einfluß und eine Umrechnung des Elevationswinkels auf ande-

¹In der Praxis wird die Genauigkeit, mit der die Helligkeitstemperatur eingestellt werden kann, maßgeblich durch die Encoderauflösung begrenzt. Beim Radiometer des IMK wird theoretisch eine Genauigkeit von $\pm 0,23$ K erreicht, wenn die Helligkeitstemperaturen der Teilreferenzen bekannt sind.

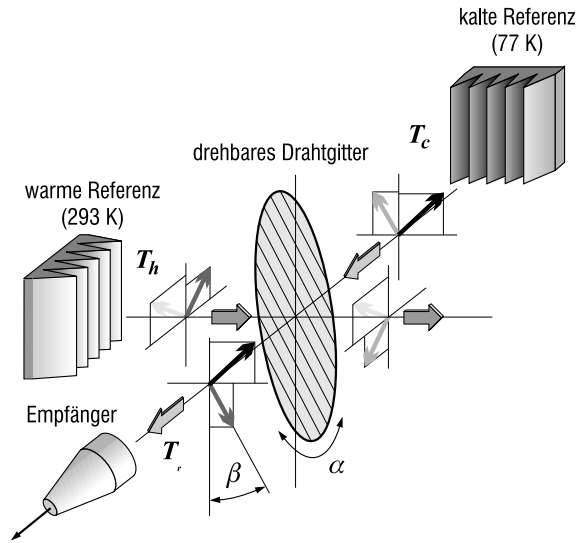


Abb. 4.3: Aufbau der einstellbaren Referenzlast

re Werte mit Hilfe des Airmass-Faktors (Abschnitt 3.4.2) erfolgen. Dadurch ergibt sich die Möglichkeit, zur Troposphärenkorrektur ein Mehrschichtenmodell einzusetzen (siehe Abschnitt 5.5.1) und es können durch unterschiedliche Airmass-Faktoren verursachte Fehler vermieden werden. Nur wenn Spektren, die unter unterschiedlicher Elevation gemessen wurden, integriert werden sollen, ist eine Umrechnung auf einen gemeinsamen mittleren Elevationswinkel nötig. Die hierbei gemachten Fehler sind allerdings deutlich kleiner als diejenigen, die z. B. bei der Umrechnung auf Zenitrichtung in Kauf genommen werden müssen (vgl. Abbildung 3.5 in Abschnitt 3.4.2).

4.4 Stehende Wellen

Ein weit verbreitetes Problem in der Millimeterwellenradiometrie stellen stehende Wellen dar, die durch multiple Reflexionen innerhalb des Radiometersystems oder auch zwischen dem Radiometer und seiner Umgebung verursacht werden können. Sie machen sich in den gemessenen Spektren als sinusförmige Störungen bemerkbar und erschweren oder verunmöglichen gar die Auswertung. Diese sowie andere Störungen in den Spektren, die einem sonst spektral glatten Signal eine Struktur aufprägen, werden *Baseline* genannt. Sei l die Resonatorlänge, d. h. der Abstand zwischen den reflektierenden Komponenten. Dann berechnet sich die Periode P der daraus resultierenden Stehwelle, also der von einer Schwingungsperiode überdeckte

Frequenzbereich, nach der Fabry-Pérot-Formel

$$P = \frac{c}{2l}. \quad (4.2)$$

Eine Möglichkeit, stehende Wellen zu unterdrücken, ist der Einsatz eines Weglängenmodulators oder Baselinewobblers. Dabei werden ständig die Resonatorlängen variiert und so bei der Integration der Spektren die Stehwellen zeitlich herausgemittelt. Beim vom IMK betriebenen Radiometer dient ein Dachkantspiegel, der sinusförmig auf und ab bewegt wird, als Weglängenmodulator (siehe Abbildung 4.4). Optimale Unterdrückung erreicht man jedoch nur für eine definierte Frequenz ([25]). Unter anderem deshalb finden sich in den gemessenen Spektren immer noch Reste der Stehwellen.

Die Vorgehensweise zur Berücksichtigung der noch verbleibenden Stehwellen in den gemessenen Spektren wird Thema von Abschnitt 5.3.6 sein.

4.5 Das 268–280 GHz Radiometer MIRA 2

In diesem Kapitel wird eine kurze Beschreibung des vom IMK entwickelten und betriebenen 268–280 GHz Radiometers *MIRA 2* gegeben, das optimiert ist für die Detektion der Chlormonoxid-Signatur bei 278,631 GHz. Aufgrund der bei den Meßkampagnen gesammelten Erfahrungen unterliegt das System einer kontinuierlichen Weiterentwicklung. Die Abbildung 4.4 bezieht sich auf den Stand der Entwicklung im Jahre 1999.

Sämtliche quasioptischen Komponenten sind für den gaußschen TEM₀₀-Grundmode ausgelegt. Das atmosphärische Signal gelangt zunächst in das Periskop, das den Strahl durch die Laborwand führt. Im Periskop fällt der Strahl dann auf einen Spiegel, mit dem der Elevationswinkel eingestellt werden kann. Zur Separation der Außenluft von der im Labor dient ein Folienfenster aus Mylar, das zur Minimierung von Reflexionsverlusten unter dem Brewsterwinkel angebracht ist. Seit Frühjahr 1999 hat das Radiometer ein neues Periskop, mit dem nun auch der Azimutwinkel eingestellt werden kann.

Nachdem der Strahl das Periskop passiert hat, fällt er auf einen ersten Drehspiegel, mit dem zur balancierten Kalibrierung auf die im Abschnitt 4.3.2 beschriebene einstellbare Referenz umgeschaltet werden kann. Mit dem folgenden Drehspiegel wird die Hot-Cold-Kalibrierung durchgeführt. Der Strahl gelangt dann ins Seitenbandfilter, mit dem das unerwünschte Seitenband unterdrückt wird. Es ist ein Martin-Puplett-Interferometer, das eine sinusförmige Filtercharakteristik aufweist. Durch diese unvollkommene Filterung können in den gemessenen Spektren noch Reste der Signaturen vom anderen Seitenband sichtbar sein, die bei der Auswertung berücksichtigt werden müssen (siehe dazu auch Abschnitt 5.5.2). Der Abschluß des

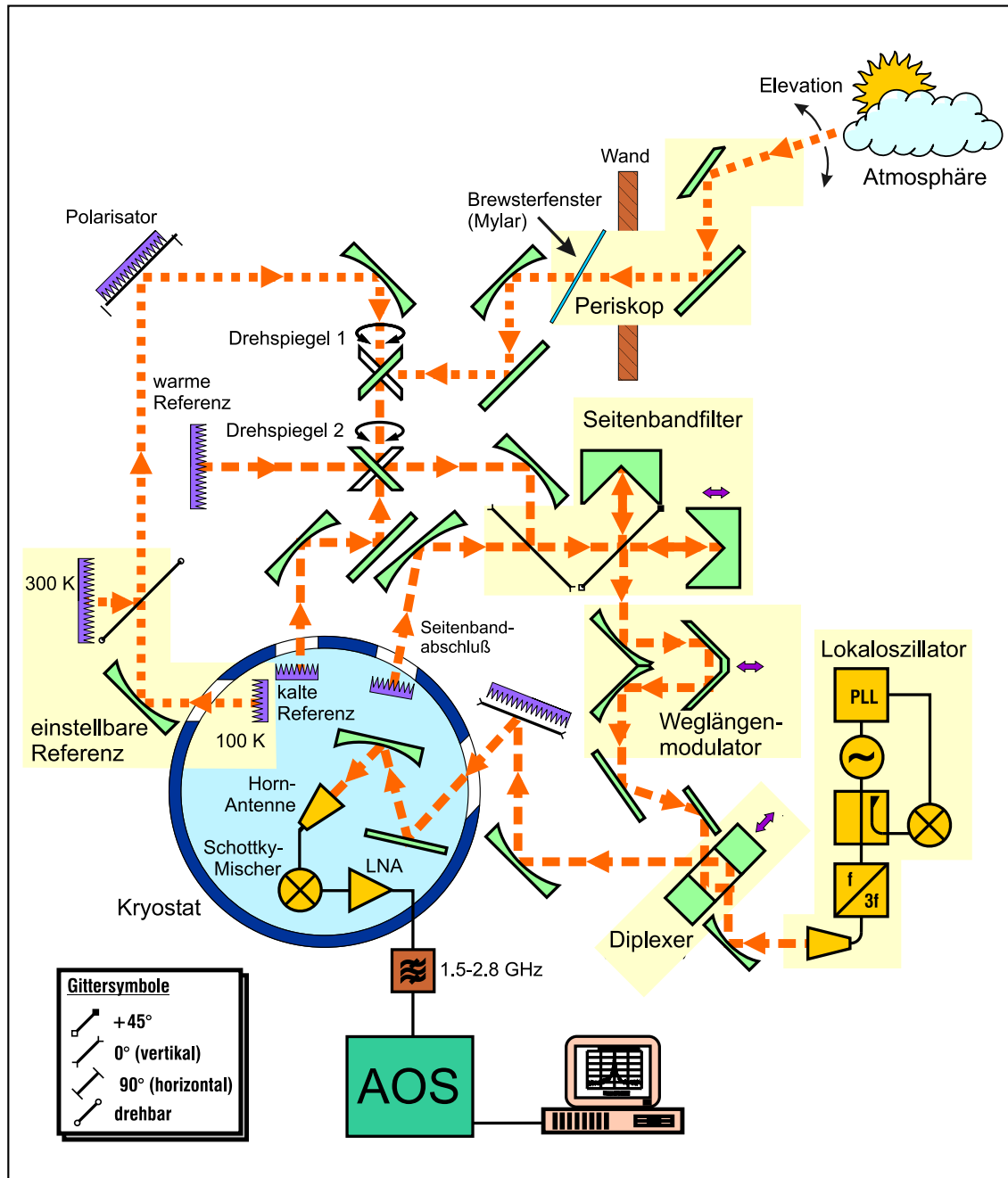


Abb. 4.4: Schematischer Aufbau des 268–280 GHz Radiometers MIRA 2 (Stand 1999)

Empfängerrauschtemperatur	Zwischenfrequenz	Anzahl der Kanäle	Kanalabstand	Frequenzauflösung
800–1200 K	1,5–2,8 GHz	2048	0,7 MHz	ca. 1,2 MHz

Tabelle 4.1: Daten des 268–280 GHz Radiometers MIRA 2

unerwünschten Seitenbandes erfolgt mit einem gekühlten Absorber. Nach der Vorselektion durch das Seitenbandfilter gelangt das Signal zum Weglängenmodulator (Abschnitt 4.4), der störende stehende Wellen in den Spektren auf $\sim 1\%$ reduziert.

Als Lokalszillator dient ein mittels PLL (Phase-Locked Loop) stabilisierter Gunn-Oszillator mit anschließendem Verdreifacher. Sein Signal wird vom Diplexer dem atmosphärischen Signal überlagert. Als Diplexer diente bei den Meßkampagnen 1996 und 1997 wie für das Seitenbandfilter ein Martin-Puplett-Interferometer. Seit der Meßkampagne 1998 wird ein Fabry-Pérot-Diplexer verwendet, der sich durch eine sehr scharfe Transmissionscharakteristik für das LO-Signal auszeichnet.

Beide Signale gelangen dann durch ein Folienfenster in den Kryostaten, der evakuiert und mittels eines Kühlsystems mit geschlossenem Heliumkreislauf auf etwa 30 K gekühlt ist. In ihm befinden sich der Schottky-Diodenmischer und der rauscharme Vorverstärker (Low Noise Amplifier, LNA). Nach weiterer Verstärkung in der ZF-Kette erfolgt die spektrale Analyse mit einem akusto-optischen Spektrometer (AOS). Es besitzt 2048 Kanäle mit einem Kanalabstand von 0,7 MHz und eine Frequenzauflösung von ca. 1,2 MHz. Die nutzbare Bandbreite beträgt etwa 1,2 GHz.

Die Empfängerrauschtemperatur des Radiometers wurde im Laufe der Jahre sukzessive von ca. 1200 K auf ca. 800 K gesenkt. Einige Daten des Radiometersystems sind noch einmal in Tabelle 4.1 zusammengefaßt.

4.6 Der Spektralbereich 268–280 GHz

Im Spektralbereich von 268–280 GHz finden sich Signaturen von Ozon (O_3), Distickstoffoxid (N_2O), Salpetersäure (HNO_3) und Chlormonoxid (ClO). Abbildung 4.5 zeigt ein für diesen Spektralbereich berechnetes Spektrum. Um den störenden Einfluß des troposphärischen Wasserdampfes zu reduzieren, wurde diese Rechnung für eine Beobachterhöhe von 10 km durchgeführt.

Der Spektralbereich wird dominiert von sehr starken Ozonlinien, welche die schwächeren Signaturen der anderen Konstituenten überlappen. Diese starken Linien können sich auch im Spiegelseitenband bei der Messung schwacher Spektrallinien bemerkbar machen, da das Seitenbandfilter den Spiegelfrequenzbereich nicht vollständig unterdrückt.

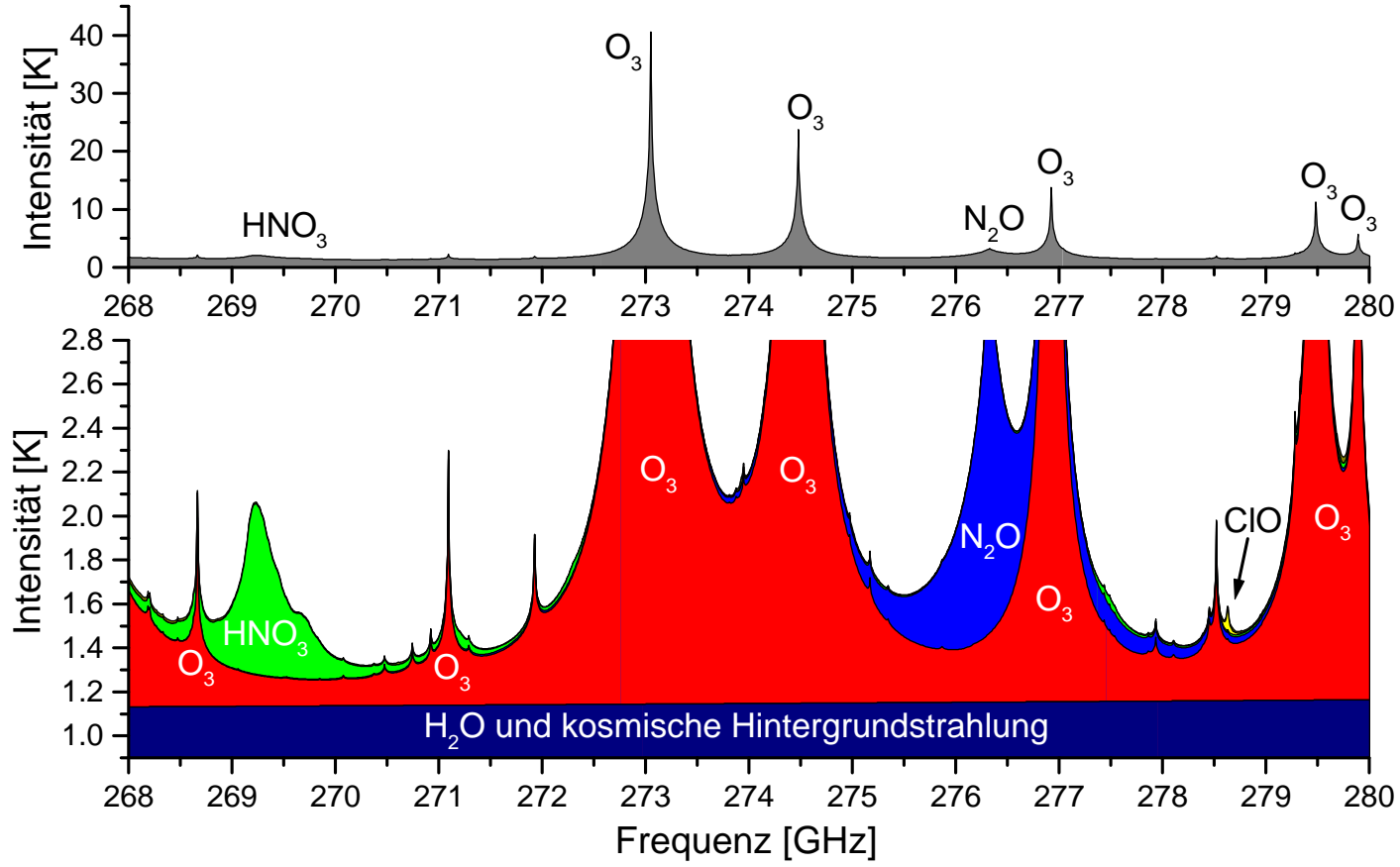


Abb. 4.5: Der Spektralbereich 268–280 GHz. Das Spektrum wurde für eine Beobachterhöhe von 10 km berechnet

Kapitel 5

Auswertung

Die Strahlungsübertragungsgleichung 3.8 liefert bei Kenntnis des Druck- und Temperaturverlaufs in der Atmosphäre den Zusammenhang zwischen der Höhenverteilung der Spurengase und dem am Boden gemessenen Spektrum. Man bezeichnet dieses Problem auch als das *direkte* oder das *Vorwärtsproblem*. Schwieriger ist das sog. *inverse Problem*, d. h. aus einem gemessenen Spektrum rückzuschließen auf die Höhenverteilung der interessierenden Spurengase. Die in dieser Arbeit verwendeten Auswerteverfahren sollen Thema dieses Kapitels sein. Weiterführende Informationen zur Inversion findet der Leser in [26, 27, 33].

5.1 Linearisierung der Strahlungsübertragungsgleichung

Die Lösung nichtlinearer Integralgleichungen ist im allgemeinen äußerst schwierig, weswegen die Strahlungsübertragungsgleichung zunächst in eine Form überführt werden soll, in die sowohl das Volumenmischungsverhältnis als auch die Temperatur linear eingehen. Zuerst unterteilt man die Atmosphäre in Schichten, die hinreichend dünn sind, damit die Absorptionskoeffizienten und die Temperatur als konstant angenommen werden dürfen. Sei $T_{bj}(h_0, T_j, c_{vj})$ der Beitrag der j -ten Höenschicht zu der am Boden (Höhe h_0) meßbaren Helligkeitstemperatur in Abhängigkeit von der Temperatur T_j und dem Volumenmischungsverhältnis c_{vj} des betreffenden Spurengases¹ in der j -ten Höenschicht. Dann läßt sich $T_{bj}(h_0, T_j, c_{vj})$ unter Vernachlässigung von Gliedern höherer als erster Ordnung um angenommene Startwerte T_j^0 und

¹Es wird der besseren Übersicht wegen bei den folgenden Überlegungen nur der Beitrag eines einzigen Spurengases zum gemessenen Spektrum berücksichtigt. Eine Erweiterung der Gleichungen auf mehrere Spurengase ist trivial. Weiterhin wird auch die Frequenzabhängigkeit zur besseren Übersichtlichkeit im folgenden nicht explizit mitgeführt.

c_{vj}^0 , die z. B. Standardprofilen oder früheren Messungen entnommen wurden, in eine Taylorreihe entwickeln:

$$T_{bj}(h_0, T_j, c_{vj}) \approx T_{bj}(h_0, T_j^0, c_{vj}^0) + \left. \frac{\partial T_{bj}(h_0, T_j, c_{vj}^0)}{\partial T_j} \right|_{T_j^0} (T_j - T_j^0) + \left. \frac{\partial T_{bj}(h_0, T_j^0, c_{vj})}{\partial c_{vj}} \right|_{c_{vj}^0} (c_{vj} - c_{vj}^0) \quad (5.1)$$

Die partiellen Ableitungen nach der Temperatur und dem Volumenmischungsverhältnis beschreiben die Änderung der am Boden meßbaren Helligkeitstemperatur bei Änderung der Temperatur bzw. des Volumenmischungsverhältnisses in der j -ten Höhengschicht. Sie berechnen sich nach [27] zu

$$\frac{\partial T_{bj}(h_0, T_j, c_{vj}^0)}{\partial T_j} = \underbrace{\Delta h_j e^{-\tau(h_0, h_j)} \left\{ \frac{\partial T_b(T_j)}{\partial T_j} \alpha_j + \frac{\partial \alpha_j}{\partial T_j} [T_b(T_j) - T_b(h_{j+1}, T_{j+1}^0, c_{vj+1}^0)] \right\}}_{(S_T)_j} \quad (5.2)$$

und

$$\frac{\partial T_{bj}(h_0, T_j^0, c_{vj})}{\partial c_{vj}} = \underbrace{\Delta h_j e^{-\tau(h_0, h_j)} \frac{\partial \alpha_j}{\partial c_{vj}} [T_b(T_j) - T_b(h_{j+1}, T_{j+1}^0, c_{vj+1}^0)]}_{(S_{c_v})_j} \quad (5.3)$$

Mit Δh_j ist hier die Dicke der j -ten Höhengschicht bezeichnet, $\tau(h_0, h_j)$ ist die Opazität der Atmosphäre vom Boden bis zur Höhe h_j , α_j der Absorptionskoeffizient der Höhengschicht j , $T_b(T_j)$ die Helligkeitstemperatur eines idealen Schwarzkörpers der Temperatur T_j und $T_b(h_{j+1}, T_{j+1}^0, c_{vj+1}^0)$ die Helligkeitstemperatur der Höhengschicht h_{j+1} . $(S_T)_j$ und $(S_{c_v})_j$ sind die sogenannten *Sensitivitätsfunktionen* für die Temperatur und das Volumenmischungsverhältnis der j -ten Höhengschicht.

Aufsummiert über alle Höhengschichten ergibt sich aus Gleichung 5.1 die *linearisierte Strahlungsübertragungsgleichung*

$$T_{bj}(h_0, T_j, c_{vj}) - T_{bj}(h_0, T_j^0, c_{vj}^0) = \sum_j \Delta h_j (S_T)_j |_{T_j^0} [T_j - T_j^0] + \sum_j \Delta h_j (S_{c_v})_j |_{c_{vj}^0} [c_{vj} - c_{vj}^0], \quad (5.4)$$

bzw. in integraler Form

$$\begin{aligned} T_b(h_0, T(h), c_v(h)) - T_b(h_0, T^0(h), c_v^0(h)) \\ = \int_{h_0}^{h_\infty} S_T(h')|_{T^0(h')} [T(h') - T^0(h')] dh' + \int_{h_0}^{h_\infty} S_{c_v}(h')|_{c_v^0(h')} [c_v(h') - c_v^0(h')] dh' . \end{aligned}$$

Dies ist eine sogenannte *Fredholmsche Integralgleichung erster Art*. Berücksichtigt man, daß die gemessenen Spektren an endlich vielen Stützstellen gegeben sind, läßt sich Gleichung 5.4 in Matrixschreibweise darstellen als²

$$\mathbf{b} - \mathbf{b}_0 = \mathbf{A}_T^0 \cdot (\mathbf{f}_T - \mathbf{f}_T^0) + \mathbf{A}_{c_v}^0 \cdot (\mathbf{f}_{c_v} - \mathbf{f}_{c_v}^0) + \dots \quad (5.5)$$

Die Komponenten des Vektors \mathbf{b} sind die gemessenen spektralen Intensitäten, \mathbf{b}_0 ist ein Vektor, der ein mit den Startprofilen $\mathbf{f}_T^0, \mathbf{f}_{c_v}^0, \dots$ vorwärts gerechnetes Spektrum enthält, \mathbf{f}_T und \mathbf{f}_{c_v} sind die Vektoren mit den Höhenprofilen von Temperatur und den Volumenmischungsverhältnissen in der Atmosphäre, und in den sogenannten *Jakobimatrizen* \mathbf{A}_T^0 und $\mathbf{A}_{c_v}^0$ stehen die partiellen Ableitungen aus den Gleichungen 5.2 und 5.3 für jede spektrale Stützstelle i und jede Höhengschicht j . Die Ellipsen deuten an, daß in der Gleichung weitere Terme vom Typ $\mathbf{A}_x^0 \cdot (\mathbf{f}_x - \mathbf{f}_x^0)$ folgen können, die eine mögliche Erweiterung der Strahlungsübertragungsgleichung auf mehrere Spurengase repräsentieren (vgl. hierzu Abschnitt 5.3.5).

Schreibt man die Höhenprofile $\mathbf{f}_T, \mathbf{f}_{c_v}, \dots$ sowie $\mathbf{f}_T^0, \mathbf{f}_{c_v}^0, \dots$ untereinander und faßt die Jakobimatrizen zu einer einzigen großen Matrix \mathbf{A}_0 zusammen, vereinfacht sich Gleichung 5.5 zu

$$\mathbf{b} - \mathbf{b}_0 = (\mathbf{A}_T^0, \mathbf{A}_{c_v}^0, \dots) \left[\begin{pmatrix} \mathbf{f}_T \\ \mathbf{f}_{c_v} \\ \vdots \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mathbf{f}_T^0 \\ \mathbf{f}_{c_v}^0 \\ \vdots \end{pmatrix} \right], \quad (5.6)$$

so daß man das lineare Gleichungssystem

$$\mathbf{A}^0 \mathbf{f} = \mathbf{b} - \mathbf{b}^0 + \mathbf{A}^0 \mathbf{f}^0 \quad (5.7)$$

erhält. Ist die Lösung dieses Gleichungssystems erst einmal gefunden, können mit den neuen Höhenprofilen verbesserte Jakobimatrizen $\mathbf{A}_T^0, \mathbf{A}_{c_v}^0, \dots$ und ein neues, verbessertes synthetisches Strahldichtespektrum \mathbf{b}^0 berechnet werden. Dies führt auf ein neues Gleichungssystem, welches wiederum zu lösen ist, und die Iteration kann solange fortgesetzt werden, bis ein bestimmtes Abbruchkriterium erfüllt ist. Dies kann zum Beispiel die Bedingung sein, daß bei zwei aufeinanderfolgenden Iterationsschritten keine signifikanten Änderungen mehr in der Lösung \mathbf{f} und dem daraus

²Fette Großbuchstaben kennzeichnen im folgenden Matrizen, fette Kleinbuchstaben Vektoren.

berechneten synthetischen Spektrum \mathbf{b}^0 festzustellen sind. Bei den in dieser Arbeit ausgewerteten Spektren war dies nach ein bis zwei Iterationsschritten erreicht.

Leider erweist sich die Gleichung 5.7 als schlecht gestellt im Sinne von Hadamard [10]: Zum einen ist die Anzahl der spektralen Stützstellen deutlich größer als die der Höhenschichten, wodurch das Gleichungssystem überbestimmt ist. Zum anderen sind aber viele dieser Gleichungen nahezu linear abhängig, d. h. der Informationsgehalt ist relativ gering. Dadurch wird die Lösung instabil, was sich in starken Oszillationen der invertierten Höhenprofile bemerkbar macht. Die folgenden Abschnitte widmen sich deshalb Methoden zur Lösung dieser Probleme, wobei die einzelnen Schritte nur grob skizziert werden. Für eine weitergehende Lektüre seien dem geneigten Leser [33], [34], [27] sowie [38] anempfohlen.

5.2 Methode der kleinsten Quadrate

Gleichung 5.7 ist von der Form

$$\mathbf{A}\mathbf{f} = \mathbf{g} . \quad (5.8)$$

Ist \mathbf{A} eine quadratische Matrix, läßt sich mittels der inversen Matrix \mathbf{A}^{-1} die Lösung leicht gemäß

$$\mathbf{f} = \mathbf{A}^{-1}\mathbf{g}$$

berechnen. Gleichung 5.7 ist jedoch wie schon erwähnt überbestimmt, d. h. \mathbf{A}^0 ist eine $m \times n$ -Matrix mit $m > n$. In diesem Falle ist eine Lösung gesucht, die alle Gleichungen des Gleichungssystems möglichst gut erfüllt. Hierzu verwendet man die *Methode der kleinsten Quadrate*, d. h. man minimiert das Betragsquadrat der Abweichung

$$|\mathbf{A}\mathbf{f} - \mathbf{g}|^2 = [\mathbf{A}\mathbf{f} - \mathbf{g}]^T [\mathbf{A}\mathbf{f} - \mathbf{g}] .$$

Dies führt nach einigen Zwischenschritten auf die *bestapproximierte* oder *verallgemeinerte* Lösung

$$\mathbf{f} = \underbrace{[\mathbf{A}^T \mathbf{A}]^{-1} \mathbf{A}^T}_{\mathcal{A}^{-1}} \mathbf{g} . \quad (5.9)$$

Die Matrix \mathcal{A}^{-1} wird *verallgemeinerte Inverse* oder *Pseudoinverse* genannt. Für inverse Probleme typisch ist nun, daß die Matrix $\mathbf{A}^T \mathbf{A}$ aufgrund des relativ geringen Informationsgehaltes in den Spektren nahezu singular ist und anhand der Gleichung 5.9 keine physikalisch sinnvolle Lösung gefunden werden kann.

5.3 Regularisierung

Zur Stabilisierung der Lösung des Gleichungssystems 5.9 können zusätzliche *a priori*-Informationen über das physikalische Verhalten eingebracht werden, zum Beispiel,

daß die Lösung nicht beliebig stark oszillieren darf. Man gelangt so zum Begriff der *Regularisierung*, d. h. ein kontrolliertes Herausfiltern der störenden Oszillationen. Hier sollen exemplarisch die zwei Verfahren besprochen werden, die in dieser Arbeit Verwendung finden. Einen ausführlichen Überblick über verschiedene Regularisierungsverfahren und ihre Anwendbarkeit in der Millimeterwellenradiometrie bietet z. B. [26].

5.3.1 Tikhonov-Phillips-Regularisierung

Bei der *Tikhonov-Phillips-Regularisierung* [1], auch bekannt als *Constrained Linear Inversion* (CLI), werden an Gleichung 5.8 Zusatzbedingungen in Form eines weiteren Gleichungssystems

$$\mathbf{B}\mathbf{f} = \mathbf{r} . \quad (5.10)$$

gestellt. Mit \mathbf{f} ist hier wieder der gesuchte Lösungsvektor gemeint, über \mathbf{B} und \mathbf{r} geht die Nebenbedingung ein. Dies kann zum Beispiel die Forderung sein, daß die Elemente von \mathbf{f} betragsmäßig möglichst klein sein sollen. Dies erreicht man durch setzen von $\mathbf{B} = \mathbf{I}$ und $\mathbf{r} = \mathbf{o}$, mit \mathbf{I} der Einheitsmatrix und \mathbf{o} dem Nullvektor. Man kann aber auch eine Glattheitsbedingung an den Lösungsvektor stellen, indem man das Verschwinden der ersten oder zweiten Ableitung fordert, d. h.

$$\mathbf{B}\mathbf{f} = \begin{pmatrix} 1 & -1 & 0 & \cdots & 0 & 0 \\ 0 & 1 & -1 & \cdots & 0 & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} f_1 \\ f_2 \\ \vdots \\ f_{n-1} \\ f_n \end{pmatrix} = 0 , \quad (5.11)$$

bzw.

$$\mathbf{B}\mathbf{f} = \begin{pmatrix} 1 & -2 & 1 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & -2 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 1 & -2 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} f_1 \\ f_2 \\ \vdots \\ f_{n-1} \\ f_n \end{pmatrix} = 0 .$$

In dieser Arbeit wurde ausschließlich die Glattheitsbedingung 5.11 verwendet.

Die Nebenbedingung wird nun mit einem *Lagrangeschen Multiplikator* γ^2 gewichtet und man muß das folgende sog. *Tikhonov-Phillips-Funktional* minimieren:

$$J_\gamma(\mathbf{f}_\gamma) := |\mathbf{A}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{g}|^2 + \gamma^2 |\mathbf{B}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{r}|^2 . \quad (5.12)$$

Der Term $\gamma^2 |\mathbf{B}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{r}|^2$ ist der sog. *Strafterm*, der angibt, wie weit sich die Lösung von der Nebenbedingung entfernt hat. Es besteht auch die Möglichkeit, unterschiedliche

Meßgenauigkeiten des Datenvektors \mathbf{g} mittels einer positiv definiten Diagonalmatrix \mathbf{C} zu berücksichtigen. Statt 5.12 ist dann der Ausdruck

$$[\mathbf{A}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{g}]^T \mathbf{C} [\mathbf{A}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{g}] + \gamma^2 [\mathbf{B}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{r}]^T [\mathbf{B}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{r}] \quad (5.13)$$

zu minimieren. Dieses Minimierungsproblem führt schließlich auf die regularisierte Lösung

$$\mathbf{f}_\gamma = \underbrace{[\mathbf{A}^T \mathbf{C} \mathbf{A} + \gamma^2 \mathbf{B}^T \mathbf{B}]^{-1}}_{\mathbf{A}_\gamma^{-1}} [\mathbf{A}^T \mathbf{C} \mathbf{g} + \gamma^2 \mathbf{B}^T \mathbf{r}] . \quad (5.14)$$

Die Matrix \mathbf{A}_γ^{-1} ist die regularisierte verallgemeinerte Inverse der Tikhonov-Phillips-Regularisierung.

Der Regularisierungsparameter γ wird entweder a priori aufgrund irgendwelcher Erfahrungswerte festgelegt, oder a posteriori, wobei ausgehend von starker Regularisierung der Regularisierungsparameter immer kleiner gewählt wird, bis der Fehler in den Daten eine vorgegebene Schranke unterschreitet bzw. bis in den invertierten Profilen erste Oszillationen sichtbar werden.³ In dieser Arbeit wurde der Regularisierungsparameter ausschließlich a posteriori bestimmt.

5.3.2 Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit

Bei dem auf Rodgers [43], [44], [45] zurückgehenden Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit, auch weithin bekannt als *Optimal Estimation Method* (OEM), wird versucht, den richtigen Regularisierungsparameter a priori anhand wahrscheinlichkeitstheoretischer Überlegungen zu finden. Als Basis dieser Überlegungen können frühere Inversionsrechnungen oder Ergebnisse anderer Messungen dienen.

Unter der Annahme, daß die a priori bekannten Lösungen \mathbf{f} gaußverteilt seien, berechnet sich der Mittel- oder Erwartungswert $\bar{\mathbf{f}}$ eines Ensembles dieser Lösungen $\mathbf{f}^i, i = 1, \dots, N$, nach

$$\bar{\mathbf{f}} = E(\mathbf{f}) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{f}^i , \quad (5.15)$$

und die a priori-Kovarianzmatrix \mathbf{S}_f dieser Verteilung von Zufallsvektoren gemäß

$$\mathbf{S}_f = E([\mathbf{f} - \bar{\mathbf{f}}][\mathbf{f} - \bar{\mathbf{f}}]^T) \approx \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N [\mathbf{f}^i - \bar{\mathbf{f}}][\mathbf{f}^i - \bar{\mathbf{f}}]^T . \quad (5.16)$$

³Dies läßt sich auch anhand analytischer Kriterien wie z. B. dem L-Kurven-Verfahren durchführen, siehe dazu auch [52] und [53].

Weiterhin genüge auch der Meßfehler $\boldsymbol{\varepsilon}$ Gaußscher Statistik. Der Erwartungswert des Meßfehlers sei $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}} = \mathbf{o}^4$ und seine Fehlerkovarianzmatrix, gegeben durch $\mathcal{S}_\varepsilon = E(\boldsymbol{\varepsilon}\boldsymbol{\varepsilon}^T)$, bekannt.

Unter der Annahme, daß die Lösungen \mathbf{f} und der Meßfehler $\boldsymbol{\varepsilon}$ miteinander nicht korreliert sind, gelangt man nach einigen Zwischenschritten zur Minimierung des folgenden Ausdrucks:

$$[\mathbf{g} - \mathbf{A}\mathbf{f}]^T \mathcal{S}_\varepsilon^{-1} [\mathbf{g} - \mathbf{A}\mathbf{f}] + [\mathbf{f} - \bar{\mathbf{f}}]^T \mathcal{S}_f^{-1} [\mathbf{f} - \bar{\mathbf{f}}] \quad (5.17)$$

Die Ähnlichkeit zum entsprechenden Ausdruck 5.13 der Tikhonov-Phillips-Regularisierung ist evident: Die inverse Kovarianzmatrix $\mathcal{S}_\varepsilon^{-1}$ des Meßfehlervektors übernimmt die Rolle von \mathbf{C} und die inverse a priori-Kovarianzmatrix \mathcal{S}_f^{-1} die des Regularisierungsparameters γ . Die Terme $[\mathbf{f} - \bar{\mathbf{f}}]$ können als Nebenbedingung aufgefaßt werden, daß das regularisierte Profil \mathbf{f} dem gegebenen a priori-Profil $\bar{\mathbf{f}}$ möglichst ähnlich sein soll. Es ergibt sich schließlich als Lösung

$$\mathbf{f}_{opt} = \underbrace{[\mathbf{A}^T \mathcal{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{A} + \mathcal{S}_f^{-1}]^{-1}}_{\mathcal{A}_\gamma^{-1}} [\mathbf{A}^T \mathcal{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{g} + \mathcal{S}_f^{-1} \bar{\mathbf{f}}] . \quad (5.18)$$

Auch hier ist die Ähnlichkeit zu dem entsprechenden Ausdruck 5.14 der Tikhonov-Phillips-Regularisierung unübersehbar.

Das in dieser Arbeit verwendete, auf Kuntz [27] zurückgehende Auswerteprogramm nutzt die enge Verwandtschaft dieser beiden Regularisierungsverfahren und bietet die Möglichkeit, per Tastendruck zwischen den beiden Verfahren umzuschalten. Die Kovarianzmatrix \mathcal{S}_ε des Meßfehlers wird als Diagonalmatrix angenommen, d. h. es wird davon ausgegangen, daß die Meßfehler der einzelnen Kanäle nicht miteinander korreliert sind, eine Annahme, die für rein gaußsches Rauschen gerechtfertigt ist. Die Diagonalelemente der Kovarianzmatrix werden mit Hilfe der Radiometerformel 4.1 bestimmt, wobei das stärkere Rauschen der Kanäle am Rand des gemessenen Spektrums durch einen parabelförmigen Verlauf modelliert wird.

5.3.3 Vertikale Auflösung der invertierten Profile

Durch die Regularisierung werden die invertierten Höhenprofile geglättet und damit über einen gewissen Höhenbereich „verschmiert“. Deshalb ist die vertikale Auflösung i. Allg. auch geringer als die durch die Diskretisierung festgelegte Auflösung.⁵ Eine

⁴Da es sich bei den Meßfehlern i. Allg. um Gaußsches Rauschen handelt, ist diese Annahme gerechtfertigt

⁵Man könnte unter Umständen auch ganz auf die Regularisierung verzichten, wenn man von vorneherein eine gröbere Diskretisierung verwendet. Dann ist jedoch auch die erreichbare Auflösung von Beginn an fest vorgegeben und man läßt in den Spektren eventuell noch vorhandene Information ungenutzt.

Aussage darüber, inwieweit Strukturen im „wahren“ Höhenprofil nach der Inversion noch aufgelöst werden können, liefert die *Auflösungsmatrix* [27] oder *Averaging Kernel Matrix* \mathbf{R} [34], [45]: Sei \mathbf{f} ein gegebenes Profil in der Atmosphäre. Dann berechnet sich unter der Annahme einer optisch dünnen Atmosphäre das am Boden gemessene Spektrum \mathbf{g} nach

$$\mathbf{g} = \mathbf{A}\mathbf{f} . \quad (5.19)$$

Bei einer Inversion dieses Spektrums würde man ein regularisiertes Höhenprofil \mathbf{f}_γ bzw. ein \mathbf{f}_{opt} nach den Gleichungen 5.14 bzw. 5.18 erhalten.

Das Höhenprofil \mathbf{f} werde nun in der Höschicht h_i gestört:

$$\mathbf{f}' = \mathbf{f} + \boldsymbol{\delta}(h_i) \quad (5.20)$$

Für das am Boden gemessene Spektrum ergibt sich dann mit 5.19

$$\mathbf{g}' = \mathbf{A}\mathbf{f}' = \mathbf{A}[\mathbf{f} + \boldsymbol{\delta}(h_i)] = \mathbf{A}\mathbf{f} + \mathbf{A}\boldsymbol{\delta}(h_i) . \quad (5.21)$$

Bei der Auswertung dieses Spektrums erhält man durch Einsetzen von 5.21 in die Gleichungen 5.14 bzw. 5.18 die regularisierte Lösung \mathbf{f}'_γ . Interessant ist nun, wie sich die Störung $\boldsymbol{\delta}(h_i)$ in dem regularisierte Höhenprofil \mathbf{f}'_γ bemerkbar macht. Dazu berechnet man die Differenz aus der gestörten und der ungestörten regularisierten Lösung und erhält

$$\mathbf{f}'_\gamma - \mathbf{f}_\gamma = \mathcal{A}_\gamma^{-1} \mathbf{A} \boldsymbol{\delta}(h_i) = \mathbf{R} \boldsymbol{\delta}(h_i) . \quad (5.22)$$

Die Matrix \mathbf{R} ist die gesuchte Auflösungsmatrix. Deren Spalten, die *Averaging Kernels*, beschreiben, wie sich eine Störung in den einzelnen Höschichten im invertierten Profil abbildet. Müßte nicht regularisiert werden, wäre das invertierte Höhenprofil nicht geglättet und die Auflösungsmatrix wäre eine Einheitsmatrix, $\mathbf{R} = \mathbf{I}$.

5.3.4 Abschätzung des Fehlers

Sei das statistische Verhalten des Meßfehlers in Form seiner Fehlerkovarianzmatrix \mathcal{S}_ε bekannt. Dann kann die daraus resultierende Fehlerkovarianzmatrix des regularisierten Profils aufgrund der Rechenregeln für Kovarianzmatrizen (siehe z. B. [34]) berechnet werden zu

$$\mathcal{S}_\gamma = \mathcal{A}_\gamma^{-1} \mathcal{S}_\varepsilon [\mathcal{A}_\gamma^{-1}]^T . \quad (5.23)$$

Auf der Diagonalen dieser Matrix stehen die Varianzen der Elemente der regularisierten Lösung f_γ . Der statistische Fehler oder *Datenfehler* des Höhenprofils errechnet sich gerade aus der Wurzel der Varianzen.

Beim Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit tritt zusätzlich noch die a priori-Kovarianzmatrix \mathcal{S}_f auf. Statt Gleichung 5.23 ergibt sich dann

$$\mathcal{S}_\gamma = \mathcal{A}_\gamma^{-1} \mathcal{S}_\varepsilon [\mathcal{A}_\gamma^{-1}]^T + [\mathbf{I} - \mathbf{R}] \mathcal{S}_f [\mathbf{I} - \mathbf{R}]^T , \quad (5.24)$$

mit \mathbf{I} der Einheitsmatrix und \mathbf{R} der Auflösungsmatrix aus Gleichung 5.22. Der zweite Term charakterisiert hier den durch die Regularisierung verursachten Fehler, d.h. er gibt an, inwieweit durch die Messung neue Informationen gegenüber der a priori-Information über das Höhenprofil gewonnen wurden. Wäre der Informationsgehalt der Spektren so hoch, daß überhaupt nicht regularisiert werden müßte, würde dieser Term verschwinden ($\mathbf{R} \rightarrow \mathbf{I}$), bei niedrigem Informationsgehalt bekommt man gerade wieder die a priori-Information \mathbf{S}_f über das Fehlerverhalten zurück. Unberücksichtigt bleiben hier systematische Fehler, die in Abschnitt 6.1.1 genauer untersucht werden. Eine Abschätzung der Fehler, die durch die Gerätebaseline verursacht werden, erfolgt in Abschnitt 6.1.3.

5.3.5 Simultane Inversion von Höhenprofilen

Wie Abbildung 4.5 zeigt, finden sich im Spektralbereich von 268 bis 280 GHz zahlreiche sich überlappende Spektrallinien verschiedener Spurengase. Will man nun z. B. ClO messen, stellt man fest, daß sich in direkter Nachbarschaft der ClO-Signatur eine viel stärkere Linie von Ozon befindet, die eine alleinige Auswertung von ClO erschwert oder gar unmöglich macht. Es wäre daher wünschenswert, wenn man gleichzeitig mit ClO in der Inversionsrechnung die Ozonsignatur mitinvertieren könnte, was den erfreulichen Nebeneffekt hätte, daß man die Informationen über Ozon in den Spektren nicht ungenutzt läßt, sondern ebenfalls zur Gewinnung von Höhenprofilen nutzt.

Kuntz ([27], [29], [32]) schlug zur Lösung des Problems folgenden Ansatz vor: Wie bereits bei Gleichung 5.5 erwähnt wurde, lassen sich bei der Linearisierung der Strahlungsübertragungsgleichung auch mehrere Spurengase gleichzeitig berücksichtigen. In der Schreibweise 5.6 setzt sich der Lösungsvektor \mathbf{f} gleich aus mehreren Höhenprofilen zusammen und die Matrix \mathbf{A} ist eine Hintereinanderreihung mehrerer Teilmatrizen,

$$\mathbf{f} = \begin{pmatrix} \mathbf{f}_{c_{v_1}} \\ \mathbf{f}_{c_{v_2}} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad \text{bzw.} \quad \mathbf{A} = (\mathbf{A}_{c_{v_1}}, \mathbf{A}_{c_{v_2}}, \dots).$$

Für die Tikhonov-Phillips-Regularisierung muß die Nebenbedingung 5.10 nun an jeden einzelnen Lösungsvektor $\mathbf{f}_{c_{v_1}}, \mathbf{f}_{c_{v_2}}, \dots$ gestellt werden und jedes einzelne Höhenprofil muß mit einem eigenen Regularisierungsparameter $\gamma_{c_{v_1}}, \gamma_{c_{v_2}}, \dots$ regularisiert werden, da die Signaturen der verschiedenen Spurengase unterschiedliche Stärke besitzen. Man erhält so statt 5.13 das modifizierte Tikhonov-Phillips-Funktional

$$[\mathbf{A}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{g}]^T \mathbf{C} [\mathbf{A}\mathbf{f}_\gamma - \mathbf{g}] + \gamma_{c_{v_1}}^2 |\widetilde{\mathbf{B}}_{c_{v_1}} \mathbf{f}_\gamma - \widetilde{\mathbf{r}}_{c_{v_1}}|^2 + \gamma_{c_{v_2}}^2 |\widetilde{\mathbf{B}}_{c_{v_2}} \mathbf{f}_\gamma - \widetilde{\mathbf{r}}_{c_{v_2}}|^2 + \dots, \quad (5.25)$$

mit

$$\widetilde{\mathbf{B}}_{c_{v_1}} = \begin{pmatrix} \mathbf{B}_{c_{v_1}} & \mathbf{O} & \cdots \\ \mathbf{O} & \mathbf{O} & \\ \vdots & & \ddots \end{pmatrix}, \quad \widetilde{\mathbf{B}}_{c_{v_2}} = \begin{pmatrix} \mathbf{O} & \mathbf{O} & \cdots \\ \mathbf{O} & \mathbf{B}_{c_{v_2}} & \\ \vdots & & \ddots \end{pmatrix} \quad \text{usw. ,}$$

und

$$\widetilde{\mathbf{r}}_{c_{v_1}} = \begin{pmatrix} \mathbf{r}_{c_{v_1}} \\ \mathbf{o} \\ \vdots \end{pmatrix}, \quad \widetilde{\mathbf{r}}_{c_{v_2}} = \begin{pmatrix} \mathbf{o} \\ \mathbf{r}_{c_{v_2}} \\ \vdots \end{pmatrix} \quad \text{etc. .}$$

Die Teilmatrizen $\mathbf{B}_{c_{v_1}}, \mathbf{B}_{c_{v_2}}, \dots$ entsprechen der Matrix \mathbf{B} aus Abschnitt 5.3.1 und \mathbf{O} sind Nullmatrizen. Die Teilvektoren $\mathbf{r}_{c_{v_1}}, \mathbf{r}_{c_{v_2}}, \dots$ stehen für die einer jeden Nebenbedingung zugeordneten rechten Seite, entsprechend Gleichung 5.10, und \mathbf{o} ist der Nullvektor.

Die Minimierung des modifizierten Tikhonov-Phillips-Funktional 5.25 führt schließlich auf die regularisierte Lösung

$$\mathbf{f}_\gamma = \left[\mathbf{A}^T \mathbf{C} \mathbf{A} + \begin{pmatrix} \gamma_{c_{v_1}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_1}}^T \mathbf{B}_{c_{v_1}} & \mathbf{O} & \cdots \\ \mathbf{O} & \gamma_{c_{v_2}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_2}}^T \mathbf{B}_{c_{v_2}} & \\ \vdots & & \ddots \end{pmatrix} \right]^{-1} \times \left[\mathbf{A}^T \mathbf{C} \mathbf{g} + \begin{pmatrix} \gamma_{c_{v_1}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_1}}^T \mathbf{r}_{c_{v_1}} \\ \gamma_{c_{v_2}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_2}}^T \mathbf{r}_{c_{v_2}} \\ \vdots \end{pmatrix} \right].$$

Die entsprechende Lösung für das Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit ergibt sich, wenn man die Ausdrücke $\gamma^2 \mathbf{B}^T \mathbf{B}$ ersetzt durch die Inversen der a priori-Kovarianzmatrizen \mathbf{S}_f^{-1} , die Vektoren \mathbf{r} durch die a priori-Profile $\overline{\mathbf{f}}$ und die Matrix \mathbf{C} durch die inversen Fehlerkovarianzmatrizen $\mathbf{S}_\varepsilon^{-1}$:

$$\mathbf{f}_\gamma = \left[\mathbf{A}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{A} + \begin{pmatrix} \mathbf{S}_{f_{c_{v_1}}}^{-1} & \mathbf{O} & \cdots \\ \mathbf{O} & \mathbf{S}_{f_{c_{v_2}}}^{-1} & \\ \vdots & & \ddots \end{pmatrix} \right]^{-1} \left[\mathbf{A}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{g} + \begin{pmatrix} \mathbf{S}_{f_{c_{v_1}}}^{-1} \overline{\mathbf{f}}_{c_{v_1}} \\ \mathbf{S}_{f_{c_{v_2}}}^{-1} \overline{\mathbf{f}}_{c_{v_2}} \\ \vdots \end{pmatrix} \right] \quad (5.26)$$

5.3.6 Berücksichtigung von stehenden Wellen

Wie schon in Abschnitt 4.4 beschrieben stellen stehende Wellen in der Millimeterwellenradiometrie ein häufig auftretendes Problem dar. Eine Methode, die in den

Spektren vorhandenen Stehwellen zu berücksichtigen, besteht darin, vor der Inversion an ein Differenzspektrum aus einer Vorwärtsrechnung und dem gemessenen Spektrum Sinusfunktionen anzufitten und diese dann vom gemessenen Spektrum abzuziehen (siehe z. B. [16]). Das Problem dieser Vorgehensweise liegt abgesehen vom erheblichen numerischen Aufwand darin, daß die für die Vorwärtsrechnung benötigten Höhenprofile in der Regel nicht bekannt sind (ebendiese sollen ja durch die Messung erst gewonnen werden) und so zwangsläufig Diskrepanzen zwischen Vorwärtsrechnung und Messung auftreten, die zu einer fehlerhaften Anpassung der Stehwellen führen können. Kuntz ([27], [28], [30]) schlägt deshalb vor, stehende Wellen direkt bei der Inversion zu berücksichtigen. Dazu wird das Problem der Anpassung von Amplitude A und Phase ϕ der stehenden Wellen erst in eine lineare Form überführt

$$A \sin(k\nu + \phi) = a \sin(k\nu) + b \cos(k\nu) ,$$

mit k der Wellenzahl der stehenden Wellen, $A = \sqrt{a^2 + b^2}$ und $\tan \phi = b/a$. Die Perioden $P = 2\pi/k$ der stehenden Wellen werden dabei als bekannt vorausgesetzt. Dann läßt sich die Überlagerung des gemessenen Spektrums mit einer stehenden Welle darstellen als⁶

$$\begin{pmatrix} a_{11} & \cdots & a_{1m} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{n1} & \cdots & a_{nm} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} f_1 \\ \vdots \\ f_m \end{pmatrix} + a \begin{pmatrix} \sin(k\nu_1) \\ \vdots \\ \sin(k\nu_n) \end{pmatrix} + b \begin{pmatrix} \cos(k\nu_1) \\ \vdots \\ \cos(k\nu_n) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} g \\ \vdots \\ g_n \end{pmatrix} .$$

Es ist jedoch vorteilhaft, den Lösungsvektor \mathbf{f} und die beiden Parameter a und b zu einem neuen Vektor \mathbf{f}' zusammenzufassen, wodurch das gestrichene Gleichungssystem

$$\underbrace{\begin{pmatrix} a_{11} & \cdots & a_{1m} & \sin(k\nu_1) & \cos(k\nu_1) \\ \vdots & \ddots & \vdots & \vdots & \vdots \\ a_{n1} & \cdots & a_{nm} & \sin(k\nu_n) & \cos(k\nu_n) \end{pmatrix}}_{\mathbf{A}'} \underbrace{\begin{pmatrix} f_1 \\ \vdots \\ f_m \\ a \\ b \end{pmatrix}}_{\mathbf{f}'} = \underbrace{\begin{pmatrix} g_1 \\ \vdots \\ g_n \end{pmatrix}}_{\mathbf{g}} \quad (5.27)$$

entsteht. Zur Berechnung der Höhenprofile muß natürlich auch bei diesem Gleichungssystem regularisiert werden, wobei beachtet werden muß, daß sich die Regularisierung des Lösungsvektors \mathbf{f}' nur auf die Elemente $f_1 \dots f_m$ der Höhenprofile und *nicht* auf die beiden Parameter a und b erstreckt. Diese nur teilweise Regularisierung des Lösungsvektors wird für die Tikhonov-Phillips-Regularisierung erreicht

⁶Der besseren Übersicht wegen wird hier nur eine stehende Welle betrachtet, die dem Spektrum überlagert ist. Die Erweiterung des Algorithmus auf mehrere stehende Wellen ist trivial.

durch

$$\mathbf{f}'_{\gamma} = \begin{pmatrix} \mathbf{f}_{c_{v_1}\gamma} \\ \mathbf{f}_{c_{v_2}\gamma} \\ \vdots \\ a \\ b \end{pmatrix} = \left[\mathbf{A}'^T \mathbf{C} \mathbf{A}' + \begin{pmatrix} \left(\begin{matrix} \gamma_{c_{v_1}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_1}}^T \mathbf{B}_{c_{v_1}} & \mathbf{O} & \cdots \\ \mathbf{O} & \gamma_{c_{v_2}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_2}}^T \mathbf{B}_{c_{v_2}} & \\ \vdots & & \ddots \end{matrix} \right) & \begin{matrix} 0 & 0 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{matrix} \end{pmatrix} \right]^{-1} \times \left[\mathbf{A}'^T \mathbf{C} \mathbf{g} + \begin{pmatrix} \left(\begin{matrix} \gamma_{c_{v_1}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_1}}^T \mathbf{r}_{c_{v_1}} \\ \gamma_{c_{v_2}}^2 \mathbf{B}_{c_{v_2}}^T \mathbf{r}_{c_{v_2}} \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{matrix} \right) \end{pmatrix} \right]. \quad (5.28)$$

Dieses ist die allgemeinste Form der Tikhonov-Phillips-Regularisierung mit der Erweiterung auf mehrere Höhenprofile und der Anpassung von stehenden Wellen. Das Auffüllen der für die Regularisierung verantwortlichen Matrizen und Vektoren mit Nullen an den entsprechenden Stellen sorgt dafür, daß die beiden Parameter a und b nicht mitregularisiert werden.

Für das Verfahren der maximalen Wahrscheinlichkeit ergibt sich in analoger Weise

$$\mathbf{f}'_{\gamma} = \begin{pmatrix} \mathbf{f}_{c_{v_1}\gamma} \\ \mathbf{f}_{c_{v_2}\gamma} \\ \vdots \\ a \\ b \end{pmatrix} = \left[\mathbf{A}'^T \mathbf{S}_{\varepsilon}^{-1} \mathbf{A}' + \begin{pmatrix} \left(\begin{matrix} \mathbf{S}_{f_{c_{v_1}}}^{-1} & \mathbf{O} & \cdots \\ \mathbf{O} & \mathbf{S}_{f_{c_{v_2}}}^{-1} & \\ \vdots & & \ddots \end{matrix} \right) & \begin{matrix} 0 & 0 \\ \vdots & \vdots \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{matrix} \end{pmatrix} \right]^{-1} \times \left[\mathbf{A}'^T \mathbf{S}_{\varepsilon}^{-1} \mathbf{g} + \begin{pmatrix} \left(\begin{matrix} \mathbf{S}_{f_{c_{v_1}}}^{-1} \bar{\mathbf{f}}_{c_{v_1}} \\ \mathbf{S}_{f_{c_{v_2}}}^{-1} \bar{\mathbf{f}}_{c_{v_2}} \\ \vdots \\ 0 \\ 0 \end{matrix} \right) \end{pmatrix} \right]. \quad (5.29)$$

5.4 Bestimmung der Periode der stehenden Wellen

Bei dem im vorhergehenden Abschnitt besprochenen Verfahren zur Anpassung von stehenden Wellen in den Spektren wurde vorausgesetzt, daß deren Periode $P = 2\pi/k$ bekannt ist. Nun ist dem Spektrum jedoch in der Regel mehr als nur eine einzige

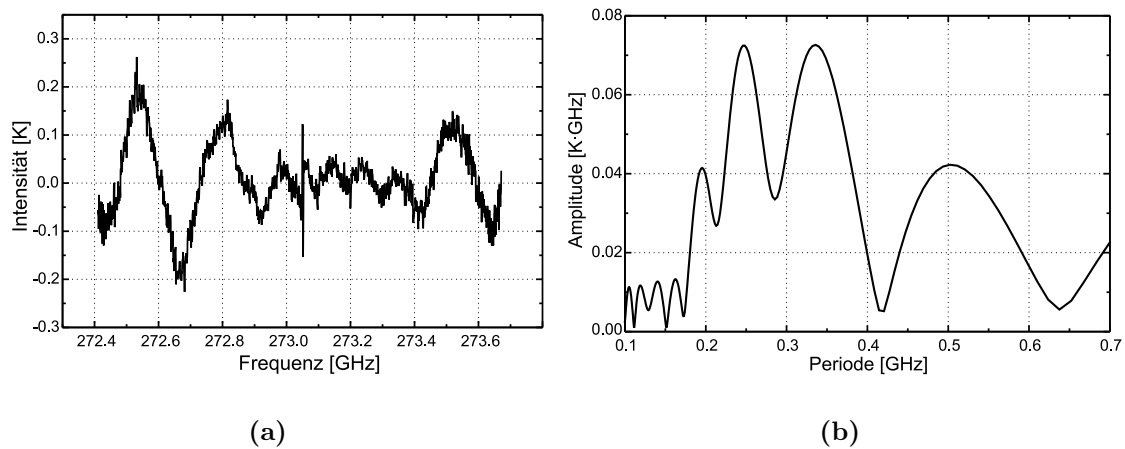


Abb. 5.1: (a) Residuum einer Ozonmessung bei 273,051 GHz
 (b) Fouriertransformierte des Residuums

Stehwelle überlagert und unter Umständen ist deren Form durch die Frequenzcharakteristik von Duplexer oder Seitenbandfilter verändert, so daß es in der Praxis häufig recht schwierig ist, die richtige Periode zu bestimmen.

In dieser Arbeit wurde folgendes Verfahren zur Bestimmung der Perioden der stehenden Wellen verwendet: Zunächst wird eine Inversionsrechnung mit der Optimal Estimation Methode ohne Anpassung von stehenden Wellen durchgeführt, wobei hierbei natürlich stark regularisiert werden muß, man erhält also annähernd die a priori-Profil. Danach berechnet man die Differenz aus einem mit den invertierten Profilen vorwärts gerechneten und dem gemessenen Spektrum, das sog. *Residuum*, welches dann diskret fouriertransformiert wird (zur diskreten Fouriertransformation siehe z. B. [5]). Die häufig zur diskreten Fourieranalyse verwendete Fast Fourier Transform (FFT) erwies sich aufgrund der zu geringen Anzahl an spektralen Stützstellen und daraus resultierend einer zu geringen Frequenzauflösung der Fouriertransformierten als weniger geeignet. Prinzipiell ist dieses Problem lösbar durch sog. „Zero Filling“, also die Erweiterung des zu transformierenden Bereichs mit Nullen, jedoch müssen für eine befriedigende Auflösung derart viele Nullen angefügt werden, daß die FFT ineffektiv wird. Aus diesem Grunde wird die diskrete Fouriertransformation verwendet, da hier direkt die gewünschte Auflösung der Fouriertransformierten eingestellt werden kann.

Abbildung 5.1(a) zeigt exemplarisch das Residuum einer Ozonmessung vom 2. April 1996 in Kiruna an der starken 273,051 GHz-Linie. Deutlich sind hier die stehenden Wellen zu sehen. Der scharfe Peak in der Mitte des Spektrums resultiert aus einer unvollkommenen Anpassung des vorwärts gerechneten an das gemessene Spektrum im Linienzentrum. Die Fouriertransformierte hiervon ist in Abbildung 5.1(b)

gezeigt. Wie zu sehen ist finden sich in der Fouriertransformierten keine scharfen Maxima. Dies ist eine Folge davon, daß bei der Fouriertransformation nicht von $-\infty$ bis ∞ integriert wird, sondern nur über den vom gemessenen Spektrum vorgegebenen Frequenzbereich. Dadurch verbreitern sich die ansonsten scharfen Maxima zu sinc-Funktionen ($\text{sinc } x = \sin x/x$), welche Nebenmaxima besitzen und sich gegenseitig stören. Man darf deshalb *nicht* jedes Maximum einer stehenden Welle zuordnen und deren Periode dieser Fouriertransformierten entnehmen. Es wurden verschiedene Möglichkeiten untersucht, die genaue Lage der Maxima zu bestimmen, z. B. durch numerische Entfaltung des Spektrums, d. h. die sinc-Funktionen aus der Fouriertransformierten herauszurechnen. Tests mit synthetischen Daten haben jedoch ergeben, daß folgendes einfache Verfahren besonders effektiv ist: Man bestimmt anhand der Fouriertransformierten die Amplitude, Periode und Phase der stärksten stehenden Welle und subtrahiert diese vom Residuum. Dann wird dieses korrigierte Residuum erneut fouriertransformiert, wieder Amplitude, Periode und Phase der zweitstärksten stehenden Welle bestimmt, diese vom Residuum subtrahiert und so weiter. Man kann so sukzessive mit hoher Genauigkeit die Perioden der dem Spektrum überlagerten stehenden Wellen bestimmen und diese dann für die im vorhergehenden Abschnitt besprochene Anpassung bei der Inversion verwenden. Es soll an dieser Stelle noch einmal betont werden, daß die Fouriertransformation nur zur Ermittlung der Perioden der stehenden Wellen genutzt wird und die eigentliche Anpassung an die gemessenen Spektren erst später bei der Inversion erfolgt.

Anhand der Fabry-Pérot-Formel 4.2 können nun aus den Perioden der stehenden Wellen die Resonatorlängen bestimmt werden. Die drei starken Maxima in Abbildung 5.1(b) zwischen 0,19 und 0,35 GHz rühren von der starken stehenden Welle her, die das Residuum dominiert. Es erscheinen drei Maxima, da die Amplitude der stehenden Welle über das Spektrum moduliert ist. Eine genauere Analyse ergab, daß diese stehende Welle von einer Reflexion zwischen Mischer und LO herrührte, was auch ihre Modulation erklärt: Um zum LO zu gelangen, muß die Strahlung den Diplexer passieren. Dieser war damals noch ein Martin-Puplett-Diplexer, der so eingestellt wurde, daß sowohl für die LO-Frequenz als auch für die Frequenz der Ozonlinie maximale Intensität am Mischer erreicht wurde. In der Modulation der stehenden Welle spiegelt sich also gerade die Filtercharakteristik des Diplexers wieder, die einen sinusförmigen Verlauf hat. Es ist insgesamt also möglich, durch die Fourieranalyse des Residuums auf die Resonatorlängen zurückzuschließen und dadurch Erkenntnisse über die Entstehung der Stehwellen zu gewinnen (siehe dazu auch [2]).

5.5 Berücksichtigung des troposphärischen Wasserdampfs

Wie schon früher erwähnt wurde, erschwert die starke Emission und Absorption des Wasserdampfes in der Atmosphäre die Messung stratosphärischer Spurengase vom Boden aus. Die extrem niedrigen Temperaturen an der Tropopause wirken wie eine Kühlfalle und behindern den Transport der feuchten troposphärischen Luft in die Stratosphäre. Deshalb befindet sich fast der gesamte atmosphärische Wasserdampf in der Troposphäre und macht sich dort bei radiometrischen Messungen als spektrales Kontinuum bemerkbar. Dieses Kontinuum zeigt eine recht hohe zeitliche Variabilität, sowohl über das Jahr hinweg den Jahreszeiten folgend, als auch kurzfristig innerhalb weniger Minuten. Bei Messungen im Millimeterwellengebiet müssen allerdings häufig die Spektren über mehrere Stunden integriert werden, um ein für eine Auswertung hinreichend gutes Signal- zu Rauschverhältnis zu erhalten. Deshalb sollten die Spektren vor der Integration einer *Troposphärenkorrektur* unterzogen werden, um den Einfluß der störenden Wasserdampfänderungen zu eliminieren.

5.5.1 Zweischichten- und Mehrschichtenmodell

Eine häufig verwendete Möglichkeit der Troposphärenkorrektur liefert ein einfaches Zweischichtenmodell der Atmosphäre, bei dem die Troposphäre als homogene Schicht mit der mittleren Temperatur T_T und der Opazität τ_T angesehen wird. Für die am Boden gemessene Helligkeitstemperatur T_{bB} gilt dann

$$T_{bB} = e^{-A\tau_T} T_{bS} + [1 - e^{-A\tau_T}] T_b(T_T) . \quad (5.30)$$

Mit $T_b(T_T)$ ist hier die einem Schwarzkörper der thermodynamischen Temperatur T_T zugeordnete Helligkeitstemperatur gemeint.⁷ A ist der Airmass-Faktor aus Abschnitt 3.4.2, wobei für die Troposphäre die Näherung $A \approx 1/\sin \varphi$ ausreichende Genauigkeit besitzt. T_{bS} ist schließlich die Helligkeitstemperatur des eigentlich interessierenden stratosphärischen Signals oberhalb der Troposphäre. Betrachtet man einen Teil des Spektrums der Helligkeitstemperatur T_{bB}^0 weit weg von den Linienzentren starker Signaturen, so kann der stratosphärische Anteil zur gesamten Helligkeitstemperatur vernachlässigt werden, und aus Gleichung 5.30 folgt

$$e^{-A\tau_T} \approx 1 - \frac{T_{bB}^0}{T_b(T_T)} .$$

⁷Man sollte nicht den Fehler begehen und in dieser Gleichung einfach die physikalische Temperatur der Troposphäre verwenden. Wie schon in Abschnitt 3.5 gesagt, überschätzt man hierbei die Helligkeitstemperatur der Troposphäre um ca. 6,5 K und macht somit einen systematischen Fehler.

Diese Gleichung eingesetzt in 5.30 und aufgelöst nach T_{bS} ergibt für die gesuchte Helligkeitstemperatur des korrigierten stratosphärischen Signals

$$T_{bS} = T_b(T_T) \frac{T_{bB} - T_{bB}^0}{T_b(T_T) - T_{bB}^0} . \quad (5.31)$$

Für die noch unbekanntere mittlere Troposphärentemperatur T_T wird häufig die Faustformel $T_T = T_{Boden} - 7 \text{ K}$ verwendet ([13], [36]), wobei T_{Boden} hier die am Boden gemessene Temperatur meint. Raffalski [39] hat die Gültigkeit dieser Faustformel anhand von Vergleichen mit Sondendaten untersucht und eine im Allgemeinen gute Übereinstimmung gefunden.

In dieser Arbeit wird jedoch ein Mehrschichtenmodell zur Troposphärenkorrektur verwendet, das auf Kuntz [31] zurückgeht: Es wird zunächst eine Vorwärtsrechnung mit einem Standardwasserdampfprofil durchgeführt und dann das Ergebnis mit dem gemessenen Spektrum verglichen. Dann wird das Wasserdampfprofil so lange skaliert, bis die Differenz aus Messung und Fit eine vorgegebene Schwelle unterschreitet.

Seien $T_{bi}, T_{b(i+1)}, \dots$ die in der jeweiligen Höhengschicht $i, i+1, \dots$ meßbaren Helligkeitstemperaturen. Für den Durchgang der Strahlung durch die i -te Schicht gilt entsprechend Gleichung 5.30

$$T_{b(i+1)} = e^{-A\tau_i} T_{bi} + [1 - e^{-A\tau_i}] T_b(T_i) ,$$

mit $T_b(T_i)$ der einem Schwarzkörper der thermodynamischen Temperatur T_i zugeordneten Helligkeitstemperatur und τ_i der Opazität der i -ten Höhengschicht. Bei Kenntnis der Helligkeitstemperatur der $i+1$ -ten Schicht folgt dann umgekehrt für die Helligkeitstemperatur der i -ten Schicht

$$T_{bi} = e^{A\tau_i} [T_{b(i+1)} - T_b(T_i)] + T_b(T_i) .$$

Nun kann Schritt für Schritt vom Boden aus nach oben hin der Einfluß der Troposphäre in den verschiedenen Höhengschichten herausgerechnet werden. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, daß man von Radiosonden oder Satelliten gemessene Druck- und Temperaturprofile direkt schon für die Troposphärenkorrektur verwenden kann.

Abbildung 5.2(a) zeigt exemplarisch für die starke Ozonlinie bei 273,051 GHz einen Vergleich beider Verfahren, bei dem ein mit Wasserdampf vorwärts gerechnetes Spektrum mit beiden Methoden troposphärenkorrigiert wurde. Das Ergebnis einer Vorwärtsrechnung, die ohne Wasserdampf durchgeführt wurde, ist ebenfalls abgebildet. In Abbildung 5.2(b) ist die Differenz der beiden troposphärenkorrigierten Spektren zu der Vorwärtsrechnung gezeigt. Es fällt zunächst auf, daß insbesondere das mit dem Zweischichtenmodell korrigierte Spektrum einen Slope („Neigung“) aufweist und beide Differenzspektren einen Offset („Versatz“) besitzen. Im weiteren

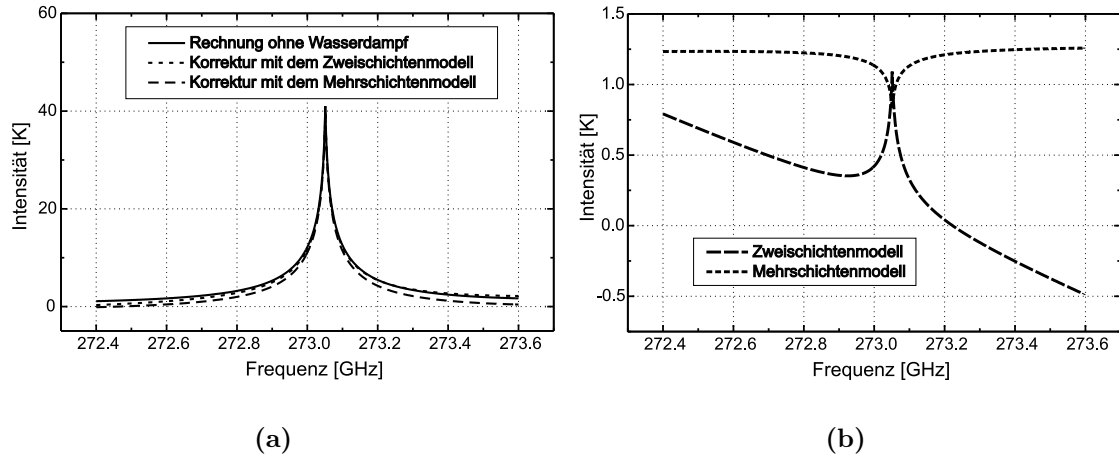


Abb. 5.2: (a) Vergleich der Troposphärenkorrektur mittels Zweischichten- und Mehrschichtenmodell, exemplarisch für die Ozonlinie bei 273,051 GHz
 (b) Differenzen der korrigierten Spektren zur Vorwärtsrechnung ohne Wasserdampf

Verlauf der Auswertung müssen Slope und Offset in den Spektren entweder vor der Inversion entfernt oder ähnlich wie die Stehwellen bei der Inversion mit angepaßt werden (vgl. Abschnitt 5.3.6). In dieser Arbeit wurde letzterer Methode der Vorzug gegeben. Entscheidend ist jedoch, daß beide Verfahren nur noch einen minimalen Rest der Ozonsignatur beinhalten, mit Vorteilen für das Mehrschichtenmodell.

5.5.2 Berücksichtigung des Seitenbandfilters

Aufgrund des relativ geringen Abstandes zwischen Signal- und Seitenband des Radiometers MIRA 2 (~ 4 GHz) zeigt sich die Filtercharakteristik des Seitenbandfilters in den gemessenen Spektren. Dies kann sich insbesondere beim troposphärischen Untergrund bemerkbar machen, da dieser natürlicherweise eine Neigung aufweist. Aufgrund der Seitenbandfiltercharakteristik bildet sich dieser in den Spektren gekrümmt ab (Abbildung 5.3).

Für die am Boden gemessene Helligkeitstemperatur gilt

$$T_{bB} = (T_{bS_s} + T_{bU_s})f_s + (T_{bS_{sp}} + T_{bU_{sp}})f_{sp} ,$$

mit T_{bS_s} und T_{bU_s} der Helligkeitstemperatur des stratosphärischen Signals bzw. des Untergrunds im Signalband, $T_{bS_{sp}}$ und $T_{bU_{sp}}$ den entsprechenden Helligkeitstemperaturen im Spiegelseitenband und f_s und f_{sp} der Filtercharakteristik im Signal- und Spiegelseitenband. Eine genaue Untersuchung der resultierenden Filtercharakteristik in den kalibrierten Spektren von MIRA 2 findet sich in [2].

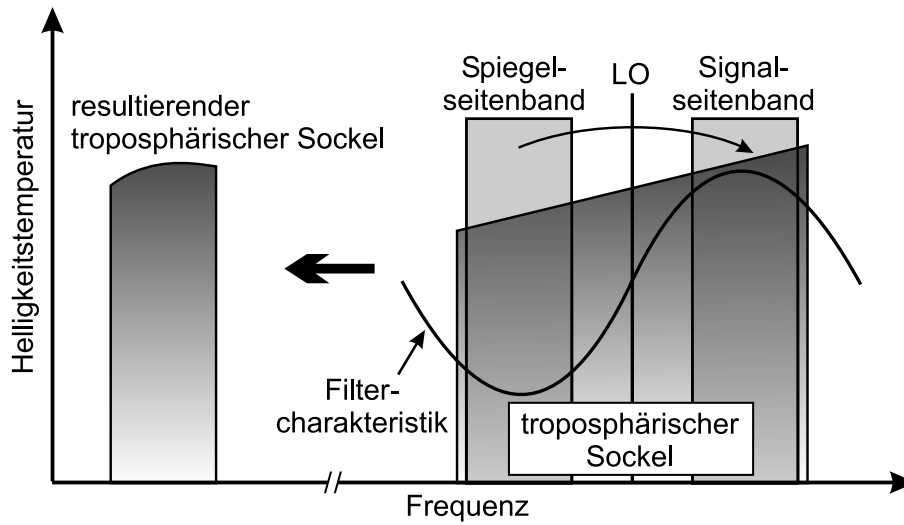


Abb. 5.3: Durch die Neigung des troposphärischen Sockels bildet sich die Filtercharakteristik des Seitenbandfilters im gemessenen Spektrum ab

Diese Gleichung läßt sich wie folgt umformen:

$$T_{bS_s} f_s + T_{bS_{sp}} f_{sp} + T_{bU_s} = T_{bB} - T_{bU_{sp}} f_{sp} - T_{bU_s} f_s + T_{bU_s}$$

Kennt man nun T_{bU_s} und $T_{bU_{sp}}$, wie das z.B. bei der Troposphärenkorrektur mit dem Mehrschichtenmodell der Fall ist, kann das gemessene Spektrum wie gewohnt um den Einfluß des troposphärischen Untergrundes T_{bU_s} korrigiert werden und man erhält ein troposphärenkorrigiertes Spektrum, welches allerdings noch durch die Filtercharakteristik bedingte stratosphärische Signaturen aus dem Spiegelseitenband besitzt. Diese sind jedoch in einer Inversionsrechnung leicht zu berücksichtigen.

Wie sich diese Filtercharakteristik bei der Troposphärenkorrektur auswirkt ist in Abbildung 5.4(a) zu sehen: Es wurde hierfür zunächst ein synthetisches Spektrum mit Wasserdampf und der Seitenbandfiltercharakteristik berechnet und dieses dann einmal mit und einmal ohne Berücksichtigung der Filtercharakteristik troposphärenkorrigiert. Zum Vergleich ist in diesem Schaubild auch ein Spektrum gezeigt, das ganz ohne Wasserdampf gerechnet wurde. Man sieht deutlich, daß das Spektrum ohne Berücksichtigung der Filtercharakteristik deutlich flacher verläuft als das ohne Wasserdampf berechnete, wohingegen die Troposphärenkorrektur mit Berücksichtigung der Filtercharakteristik eine gute Übereinstimmung mit dem Spektrum ohne Wasserdampf liefert (der noch vorhandene Offset ist in diesem Zusammenhang belanglos, da dieser bei der Inversion angepaßt wird). Noch deutlicher werden die Unterschiede in Abbildung 5.4(b) sichtbar, in der die Differenzen der beiden troposphärenkorrigierten Spektren zum Spektrum ohne Wasserdampf gezeigt sind.

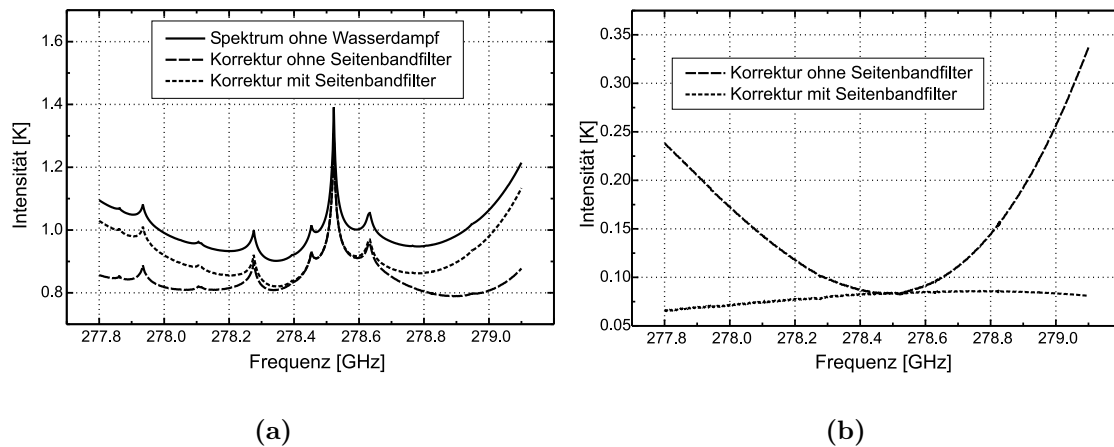


Abb. 5.4: (a) Vergleich der Troposphärenkorrektur unter Berücksichtigung der Filtercharakteristik des Seitenbandfilters mit der ohne diese Berücksichtigung. Zum Vergleich ist noch ein Spektrum, das ganz ohne Wasserdampf berechnet wurde, gezeigt.
 (b) Differenzen der korrigierten Spektren zur Vorwärtsrechnung ohne Wasserdampf

Interessant ist auch, die Auswirkungen der Troposphärenkorrektur mit und ohne Berücksichtigung des Seitenbandfilters auf das Inversionsergebnis zu untersuchen. In den Abbildungen 5.5(a) und 5.5(b) sind die Ergebnisse der gleichzeitigen Inversion von Ozon und ClO aus den in Abbildung 5.4(a) gezeigten Spektren gezeigt.

Beim Spektrum, das ohne Berücksichtigung des Seitenbandfilters korrigiert wurde, muß der zu flache Verlauf des Spektrums durch geänderte Spurengasprofile nachgebildet werden. Es zeigt sich, daß dadurch unterhalb von 20 km Höhe fehlerhafte Profile invertiert werden, während man bei der Korrektur mit Berücksichtigung der Filtercharakteristik über den gesamten Höhenbereich eine gute Übereinstimmung der invertierten Profile mit dem Originalprofil erhält.

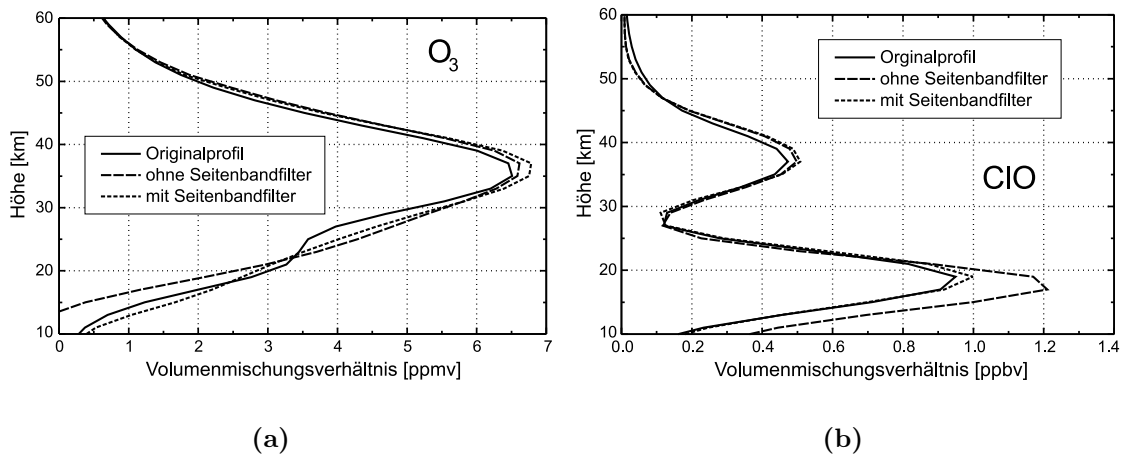


Abb. 5.5: Auswirkungen der Troposphärenkorrektur mit und ohne Berücksichtigung der Seitenbandfiltercharakteristik auf das Inversionsergebnis. Die Schaubilder zeigen die Ergebnisse der Inversion der in Abbildung 5.4(a) gezeigten Spektren. Schaubild (a) zeigt die invertierten Ozonprofile, Schaubild (b) die invertierten ClO-Profile

Kapitel 6

Die Meßkampagnen 1996 bis 2000

In diesem Kapitel sollen die Ergebnisse der Meßkampagnen von 1996 bis 2000 in Kiruna (67,8° N, 20,4° O, 425 m ü. NN), Nordschweden, bzw. in Ny-Ålesund (78,9° N, 11,9° O, 10 m ü. NN), Spitzbergen, vorgestellt werden. Es wird hierbei auch eine Fehlerbetrachtung für jedes Spurengas durchgeführt und die Daten werden in die meteorologische Gesamtsituation eingeordnet. Soweit möglich werden auch die Meßergebnisse anderer Gruppen und Modellrechnungen für einen Vergleich herangezogen.

Zunächst soll hier ein Überblick über die meteorologische Gesamtsituation der besagten Winter gegeben werden. Dazu ist in Abbildung 6.1 die über zehn Tage gemittelte potentielle Vorticity über Ny-Ålesund¹ auf der Isentropenfläche bei 475 K, also um etwa 19 km Höhe, aufgetragen (die Daten stammen vom European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF; zur potentiellen Temperatur und potentiellen Vorticity siehe auch Anhang A). Man erkennt, daß sich der Winter 1995/1996 durch einen recht starken Polarwirbel auszeichnete; der kurze Einbruch der potentiellen Vorticity am Tag 66 ist darauf zurückzuführen, daß sich Ny-Ålesund zu dieser Zeit kurzfristig außerhalb des Vortex befand. Charakteristisch für den Winter 1996/1997 ist, daß sich der Vortex erst sehr spät formierte, dann aber sehr stark war und sich lange bis in den Mai hinein hielt. Im Winter 1997/1998 war der Polarwirbel ungleich schwächer, und der darauffolgende Winter hatte sogar einen noch schwächeren polaren Vortex. Legt man die Grenze für den polaren Vortex auf der 475 K-Isentropenfläche bei einem Wert der potentiellen Vorticity von $42 \cdot 10^{-6} \text{Km}^2/\text{kgs}$ fest, so lag Ny-Ålesund im Winter 1998/1999 nur um die Tage 40 bis 50 innerhalb des Vortex. Der Winter 1999/2000 hingegen zeichnete sich wieder

¹Zwar wurde in Ny-Ålesund nur eine von bisher fünf Meßkampagnen mit MIRA 2 durchgeführt, es wurde für das Schaubild trotzdem diese Polarstation ausgewählt, da sie sich auf einer geographischen Breite von 78,9° N und damit die meiste Zeit des Winters innerhalb des polaren Vortex befindet. Hätte man Kiruna als Referenzpunkt gewählt, wären die Verhältnisse nicht so deutlich zu erkennen, da sich dieser Meßort häufig am Rande oder sogar ganz außerhalb des Vortex befindet.

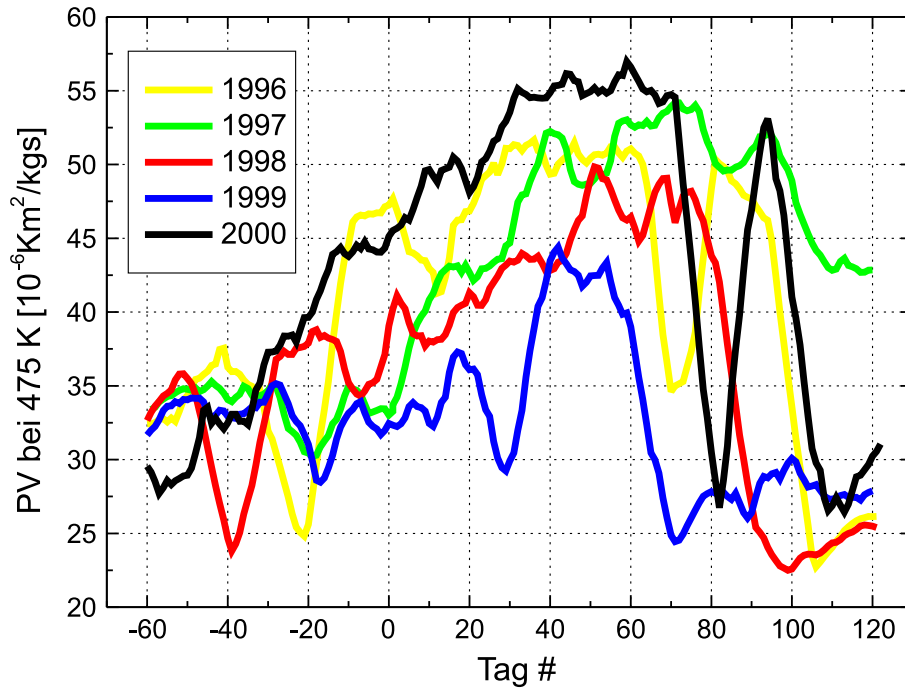


Abb. 6.1: Potentielle Vorticity der Winter 1995/1996 (in der Legende mit 1996 bezeichnet) bis 1999/2000 über Ny-Ålesund auf der 475 K-Isentropenfläche, gemittelt über zehn Tage (ECMWF-Daten)

durch einen sehr starken polaren Vortex aus, der Einbruch um Tag 80 herum ist auf die Lage Ny-Ålesunds zu dieser Zeit außerhalb des Vortex zurückzuführen.

Noch deutlicher werden die Verhältnisse in Abbildung 6.2. Hier sind die minimalen Temperaturen auf der Isentropenfläche von 475 K jenseits einer geographischen Breite von 40° N aufgetragen (ECMWF-Daten). Man erkennt sehr deutlich den Unterschied zwischen den kalten Wintern 1995/1996, 1996/1997, 1999/2000 und den eher warmen Wintern 1997/1998 und insbesondere 1998/1999. Bei dem zuletzt genannten Winter sanken die Temperaturen nur Ende November und Mitte Februar unter die Grenztemperatur für die Bildung von PSCs vom Typ I von 195 K (siehe Tabelle 2.1). Es war deshalb, wenn überhaupt, mit einer nur geringen Chloraktivierung in diesem Winter zu rechnen.

6.1 Die Meßkampagne 1996 in Kiruna

Die Meßkampagne 1996 im Institutet för Rymdfysik (IRF) in Kiruna war die erste, die mit dem Radiometer MIRA 2 bestritten wurde. Der Meßbetrieb dauerte vom

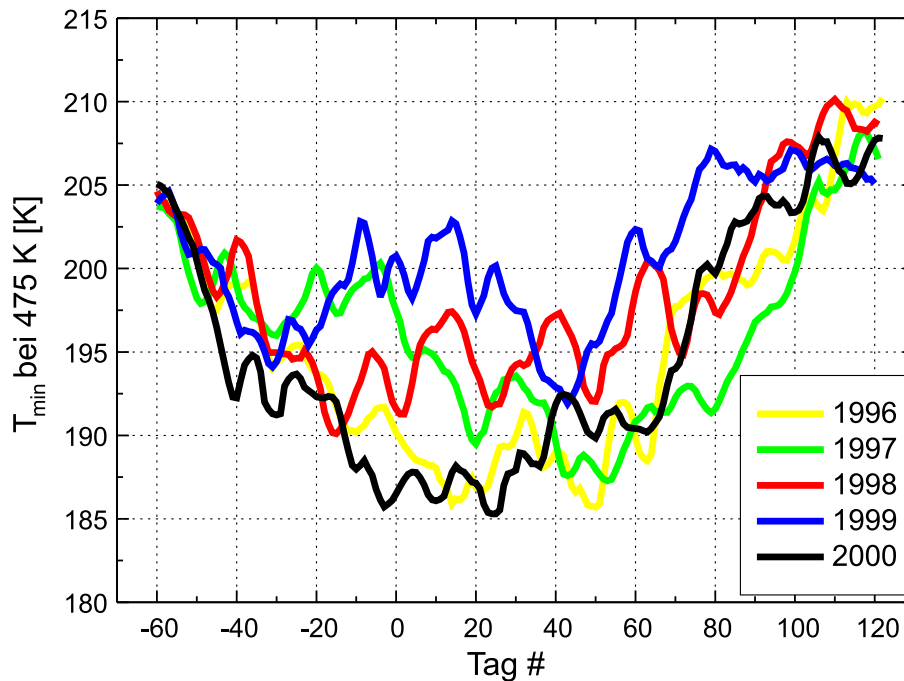


Abb. 6.2: Minimale Temperatur der Winter 1995/1996 (in der Legende mit 1996 bezeichnet) bis 1999/2000 nördlich 40° N auf der 475 K-Isentropenfläche, gemittelt über fünf Tage (ECMWF-Daten)

10. Februar bis zum 4. April und es wurden Spektren von sämtlichen von MIRA 2 detektierbaren Spurengasen gemessen (siehe auch [20]). In diesem Abschnitt wird für jedes Spurengas exemplarisch eine detaillierte Fehlerbetrachtung durchgeführt (siehe dazu auch [32]). Für die auf den anderen Kampagnen gewonnenen Spurengasprofile sind diese Ergebnisse weitestgehend übertragbar.²

Wie schon in den Abbildungen 6.1 und 6.2 gezeigt zeichnete sich der Winter 1995/96 durch einen starken und bis in den April hinein bestehenden polaren Vortex und damit verbunden durch niedrige Temperaturen in der unteren Stratosphäre aus. Dies sollte zu einer starken Chloraktivierung und deutlich meßbaren Ozonverlusten führen. Kiruna lag zu Anfang des Zeitraums, in dem MIRA 2 gemessen hat, innerhalb des polaren Vortex und es herrschten auf der 475 K Isentropenfläche sehr

²Die sukzessiven Verbesserungen am Gerät, die zu einer Verringerung der Empfängerrauschtemperatur führten, ermöglichten im wesentlichen kürzere Integrationszeiten, das Signal- zu Rauschverhältnis der zur Inversion herangezogenen aufsummierten Spektren blieb weitestgehend konstant. Fehler, die durch Baselineeffekte verursacht werden, sind ganz allgemein nur schwer zu quantifizieren. Die in diesem Kapitel vorgenommene Betrachtung für ClO dient auch für die auf den anderen Kampagnen gemessenen Spektren als Abschätzung.

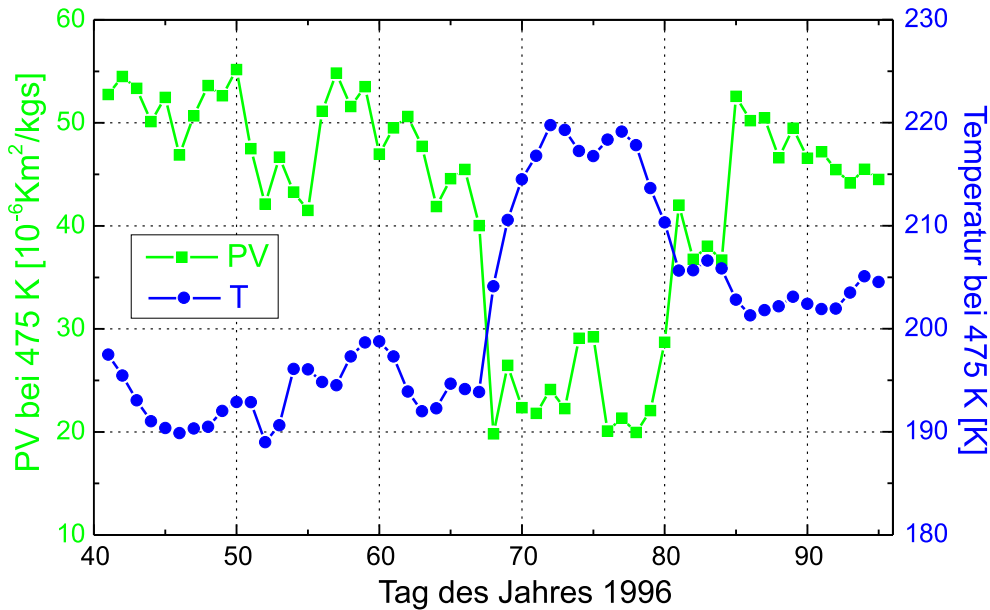


Abb. 6.3: Potentielle Vorticity und Temperatur bei 475 K über Kiruna während der Meßkampagne 1996 (ECMWF-Daten)

tiefe Temperaturen, die die Bildung von PSCs zuließen (Abbildung 6.3). Ab Tag 68 lag Kiruna dann außerhalb des Vortex und die Temperaturen stiegen deutlich an. Ab Tag 85 lag Kiruna dann wieder innerhalb des Polarwirbels, die Temperaturen erreichten allerdings nicht mehr derart niedrige Werte wie zu Beginn der Meßkampagne.

6.1.1 Fehlerbetrachtung

Der in den invertierten Höhenprofilen auftretende Gesamtfehler setzt sich zusammen aus dem durch das Rauschen im Spektrum verursachten Datenfehler, dem Regularisierungsfehler und systematischen Fehlern. Die Berechnung des Daten- und Regularisierungsfehlers wurde schon in Abschnitt 5.3.4 erläutert. Leider sind die zur Berechnung des Regularisierungsfehlers benötigten a priori-Kovarianzmatrizen \mathcal{S}_f aufgrund von fehlendem statistischem Datenmaterial häufig schwer zu bestimmen, weshalb die Matrizen häufig als Diagonalmatrizen mit geschätzten Varianzen als Diagonalelementen initialisiert werden. Weiterhin besteht die Möglichkeit, Korrelationen der Volumenmischungsverhältnisse der einzelnen Höhenschichten durch Gaußfunktionen, deren Zentren auf der Diagonalen der a priori-Kovarianzmatrix liegen, zu modellieren. Im Verlaufe dieser Arbeit wurde sukzessive zu dieser Art der Initialisierung übergegangen. In den folgenden Abschnitten werden jedoch bei der

Darstellung der Fehler die Regularisierungsfehler aufgrund ihrer zweifelhaften Aussagekraft vernachlässigt und stattdessen direkt die Averaging Kernels und die daraus mit der Halbwertsbreite als Kriterium resultierende Höhenauflösung betrachtet. Es fehlt noch eine Abschätzung der systematischen Fehler, die durch die Verwendung falscher Temperaturprofile, fehlerbehafteter Liniendaten oder ungenauer Kalibration des Meßgerätes entstehen. Die hier vorgenommene Betrachtung folgt den Überlegungen von Kuntz [27], die die Troposphäre durch ein einfaches Einschichtenmodell approximieren.³ In Anlehnung an Gl. 5.31 aus Abschnitt 5.5.1 folgt für das vom Elevationswinkel φ auf einen Elevationswinkel von 90° umgerechnete troposphärenkorrigierte Signal

$$T_{bS} = \sin \varphi T_b(T_T) \frac{T_{bB} - T_{bB}^0}{T_b(T_T) - T_{bB}^0}. \quad (6.1)$$

Für den Airmass-Faktor wurde hierbei die Näherung $A \approx 1/\sin \varphi$ verwendet. Anhand dieser Gleichung können nun die systematischen Fehler abgeschätzt werden, wobei diese sich multiplikativ auf das Spektrum und damit auf das Inversionsergebnis auswirken, also das invertierte Höhenprofil lediglich skalieren, jedoch nicht in seiner Form ändern.

Auswirkungen eines falsch angenommenen Elevationswinkels

Das auf den Meßkampagnen benutzte Periskop besitzt eine Stellgenauigkeit von $0,1^\circ$. Dies ist jedoch nicht die einzige Fehlerquelle, die zu einem falsch angenommenen Elevationswinkel φ führt: Die Empfangskeule des Periskops hat einen vollen Öffnungswinkel von etwa 3° , d. h. man empfängt auch Strahlung aus anderen Elevationswinkeln als φ . Diese haben jedoch verschiedene Airmass-Faktoren, was zu einer stärkeren Gewichtung der Strahlung führt, die aus Raumbereichen mit flacherem Elevationswinkel und damit größerem Airmass-Faktor stammt. Um diesen Effekt abzuschätzen, kann folgende Überlegung durchgeführt werden: Seien $A_1 = 1/\sin(\varphi + 1,5^\circ)$ und $A_2 = 1/\sin(\varphi - 1,5^\circ)$ die Airmass-Faktoren, die Beobachtungen unter den Elevationswinkeln $\varphi + 1,5^\circ$ und $\varphi - 1,5^\circ$ entsprechen, also gerade den Randbereichen der Empfangskeule. Dann ergibt sich in erster Näherung ein mittlerer Airmass-Faktor für die Beobachtung von $\bar{A} = (A_1 + A_2)/2$. Dieser mittlere Airmass-Faktor entspricht einem Elevationswinkel von $\varphi' = \arcsin(1/\bar{A})$, aus dem der Hauptbeitrag der empfangenen Strahlung zu erwarten ist. Für einen eingestellten Elevationswinkel von z. B. $\varphi = 12^\circ$ (in dieser Größenordnung liegen

³Häufig wird die Fehleranalyse auch mit Hilfe von Kovarianzmatrizen durchgeführt (siehe z. B. [32], [41], [45]), die im Allgemeinen als diagonal angenommen werden mit den Varianzen der einzelnen Einflußgrößen als Diagonalelementen. Der Gesamtfehler ist dann die Summe aus allen Fehlerkovarianzmatrizen. Da diese Art der Fehleranalyse jedoch keine grundlegend anderen Ergebnisse liefert wird hier aufgrund seiner Anschaulichkeit der nachfolgenden Fehlerabschätzung der Vorzug gegeben.

erfahrungsgemäß die kleinsten Elevationswinkel, die in der Praxis unter sehr guten Witterungsbedingungen vorkommen) ergibt diese Überlegung eine Ungenauigkeit aufgrund der endlichen Antennenkeule von $0,19^\circ$. Zu beachten ist jedoch, daß für diese Überlegung eine ideale gaußsche Strahlform angenommen wurde. Es ist aber nicht ausgeschlossen, daß es noch weitere Beiträge mit größeren Abweichungen vom eingestellten Elevationswinkel gibt, die in das Radiometer einkoppeln können. Als konservative Abschätzung des Gesamtfehlers beim Elevationswinkel inklusive Stellfehler wird deshalb im weiteren ein Wert für $\Delta\varphi$ von $0,5^\circ$ gewählt.

Aus Gleichung 6.1 folgt für den aus einem um $0,5^\circ$ zu groß angenommenen Elevationswinkel resultierenden Fehler :

$$\frac{T_{bs}(\varphi + 0,5^\circ) - T_{bs}(\varphi)}{T_{bs}(\varphi)} = \frac{\sin(\varphi + 0,5)}{\sin\varphi} - 1 \quad (6.2)$$

In Abbildung 6.4(a) ist der Verlauf dieser Kurve dargestellt. Für kleine Elevationswinkel steigt der relative Fehler stark an, sinkt jedoch bei den in der Praxis vorkommenden Elevationswinkeln von mehr als 10° schnell deutlich unter 5 %.

Auswirkungen einer ungenauen Kalibration

Die Kalibration der gemessenen Spektren erfolgt durch Vergleich der gemessenen Strahldichte mit der Strahldichte zweier als Eichlasten dienender Absorber. Der eine befindet sich im Kryostaten und dient als kalte Last, der als warme Last benutzte befindet sich auf Raumtemperatur. Die Unsicherheit dieses Kalibrationsverfahrens beträgt maximal etwa 4 K und wirkt sich gleichermaßen auf das gemessene Signal T_{bB} und den Untergrund T_{bB}^0 aus. Für den relativen Fehler im invertierten Profil ergibt sich bei einer um 4 K zu hoch angenommenen Helligkeitstemperatur

$$\frac{T_{bs}(T_{bB} + 4K, T_{bB}^0 + 4K) - T_{bs}(T_{bB}, T_{bB}^0)}{T_{bs}(T_{bB}, T_{bB}^0)} = \frac{T_b(T_T) - T_{bB}^0}{T_b(T_T) - T_{bB}^0 - 4K} - 1. \quad (6.3)$$

Wie in Abbildung 6.4(b) zu sehen ist, nimmt dieser Fehler mit steigender gemessener Helligkeitstemperatur zu. Es ist hierbei zu beachten, daß Spektren mit einem Untergrund von mehr als etwa 200 K nicht mehr zur Inversion herangezogen werden sollten, da die troposphärische Absorption zu stark wird und der Informationsgehalt der Spektren dann entsprechend gering ist. Für $T_b(T_T)$ wurde sowohl für dieses Schaubild wie auch für die weiteren Betrachtungen ein Wert von 255 K angenommen.

Auswirkungen einer falsch angenommenen Troposphärentemperatur

Wie aus den Gleichungen 5.31 bzw. 6.1 hervorgeht, muß für eine Korrektur der Spektren um den Einfluß der Troposphäre deren mittlere Helligkeitstemperatur $T_b(T_T)$

und damit deren mittlere Temperatur T_T bekannt sein.⁴ Nach den Untersuchungen von Raffalski [39] liefert die Faustformel $T_T = T_{Boden} - 7\text{ K}$ im Vergleich zu Sonden-
daten im Mittel einen Fehler von drei bis vier Kelvin (Standardabweichung). Zieht man zur Troposphärenkorrektur mit dem Mehrschichtenmodell Temperaturprofile des National Centers for Environmental Prediction (NCEP, siehe auch [15]) heran, die über das Automailersystem des Goddard Space Flight Center (GSFC) zu beziehen sind, dürfte der Fehler sogar noch kleiner sein. Als konservative Schätzung werden im weiteren trotzdem 5 K als Fehler der mittleren Troposphärentemperatur angenommen. Für den durch die Troposphärenkorrektur verursachten relativen Fehler im invertierten Temperaturprofil ergibt sich somit

$$\frac{T_{bS}(T_T + 5\text{K}) - T_{bS}(T_T)}{T_{bS}(T_T)} = \frac{T_b(T_T + 5\text{K})[T_b(T_T) - T_{bB}^0]}{[T_b(T_T + 5\text{K}) - T_{bB}^0]T_{bT_T}} - 1. \quad (6.4)$$

Der Verlauf dieser Kurve ist in Abbildung 6.4(c) dargestellt. Der Betrag dieses relativen Fehlers steigt ebenfalls mit größer werdendem Untergrund stark an. Wie bei dem Schaubild für ungenaue Kalibration wurde hier für $T_b(T_T)$ ein Wert von 255 K angenommen.

Auswirkungen eines falschen stratosphärischen Temperaturprofils

Im Falle schwacher Signaturen ergibt eine einfache Plausibilitätsbetrachtung, daß die Stärke der betrachteten Signatur L_0 proportional dem Produkt aus Volumenmischungsverhältnis c_{v_i} , Linienstärke $S(T) = 1/n \int_{-\infty}^{\infty} \alpha_{mn}(\nu) d\nu$ und Planckfunktion $B_\nu(T)$ ist,⁵ also

$$c_{v_i} \propto \frac{L_0}{S(T)B_\nu(T)}. \quad (6.5)$$

Die relativ komplexe Temperaturabhängigkeit der Linienstärke läßt sich nach [27] vereinfacht darstellen als

$$S(T) \propto T^m \quad \text{mit} \quad \begin{cases} m = E_n/k_B T - 2 & \text{für symmetrische Moleküle} \\ m = E_n/k_B T - 2,5 & \text{für asymmetrische Moleküle.} \end{cases}$$

Mit E_n ist hier die Energie des unteren Anregungsniveaus bezeichnet, k_B ist die Boltzmannkonstante. Setzt man den obigen Ausdruck in Gleichung 6.5 ein und

⁴Für das in Abschnitt 5.5.1 besprochene Mehrschichtenmodell muß sogar der vollständige Temperaturverlauf in der Troposphäre bekannt sein.

⁵Für diese Überlegung wurde die Nichtlinearität der Strahlungsübertragungsgleichung vernachlässigt. Dies ist gerechtfertigt, wenn die Eigenabsorption des Spurengases vernachlässigt werden kann, was für ClO, HNO₃ und N₂O sicher der Fall ist. Bei den stärkeren Ozonlinien kann die Eigenabsorption jedoch nicht vollständig vernachlässigt werden, aber für diese Fehlerabschätzung sei diese Vereinfachung gestattet.

Gas	f [GHz]	m	Δ [%]
O ₃	268,665	2,8	-7,25
O ₃	273,051	-1,688	1,37
O ₃	274,478	-2,432	2,88
O ₃	276,924	-1,757	1,51
O ₃	278,522	-2,346	2,7
O ₃	279,485	-2,467	2,95
O ₃	279,892	0,192	-2,33
ClO	278,628	-1,839	1,68
HNO ₃	269,172	-1,971	1,94
N ₂ O	276,328	-2,235	2,5

Tabelle 6.1: Exponent m der Temperaturabhängigkeit der Linienstärken und daraus resultierender relativer Fehler Δ einer um 5 K zu hoch angenommenen Stratosphären-temperatur für einige wichtige Linien

macht Gebrauch von der Rayleigh-Jeans-Näherung, so ergibt sich für die Temperaturabhängigkeit des Volumenmischungsverhältnisses

$$c_{v_i} \propto T^{-m-1} .$$

Bei einem um 5 K zu hoch angenommenen stratosphärischen Temperaturprofil ergibt sich für den relativen Fehler im invertierten Profil

$$\frac{c_{v_i}(T + 5 \text{ K}) - c_{v_i}(T)}{c_{v_i}(T)} = \left[\frac{T + 5 \text{ K}}{T} \right]^{-m-1} - 1 .$$

Zur Vereinfachung wird im weiteren von einer isothermen Stratosphäre mit $T = 250 \text{ K}$ ausgegangen. Die daraus resultierende Kurve ist in Abbildung 6.4 (d) dargestellt. Eine Übersicht über die Temperaturabhängigkeit m der Linienstärken der in dieser Arbeit besprochenen Signaturen und die daraus resultierenden relativen Fehler Δ in den invertierten Volumenmischungsverhältnisprofilen gibt Tabelle 6.1. Für ClO und HNO₃, deren Signaturen jeweils aus einem ganzen Ensemble von Linien bestehen, wurde die jeweils stärkste Linie für die Betrachtung ausgewählt.

Auswirkungen einer falschen Linienstärke

Für die Inversion werden Spektraldaten aus der *HITRAN*-Liniendatenbank ([47]-[49]) verwendet. Ein Vergleich der Linienstärken aus dem Jet Propulsion Laboratory (JPL) Katalog [37], für die ein Fehler von 1 % angegeben wird, mit der *HITRAN 96*

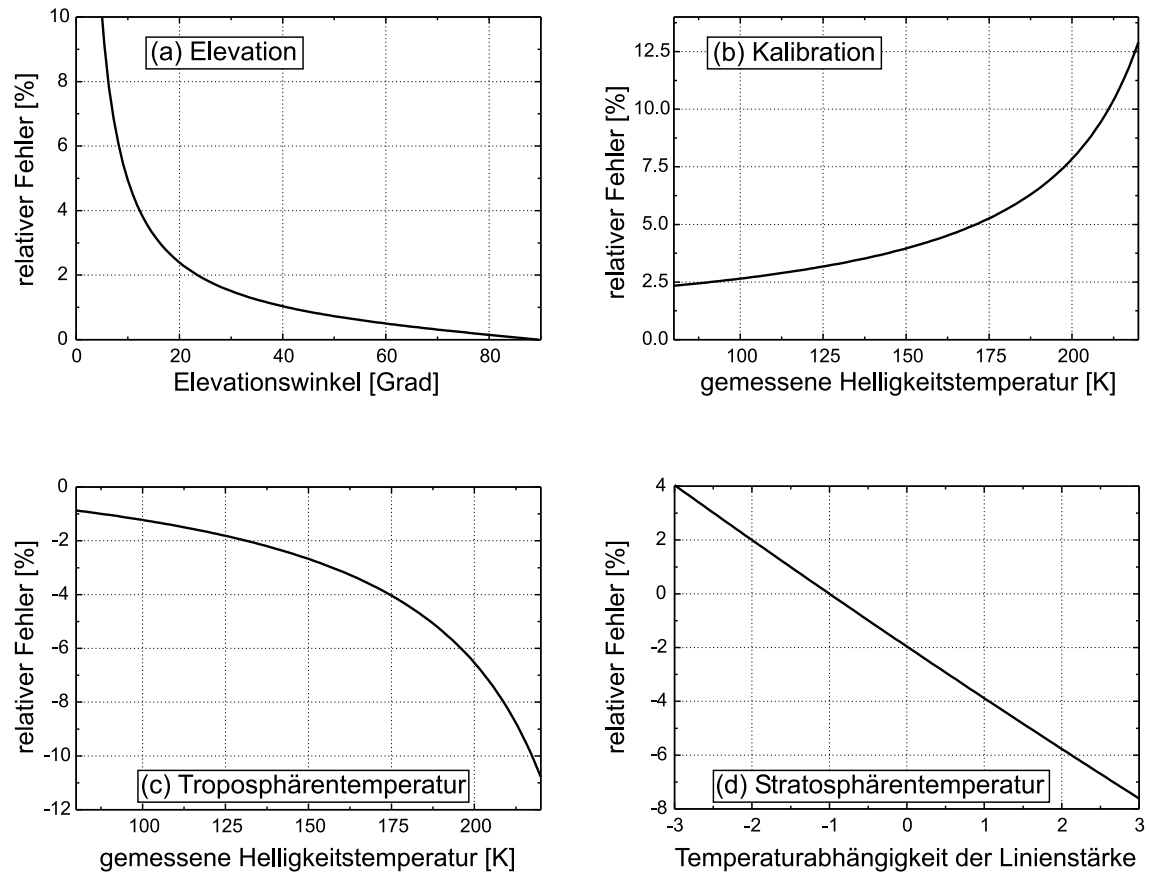


Abb. 6.4: Relative Fehler der invertierten Höhenprofile des Volumenmischungsverhältnisses. In (a) ist der relative Fehler bei einem falsch angenommenen Elevationswinkel gezeigt, in (b) der relative Fehler einer um 4 K überschätzten Helligkeitstemperatur der Kalibrationslasten. In Schaubild (c) ist der Effekt einer um 5 K zu hoch angenommenen Troposphärentemperatur aufgetragen, Schaubild (d) zeigt den relativen Fehler einer um 5 K überschätzten Stratosphärentemperatur.

Datenbank zeigt für die hier betrachteten Spurengase Differenzen zwischen 1 % und 4,4 %. Es wird bei dieser Betrachtung Kuntz et al. ([32]) gefolgt und der Fehler in der Linienstärke auf 3 % abgeschätzt. Für eine um 3 % zu hoch angenommene Linienstärke $S(T)$ ergibt sich aus Gleichung 6.5 für den relativen Fehler im invertierten Profil:

$$\frac{c_{v_i}(1,03 S(T)) - c_{v_i}(S(T))}{c_{v_i}(S(T))} = \frac{1}{1,03} - 1 \approx -2,9 \%$$

Auswirkungen eines falschen Druckverbreiterungsparameters γ

Für eine isotherme Atmosphäre folgt der Druck der barometrischen Höhenformel (Gleichung 2.2)

$$p(h) = p(h_0) e^{-\frac{h}{H}} .$$

Die Skalenhöhe H (Gleichung 2.3) errechnet sich für eine Temperatur von $T = 250$ K zu $H \approx 7,5$ km. Die Linienbreite $\Delta\nu_p$ ist für eine isotherme Atmosphäre $\Delta\nu_p = \gamma p$ (Gleichung 3.6), also direkt proportional dem Druck. Eingesetzt in die barometrische Höhenformel ergibt sich für die Höhe in Abhängigkeit von der Linienbreite

$$h(\Delta\nu_p) = -H \ln(\Delta\nu_p/\gamma p_0) .$$

Wird der Druckverbreiterungsparameter γ um 5 % zu groß angenommen, ergibt sich daraus die neue Höhenabhängigkeit

$$h'(\Delta\nu_p) = -H \ln(\Delta\nu_p/1,05 \gamma p_0) = h(\Delta\nu_p) + H \ln(1,05) .$$

Diese Höhenabhängigkeit ist also gegenüber der alten um $H \ln(1,05) \approx 0,37$ km nach oben verschoben. Entsprechend ergibt sich für einen um 5 % zu klein angenommenen Druckverbreiterungsparameter eine Verschiebung des invertierten Höhenprofils um 0,39 km nach unten. Beide werden gegenüber der erreichbaren Höhengauflösung von bestenfalls 7 km (siehe Abbildung 6.7(a)) vernachlässigt.

6.1.2 Ozon

In diesem Abschnitt sollen einige Ergebnisse der Ozonmessungen an der starken 273,051 GHz-Linie und der schwächeren 274,478 GHz-Linie gezeigt und diskutiert werden.⁶ Die Ergebnisse für Ozon, die mittels gleichzeitiger Inversion zusammen mit ClO, N₂O und HNO₃ invertiert wurden, werden in den entsprechenden Abschnitten diskutiert.

⁶Aufgrund der noch fehlenden Erfahrungen erfolgten die Messungen vergleichsweise unsystematisch und es wurde nicht immer an für die Witterungsverhältnisse geeigneten Linien gemessen. Dies ist der Grund, weswegen keine kontinuierlichen Zeitreihen invertiert werden konnten. Stattdessen werden hier, wie auch für die anderen Spurengasen, ausgewählte Messungen gezeigt.

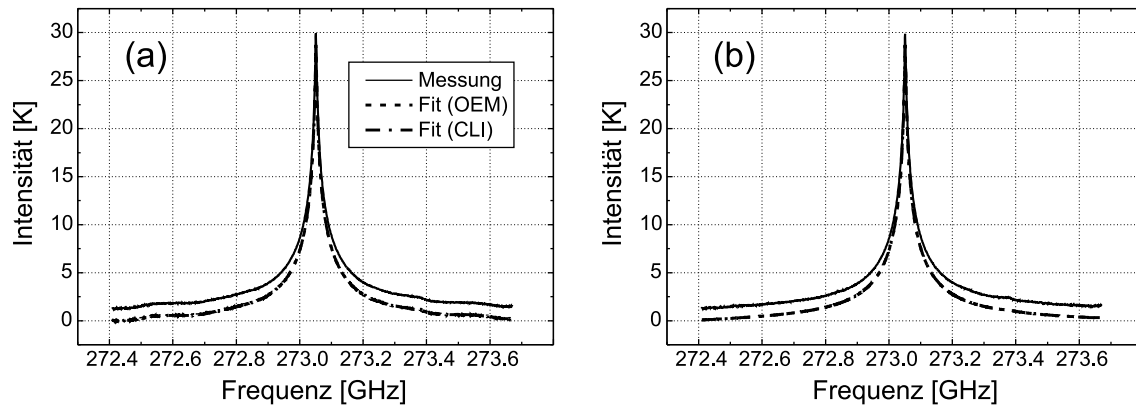


Abb. 6.5: Am 29. März 1996 bei 273,051 GHz gemessenes Ozonspektrum vor (a) und nach (b) der Korrektur um drei Stehwellen. Der besseren Übersicht wegen wurden die vorwärts gerechneten Spektren gegen die Messung vertikal etwas verschoben

Messungen an der 273,051 GHz-Linie

Die Ozonlinie bei 273,051 GHz ist die stärkste im Frequenzbereich von 268 bis 280 GHz, der von MIRA 2 abgedeckt wird. Sie wird deshalb für hochaufgelöste Messungen von Ozon oder bei schlechten Witterungsbedingungen, wenn keine anderen sinnvollen Messungen möglich sind, herangezogen. Die Abbildungen 6.5(a) und (b) zeigen ein am 29. März gemessenes Spektrum vor und nach der Korrektur um drei Stehwellen, wobei zu beachten ist, daß die Stehwellen erst während der Inversion angepaßt wurden. Wie in allen nun folgenden Spektren wurden die aus der Inversion resultierenden vorwärts gerechneten Spektren in den gleichen Abbildungen der besseren Übersicht wegen gegen die Messung vertikal etwas verschoben.

Die aus dieser Messung mittels Optimal Estimation (OEM) bzw. Tikhonov-Phillips-Regularisierung (CLI) invertierten Profile sind in Abbildung 6.6(a) gezeigt. Die Startprofile, die gleichzeitig als a priori-Profile dienen, sind der US-Standardatmosphäre (1976) für mittlere Breiten entnommen. Es fällt zunächst die sehr gute Übereinstimmung der beiden invertierten Profile im Höhenbereich oberhalb ca. 17 km auf (der Höhenbereich unterhalb von 17 km ist in diesem Schaubild ausgeblendet, da hierüber praktisch keine Information mehr im Spektrum vorhanden ist). Die a priori-Kovarianzmatrix für die Optimal Estimation Methode wurde so initialisiert, daß die Varianzen nach oben und unten hin immer kleiner wurden, sodaß dem a priori-Profil, welches mit dem Startprofil identisch ist, in diesen Höhenbereichen ein immer stärkeres Gewicht zuteil wird. Der grau schattierte Fehlerbereich am mittels Optimal Estimation invertierten Höhenprofil setzt sich wie in allen folgenden Beispielen dieses Kapitels zusammen aus dem Datenfehler und den systematischen

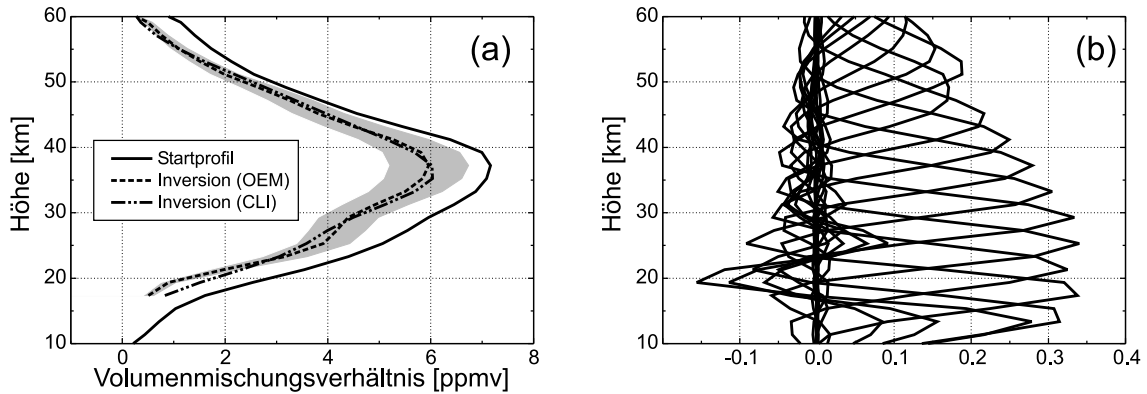


Abb. 6.6: (a) Mit der Optimal Estimation Methode bzw. Tikhonov-Phillips-Regularisierung invertierte Ozonprofile vom 29. März 1996
(b) Averaging Kernels der Inversion mit der Optimal Estimation Methode

Fehlern.

Zur meteorologischen Gesamtsituation ist zu sagen, daß Kiruna am 29. März 1996 innerhalb des polaren Vortex lag (Abbildung 6.3). Das maximale Volumenmischungsverhältnis von ca. 6 ppmv in 35 km Höhe ist typisch für den Vortex im späten Winter, der sich schon langsam in Auflösung befindet. Die relativ niedrigen Volumenmischungsverhältnisse um 20 km Höhe von unter 2 ppmv könnten auf einen noch verbliebenen Ozonabbau hindeuten, jedoch herrschten im Wirbel zu dieser Zeit schon wieder zu hohe Temperaturen für eine Freisetzung von reaktivem Chlor. Auch zeigen Messungen mit dem vom IMK in Kooperation mit der Universität von Nagoya und dem IRF in Kiruna betriebenen bodengebundenen Fourier-Transformations-Spektrometer für den infraroten Spektralbereich (engl. Fourier Transform Infrared Spectrometer, kurz FTIR) ansteigende Säulengehalte von ClONO_2 (siehe [42]), was auf die Bindung von reaktivem Chlor an die nun wieder in größeren Mengen zur Verfügung stehenden Stickoxide zurückgeführt wird.

Abbildung 6.6(b) zeigt die aus der Inversion mit der Optimal Estimation Methode resultierenden Averaging Kernels. Die aus diesen Averaging Kernels mit der Halbwertsbreite als Kriterium berechnete vertikale Auflösung der invertierten Profile ist in Abbildung 6.7(a) dargestellt. Die beste vertikale Auflösung wird im Höhenbereich von ca. 17 km bis 30 km mit um die 7 km erreicht, während zu größeren Höhen hin sich die Auflösung deutlich verschlechtert. Die scheinbare Verbesserung der Höhenauflösung unterhalb von 15 km ist ein Artefakt, da für den untersten Höhenbereich praktisch keine Information mehr im gemessenen Spektrum enthalten ist und deshalb die Averaging Kernels nur noch eine zweifelhafte Aussagekraft haben.

Das aus gemessenem Spektrum und Vorwärtsrechnung mit dem mittels der Op-

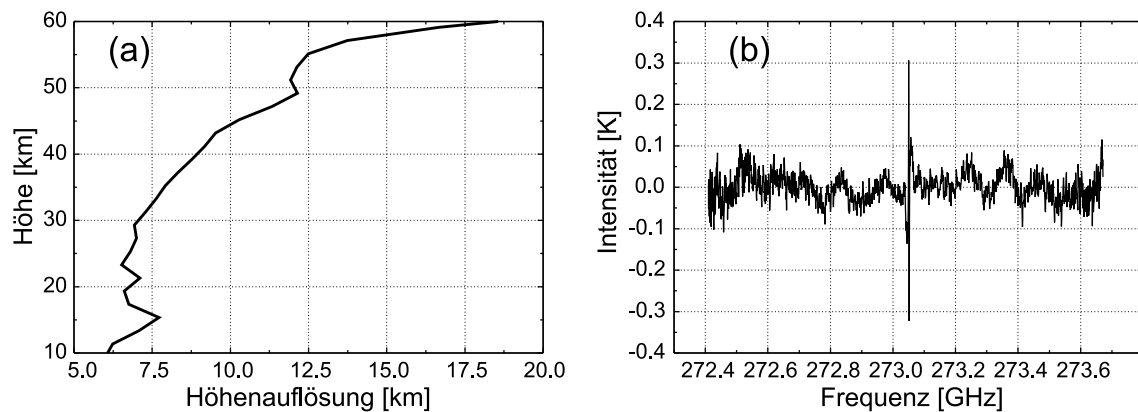


Abb. 6.7: Höhenauflösung und Residuum der Ozonmessung an der 273,051 GHz-Linie

timal Estimation Methode invertierten Höhenprofil berechnete Residuum ist in Abbildung 6.7(b) gezeigt. Es ist noch eine gewisse Restwelligkeit zu erkennen und eine nicht perfekte Anpassung des Linienzentrums, welche zumindest zum Teil von der Dopplerverbreiterung der Linie, die bei der Vorwärtsrechnung nicht mitberechnet wird, herrühren dürfte. In Anbetracht einer Gesamthöhe der Linie von etwa 30 K sind jedoch beide Effekte zu vernachlässigen,⁷ wobei sich die Störung im Linienzentrum ohnehin nur in den obersten Höhenschichten auswirkt.

Messungen an der 274,478 GHz-Linie

Die Ozonlinie bei 274,478 GHz liegt im unteren Seitenband, wenn das Radiometer für ClO-Messungen eingestellt ist. Für einen Wechsel zwischen Messungen von ClO und dieser Ozonlinie ist folglich nur das Seitenbandfilter neu einzustellen, weshalb diese Linie bevorzugt für kurze Ozonmessungen zwischen lang andauernden ClO-Messungen herangezogen wird, um größere Störungen des Systems, die sich unter Umständen in einer geänderten Gerätebaseline niederschlagen, zu vermeiden.

In den Abbildungen 6.8(a) und (b) ist ein am 19. Februar gemessenes Spektrum vor und nach der Korrektur um drei Stehwellen zusammen mit den bei der Inversion vorwärts gerechneten Spektren zu sehen.

Die invertierten Höhenprofile zeigt Abbildung 6.9(a). Die Unterschiede zwischen Tikhonov-Phillips-Regularisierung und der Optimal Estimation Methode sind hier

⁷Bei neueren Auswertungen von Messungen bei 273,051 GHz wird übrigens vollständig auf eine Anpassung von Stehwellen verzichtet, da bei dieser Signatur das Signal- zu Stehwellenverhältnis i. Allg. so gut ist, daß die Anpassung zu keiner signifikanten Veränderung des Inversionsergebnisses führt.

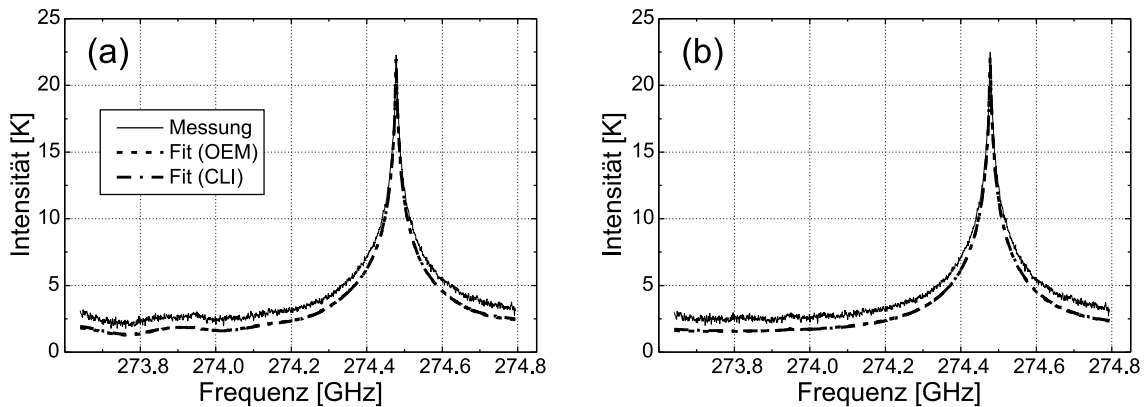


Abb. 6.8: Am 19. Februar 1996 bei 274 GHz gemessenes Ozonspektrum vor (a) und nach (b) der Korrektur um drei Stehwellen

etwas größer als bei der 273,051-GHz-Linie, aber immer noch als recht gering einzustufen.

Am Tag dieser Messung lag Kiruna innerhalb des polaren Vortex (Abbildung 6.3). Die deutlich geringeren Mischungsverhältnisse von Ozon im Vergleich zum Startprofil im Höhenbereich oberhalb von 25 km sind eine Folge der Isolation und des Absinkens der Luftmassen innerhalb des Vortex. Während dieses Zeitraums lagen die Temperaturen über Kiruna ständig unter 195 K, und ein Vergleich mit Trajektorien zeigt, daß das Luftpaket, das am 19. Februar über Kiruna zog, schon mindestens drei Tage Temperaturen von deutlich unter 195 K ausgesetzt war. Für das an diesem Tag beobachtete Luftpaket bestand demnach schon seit einigen Tagen die Möglichkeit für Kontakt mit PSCs. Messungen mit dem vom IMK betriebenen FTIR ergaben daher auch deutlich reduzierte Säulengehalte von ClONO_2 (siehe [42]), was ein starker Hinweis auf Vorkonditionierung des Polarwirbels ist (vgl. Abschnitt 2.3.2). Ein Blick auf die Mischungsverhältnisse von Ozon in etwa 20 km Höhe (≈ 3 ppmv) zeigt jedoch, daß es Mitte Februar noch keinen signifikanten Ozonabbau gab. Dies dürfte hauptsächlich an der zu diesem Zeitpunkt noch zu geringen Sonneneinstrahlung liegen, die für die Freisetzung von reaktivem Chlor nach den Gleichungen 2.11 und 2.12 Voraussetzung ist.

Die Averaging Kernels sind in Abbildung 6.9(b) und die Höhenauflösung in Abbildung 6.10(a) dargestellt. Die vertikale Auflösung beträgt hier im Höhenbereich von ca. 19 km bis 30 km nur noch etwa 10 km und verschlechtert sich zu größeren Höhen hin wie bei der 273,051-GHz-Linie deutlich. Die scheinbare Verbesserung der Höhenauflösung unterhalb von 19 km ist auch hier ein aus dem geringen Informationsgehalt des Spektrums für den unteren Höhenbereich resultierendes Artefakt.

Abbildung 6.10(b) zeigt das Residuum aus Messung und Vorwärtsrechnung. Auf-

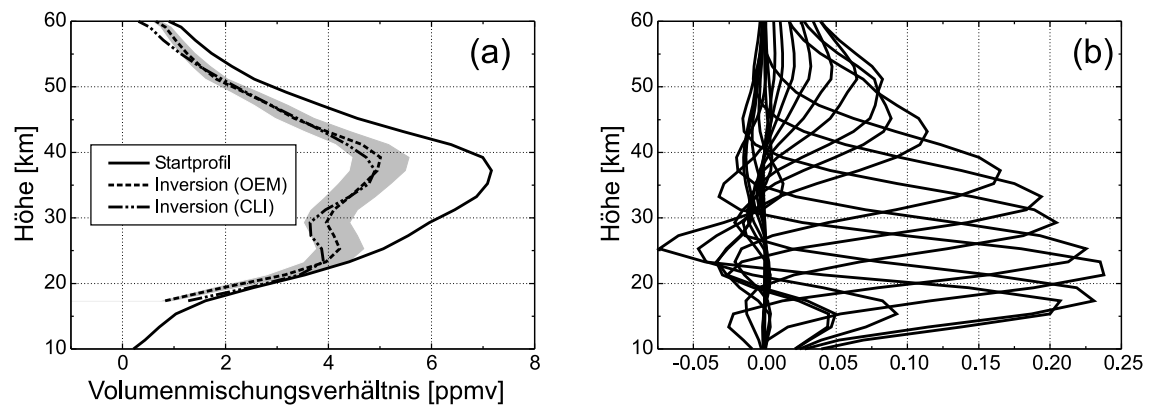


Abb. 6.9: (a) Mit der Optimal Estimation Methode bzw. Tikhonov-Phillips-Regularisierung invertierte Ozonprofile vom 19. Februar 1996
(b) Averaging Kernels der Inversion mit der Optimal Estimation Methode

grund des durch die kürzere Integrationszeit bedingten stärkeren Rauschens tritt hier die Restwelligkeit im Vergleich zum Residuum der 273,051 GHz-Messung (Abbildung 6.7) nicht so deutlich hervor.

6.1.3 Chlormonoxid

Die ClO-Signatur bei 278,631 GHz besteht aus einer ganzen Gruppe von Linien, die das Resultat von Feinstruktur-, Hyperfeinstruktur- und Zeemanaufspaltung sind. Aufgrund der Verbreiterungsmechanismen in der Atmosphäre erscheint die ClO-Signatur jedoch in den gemessenen Spektren als eine einzige sehr schwache Linie. Die Abbildungen 6.11(a) und (b) zeigen ClO-Messungen aus der Nacht vom 1. zum 2. März und vom 2. März, die unter einem Elevationswinkel von 22° bzw. 25° gemessen wurden. Aufgrund der geringen Stärke der in diesem Frequenzbereich vorhandenen Ozon- und ClO-Linien treten Stehwellen hier im Vergleich zu den bisher gezeigten Spektren deutlich in den Vordergrund. Auch weisen die Spektren eine aus der Troposphärenkorrektur resultierende deutliche Neigung auf, die jedoch bei der weiteren Auswertung nicht weiter stört, da sie bei der Inversion leicht angepaßt werden kann. Die Stehwellen können mit den in den Abschnitten 5.3.6 und 5.4 besprochenen Methoden angepaßt und nach erfolgreicher Inversion von den Spektren subtrahiert werden. Die Abbildungen 6.11(c) und (d) zeigen die um Hang und acht Stehwellen korrigierten Spektren, in denen die vorhandenen Signaturen deutlicher zu sehen sind. Auffällig ist auch der Unterschied zwischen der Nacht- und der Tagesmessung, der auf den Tagesgang von ClO zurückzuführen ist (bei genauem Hinsehen kann dieses auch schon in den unkorrigierten Spektren ausgemacht

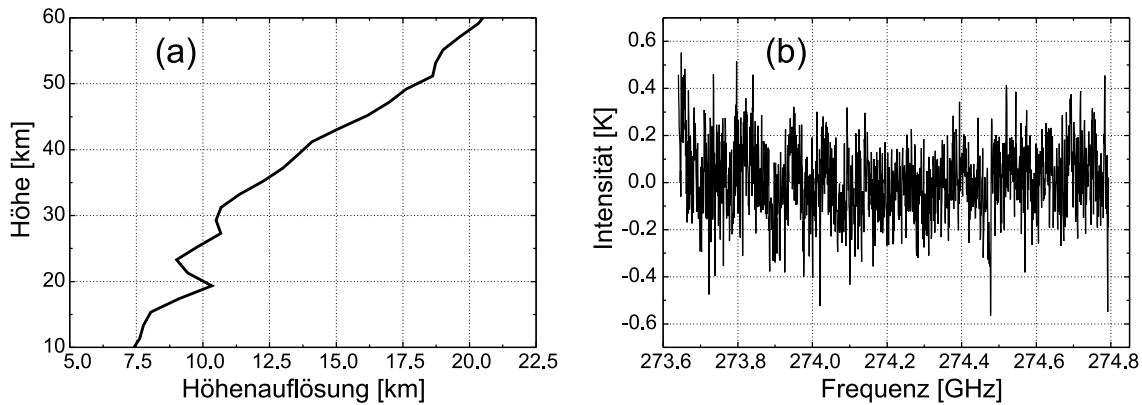


Abb. 6.10: Höhengauflösung (a) und Residuum (b) der Ozonmessung an der 274,478 GHz-Linie

werden). Weiterhin ist auch ein schwacher Rest der Ozonlinie bei 274,478 GHz aus dem unteren Seitenband zu sehen, der durch eine nicht vollständige Unterdrückung durch das Seitenbandfilter zustande kommt.

In den Abbildungen 6.12 sind die mittels gemeinsamer Inversion mit der Optimal Estimation Methode gewonnenen Höhenprofile von Ozon und ClO dargestellt.⁸ Es ist zunächst auffällig, daß die Ozonprofile keinen ausgeprägten Tagesgang aufweisen, während die ClO-Profile vor allem in ca. 20 km Höhe aufgrund der Bildung des ClO-Dimers in der Nacht und dessen Photolyse am Tage (Gleichungen 2.14 und 2.15) eine starke tageszeitliche Variation zeigen. Die erhöhten ClO-Werte oberhalb 20 km Höhe beim Nachtprofil sind eine Folge der langen Integrationszeit bis nach Sonnenaufgang (Zeitangaben in Ortszeit). Bemerkenswert sind auch die außerordentlich hohen ClO-Volumenmischungsverhältnisse von etwas über 2,5 ppbv in 19 km Höhe im Tagesprofil,⁹ die sich mit den anderen in Schaubild 6.12(d) eingezeichneten Meßwerten anderer Gruppen weitestgehend decken. Urban [56] erhielt mit dem flugzeuggetragenen Submillimeterwellenradiometer ASUR (Airborne Submillimeter Radiometer) $\approx 2,1$ ppbv ClO in 20 km Höhe bei $70,3^\circ$ N und $23,1^\circ$ O am 1. März 1996. Messungen des Microwave Limb Sounders (MLS, [51], [58]) ergaben

⁸Eine Inversion mit der Tikhonov-Phillips-Regularisierung ist prinzipiell auch möglich, jedoch zeigen die so invertierten Höhenprofile unterhalb von etwa 17 km und oberhalb von etwa 55 km oft unsinnige Werte, da hier, wie schon mehrfach erwähnt, der Informationsgehalt der Spektren zu gering ist. Es erscheint deshalb sinnvoll, in diesen Höhenbereichen das invertierte Profil sehr stark mit dem a priori-Profil zu gewichten, weshalb bei der ClO-Auswertung der Optimal Estimation Methode gegenüber der Tikhonov-Phillips-Regularisierung der Vorzug gegeben wird.

⁹Zum Vergleich: Bei vollständiger Chloraktivierung, d. h. wenn sämtliches in der unteren Stratosphäre vorhandene Chlor in Form von ClO vorliegen würde, erhielte man nach der World Meteorological Organization [59] einen Wert von etwa 3,5 ppbv.

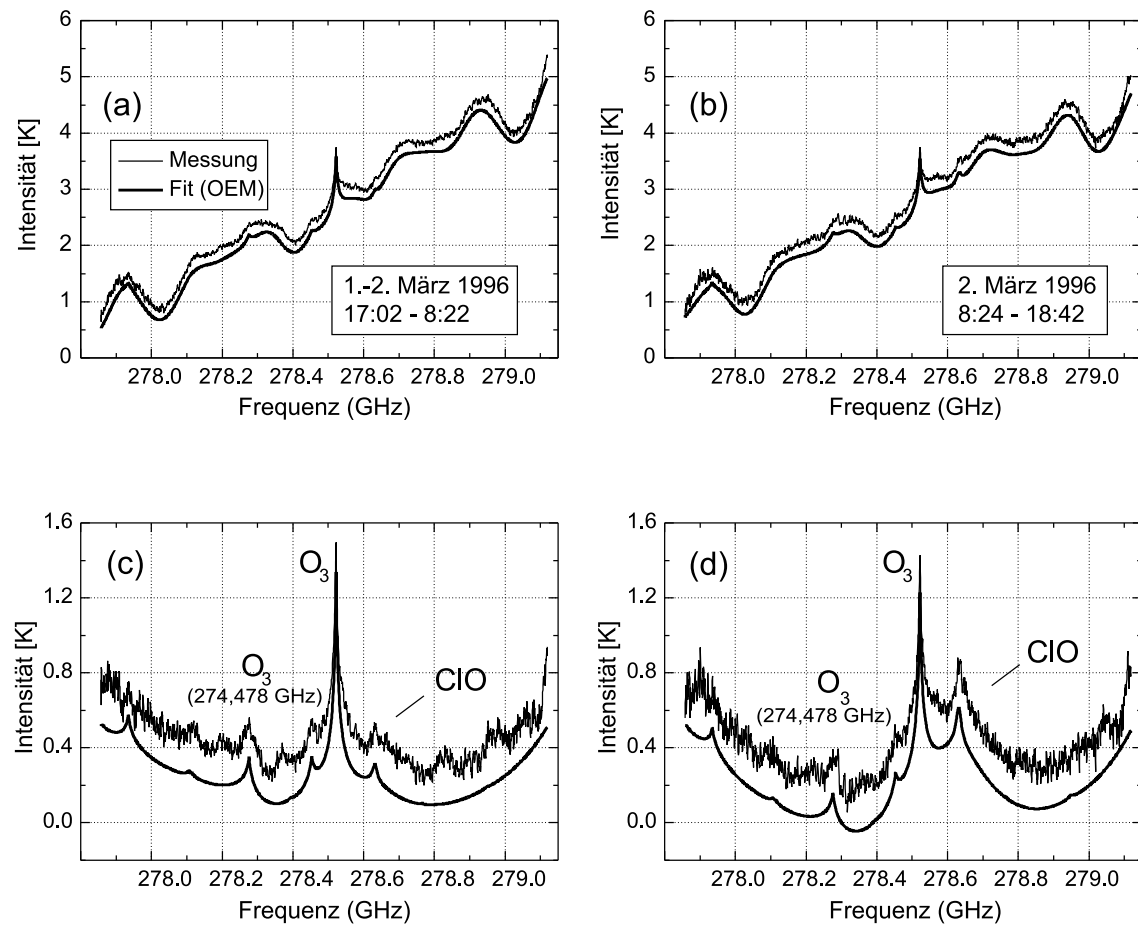


Abb. 6.11: ClO-Messungen vom 1. und 2. März 1996. In (a) ist das unkorrigierte Spektrum der Nachtmessung und in (b) das der Tagesmessung gezeigt. Nach der Korrektur um Stehwellen und Hang ergeben sich die in (c) und (d) dargestellten Spektren. Der besseren Übersicht wegen wurden die angepaßten Spektren etwas gegen die gemessenen vertikal verschoben

einen Wert von 1,7 ppbv in 22 km Höhe in der gleichen Region zwischen dem 29. Februar und 4. März. Die etwas höheren von MIRA 2 gemessenen Werte könnten durch eine nichtangepaßte langperiodische Stehwelle erklärt werden. Oberhalb von 30 km stimmen die Messungen recht gut überein. Ein Vergleich mit dem Nachtprofil in Abbildung 6.12(b) zeigt eine leichte tageszeitliche Variation auch des oberen Maximums, die von der Photolyse des Chlornitrats gemäß Gleichung 2.7 nach Sonnenaufgang herrührt.

Für den Zeitraum um den 2. März waren hohe Werte der potentiellen Vorticity typisch für Kiruna. Am 2. März selbst sank die Temperatur auf der 475 K Isentrophenfläche über Kiruna unter 195 K (Abbildung 6.3). Eine Analyse der Trajektorien ergab (siehe [42]), daß die an diesem Tag beobachteten Luftmassen direkt aus dem Zentrum des Vortex stammen und tags zuvor Kontakt mit PSCs möglich war. Dies erklärt zusammen mit der um diese Zeit schon stärkeren Sonneneinstrahlung die sehr starke Chloraktivierung über Kiruna.

Zu erwähnen wäre noch, daß als a priori-Profil die Startprofile dienten, weshalb die tageszeitliche Variation in den invertierten ClO-Profilen tatsächlich aus Informationen in den Spektren herrührt und nicht durch Verwendung unterschiedlicher a priori-Profilen der Inversion quasi aufgezwungen wurde.

Abbildung 6.13 zeigt die Averaging Kernels der Auswertung mit der Optimal Estimation Methode. Auffällig ist insbesondere bei Ozon, daß Störungen in Höhenbereichen um 26 km Höhe sich sehr stark auf andere Höhenschichten auswirken. Vermutlich ist dies auf Korrelationen zwischen dem aus dieser Messung invertierten Ozon- und ClO-Profil zurückzuführen. Dies macht sich in der Höhenauflösung als scharfe Spitze bemerkbar, wie Abbildung 6.14(a) zeigt. Für Ozon wird die beste Auflösung um 20 km Höhe mit 10 km erreicht, die Höhenauflösung von ClO variiert zwischen 10 und 24 km. Im Residuum (Abbildung 6.14(b)) sind kaum noch Undulationen zu erkennen, was auf die Anpassung von acht Stehwellen bei der Inversion zurückzuführen ist.¹⁰

Offen ist noch die Frage, wie sich die Anpassung der Stehwellen im invertierten Profil auswirkt. Zur Klärung dieser Frage wurden auf ein vorwärts gerechnetes Spektrum für eine Messung unter 90° Elevation Rauschen mit einer Rauschamplitude von 0,02 K/MHz und 13 Stehwellen, davon acht mit den Perioden aus der Stehwellenanpassung der ClO-Messung vom 1. auf den 2. März, addiert und das Spektrum in der Frequenz um 0,5 MHz verschoben (Abbildung 6.15).

Dieses gestörte Spektrum wurde nun wie ein gemessenes Spektrum ausgewertet, d. h. es wurden erst die Perioden der Stehwellen gemäß der in Abschnitt 5.4 beschriebenen Methode bestimmt und dann eine gleichzeitige Inversion von Ozon und ClO bei Anpassung von acht Stehwellen und unter Verwendung der Startprofile

¹⁰Wie auch bei allen anderen Spurengasen wurden bei späteren Meßkampagnen aufgrund der geänderten Gerätebaseline sukzessive immer weniger Stehwellen bei der Inversion angepaßt.

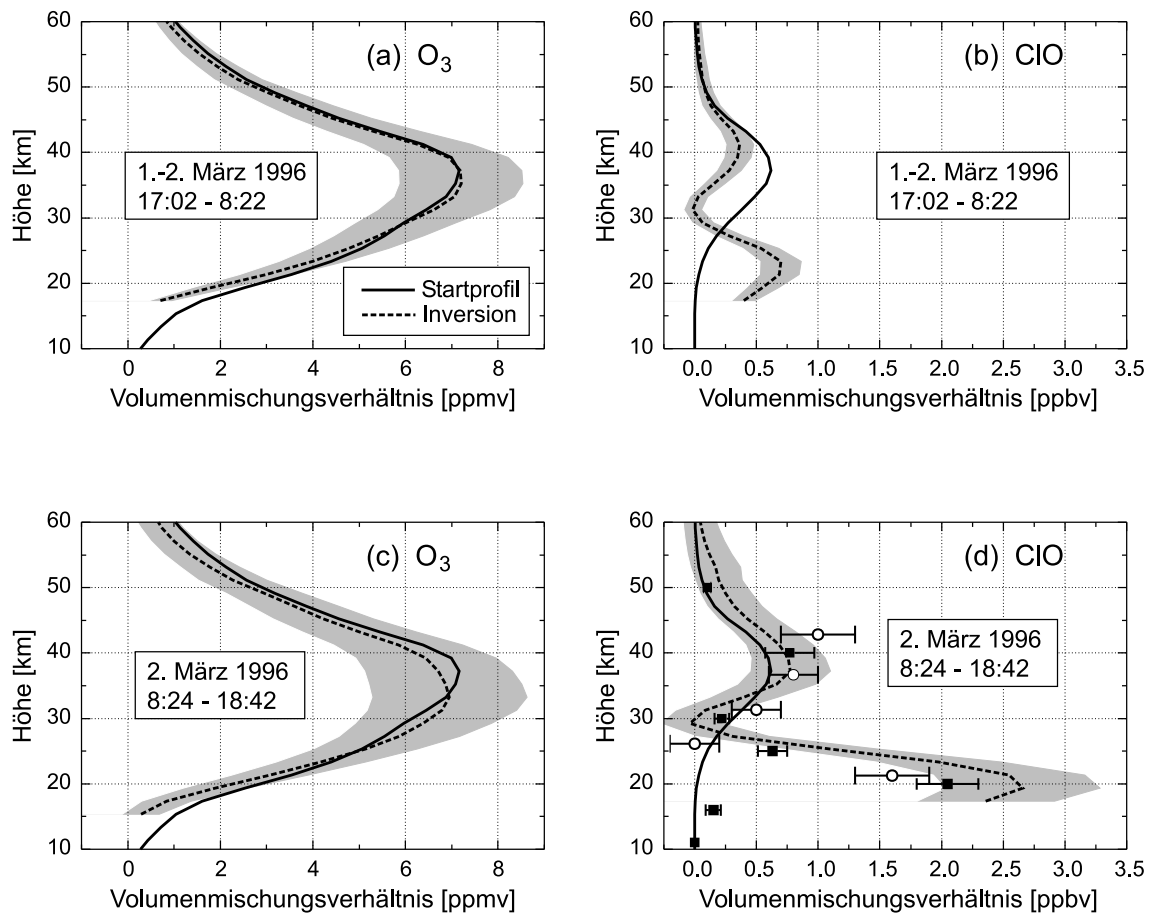


Abb. 6.12: Aus den in Abbildung 6.11 gezeigten Spektren invertierte Höhenprofile von Ozon ((a) und (c)) und ClO ((b) und (d)). In (d) sind zusätzlich noch Meßwerte des flugzeuggetragenen Submillimeterwellenradiometers ASUR (ausgefüllte Quadrate) und des Microwave Limb Sounders (Kreise) eingezeichnet

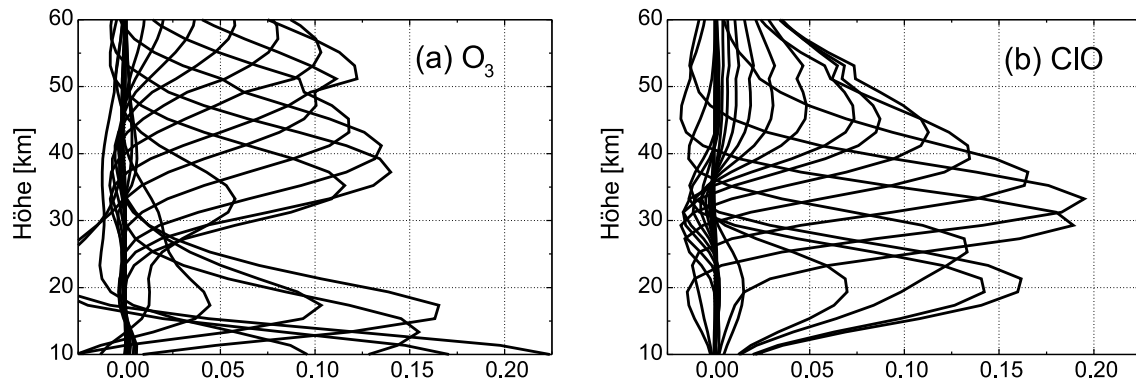


Abb. 6.13: Averaging Kernels der Messung vom 2. März 1996 für Ozon (a) und für ClO (b)

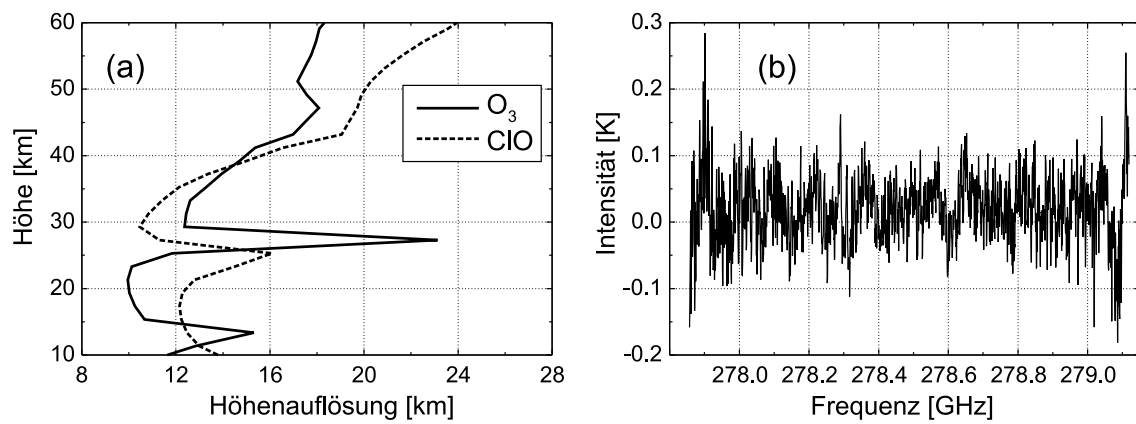


Abb. 6.14: Höhenauflösung (a) und Residuum (b) der Messung vom 2. März 1996

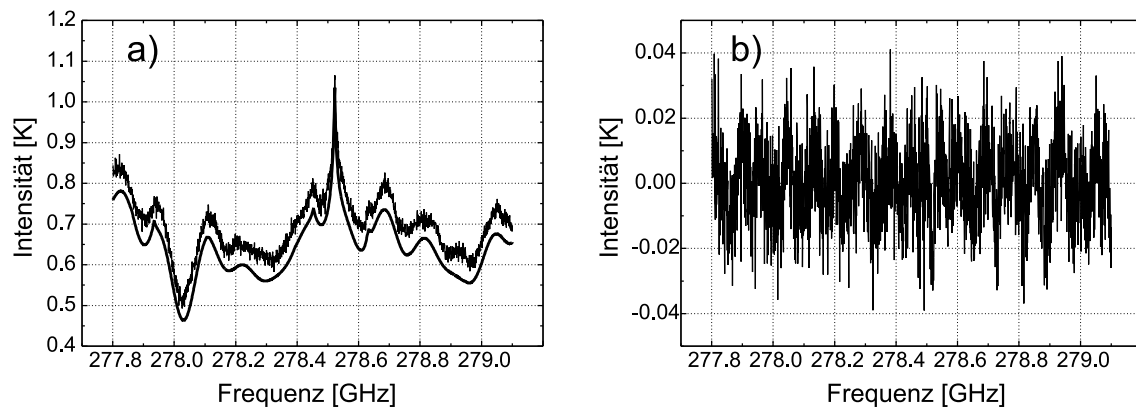


Abb. 6.15: (a) Synthetisches ClO-Spektrum mit stehenden Wellen, Rauschen und Frequenzshift. Die glatte Linie ist das Ergebnis der Inversionsrechnung mit Anpassung der stehenden Wellen
 (b) Residuum aus synthetischem Spektrum und Vorwärtsrechnung nach der Inversion

als a priori-Profil durchgeführt. Die so erhaltenen Ozon- und ClO-Profil sind in den Abbildungen 6.16(a) und (b) zu sehen. Das invertierte Ozonprofil weist eine Abweichung vom wahren Ozonprofil von bis zu 2 ppmv im Höhenbereich um 30 km auf. Hieran wird deutlich, daß für hochaufgelöste Ozonmessungen die starken Linien bei 273,051 GHz oder 274,475 GHz herangezogen werden sollten.¹¹ Das invertierte ClO-Profil weicht in 20 km Höhe um etwa 0,5 ppbv vom wahren ClO-Profil ab, in größeren Höhen werden die Unterschiede geringer. Es ist aber insgesamt im sensitiven Höhenbereich eine Verschiebung des invertierten Profils in Richtung etwas niedrigerer Höhen zu beobachten.

6.1.4 Distickstoffoxid

Bei einer Frequenz von 276,328 GHz findet sich eine relativ starke Signatur von Distickstoffoxid (N_2O). Da N_2O sich jedoch hauptsächlich in der unteren Stratosphäre und Troposphäre befindet, ist die Signatur sehr stark druckverbreitert und deshalb schwer zu detektieren. Darüberhinaus befindet sich eine stärkere Ozonsignatur bei 276,924 GHz, die sich der N_2O -Signatur überlagert. Zur Auswertung von N_2O wird deshalb ebenfalls Ozon gleichzeitig invertiert.

¹¹Bei späteren Meßkampagnen wurden gar Profile aus Messungen an diesen starken Linien als a priori-Ozonprofile für die Auswertung von am gleichen Tag gemessenen ClO-Spektren verwendet, was sich in einer genaueren Bestimmung der Perioden der Stehwellen und damit in einem besseren Inversionsergebnis für ClO niederschlagen sollte.

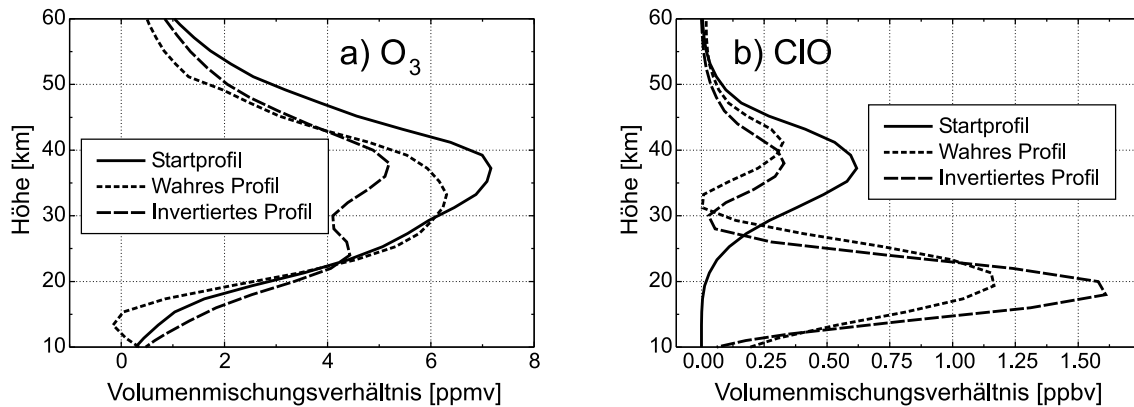


Abb. 6.16: Invertierte Profile von Ozon (a) und ClO (b) im Vergleich zu den Startprofilen und den Profilen, die zur Erzeugung des synthetischen Spektrums verwendet wurden

In den Abbildungen 6.17(a) und (b) ist ein am 31. März 1996 unter einer Elevation von 35° gemessenes N₂O-Spektrum zusammen mit den bei der Inversion angepaßten Spektren vor bzw. nach der Korrektur um sieben Stehwellen gezeigt. Zu beachten ist auch, daß hier der troposphärische Sockel erst bei der Inversion angepaßt wurde und deshalb in den Spektren noch zu sehen ist.

Die invertierten Höhenprofile von Ozon und N₂O sind in den Abbildungen 6.18(a) und (b) gezeigt. Die invertierten Ozonprofile besitzen etwa 30% kleinere Mischungsverhältnisse als das Startprofil. Zum Vergleich sind auch die Daten eines Ozonsondenaufstiegs in Sodankylä ($67,4^\circ$ N, $26,7^\circ$ O), Finnland, vom 30. März mit eingezeichnet und es zeigt sich eine gute Übereinstimmung.

Aufgrund der endlichen Bandbreite von MIRA 2 ($\approx 1,2$ GHz) befindet sich in den gemessenen Spektren nur wenig Information über die Troposphäre. In diesem Höhenbereich werden die invertierten N₂O-Profile von der a priori-Information dominiert. Es läßt sich aber anhand dieser Profile eindeutig sagen, daß dieser inerte Tracer schon so weit abgesunken war, daß oberhalb von 25 km kaum noch N₂O vorhanden war. Kiruna lag zu dieser Zeit innerhalb des polaren Vortex (Abbildung 6.3), was dieses Absinken erklärt.

Die aus der Inversion mit der Optimal Estimation Methode resultierenden Averaging Kernels sind in den Abbildungen 6.19 gezeigt. Ähnlich wie bei ClO gibt es auch hier einen Höhenbereich um 20 km Höhe, in dem sich Störungen sehr stark in anderen Höhenbereichen auswirken. Dies dürfte wie bei den ClO-Messungen durch Korrelationen zwischen den beiden zu invertierenden Spurengasen verursacht worden sein.

Die aus den Averaging Kernels berechnete Höhenauflösung ist in Abbildung

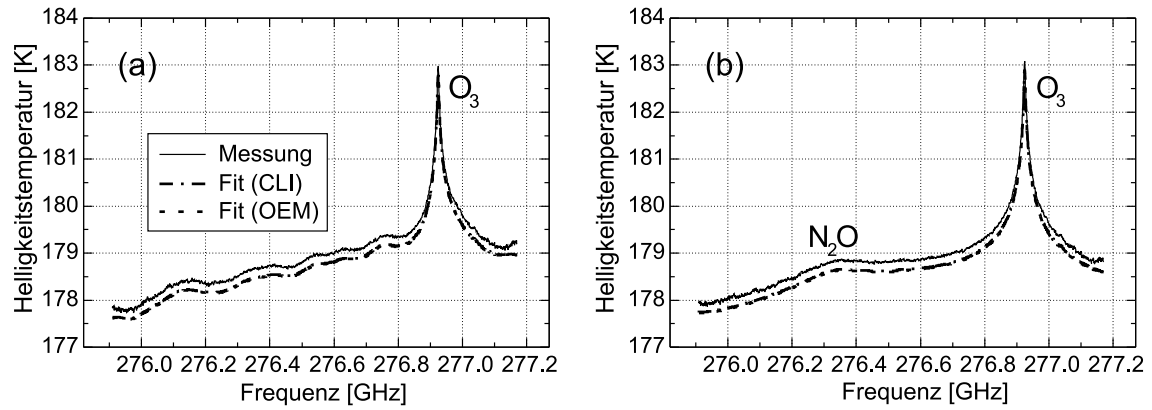


Abb. 6.17: Am 31. März 1996 gemessenes N_2O -Spektrum und angepaßte Spektren vor (a) und nach (b) der Korrektur um sieben Stehwellen

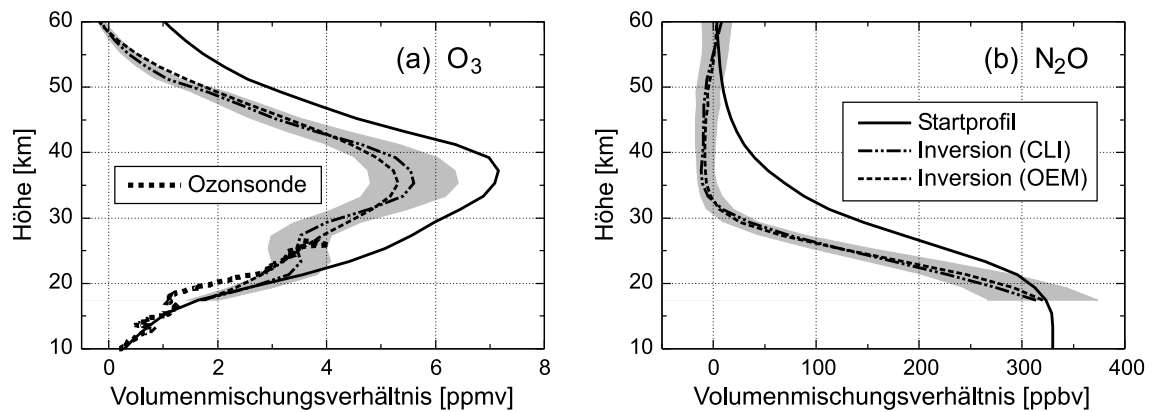


Abb. 6.18: Profile von Ozon (a) und N_2O (b) vom 31. März 1996, gewonnen durch gleichzeitige Inversion. In (a) sind noch zum Vergleich die Ergebnisse eines Ozonsondenaufstiegs vom 30. März 1996 eingezeichnet

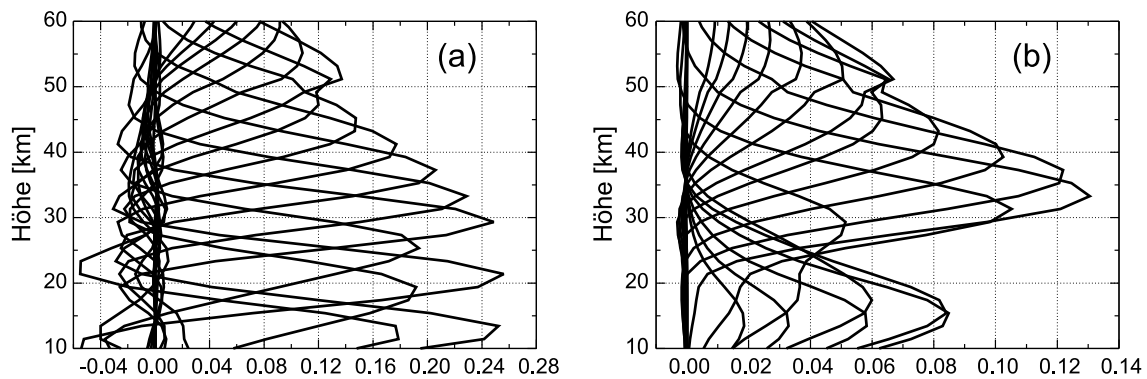


Abb. 6.19: Averaging kernels von Ozon (a) und N₂O (b) der Messung vom 31. März

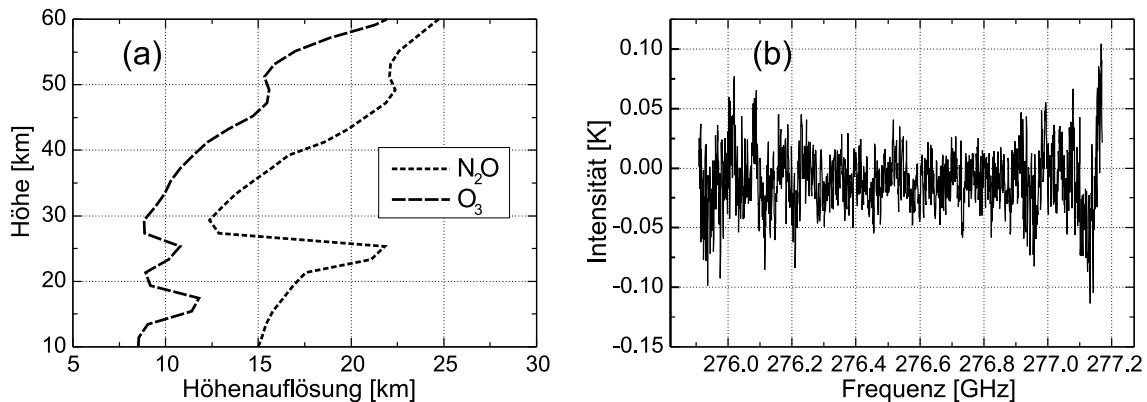


Abb. 6.20: Höhenauflösung (a) und Residuum (b) der N₂O-Messung vom 31. März

6.20(a) gezeigt. Für Ozon erhält man in der unteren Stratosphäre einen Wert von etwa 10 km, zu größeren Höhen hin verschlechtert sich die Auflösung auf etwa 22 km in 60 km Höhe. Aufgrund der schwächeren Signatur ist die Höhenauflösung von N₂O mit Werten zwischen 12 und 25 km deutlich schlechter. In Abbildung 6.20(b) ist das Residuum aus Messung und Vorwärtsrechnung bei der Inversion zu sehen. Es zeigt nur noch eine geringe Restwelligkeit und den typischen Anstieg der Rauschamplitude zum Rande des Spektrums hin.

6.1.5 Salpetersäure

Salpetersäure (HNO₃) hat zahlreiche Linien um 269,4 GHz, die aufgrund der Druckverbreiterung zu einer einzigen breiten Signatur verschmelzen. Bei 268,665 GHz befindet sich noch zusätzlich eine Ozonlinie, weshalb bei der Auswertung auch hier

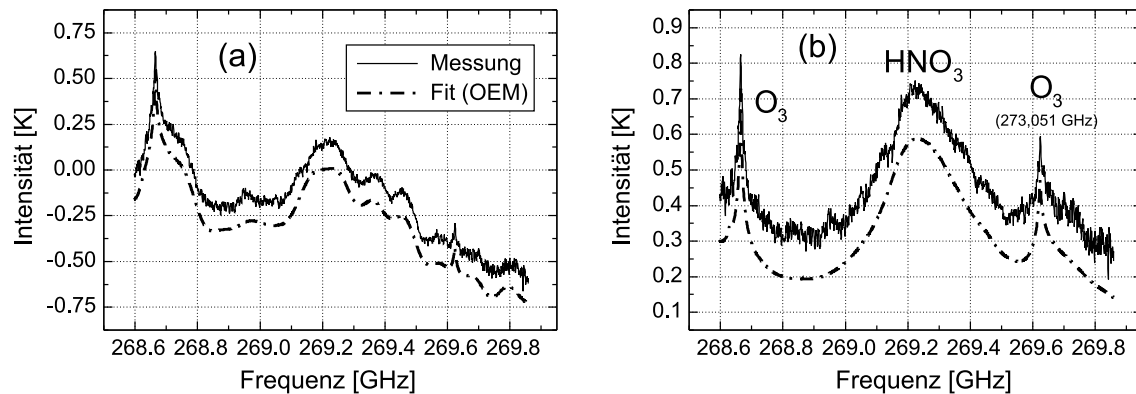


Abb. 6.21: Am 20. März 1996 gemessenes HNO_3 -Spektrum vor (a) und nach (b) der Korrektur um sieben Stehwellen

Ozon gemeinsam mit dem anderen Konstituenten invertiert wird. Abbildung 6.21 zeigt ein am 20. März 1996 unter einem Elevationswinkel von 14° gemessenes HNO_3 -Spektrum vor (a) und nach (b) der Korrektur um acht Stehwellen. Aufgrund der Filtercharakteristik des Seitenbandfilters findet sich in diesem Spektrum ein Rest der Ozonlinie bei 273,051 GHz aus dem oberen Seitenband, der bei der Inversion mit berücksichtigt werden muß.

Das mit der Optimal Estimation Methode invertierte Ozon- und HNO_3 -Profil ist in Abbildung 6.22(a) und (b) gezeigt. Das Ozonprofil hat bedingt durch die sehr starke Temperaturabhängigkeit der Ozonlinie bei 268,665 GHz und den dadurch verursachten großen Fehler bei ungenauer Kenntnis der Stratosphärentemperatur (siehe Tabelle 6.1) einen sehr großen Fehlerbereich.

Das Profil von HNO_3 weist ein leichtes Absinken gegenüber dem Startprofil, jedoch keine stärkeren Verluste durch Denitrifizierung auf, was in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Richter [42] für diesen Zeitraum steht. Kiruna lag zu dieser Zeit innerhalb des polaren Vortex, jedoch war es zu warm für die Bildung von PSCs (Abbildung 6.3).

Die Averaging Kernels dieser Inversion sind in Abbildung 6.23 zu sehen. Sie zeigen die schon bei den anderen Spurengasen durch gegenseitige Korrelationen verursachten „Sattelpunkte“, also Höhenbereiche, in denen sich Störungen sehr stark in anderen Höhen bemerkbar machen. Dadurch zeigen sich auch in der aus den Averaging Kernels berechneten Höhenauflösung die schon bekannten scharfen Zacken (Abbildung 6.24 (a)). Läßt man diese Zacken einmal außer Acht, ergibt sich für Ozon eine Höhenauflösung von etwa 10 bis 20 km und für HNO_3 von ungefähr 12 bis 24 km. Das Residuum aus gemessenem Spektrum und Anpassung ist in Abbildung 6.24 (b) zu sehen.

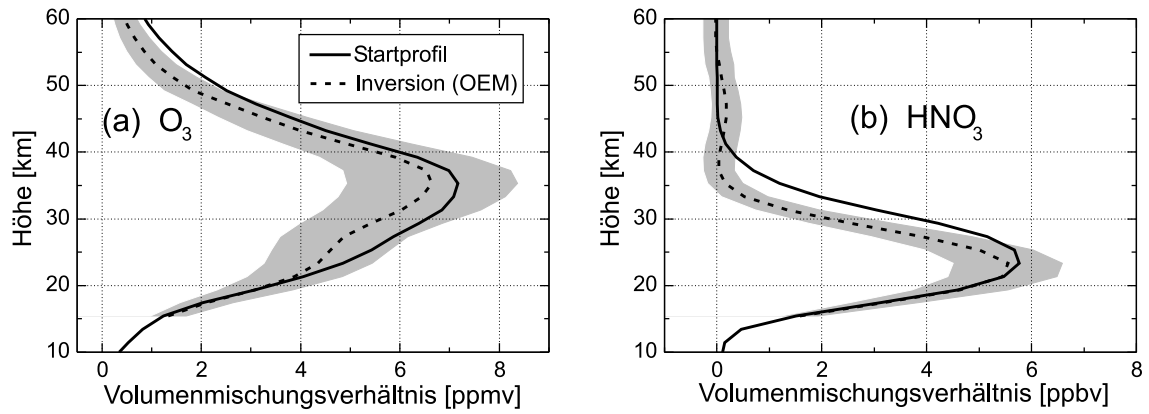


Abb. 6.22: Profil von Ozon (a) und HNO₃ (b) vom 20. März, gewonnen durch gleichzeitige Inversion mit der Optimal Estimation Methode

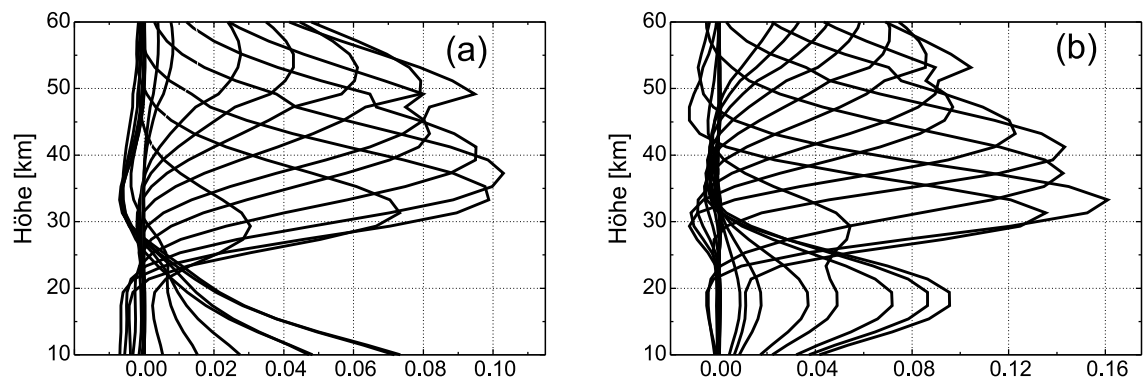


Abb. 6.23: Averaging Kernels von Ozon (a) und HNO₃ (b) der Messung vom 20. März

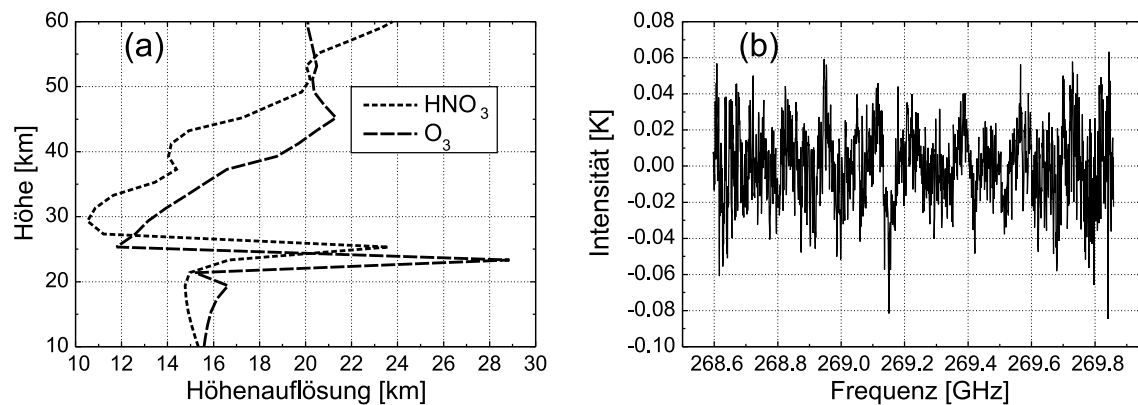


Abb. 6.24: Höhenauflösung (a) und Residuum (b) der HNO₃-Messung vom 20. März

6.2 Die Meßkampagne 1997 in Ny-Ålesund

Die Meßkampagne im März 1997 fand in der Arktisstation in Ny-Ålesund auf Spitzbergen statt, die Teil des Network for the Detection of Stratospheric Change (ND-SC) ist. Bei dieser Kampagne sollten insgesamt vier von weltweit acht existierenden bodengebundenen ClO-Radiometern verglichen werden, die von Gruppen aus Deutschland, Japan und den Vereinigten Staaten von Amerika gebaut und betreut wurden. Neben MIRA 2 waren dort das RAM (Radiometer for Atmospheric Measurements) des Instituts für Umwelphysik (IUP) der Universität Bremen, das ebenfalls einen Schottky-Mischer benutzt, ein Gerät der Communications Research Laboratories (CRL) in Tokyo und das Gerät des Department of Physics der State University of New York at Stony Brook (SUNY). Die beiden letztgenannten Geräte verwenden rauscharme SIS (Superconductor-Insulator-Superconductor)-Mischertechnologie. Zur Kalibrierung wird vom IUP und von SUNY die externe Referenzstrahlmethode verwendet (siehe Abschnitt 4.3.2), CRL verwendet eine interne Kalibrationslast ähnlich MIRA 2.

Der Winter 1996/1997 zeichnete sich durch eine erst sehr spät einsetzende Bildung eines starken polaren Vortex aus, der dann allerdings bis in den Mai hinein stabil blieb (siehe die Abbildungen 6.1 und 6.2). Die ersten PSCs traten in diesem Winter erst im Januar auf, wurden dann aber bis in den März hinein beobachtet. Es wäre also über Ny-Ålesund in diesem Winter mit Chloraktivierung und damit mit einem Ozonabbau zu rechnen.

Das Radiometer MIRA 2 war im Zeitraum von 12. bis 31. März im Meßbetrieb und konnte nahezu kontinuierlich Chlormonoxid messen. Nur am 24. und 25. März wurden aufgrund der ungünstigen troposphärischen Bedingungen Ozonmessungen an der 274,478 GHz-Linie durchgeführt. Insgesamt gab es nur an zwei Tagen paral-

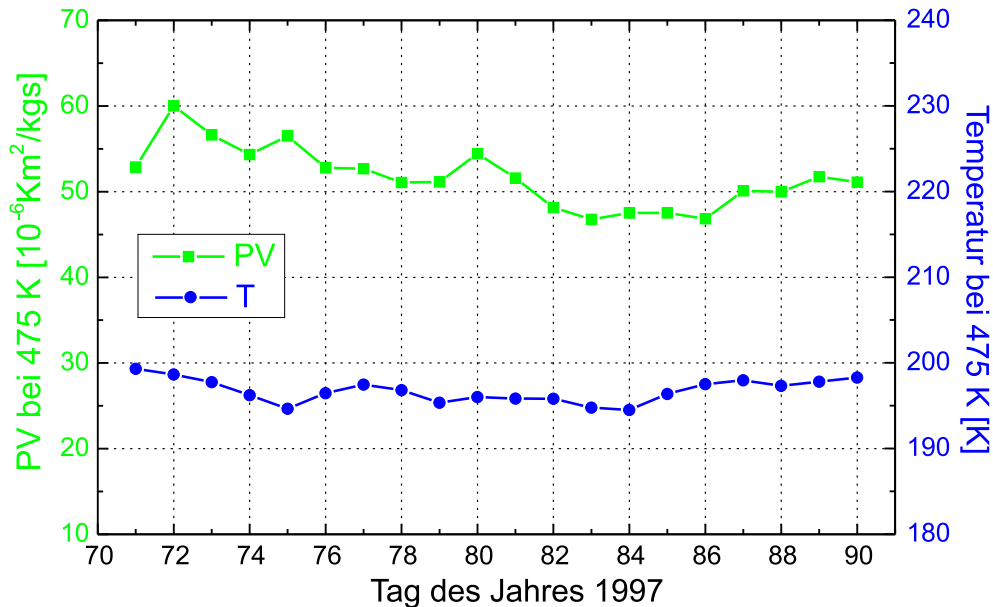


Abb. 6.25: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche über Ny-Ålesund während der Meßkampagne 1997 (ECMWF-Daten)

le Messungen von drei Radiometern.

Die Abbildung 6.25 zeigt die potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche über Ny-Ålesund für den Zeitraum, in dem MIRA 2 Messungen durchführte. Ny-Ålesund lag während dieser Zeit dauernd unter dem polaren Vortex und die Temperaturen erreichten einige Male die Grenztemperatur für die Bildung von PSCs vom Typ I.

Da die verschiedenen Gruppen unterschiedliche Strategien für die Inversion verfolgen, die zu Abweichungen in den invertierten Profilen führen können, wurde zunächst ein Vergleich der Spektren auf möglichst direktem Wege vorgenommen. Dazu berechnete jede Gruppe für ausgewählte Tage Tag-Nacht-Differenzen, nachdem die Spektren kalibriert, um troposphärische Einflüsse korrigiert und auf 90° Elevation umgerechnet wurden. An diese Spektren wurde dann mittels der Methode der kleinsten Quadrate ein vorwärts gerechnetes Spektrum angepaßt, indem das verwendete CIO-Profil geeignet skaliert wurde (siehe [17]). Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.26 zusammengefaßt. Die Fehlerbalken in dieser Abbildung sind die aus der Anpassung resultierenden 2σ -Standardabweichungen.

Es fällt auf, daß die Spektren von SUNY immer die höchsten Skalierungsfaktoren ergeben. Ansonsten decken sich die Skalierungsfaktoren von SUNY und IUP recht gut, während MIRA 2 außer am 17. März immer die niedrigsten Werte hat, die Gesamtentwicklung der Werte ansonsten aber weitestgehend parallel zu denen

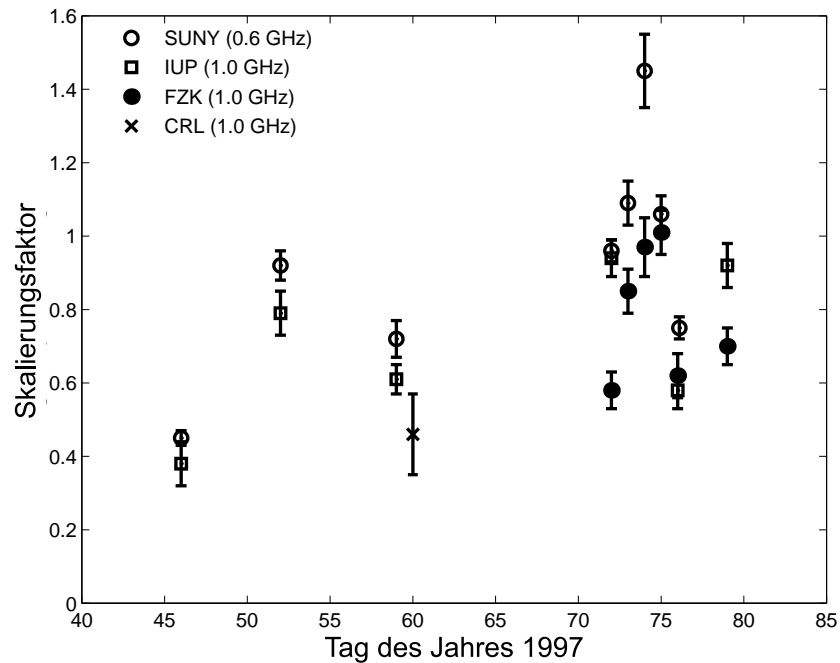


Abb. 6.26: Skalierungsfaktoren der verschiedenen CIO-Messungen in Ny-Ålesund 1997. Die Werte in Klammern in der Legende geben den für die Berechnung der Skalierungsfaktoren genutzten Frequenzbereich der einzelnen Instrumente an

der anderen Gruppen verläuft. Die Abweichungen betragen bis zu 40% zum Skalierungsfaktor von SUNY am 15. März. Die unterschiedlichen Bandbreiten der Radiometer können als Fehlerquelle ausgeschlossen werden, da eine Reduzierung aller Bandbreiten auf 0,6 GHz die Skalierungsfaktoren nur marginal änderte ([18]). Die systematischen Fehler können analog zu Abschnitt 6.1.1 abgeschätzt werden, da sie, wie dort schon erwähnt, zu einer Skalierung der gemessenen Spektren führen. In Frage kommen hierbei Fehler durch falsch angenommenen Elevationswinkel, ungenaue Kalibration und eine für die Troposphärenkorrektur falsch angenommene Temperatur der Troposphäre. Insgesamt erhält man so für die systematischen Fehler einen Wert von etwa 10% im Skalierungsfaktor. Die noch verbleibenden Abweichungen könnten durch die Baseline der Radiometer verursacht worden sein, jedoch ist eine endgültige Klärung aufgrund der nur wenigen gemeinsamen Meßtage recht schwierig (CRL konnte beispielsweise nur einen einzigen Meßpunkt beisteuern).

Abbildung 6.27 zeigt die komplette aus den MIRA 2-Messungen invertierte CIO-Zeitreihe im Vergleich zu Modellrechnungen des Karlsruhe Simulation Model of the

Middle Atmosphere, kurz KASIMA (siehe auch [21]). Dieses kombiniert Daten des ECMWF mit einem prognostischen Modell. Eine detaillierte Beschreibung ist in Kouker et al. [22] gegeben.

Sowohl Modell als auch Messung zeigen deutlich die tageszeitliche Variation des unteren ClO-Maximums, die von der Photolyse des ClO-Dimers herrührt (siehe Gleichung 2.15), wobei die MIRA 2-Messungen insbesondere Ende März die Tendenz zu eher höheren Mischungsverhältnissen zeigen. Die Ursachen dafür könnten in den Unsicherheiten der invertierten Profile begründet liegen. Eine weitere Erklärung wäre die begrenzte Modellauflösung von KASIMA von $5,6^\circ$, wodurch kleinskalige Effekte wie Leewellen, die zu einer zusätzlichen Chloraktivierung führen können, unberücksichtigt bleiben ([50]). Der größere Höhenbereich, über den sich die unteren Maxima aus den MIRA 2-Messungen erstrecken, beruht auf der begrenzten Höhengauflösung, die durch Messungen mit Millimeterwellenradiometern erreicht werden kann.

Neben der tageszeitlichen Variation des unteren Maximums fällt auch eine schwächere Variation auf, die sich über mehrere Tage erstreckt. Sowohl Modell als auch Messung weisen besonders hohe ClO-Mischungsverhältnisse zwischen den Tagen 72 bis 75 und um den Tag 80 auf. Abbildung 6.25 zeigt, daß die potentielle Vorticity über Ny-Ålesund an diesen Tagen überdurchschnittlich hohe Werte annahm. Der Meßort befand sich an diesen Tagen also tief im polaren Vortex, was diese höheren ClO-Werte erklärt. Diese Ergebnisse decken sich auch gut mit denen von Raffalski et al. ([40]), der für diese Zeiträume ebenfalls besonders hohe ClO-Werte fand.

Die Messungen von MIRA 2 können allerdings nicht den schwächeren Tagesgang des oberen Maximums, der von der Photolyse von Chlornitrat nach Gleichung 2.7 herrührt, klar auflösen, der bei KASIMA recht gut zu sehen ist.

Wie schon erwähnt waren am 24. und 25. März die troposphärischen Bedingungen für ClO-Messungen zu ungünstig, weshalb an diesen Tagen Ozon an der 274 GHz-Linie gemessen wurde. Die Abbildungen 6.28(a) und 6.28(b) zeigen die von MIRA 2 gemessenen Profile im Vergleich zu Messungen des RAM des IUP. Leider fanden an diesen Tagen keine Ozonsondenaufstiege über Ny-Ålesund statt, weshalb in diesen Abbildungen zeitlich möglichst nahegelegene Ozonsondenaufstiege mit abgebildet sind. Alle Messungen zeigen eine gute Übereinstimmung, wobei zu beachten ist, daß die sehr gute Höhengauflösung der Ozonsonden von den Millimeterwellenmessungen nicht erreicht wird. Außerdem scheinen die Profile des RAM stärker regularisiert zu sein, weswegen sie glatter als die MIRA 2-Profile sind und deshalb die etwas geringer werdenden Mischungsverhältnisse zwischen 25 und 30 km nicht auflösen.

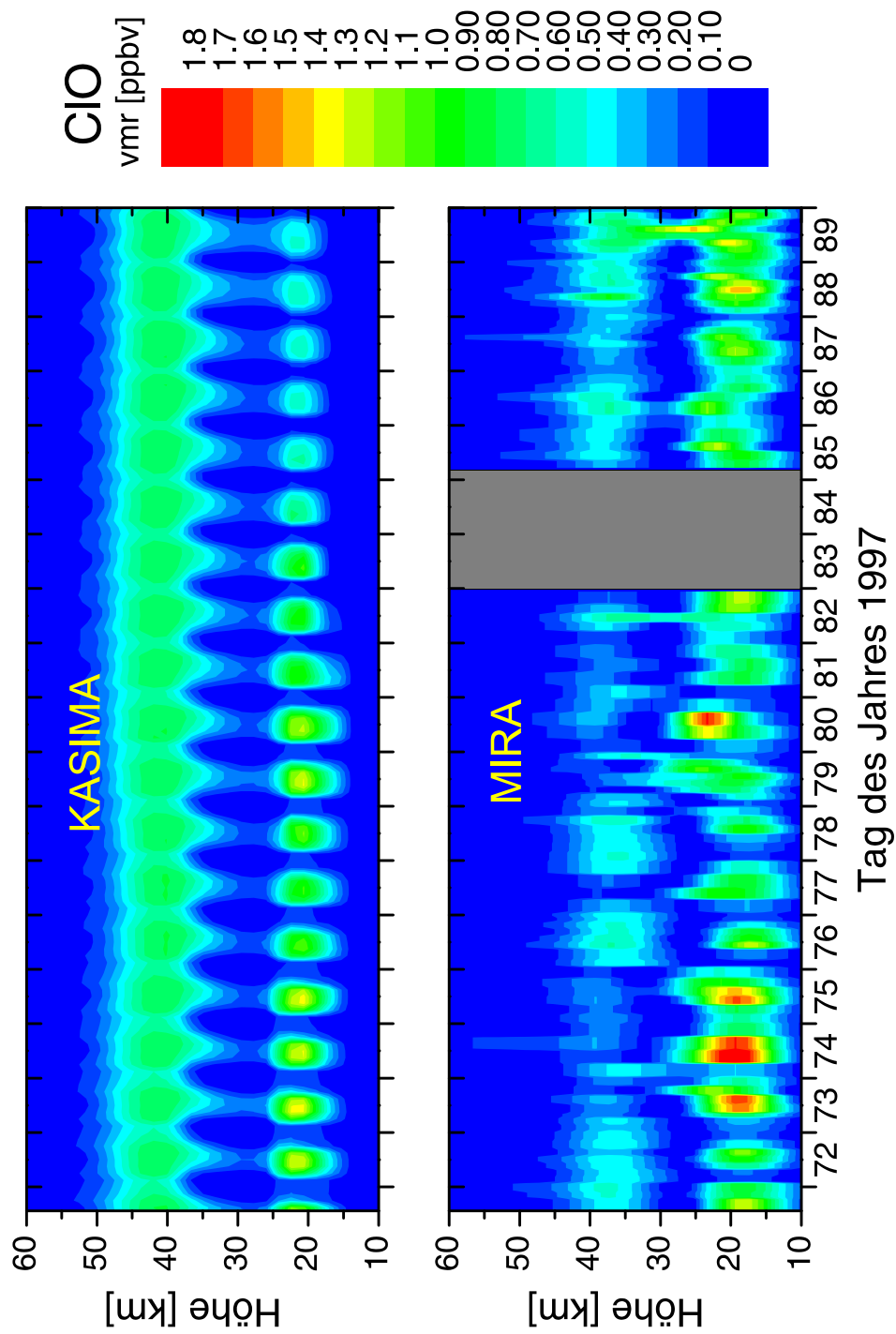


Abb. 6.27: Vergleich der CIO-Messungen von MIRA 2 1997 in Ny-Ålesund mit Modellrechnungen von KASIMA

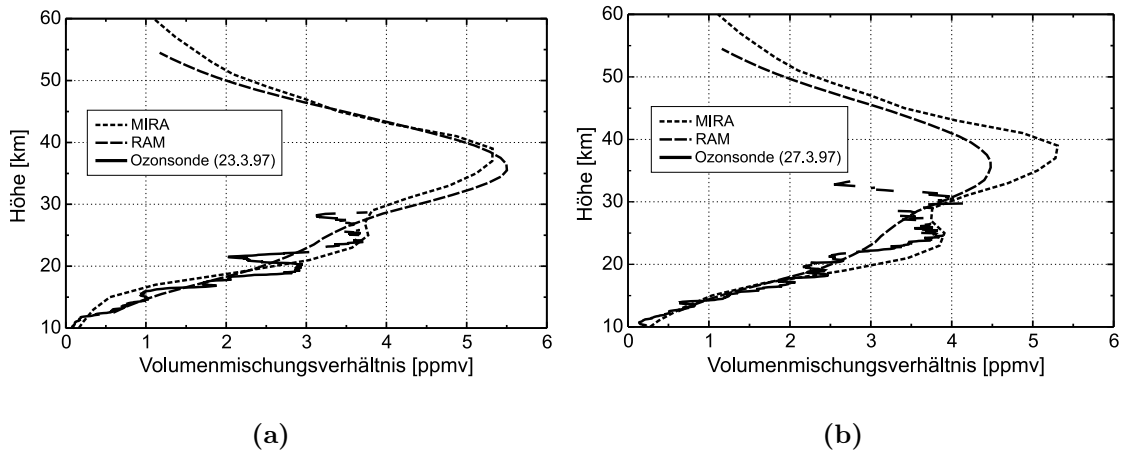


Abb. 6.28: Am 24. (a) und 25. (b) März 1997 von MIRA 2 und RAM in Ny-Ålesund gemessene Ozonprofile. Zum Vergleich sind noch die Ergebnisse zweier Ozonsondenaufstiege über Ny-Ålesund eingezeichnet

6.3 Die Meßkampagne 1998 in Kiruna

Die Meßkampagne der MIRA-Gruppe im Winter 1997/1998 fand wie auch die beiden darauffolgenden wieder im IRF in Kiruna statt. Der Meßbetrieb dauerte vom 26. Januar bis zum 3. April. Dieser Winter war ein eher warmer mit recht schwachem polarem Vortex, wie den Abbildungen 6.1 und 6.2 zu entnehmen ist. Es gab jedoch vier kurze Phasen im Dezember, Januar und Februar, in denen die minimale Temperatur im Vortex unter die Grenztemperatur für die Bildung von PSCs von 195 K gefallen ist. So konnten auch während der MIRA-Meßkampagne am 23. und 26. Januar sowie am 13. und 15. Februar PSCs über Kiruna beobachtet werden. Wie Abbildung 6.29 zeigt, lagen die Temperaturen auf der 475 K-Isentropenfläche über Kiruna an den beiden zuletzt genannten Tagen oberhalb der Grenztemperatur zur Bildung von PSCs, und auch Daten des NCEP deuten darauf hin, daß es an diesen Tagen eigentlich zu warm für PSCs war. Daß es dennoch zur Bildung von PSCs kam, kann durch Leewellen erklärt werden, die zu einer lokalen Abkühlung unter die Grenztemperatur führen können. Dafür spricht auch, daß die PSCs an diesen Tagen sehr lokal und nur schwach auftraten.

Bei dieser Kampagne wurde aufgrund nicht immer für ClO-Messungen geeigneter troposphärischer Bedingungen häufig Ozon an einer der beiden stärksten Linien gemessen. Die verbliebenen Lücken wurden wenn möglich mit Ozonprofilen aus N_2O -Messungen oder in seltenen Fällen, wenn keine andere Ozonmessung zur Verfügung stand, mit Ozonprofilen aus ClO-Messungen aufgefüllt. Die so erhaltene Zeitreihe wird in Abbildung 6.30 mit Messungen des FTIR (siehe dazu auch [12])

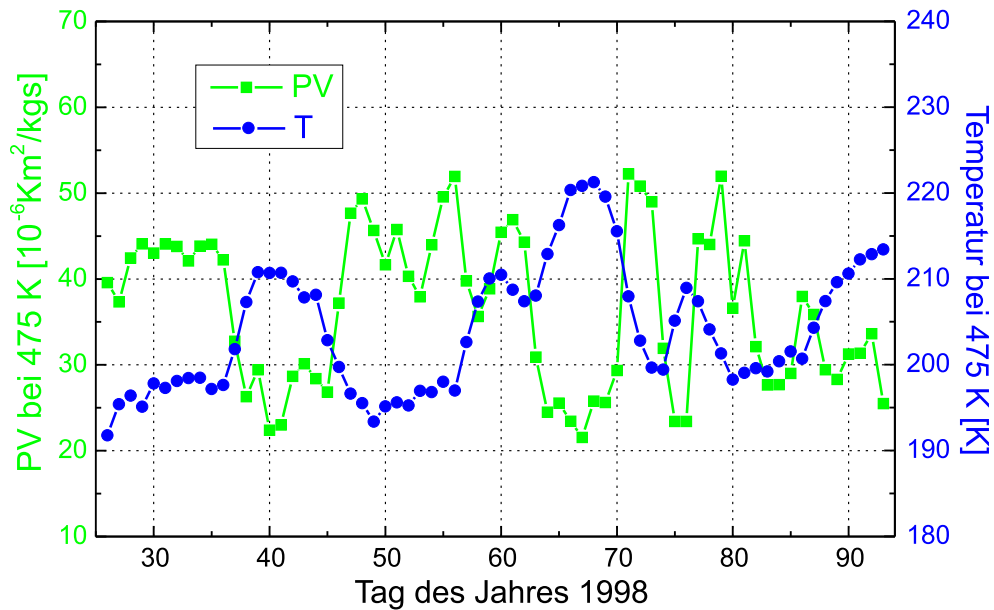


Abb. 6.29: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475-K-Isentropenfläche über Kiruna während der Meßkampagne 1998 (ECMWF-Daten)

und Modellrechnungen von KASIMA verglichen. Zunächst fällt auf, daß das FTIR die niedrigsten Mischungsverhältnisse für Ozon erhält, während MIRA 2 fast immer die größten Werte mißt (man beachte die unterschiedliche Skalierung der Farbpaletten). Die Modellrechnungen von KASIMA liegen ungefähr in der Mitte zwischen den beiden Meßreihen. Woher die systematischen Abweichungen zwischen MIRA 2 und FTIR, die immerhin ca. 30 % betragen, herrühren, konnte noch nicht geklärt werden. Durch systematische Fehler können bestenfalls ca. 10 bis 15 % Abweichung in den MIRA 2-Profilen erklärt werden (siehe dazu Abschnitt 6.1.1). Der Fehler der FTIR-Profile beträgt nach Hase ([12]) etwa 10 %. Eine mögliche Ursache für die noch verbleibende Differenz könnte eine Dejustage des Elevationsspiegels im Periskop von MIRA 2 gewesen sein, wodurch die gemessenen Spektren systematisch skaliert werden. Auch durch Stehwellen verursachte Effekte können nicht ganz ausgeschlossen werden, jedoch erscheint es ziemlich unwahrscheinlich, daß diese sich in fast allen Höhenschichten gleichermaßen auswirken.

Abgesehen von diesen systematischen Abweichungen laufen die Meßergebnisse jedoch weitestgehend parallel. Deutlich lassen sich in den Zeitreihen die Phasen, in denen Kiruna innerhalb des polaren Vortex lag, von denen, in denen Kiruna außerhalb des Polarwirbels lag, unterscheiden (siehe dazu auch [21]): Insbesondere im Zeitraum zwischen Tag 63 und Tag 70 findet man im Höhenbereich um 35 km hohe Ozonwerte, weil in dieser Zeit Kiruna weit außerhalb des Vortex lag (man beachte

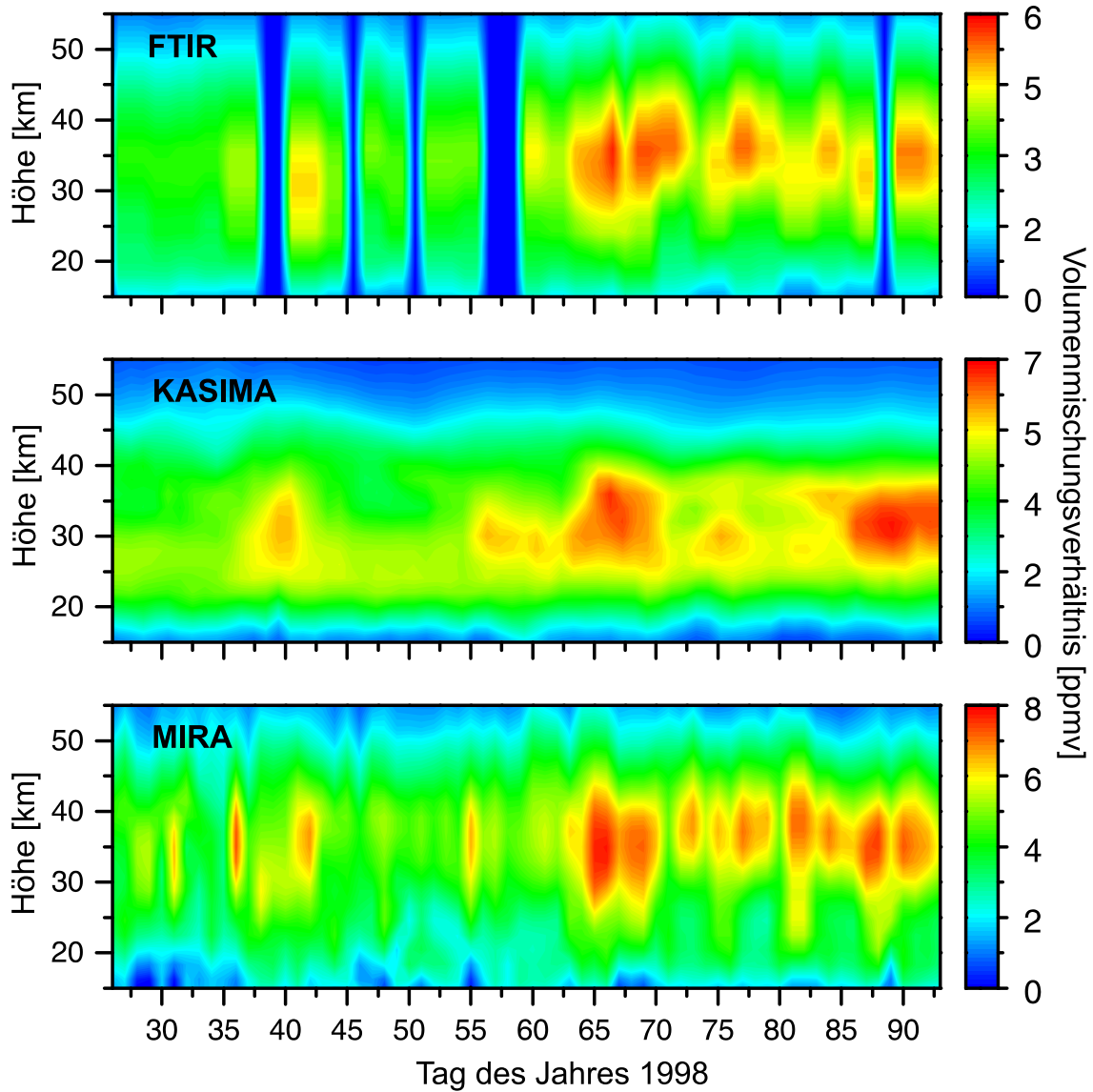


Abb. 6.30: Vergleich der Ozonzeitreihen 1998 über Kiruna. Oben die Meßergebnisse des Infrarotfourierspektrometers, in der Mitte Modellrechnungen von KASIMA und unten die Ergebnisse von MIRA 2. Man beachte die unterschiedliche Skalierung der Farbpaletten

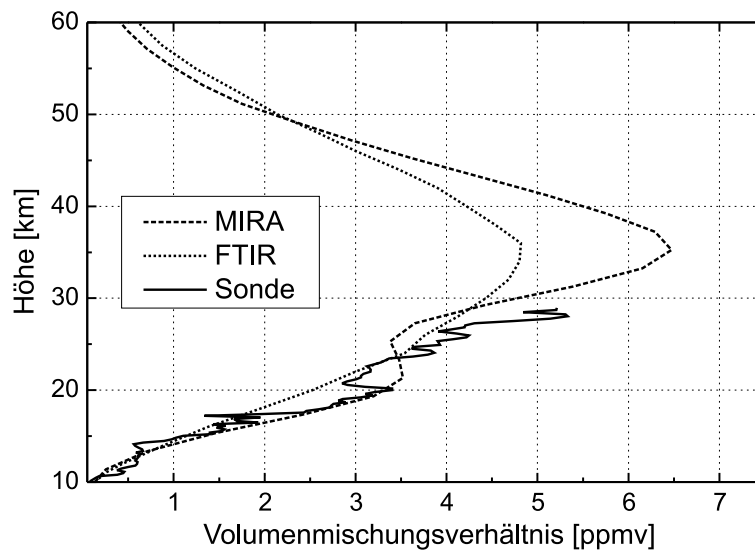


Abb. 6.31: Vergleich der Ozonprofile vom 27. März 1998 mit den Daten eines Ozonsondenaufstieges

die niedrigen Werte der potentiellen Vorticity in Abbildung 6.29) und deshalb Luftmassen aus mittleren Breiten über dem Meßort zu liegen kamen. Diese sind durch die Brewer-Dobson-Zirkulation, die ozonreiche Luftmassen aus der tropischen Stratosphäre in höhere Breiten transportiert, in der mittleren Stratosphäre mit Ozon angereichert. In Phasen, in denen der Polarwirbel über Kiruna lag, z. B. zwischen Tag 47 und 55, finden sich in der gleichen Höhe deutlich niedrigere Werte, was auf das diabatische Absinken und die Isolation der Luftmassen innerhalb des Vortex zurückzuführen ist.

Am 20. und 27. März 1998 fanden Ozonsondenaufstiege über Kiruna statt. Leider hatte die Ozonsonde vom 20. März einen Defekt und lieferte oberhalb von etwa 20 km keine sinnvollen Daten mehr. Die Sonde vom 27. März war erfolgreicher und lieferte bis knapp 30 km Daten. Abbildung 6.31 zeigt deren Ergebnisse im Vergleich mit den Meßergebnissen von MIRA 2 und FTIR. Wie man sieht, sind die Sondendaten im großen und ganzen sowohl mit den MIRA 2- als auch den FTIR-Daten verträglich, sieht man einmal vom obersten Bereich ab, in dem die Ozonsonde sogar noch höhere Ozonmischungsverhältnisse liefert als MIRA 2. Ein Grund für die in diesem Höhenbereich zunehmende Diskrepanz des FTIR-Profiles zu den von MIRA 2 und der Ozonsonde gemessenen Profilen könnte die hier schon abnehmende Sensitivität des FTIR aufgrund der Dopplerverbreiterung der Spektrallinien sein. Insgesamt läßt sich aber keine Entscheidung für oder gegen die eine oder andere Messung treffen.

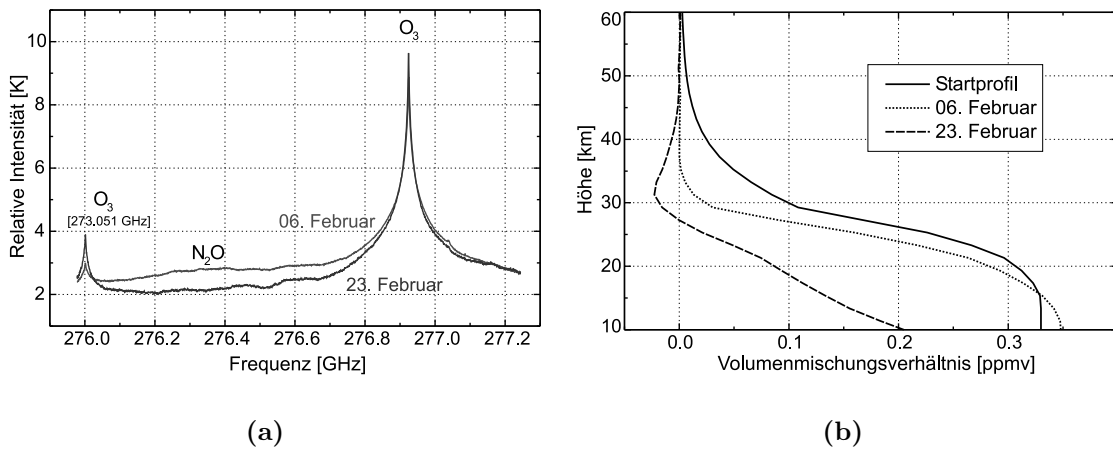


Abb. 6.32: N₂O-Messungen vom 6. und 23. Februar 1998. Die in (a) gezeigten Spektren sind noch nicht um stehende Wellen korrigiert. Abbildung (b) zeigt die daraus mit der Optimal Estimation Methode invertierten Spektren

Wie schon erwähnt, waren für ClO aufgrund ungünstiger Witterungsverhältnisse keine durchgehenden Messungen möglich. Dennoch konnte an einigen Tagen Ende Januar bis Anfang Februar Chloraktivierung beobachtet werden. Der maximal gemessene Wert fand sich am 31. Januar mit ca. 1,6 ppbv in einer Höhe von knapp 20 km.

Bei dieser Meßkampagne war es auch erstmals möglich, N₂O-Messungen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels miteinander zu vergleichen. Abbildung 6.32(a) zeigt Spektren, die am 6. und 23. Februar 1998 gemessen wurden. Ein Vergleich mit Abbildung 6.29 zeigt, daß sich Kiruna am 6. Februar außerhalb und am 23. Februar innerhalb des polaren Vortex befand. Dadurch lassen sich die Unterschiede in den gemessenen Spektren erklären: Innerhalb des Vortex kommt es zum diabatischen Absinken von Luftmassen, wodurch auch N₂O als inerter Tracer in tiefere Atmosphärenschichten transportiert wird und damit die N₂O-Signatur im gemessenen Spektrum immer breiter und schließlich praktisch ununterscheidbar vom troposphärischen Sockel wird. Die invertierten Profile in Abbildung 6.32(b) zeigen dann auch diesen Effekt: Im Vergleich zum Profil vom 6. Februar ist das Profil vom 23. Februar deutlich abgesunken. Allerdings sind Spektren, bei denen N₂O schon derart weit abgesunken ist, schwierig auszuwerten, da kaum noch eine Signatur im gemessenen Spektrum vorhanden ist und es deshalb ein sehr schlechtes Signal- zu Rauschverhältnis hat. Dementsprechend zeigen sich auch leicht Artefakte im invertierten Profil, wie z. B. der Überschwinger in den Bereich negativer Volumenmischungsverhältnisse und die unrealistisch niedrigen Volumenmischungsverhältnisse unterhalb einer Höhe von 15 km bei dem N₂O-Profil vom 23. Februar.

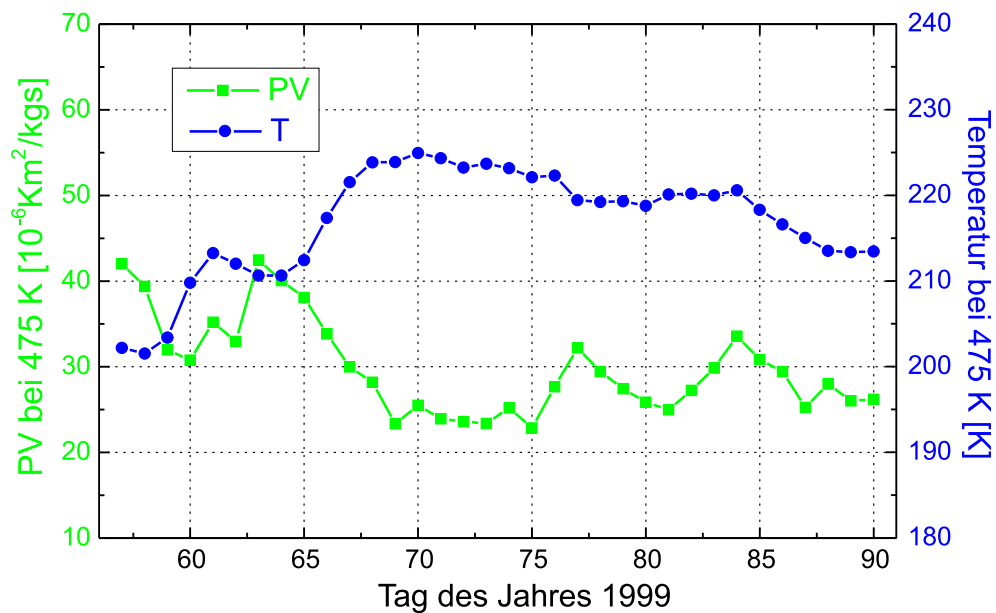


Abb. 6.33: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475-K-Isentropenfläche über Kiruna während der Meßkampagne 1999 (ECMWF-Daten)

6.4 Die Meßkampagne 1999 in Kiruna

Der für einen außenstehenden Beobachter auffälligste Unterschied dieser Kampagne zu früheren war, daß das Radiometer mit einem neuen Periskop ausgestattet wurde, mit dem nun nicht nur der Elevationswinkel verstellt werden konnte, sondern auch der Azimutwinkel, um evtl. vorhandene lokale Inhomogenitäten messen zu können ([2]). Bei dieser Kampagne wurden allerdings nur erste Testmessungen bei verstelltem Azimut durchgeführt.

Der Winter 1998/1999 war außergewöhnlich warm und hatte einen nur schwach ausgeprägten polaren Vortex, wie die Abbildungen 6.1 und 6.2 zeigen. Die minimale Temperatur nördlich einer geographischen Breite von 40° N auf der 475-K-Isentropenfläche sank nur für eine kurze Phase Ende November/Anfang Dezember und in der ersten Februarhälfte unter 195 K, d. h. es war nur selten mit PSCs und damit verbunden geringer Chloraktivierung zu rechnen. In Abbildung 6.33 sind die Verhältnisse für die Dauer der Kampagne auf der 475 K-Isentropenfläche über Kiruna gezeigt. Es werden auch hier die sehr niedrigen Werte der potentiellen Vorticity und die dauerhaft hohen Temperaturen oberhalb der Bildungstemperatur von PSCs deutlich.

Aufgrund ungünstiger Witterungsbedingungen und gerätetechnischer Schwierigkeiten konnten auf dieser Kampagne nicht an jedem Tag auswertbare Spektren ge-

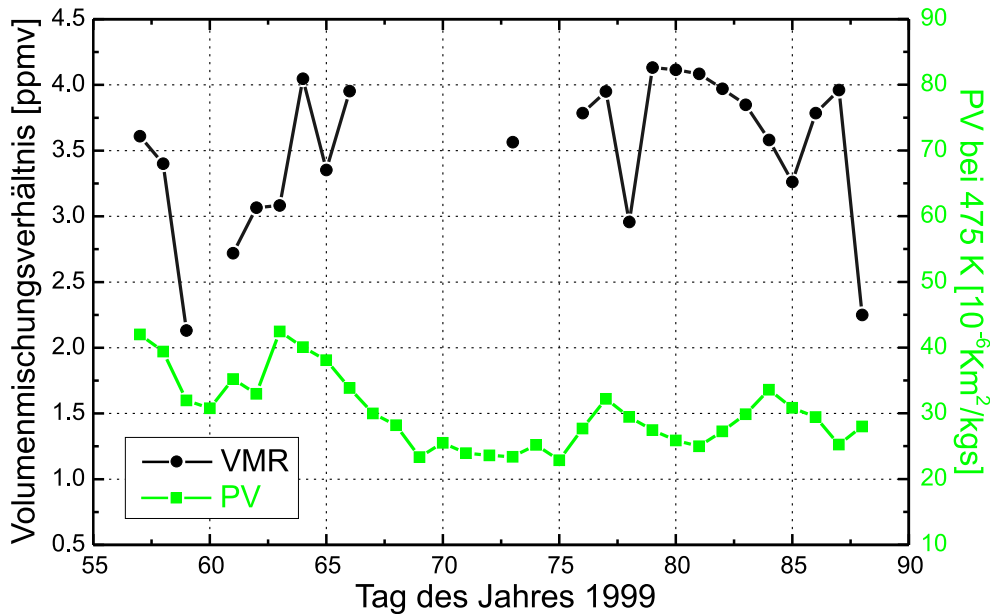


Abb. 6.34: Vergleich der gemessenen Volumenmischungsverhältnisse von Ozon auf der 475 K-Isentropenfläche mit der potentiellen Vorticity bei 475 K über Kiruna während der Meßkampagne 1999

messen werden. Ein Vergleich der von MIRA 2 gemessenen Volumenmischungsverhältnisse von Ozon mit der potentiellen Vorticity auf der 475 K-Isentropenfläche ist in Abbildung 6.34 zu sehen.

Bei ungestörter Ozonchemie wäre zu erwarten, daß sich innerhalb des Vortex in dieser Höhe durch das diabatische Absinken deutlich mehr Ozon befindet als außerhalb. Bei gestörter Ozonchemie mit Ozonabbau können die Werte allerdings innerhalb des Vortex deutlich unter die außerhalb des Vortex abfallen. Wie jedoch schon erwähnt war der Winter 1998/1999 sehr warm und hatte nur einen schwach ausgeprägten Vortex, weshalb sich in den Meßergebnissen keine klare Struktur ergibt. Während der gesamten Meßkampagne befand sich Kiruna außerhalb des polaren Vortex und die beobachteten Variationen im Volumenmischungsverhältnis von Ozon dürften deshalb auf dynamische Transportprozesse und nicht auf chemisch bedingte Ozonerstörung zurückzuführen sein (vergleiche hierzu auch Abschnitt 6.5.4).

Die durchgeführten ClO-Messungen zeigten keinerlei Anzeichen für Chloraktivierung, wie exemplarisch die Abbildung 6.35(a) zeigt. Zumindest im ClO-Profil vom 25. Februar sollte sich sonst ein unteres Maximum bei etwa 20 km Höhe finden, da diese Messung über die Mittagszeit erfolgte. Aber auch im Profil vom 9. März, das am Abend gemessen wurde, sollte bei Chloraktivierung noch ein Rest ClO in 20 km Höhe zu finden sein. Auch diese Ergebnisse sind konsistent mit den schon

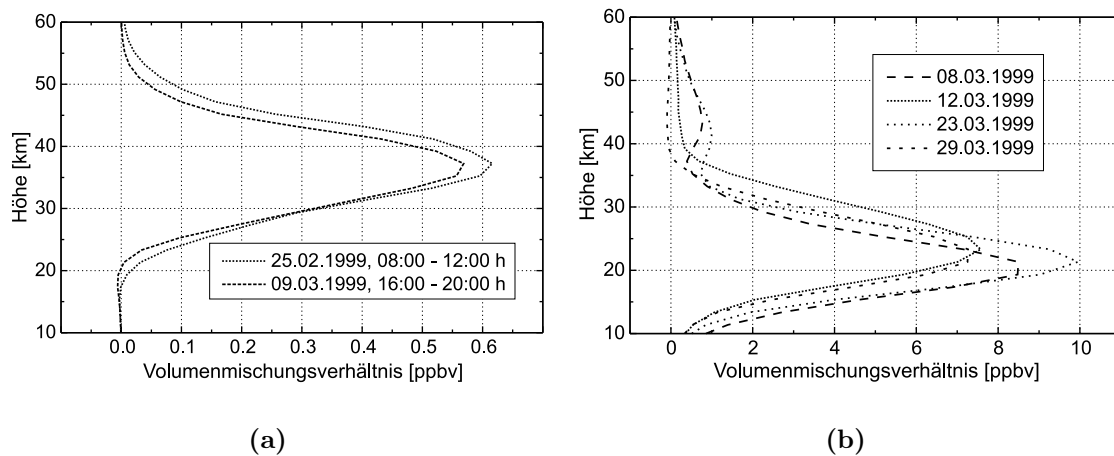


Abb. 6.35: Im Februar und März 1999 in Kiruna gemessene Profile von ClO (a) und HNO₃ (b). Aufgrund des schwach ausgeprägten Vortex ist keine Chloraktivierung und kein HNO₃-Verlust zu verzeichnen

erwähnten meteorologischen Bedingungen des Winters 1998/1999 und insbesondere des Zeitraums dieser Meßkampagne über Kiruna.

In Abbildung 6.35(b) sind die Ergebnisse der HNO₃-Messungen dargestellt. Ein Vergleich mit den Daten der potentiellen Vorticity und der Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche (Abbildung 6.33) läßt auch hier keine Systematik erkennen. Zumindest finden sich aber keine deutlichen Anzeichen für HNO₃-Verluste durch Bildung von PSCs und anschließende Sedimentation (Abschnitt 2.3.2), was ebenfalls auf die hohen Temperaturen in diesem Winter zurückzuführen ist.

6.5 Die Meßkampagne 1999/2000 in Kiruna

Die Meßkampagne der MIRA-Gruppe im Winter 1999/2000 fand im Rahmen des Third European Stratospheric Experiment on Ozone 2000 (THESEO 2000) erneut in Kiruna statt. Im Vordergrund von THESEO 2000 stand die Untersuchung des Ozonverlustes im Winter und Frühjahr in polaren und mittleren Breiten und daraus folgend eine Verbesserung der Vorhersage der zukünftigen Entwicklung des Ozonabbaus in der Stratosphäre. Weiterhin wurden auch Erkenntnisse über den Einfluß der globalen Klimaänderung auf die Entwicklung der Ozonschicht erhofft.

Gleichzeitig zu THESEO 2000 fand auch das von der NASA initiierte SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment (SOLVE) statt und es gab eine enge Kooperation zwischen den beiden Kampagnen. Insgesamt war die THESEO 2000/SOLVE-Kampagne die bis dahin größte Meßkampagne zur Erforschung der chemi-

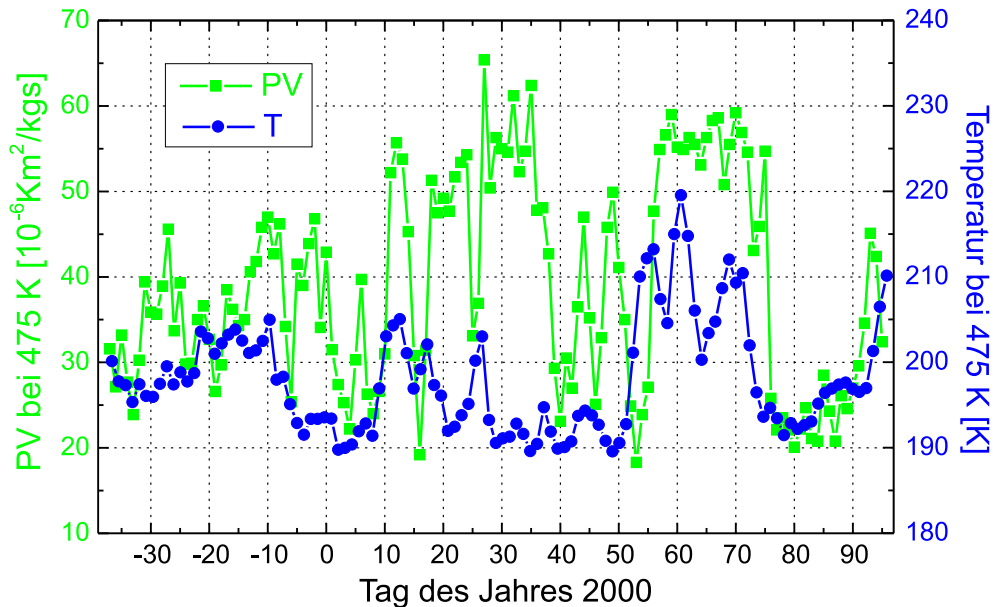


Abb. 6.36: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche über Kiruna während der Meßkampagne 1999/2000 (ECMWF-Daten)

schen und dynamischen Prozesse in der unteren arktischen Stratosphäre. Beteiligt waren boden-, flugzeug- und ballongestützte Meßgeräte in Kombination mit Modellrechnungen und insgesamt mehr als 350 Wissenschaftler aus der Europäischen Union, Kanada, Island, Japan, Norwegen, Polen, Rußland, der Schweiz und den Vereinigten Staaten von Amerika.

Der Winter 1999/2000 war einer der kältesten in der unteren Stratosphäre seit 1964/65, als die Datenaufzeichnung an der freien Universität Berlin begann, und zeichnete sich durch einen starken Polarwirbel aus (siehe die Abbildungen 6.1 und 6.2). Die minimalen Temperaturen nördlich 40° N lagen erstmals Mitte November unterhalb der Schwellentemperatur von 195 K für die Bildung Typ I-PSCs und stiegen erst im März wieder über diese Temperatur. An einigen Tagen im Dezember und Januar sanken die Temperaturen sogar unter 187 K und es könnte somit zur Bildung von PSCs vom Typ II gekommen sein.

Einen Überblick über die potentielle Vorticity und die Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche über Kiruna für den Zeitraum der Meßkampagne gibt Abbildung 6.36. Man erkennt, daß Kiruna im Januar bis Anfang Februar und in der ersten Märzhälfte fast ständig unter dem Polarwirbel lag. In dieser Zeit gab es auch einige Tage, an denen die Grenztemperatur für die Bildung von Typ I-PSCs unterschritten wurde. Während der übrigen Zeit lag Kiruna entweder in Vortexrandlage oder außerhalb des Vortex.

Insgesamt lieferte MIRA 2 von Ende November 1999 bis Anfang April 2000, mit einer Unterbrechung von Mitte Dezember bis Mitte Januar, auswertbare Daten. Bei dieser Kampagne wurde erstmals versucht, pro Tag mindestens eine Messung eines jeden Spurengases durchzuführen, um komplette Zeitreihen aller von MIRA 2 erfaßbaren Konstituenten zu erhalten. Im folgenden wird zur besseren Übersicht die Kampagne in drei Phasen unterteilt, wobei sich diese Einteilung an der Anwesenheit der DC-8 der NASA in Kiruna orientiert.

6.5.1 Phase 1: Bildung des polaren Vortex (November/Dezember 1999)

In Phase 1 von THESEO 2000 wurden die Prozesse in der Stratosphäre im frühen Winter, wenn sich durch die Abkühlung und das Absinken der Luftmassen langsam der Polarwirbel aufbaut, untersucht. Abbildung 6.37 zeigt eine Karte mit den PV-Werten auf der Nordhalbkugel vom 10. Dezember 1999 (ECMWF-Daten). Gut zu erkennen ist der frühe Polarwirbel mit noch recht niedrigen Werten der potentiellen Vorticity von maximal 40 bis $45 \cdot 10^{-6} \text{ Km}^2/\text{kgs}$.

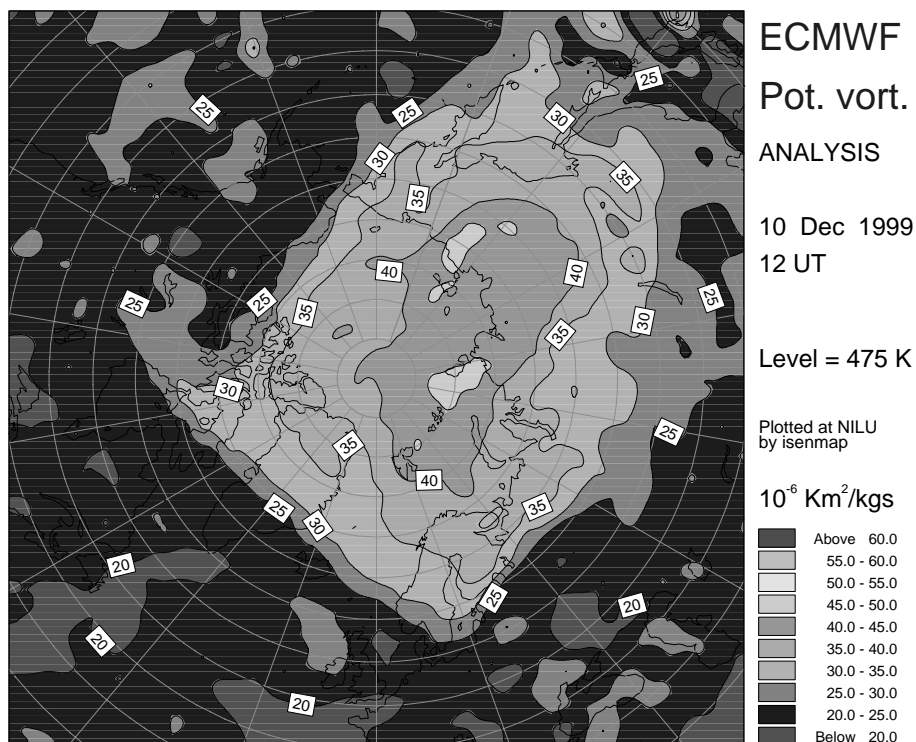


Abb. 6.37: Potentielle Vorticity bei 475 K auf der Nordhalbkugel am 10. Dezember 1999 (ECMWF-Daten)

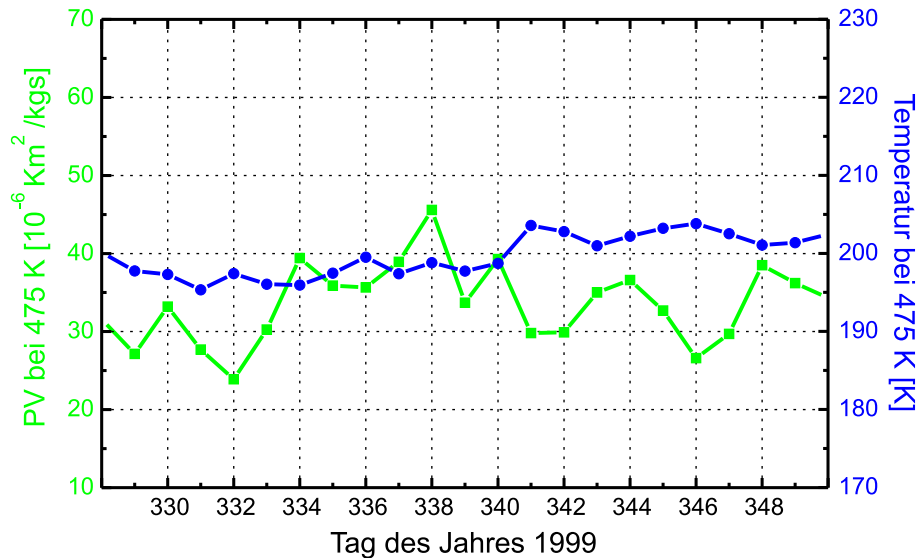


Abb. 6.38: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475-K-Isentropenfläche vom 24. November bis zum 16. Dezember 1999 über Kiruna (ECMWF-Daten)

In Abbildung 6.38 sind die potentielle Vorticity und die Temperatur auf der 475 K Isentropenfläche für diesen Zeitraum im November und Dezember 1999 gezeigt. Es zeigen sich insgesamt recht niedrige Werte der potentiellen Vorticity, die typisch sind für den frühen Vortex, und die Temperaturen lagen oberhalb der Grenztemperatur für die Bildung von Typ I-PSCs.

Ozon

Von Ozon konnten für den Zeitraum vom 24. November bis zum 16. Dezember Profile aus Messungen an der 273,051 GHz-Linie oder der schwächeren 274,478 GHz-Linie gewonnen werden. Die resultierende Zeitreihe ist in Abbildung 6.39 gezeigt.

Es fallen zunächst die relativ niedrigen Volumenmischungsverhältnisse im Ozonmaximum von ca. 6 ppmv bei etwa 35 bis 40 km auf, die möglicherweise auf den verminderten Zustrom ozonreicher Luftmassen aus niedrigeren Breiten im sich aufbauenden Vortex zurückzuführen sind. Deutlich zu sehen ist auch die Zunahme der Ozonwerte in der mittleren und unteren Stratosphäre mit Ausbildung eines zweiten Maximums bei etwa 25 km Höhe im Verlaufe dieser Phase. Dieses zweite Maximum zeigte sich auch in vielen Messungen des auf der DC-8 stationierten Airborne Submillimeter Radiometer (ASUR) des Instituts für Umweltphysik der Universität Bremen in diesem Zeitraum ([19]). Erklärt werden könnte das Zustandekommen des unteren Maximums durch das Absinken der stratosphärischen Luftmassen aufgrund

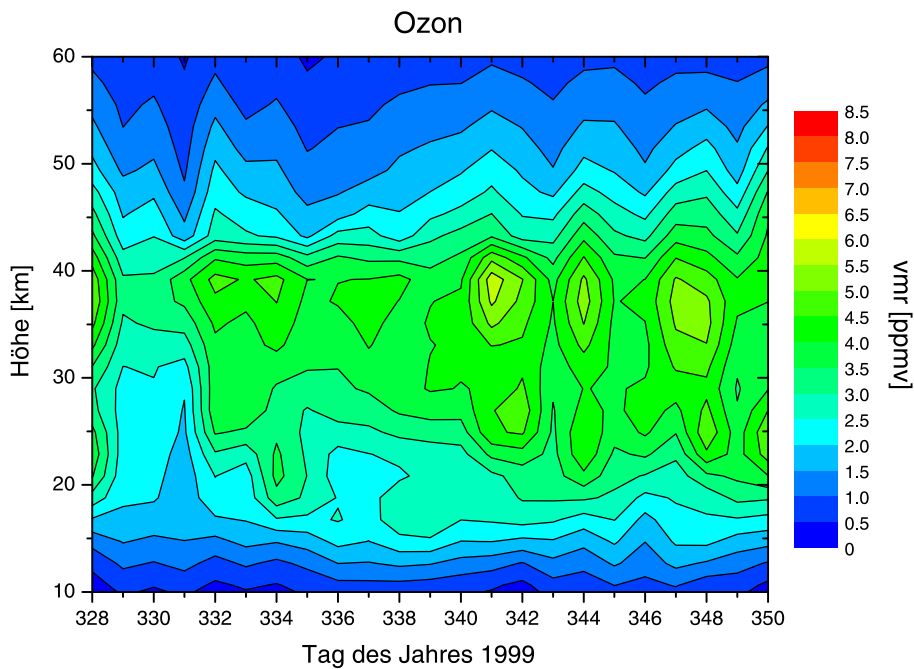


Abb. 6.39: Ozon vom 24. November bis 16. Dezember 1999 über Kiruna

der Abkühlung, wobei zweifellos auch andere dynamische und chemische Prozesse eine wichtige Rolle spielen dürften, da über diesen Meßzeitraum hinweg in Luftmassen verschiedenen Ursprungs gemessen wurde, wie die variablen Werte der potentiellen Vorticity in Abbildung 6.38 zeigen.

CIO

Profile von CIO konnten für den Zeitraum vom 29. November bis zum 15. Dezember mit Ausnahme des 1., 2. und 10. Dezembers aus den Messungen invertiert werden. In Abbildung 6.40 ist die Zeitreihe zu sehen, die aus Messungen jeweils um die Mittagszeit zusammengesetzt ist.

Es findet sich das Maximum zwischen 35 und 40 km, jedoch fehlt das für Chloraktivierung typische zweite Maximum in der unteren Stratosphäre (bei dem schwachen unteren Maximum am Tag 344 dürfte es sich höchstwahrscheinlich um ein auswertungsbedingtes Artefakt handeln). Die nicht vorhandene Chloraktivierung läßt sich mit der zu dieser Zeit noch nicht allzu weit fortgeschrittenen Bildung und Vorkonditionierung des Polarwirbels und dem fehlenden Sonnenlicht in der Polarnacht erklären.

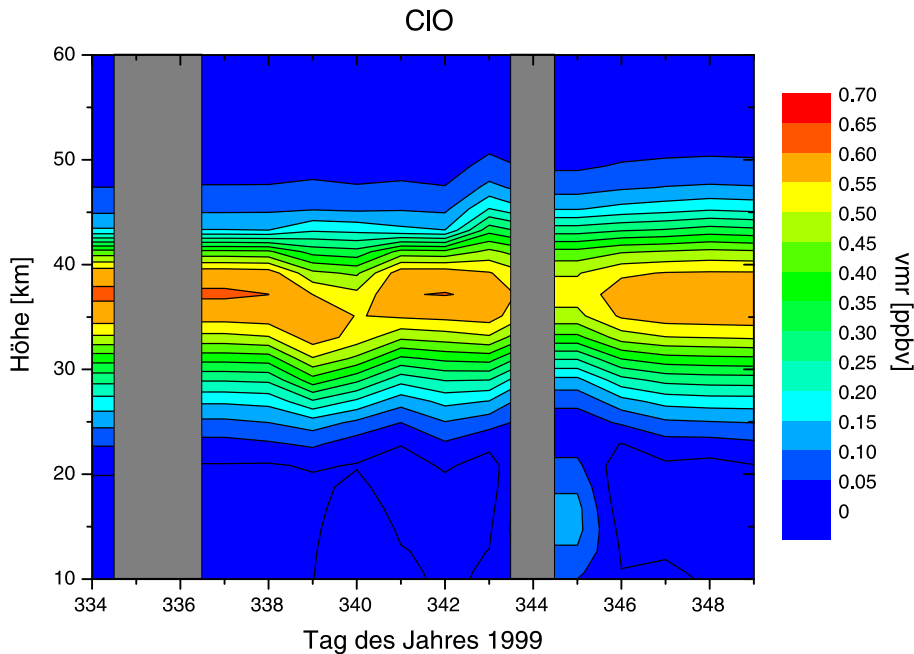
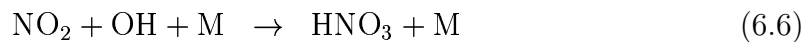


Abb. 6.40: ClO um die Mittagszeit vom 30. November bis 15. Dezember 1999 über Kiruna

HNO₃

Von HNO₃ konnte für den Zeitraum vom 5. bis zum 16. Dezember mit Ausnahme des 6. Dezember eine Zeitreihe aus gemessenen Höhenprofilen zusammengestellt werden, die in Abbildung 6.41 gezeigt ist.

Man findet das Maximum der HNO₃-Konzentration in einer Höhe von etwa 23 km mit Werten bis ca. 12 ppbv. Diese hohe HNO₃-Konzentration ist auf die Reaktion von NO₂ mit OH, die beide bei den katalytischen Reaktionen 2.4 auftreten, bei beginnender Polarnacht zurückzuführen:



Vergleicht man die Maximalwerte von HNO₃ mit den Werten der potentiellen Vorticity dieses Zeitraums auf der 475 K-Isentropen (Abbildung 6.38), dann zeigt sich, daß sich an Tagen mit besonders hoher potentieller Vorticity auch die höchsten Volumenmischungsverhältnisse von HNO₃ finden (Tag 344, 348 und 349). Dies erklärt sich dadurch, daß die Luftmassen an diesen Tagen eher aus dem sich langsam formierenden Polarwirbel stammen und so weniger dem Licht der Sonne und der damit verbundenen Photolyse ausgesetzt waren.

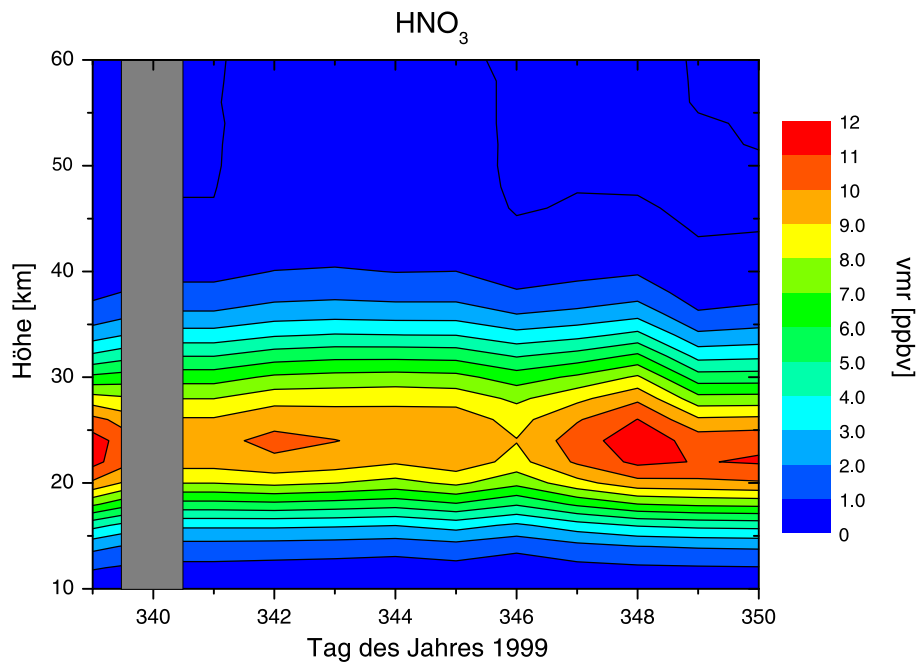


Abb. 6.41: HNO_3 vom 5. bis 16. Dezember 1999 über Kiruna

N_2O

Erfolgreiche N_2O -Messungen konnten vom 7. bis 16. Dezember mit Ausnahme des 9. Dezembers durchgeführt werden. Die daraus resultierende Zeitreihe ist in Abbildung 6.42 zu sehen.

Wie der Vergleich mit späteren Messungen zeigen wird, ist das Absinken der Luftmassen erst in der Anfangsphase und noch nicht so weit fortgeschritten wie Mitte und Ende des Winters. Eine ausgeprägte Korrelation zu den Werten der potentiellen Vorticity dieses Zeitraums auf der 475 K-Isentropen (Abbildung 6.38) ist nicht zu erkennen.

6.5.2 Phase 2: Ozonverlust Mitte des Winters, PSC-Untersuchung (Januar/Februar 2000)

Die Phase 2 von THESEO 2000 diente der Messung der Ozonverluste Mitte des Winters und der Untersuchung von PSCs. Es hatte sich bis zu diesem Zeitraum ein starker Polarwirbel gebildet, was exemplarisch für den 28. Januar in Abbildung 6.43 deutlich zu sehen ist. Im Wirbel werden Maximalwerte der potentiellen Vorticity von über $60 \cdot 10^{-6} \text{ Km}^2/\text{kgs}$ erreicht, begrenzt wird der Wirbel von einem Band mit einem sehr steilen Gradienten, in dem der Polarnachtjet die Luftmassen im Inneren

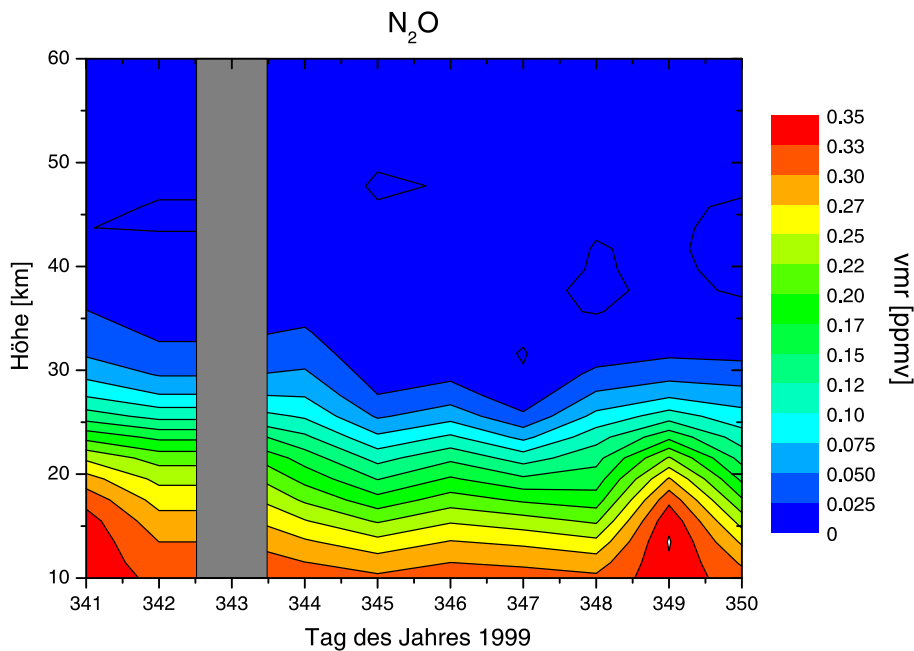


Abb. 6.42: N₂O vom 7. bis 16. Dezember 1999 über Kiruna

des Vortex von denen außerhalb trennt. Man erkennt ebenfalls, daß die Isolinie mit einer potentiellen Vorticity von $42 \cdot 10^{-6} \text{ Km}^2/\text{kgs}$, die häufig als „Rand“ des Vortex definiert wird, sich genau in diesem Bereich des größten Gradienten befindet.

Abbildung 6.44 zeigt die potentielle Vorticity und die Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche für den Zeitraum vom 12. Januar bis zum 8. Februar 2000. In dieser Phase lag Kiruna fast andauernd mit Ausnahme der Tage um den 16. und 25. Januar sowie den 8. Februar unter dem Polarwirbel und die Temperaturen lagen während dieser Zeiträume unterhalb der Bildungstemperatur für Typ I-PSCs.

Ozon

Von Ozon konnte täglich vom 12. Januar bis zum 9. Februar mindestens ein Spektrum gemessen und ausgewertet werden. Abbildung 6.45 zeigt die aus den Ergebnissen zusammengesetzte Zeitreihe. Das Maximum der Volumenmischungsverhältnisse findet sich nun im Vergleich zu den Ergebnissen aus Phase 1 (Abbildung 6.39) bei etwas niedrigeren Höhen und in der unteren Stratosphäre um die 20 km ergeben sich höhere Volumenmischungsverhältnisse. Beides läßt sich mit dem weiteren Absinken der Luftmassen im nun starken Polarwirbel erklären.

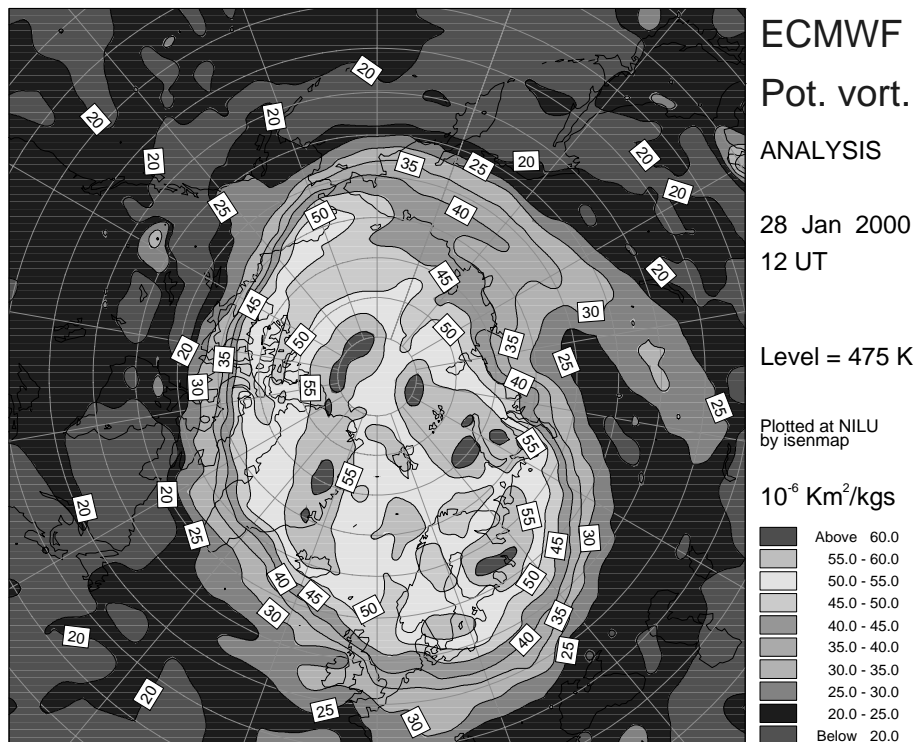


Abb. 6.43: Potentielle Vorticity bei 475 K auf der Nordhalbkugel am 28. Januar 2000 (ECMWF-Daten)

CIO

Messungen von CIO konnten täglich zwischen dem 18. und 31. Januar mit Ausnahme des 30. Januar für mehrere Stunden durchgeführt werden. Es wurde versucht, insbesondere über die Mittagszeit, wenn für das untere Maximum von CIO die höchsten Werte erwartet wurden, auswertbare CIO-Spektren zu messen. Die aus den Ergebnissen zusammengesetzte Zeitreihe ist in Abbildung 6.46 zu sehen. Während der grauschattierten Zeiten war das Radiometer entweder für die Messung der anderen Spurengase eingestellt oder es konnten wie z. B. am 30. Januar wegen der schlechten Witterungsbedingungen keine CIO-Messungen durchgeführt werden.

Deutlich zu erkennen ist der Tagesgang des unteren Maximums aufgrund der Photolyse des CIO-Dimers nach Sonnenaufgang und des daran anschließenden katalytischen Ozonabbaus (siehe die Gleichungen 2.13 bis 2.15). Bei Vergleich dieser Zeitreihe mit der 1997 in Ny-Ålesund gemessenen (Abbildung 6.27) fällt auf, daß das untere Maximum nur für deutlich kürzere Zeit am Tage sichtbar ist. Dies ist bedingt durch die im Januar kürzere Tageslänge bei diesen Messungen (die CIO-Zeitreihe von Ny-Ålesund wurde im März gemessen). Der maximal erreichte Wert findet sich am

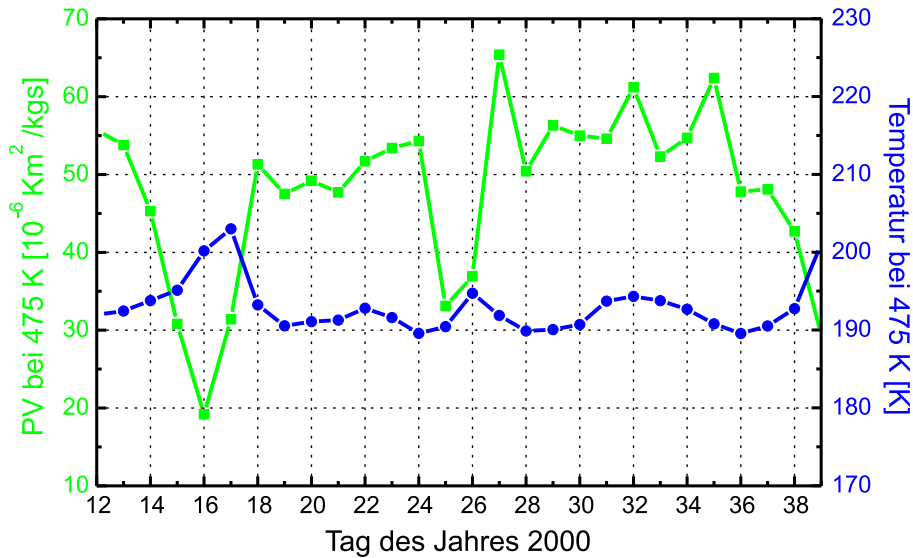


Abb. 6.44: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475-K-Isentropenfläche vom 12. Januar bis zum 8. Februar 2000 über Kiruna

21. Januar mit etwa 1,4 ppbv, was für einen derart kalten Winter mit starkem Polarwirbel überraschend wenig ist. Es wurde nämlich erwartet, daß der Gesamtgehalt an Chlor in der Stratosphäre bis zum Jahr 2000 auf über 4 ppbv angestiegen ist und dann langsam wieder abnimmt ([4]). Unter den gegebenen Bedingungen sollten deshalb sehr hohe Werte an ClO zu finden sein, aber ein Vergleich mit den Ergebnissen des ebenfalls sehr kalten Winters 1995/1996, in dem von MIRA 2 deutlich über 2 ppbv ClO gemessen wurden (Abbildung 6.12), zeigt, daß dies nicht der Fall ist. Über die genauen Ursachen hierfür kann an dieser Stelle nur spekuliert werden: In Frage kommen eine zu dieser Jahreszeit noch zu geringe Sonneneinstrahlung oder ein hoher Gehalt an NO_2 , wodurch sich ein Großteil des verfügbaren Chlors im Reservoirgas Chlornitrat befinden könnte. Gegen letztere Vermutung sprechen allerdings Messungen des ebenfalls am IRF in Kiruna betriebenen Infrarotspektrometers, das einen Anstieg des Säulengehaltes von Chlornitrat erst am 31. Januar detektierte ([11], [3]).

Es ist auffällig, daß sich am 25. und 26. Januar kein unteres Maximum von Chlormonoxid findet. Ein Vergleich mit den Werten der potentiellen Vorticity in Abbildung 6.44 zeigt, daß Kiruna an diesen beiden Tagen außerhalb des Polarwirbels lag und die Messungen deshalb in Luftmassen aus niedrigeren Breiten ohne reaktives Chlor hinein erfolgten.

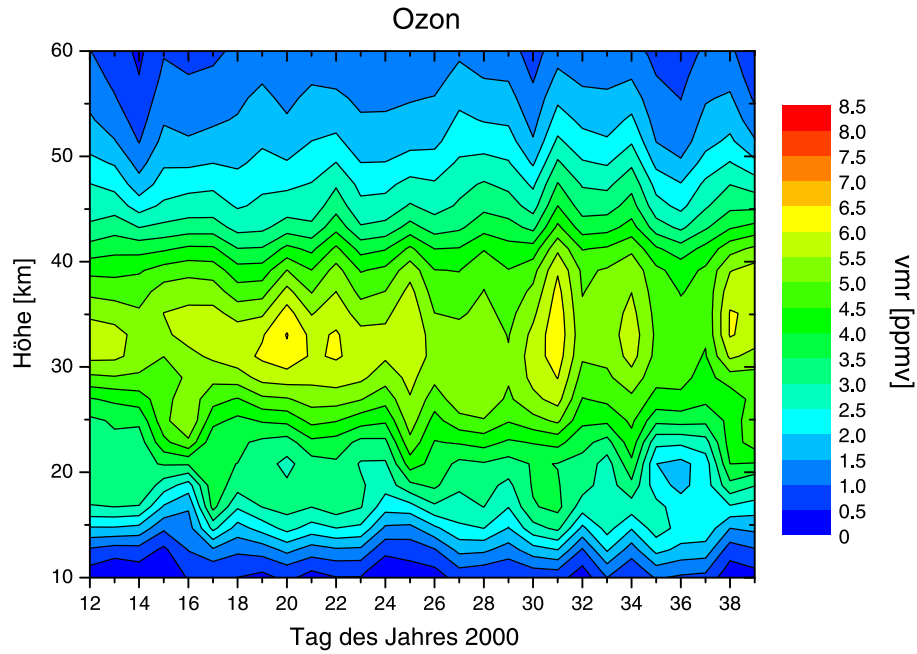


Abb. 6.45: Ozon vom 12. Januar bis 8. Februar 2000 über Kiruna

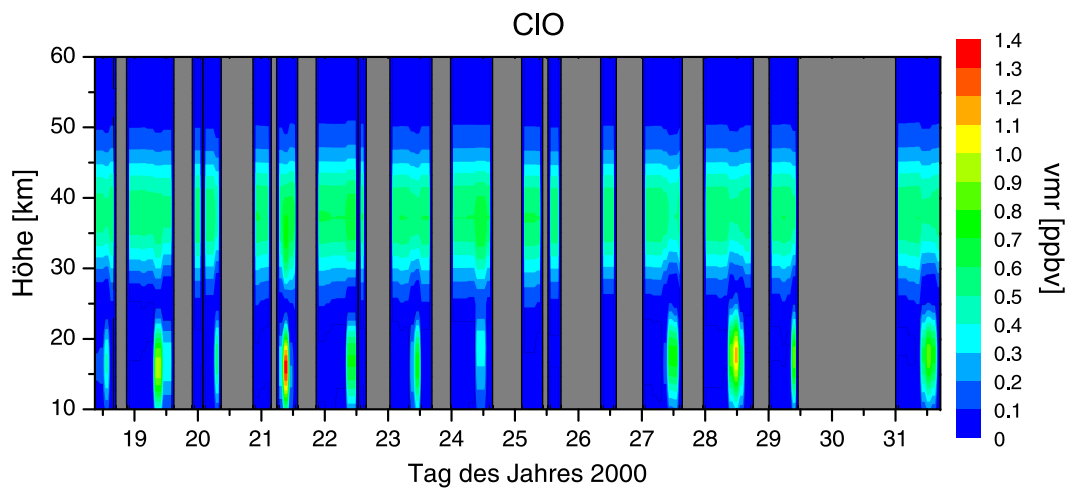


Abb. 6.46: ClO vom 18. bis 31. Januar 2000 über Kiruna

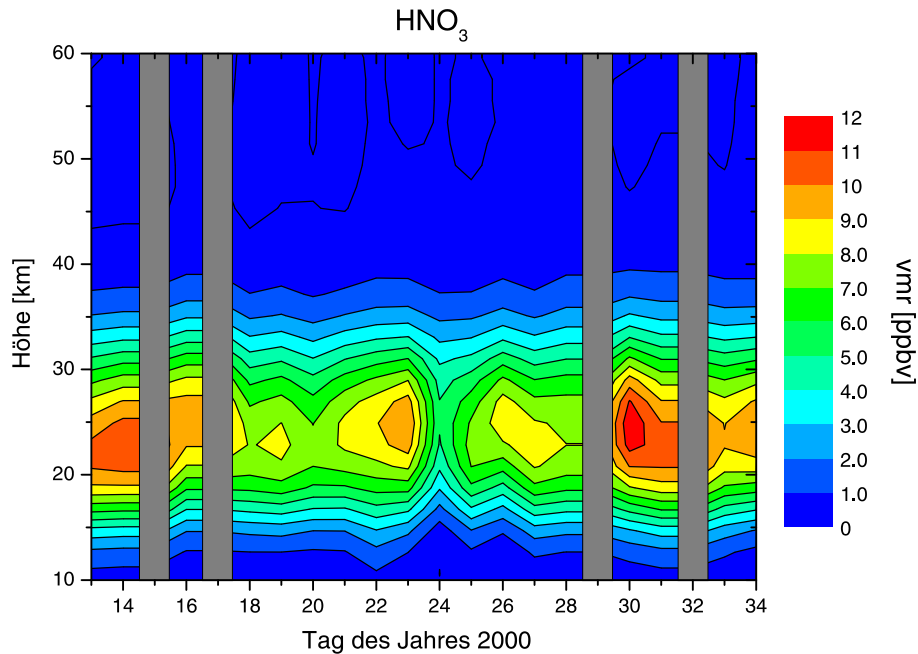


Abb. 6.47: HNO_3 vom 13. Januar bis 3. Februar 2000 über Kiruna

HNO_3

Messungen von HNO_3 erfolgten außer am 15., 17. und 29. Januar sowie dem 1. Februar täglich vom 13. Januar bis zum 3. Februar. Abbildung 6.47 zeigt die aus den invertierten Profilen zusammengesetzte Zeitreihe.

Auffällig sind zunächst die immer noch hohen Maximalwerte von HNO_3 von bis zu 12 ppbv zu Beginn und am Ende dieser Phase, als Kiruna unter dem Polarwirbel lag, wie ein Blick auf Abbildung 6.44 verrät. In der Mitte dieses Zeitraums sind jedoch deutlich geringere Maximalwerte zu verzeichnen. Zum einen liegt dies daran, daß Kiruna am 16., 25. und 26. Januar außerhalb des Polarwirbels lag und damit in HNO_3 -ärmere Luftmassen aus niedrigeren Breiten gemessen wurde. Sehr interessant sind auch die Zeiträume vom 18. bis zum 24. und vom 27. bis zum 28. Januar, als Kiruna wieder innerhalb des polaren Vortex lag und trotzdem Maximalwerte für HNO_3 von teilweise unter 8 ppbv gemessen wurden. Während dieser Zeit unterschritt die Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche über Kiruna ständig die Grenztemperatur für die Bildung von Typ I-PSCs und es wurden tatsächlich sehr viele PSCs über Kiruna beobachtet, die, zeitweise den ganzen Tag über, einen Großteil des Himmels bedeckten. Die hier beobachteten HNO_3 -Verluste sind demnach als Übergang von gasförmigem HNO_3 in die PSC-Partikel, d. h. der Bildung einer aus Wasser, Schwefel- und Salpetersäure bestehenden ternären Lösung bzw. der Bildung

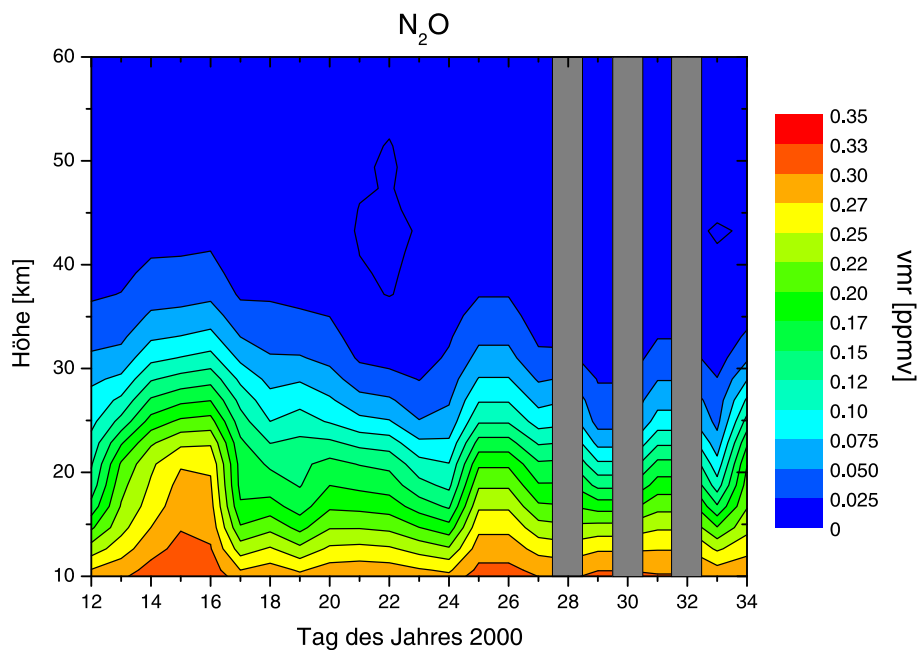


Abb. 6.48: N_2O vom 12. Januar bis 3. Februar 2000 über Kiruna

von NAT, zu deuten. Insgesamt beträgt der Verlust durch die Bildung von PSC-Partikeln etwa 5 ppbv. Anzeichen für HNO_3 -Verlust durch Denitrifizierung in dieser Phase können keine gefunden werden, da gegen Ende Januar, als die Temperatur auf der 475 K-Isentrophenfläche wieder über 195 K stieg, die HNO_3 -Maximalwerte durch das Verdampfen der PSC-Partikel wieder auf ca. 12 ppbv anstiegen. Der Versatz um einen Tag zwischen dem Anstieg von HNO_3 und der Temperatur könnte darauf zurückzuführen sein, daß die HNO_3 -Messung vom 30. Januar erst recht spät am Tag zwischen 18.00 und 20.00 Uhr erfolgte und somit schon Luftmassen mit höherer Temperatur Kiruna erreicht haben könnten.

N_2O

Messungen von N_2O erfolgten zwischen dem 12. Januar und dem 3. Februar mit Ausnahme des 28. und 30. Januars sowie des 1. Februars täglich und die gewonnenen Ergebnisse ergeben die in Abbildung 6.48 dargestellte Zeitreihe.

Sehr deutlich zeichnen sich die Perioden ab, in denen Kiruna außerhalb des Polarwirbels lag (die Tage um den 16. Januar und in abgeschwächter Form der 25. und 26. Januar). Auch der Vergleich mit den Ergebnissen aus Phase 1 (Abbildung 6.42) zeigt, daß gleiche Mischungsverhältnisse von N_2O innerhalb des Polarwirbels in deutlich niedrigeren Höhen zu finden sind, was erneut die Absinkbewegung im

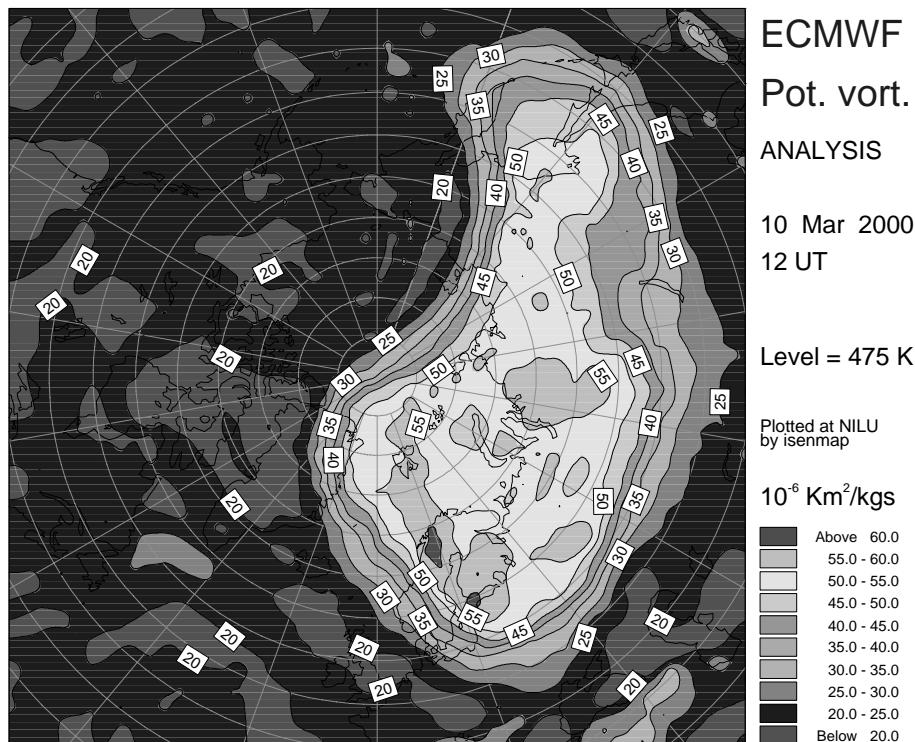


Abb. 6.49: Potentielle Vorticity bei 475 K auf der Nordhalbkugel am 10. März 2000 (ECMWF-Daten)

starken polaren Vortex des Winters 1999/2000 dokumentiert.

6.5.3 Phase 3: Spätwinterlicher Ozonverlust, Aufbrechen des polaren Vortex (Februar bis April 2000)

In Phase 3 von THESEO 2000 sollten die verschiedenen Prozesse im späten Winter, insbesondere der Ozonabbau und das Aufbrechen des polaren Vortex untersucht werden. Ein Blick auf Abbildung 6.49, in der eine Karte der potentiellen Vorticity auf der Nordhalbkugel vom 10. März 2000 zu sehen ist, zeigt jedoch, daß von einem Aufbrechen des Polarwirbels zu dieser Zeit noch keine Rede sein konnte. So wurden über Nordskandinavien lokal begrenzt noch Werte über $60 \cdot 10^{-6} \text{ Km}^2/\text{kgs}$ der potentiellen Vorticity erreicht. Allerdings ist der Polarwirbel insgesamt nicht über dem Pol zentriert, was eine Folge der Ausbildung von planetaren Wellen aufgrund der orographischen Gegebenheiten in der Arktis ist und keine ungewöhnliche Erscheinung darstellt. In der Tat löste sich der Polarwirbel erst im April auf.

Abbildung 6.50 zeigt die potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475-K-

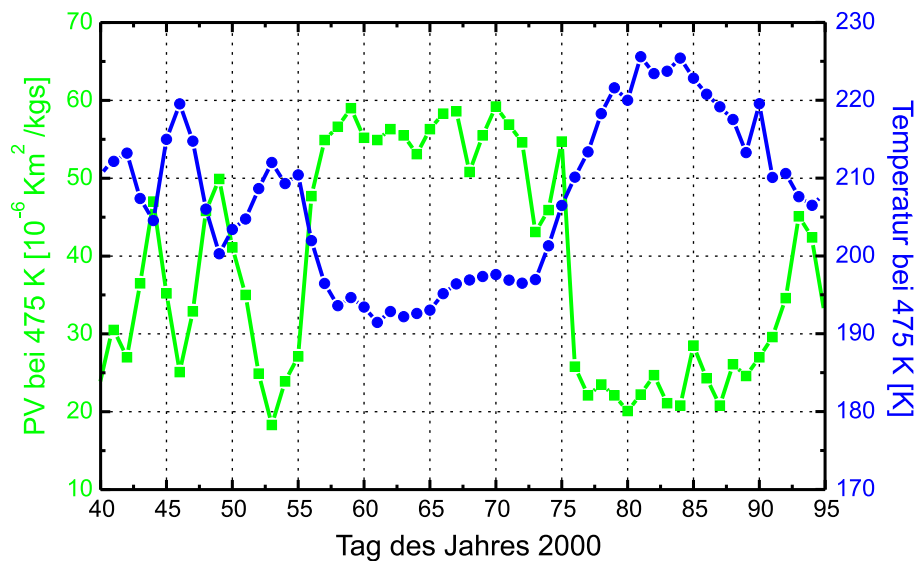


Abb. 6.50: Potentielle Vorticity und Temperatur auf der 475 K-Isentropenfläche vom 09. Februar bis 04. April 2000 über Kiruna

Isentropenfläche über Kiruna für den Zeitraum vom 9. Februar bis 4. April 2000. Während Kiruna zwischen Tag 40 und Tag 55 ständig wechselnd mal innerhalb und mal außerhalb des Polarwirbels lag, war die Situation in den darauffolgenden Wochen recht stabil: Zwischen Tag 56 und Tag 72 sind andauernd hohe Werte der potentiellen Vorticity zu verzeichnen, Kiruna lag in dieser Zeit also unter dem Polarwirbel. An einigen Tagen in der ersten Hälfte dieses Zeitraums fiel die Temperatur auf der 475 K-Isentropen unterhalb 195 K, es bestand also die Möglichkeit zur Bildung von PSCs vom Typ I. Nach einer kurzen Übergangsphase lag Kiruna dann ab Tag 76 außerhalb des Polarwirbel und geriet dann ab Tag 92 wieder in Vortexrandlage.

Ozon

Von Ozon konnte während der gesamten Phase 3 mindestens ein Spektrum täglich gemessen und ausgewertet werden. Insgesamt konnte so eine kontinuierliche Zeitreihe vom 9. Februar bis zum 4. April aus den invertierten Höhenprofilen zusammengesetzt werden, die sich direkt an die Zeitreihe aus Phase 2 anschließt (siehe Abbildung 6.45). Das Ergebnis ist in Abbildung 6.51 gezeigt.

Die maximalen Volumenmischungsverhältnisse zeigen nun im Vergleich zu den ersten beiden Phasen eine sehr starke Variabilität zwischen Werten von um die 4,5 ppmv bis zu über 8 ppmv. Vergleicht man diese Ergebnisse mit der potentiellen

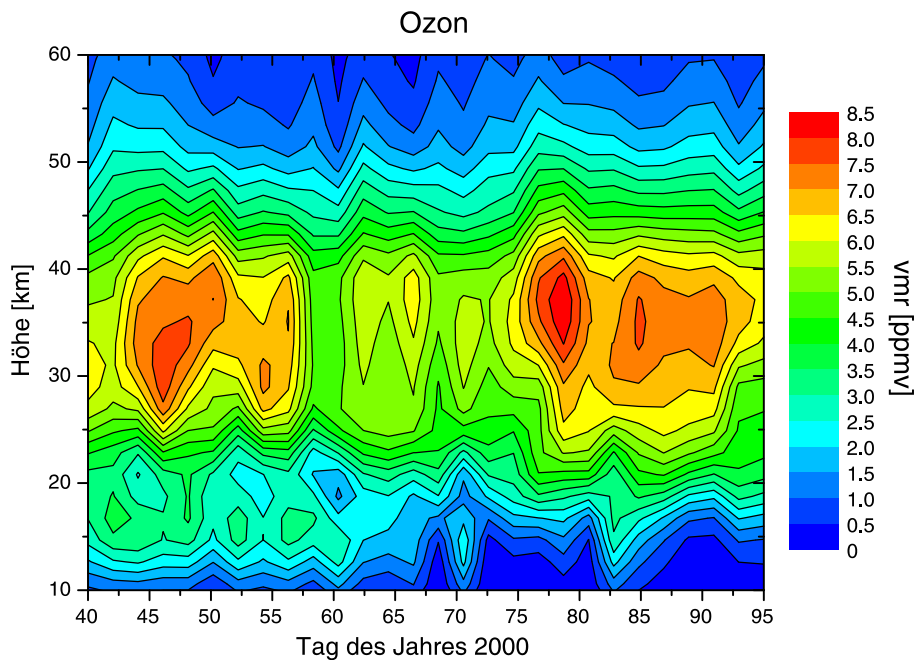


Abb. 6.51: Ozon vom 9. Februar bis 4. April 2000 über Kiruna

Vorticity bei 475 K für diesen Zeitraum (Abbildung 6.50), so zeigt sich wieder eine Antikorrelation, wie sie schon bei den Ergebnissen der Meßkampagne 1998 in Kiruna gefunden wurde: Hohe Werte der potentiellen Vorticity gehen mit niedrigen Maximalwerten des Volumenmischungsverhältnis von Ozon einher und umgekehrt. Diese Antikorrelation läßt sich wieder erklären mit dem Absinken und der Isolation der Luftmassen innerhalb des polaren Vortex und der Messung von in der mittleren bis oberen Stratosphäre ozonreicheren Luftmassen aus niedrigeren Breiten an Tagen, als Kiruna außerhalb des Polarwirbels lag.

Interessant ist auch ein Blick auf die Volumenmischungsverhältnisse bei etwa 20 km an Tagen, als Kiruna innerhalb des Polarwirbel lag. Im Vergleich zu den Werten aus Phase 2 (Abbildung 6.45) von etwa 3,5 ppmv finden sich nun im Mittel nur noch etwa 2 ppmv, was einen starken Hinweis auf chemisch verursachten Ozonabbau gibt. Genauer wird hierauf in Kapitel 6.5.4 eingegangen.

ClO

Aufgrund ungünstiger Witterungsverhältnisse konnten in Phase 3 nur an einigen Tagen Messungen von ClO durchgeführt und ausgewertet werden. In Abbildung 6.52(a) ist exemplarisch der gemessene Tagesgang von ClO vom 11. März gezeigt. Sehr deutlich sieht man die tageszeitliche Variation des unteren Maximums aufgrund

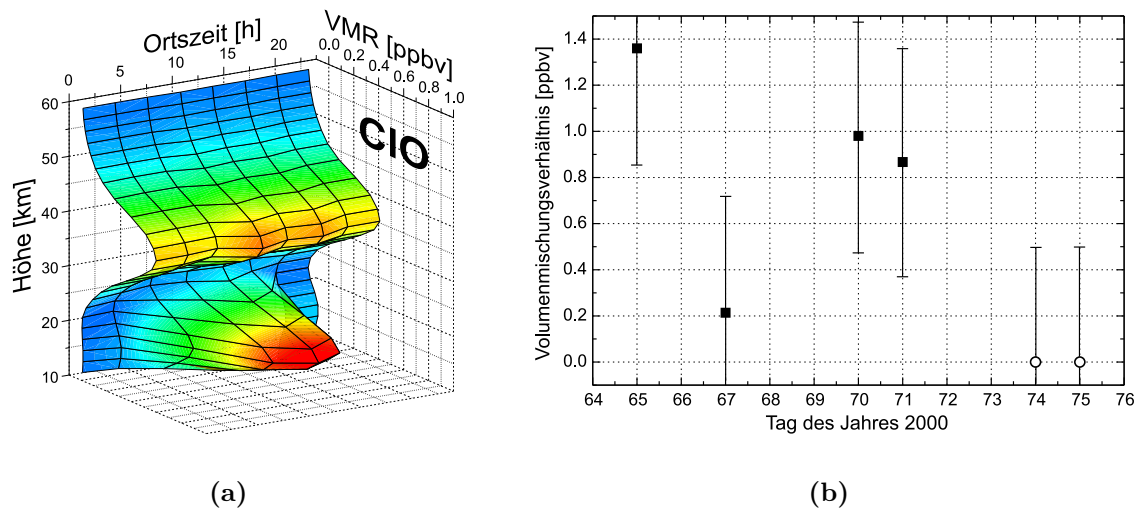


Abb. 6.52: CIO-Messungen in Phase 3. In (a) ist der Tagesgang vom 11. März dargestellt, (b) zeigt die an den einzelnen Tagen um die Mittagszeit gemessenen Volumenmischungsverhältnisse des unteren Maximums (gefüllte Quadrate). Am 14. und 15. März (Tag 74 und 75) konnten keine Anzeichen für Chloraktivierung gefunden werden, was durch die offenen Kreise bei 0 ppbv symbolisiert wird. Mit eingezeichnet sind die geschätzten Gesamtfehler

der Photolyse des CIO-Dimers (siehe Gleichung 2.13). Aufgrund der nun höher stehenden Sonne ist das untere Maximum auch über einen längeren Zeitraum zu beobachten als noch in Phase 2 (vgl. Abbildung 6.46). Die leichte tageszeitliche Variation des oberen Maximums aufgrund der Photolyse von Chlornitrat (Gleichung 2.7) um die Mittagszeit ist ebenfalls angedeutet.

Abbildung 6.52(b) zeigt die an den einzelnen Tagen gemessenen maximalen Volumenmischungsverhältnisse in der unteren Stratosphäre. Während aller Messungen befand sich Kiruna unter dem Polarwirbel und es zeigt sich an den Tagen 65 bis 71 ein unteres CIO-Maximum, welches jedoch in der Regel schwächer ist als an den Tagen während Phase 2, als Kiruna unter dem Vortex lag (vgl. Abbildung 6.46). An den Tagen 74 und 75 dann wurde sogar überhaupt keine Chloraktivierung beobachtet, was in Abbildung 6.52(b) durch die offenen Kreise bei 0 ppbv symbolisiert ist. Diese geringeren CIO-Werte in der unteren Stratosphäre könnten durch die zu dieser Zeit durch die Photolyse von HNO_3 wieder höheren Werte von NO_2 und die dadurch begünstigte Bildung von Chlornitrat verursacht worden sein. Diese Vermutung wird auch von Messungen des am IRF in Kiruna betriebenen Infrarotspektrometers gestützt, welches beispielsweise am 28. Januar für NO_2 Säulengehalte von $2,85 \cdot 10^{18}$ Teilchen/ cm^2 und für ClONO_2 von $1,21 \cdot 10^{19}$ Teilchen/ cm^2 gemessen hat.

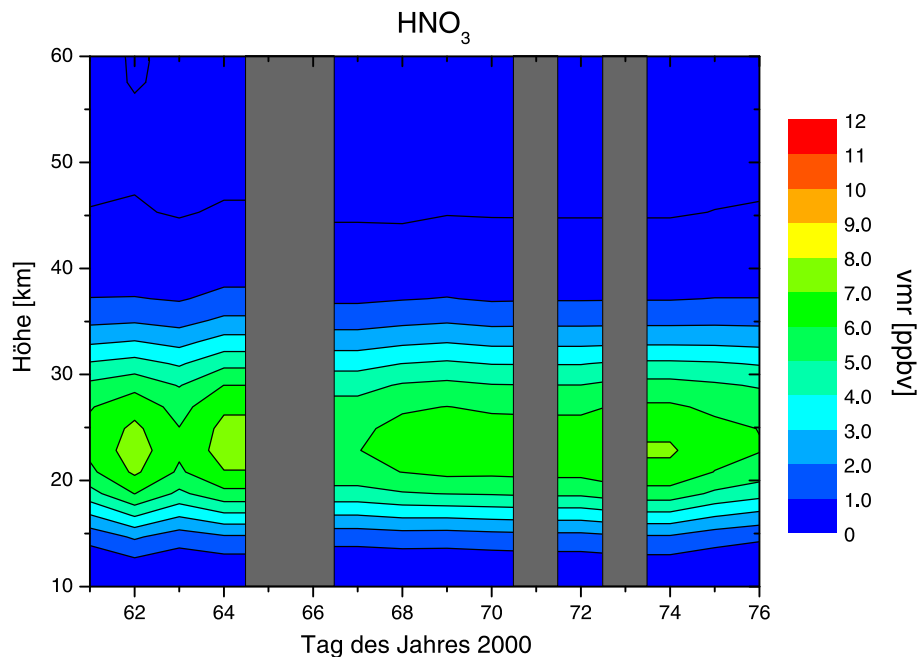


Abb. 6.53: HNO₃ vom 1. bis 16. März 2000 über Kiruna

Am 5. März hingegen betrug der Säulengehalt von NO₂ $9,05 \cdot 10^{18}$ Teilchen/cm², während gleichzeitig der Wert für ClONO₂ auf $3,64 \cdot 10^{19}$ Teilchen/cm² angestiegen ist ([3]).

HNO₃

In Phase 3 erfolgten täglich HNO₃-Messungen vom 1. bis zum 16. März, mit Ausnahme vom 5., 6., 11. und 13. März. Die aus den invertierten Höhenprofilen zusammengesetzte Zeitreihe ist in Abbildung 6.53 gezeigt.

Die maximalen Volumenmischungsverhältnisse betragen nur noch zwischen 5 und 8 ppbv, obwohl Kiruna zu dieser Zeit fast immer innerhalb des Polarwirbels lag und die Temperaturen meistens oberhalb der Bildungstemperatur für PSCs vom Typ I lag. Schließt man die Bildung von PSCs durch Leewelleneffekte aus, so lassen sich diese niedrigeren Werte für HNO₃ zum einen durch Denitrifizierung erklären, die durch vorherige Bildung von PSCs in früheren kälteren Phasen und daraufhin erfolgte Sedimentation der PSC-Partikel verursacht wurde. Ein weiterer Prozeß, der zu dieser Zeit aufgrund der nun erhöhten Sonneneinstrahlung eine wichtige Rolle für den Abbau von HNO₃ spielt, ist die Photolyse:



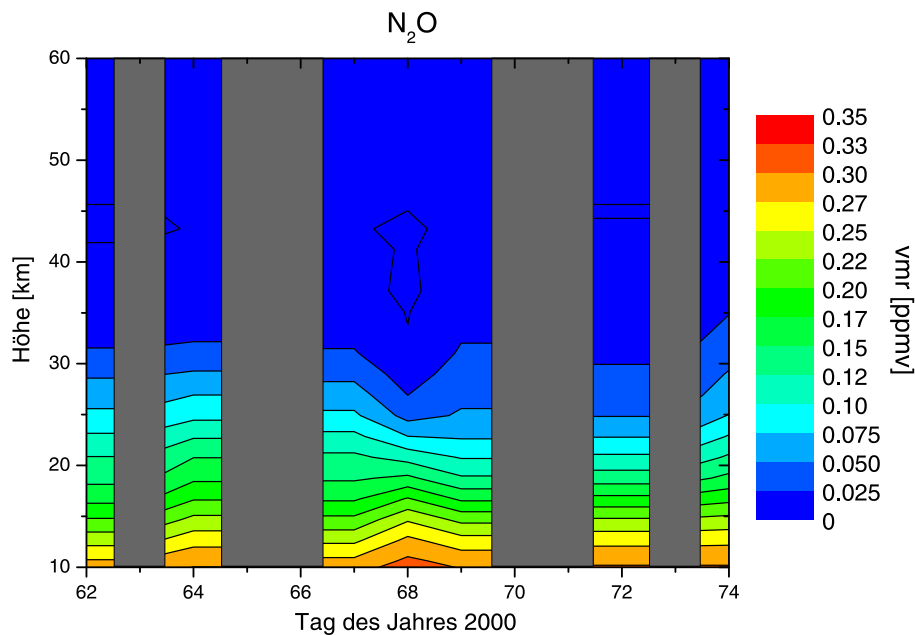


Abb. 6.54: N₂O vom 2. bis 14. März 2000 über Kiruna

Das dabei frei werdende NO₂ kann dann mit ClO unter Bildung von Chlornitrat weiterreagieren. Die zu dieser Zeit gemessenen z. T. verschwindend geringen Werte von ClO im Vergleich zu denen aus Phase 2 sind ein starker Hinweis, daß zumindest ein Teil der HNO₃-Verluste auf diese Reaktion zurückzuführen sind. Dies deckt sich auch mit den Messungen des Infrarotspektrometers in Kiruna, die im vorhergehenden Abschnitt vorgestellt wurden, nämlich daß im März ein deutlicher Anstieg der Säulengehalte von NO₂ und ClONO₂ im Vergleich zu Messungen Ende Januar zu verzeichnen war.

N₂O

Messungen von N₂O erfolgten in Phase 3 am 2., 4., 7. bis 9., 12. und 14. März. Die aus diesen Messungen invertierten Profile sind als Zeitreihe in Abbildung 6.54 dargestellt.

Kiruna befand sich an all diesen Meßtagen innerhalb des Polarwirbels, wie ein Vergleich mit Abbildung 6.50 zeigt. Erwartungsgemäß befindet sich das N₂O in deutlich niedrigeren Höhen als noch in Phase 1 (Abbildung 6.42), was sich wiederum auf die Absinkbewegung der Luftmassen innerhalb des Polarwirbels zurückführen läßt.

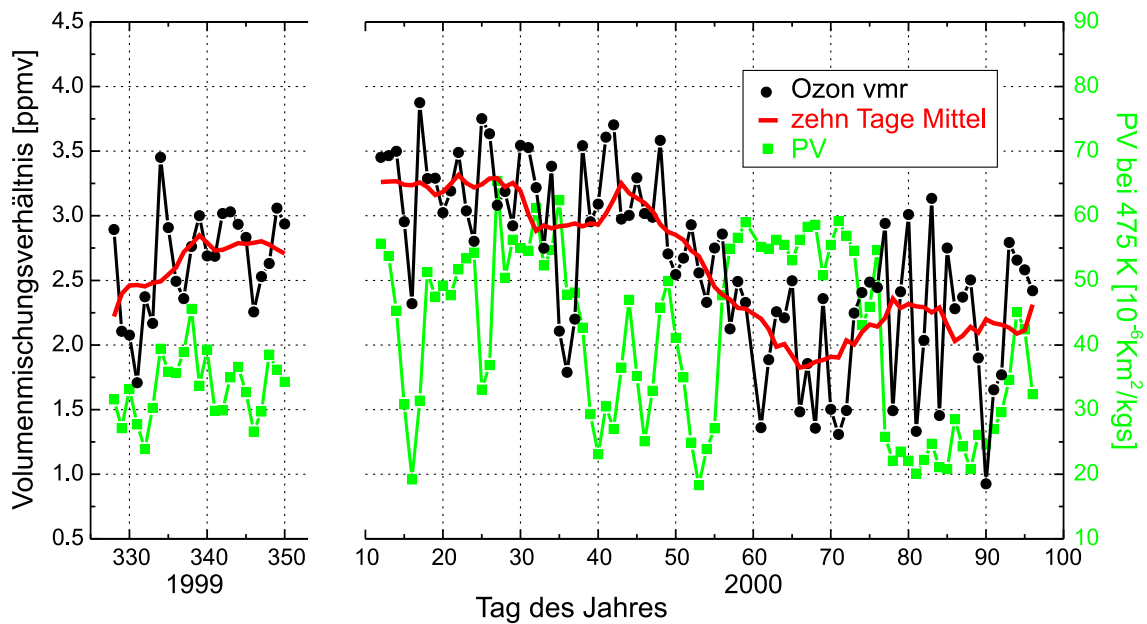


Abb. 6.55: Ozon und potentielle Vorticity über Kiruna auf der 475 K-Isentropenfläche im Winter 1999/2000. Für Ozon ist zusätzlich noch die über zehn Tage gemittelte Kurve eingezeichnet

6.5.4 Ozonabbau im Winter 1999/2000

Es ist instruktiv, die in den einzelnen Phasen gemessenen Ozonwerte zu einer einzigen Zeitreihe zusammenzufassen und die Werte auf der 475 K-Isentropenfläche zu vergleichen. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.55 dargestellt.

Am deutlichsten sind die Zusammenhänge bei Betrachtung des zehn-Tage-Mittels zu erkennen: Im Dezember steigt das Volumenmischungsverhältnis zunächst an, was auf das Absinken in sich formierenden polaren Vortex zurückzuführen ist, bei dem ozonreichere Luft aus größeren Höhen herabtransportiert wird. Im Januar, als Kiruna innerhalb des Polarwirbels lag, sind in etwa gleichbleibend hohe Ozonwerte zu verzeichnen. Anfang Februar dann schließt sich eine Phase an, in der sich Kiruna außerhalb des Polarwirbels oder in Vortexrandlage befand. Von Ende Februar bis Mitte März folgt dann jedoch ein Zeitraum, in dem Kiruna andauernd unter dem Polarwirbel lag. Vergleicht man die nun erreichten Ozonwerte mit denen vom Januar, stellt man fest, daß diese von etwa 3,2 ppmv auf nur noch um die 2 ppmv zurückgegangen sind, was einem Verlust von ca. 1,2 ppmv oder fast 40 % entspräche. Zusammen mit der gemessenen Chloraktivierung ist dies ein starker Hinweis auf katalytischen Ozonabbau nach den Gleichungen 2.13 bis 2.16 im kalten Winter 1999/2000.

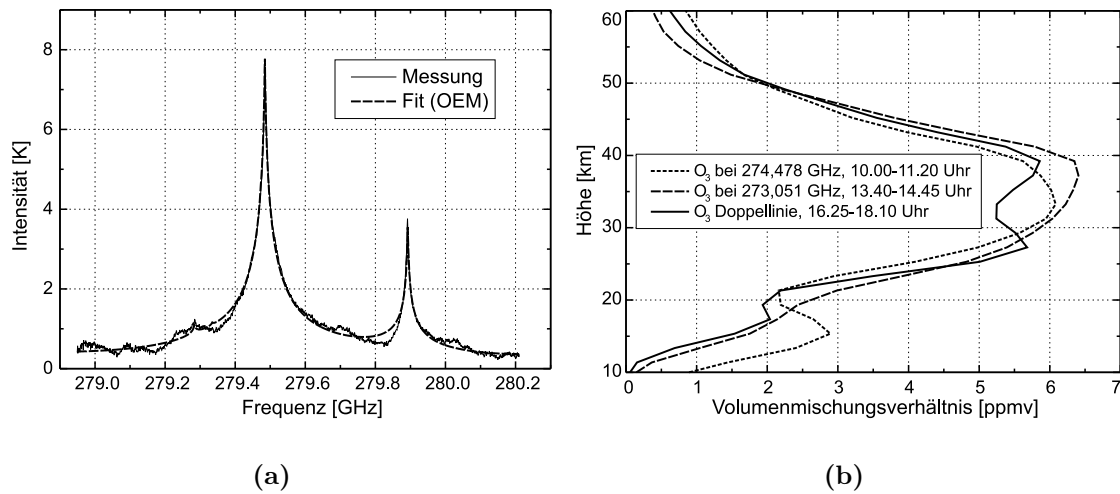


Abb. 6.56: Messung an der Ozon-Doppellinie bei 279,485 GHz und 279,892 GHz. In (a) ist ein am 6. März 2000 gemessenes Spektrum abgebildet. In (b) das daraus invertierte Höhenprofil im Vergleich mit Ozonmessungen an anderen Linien vom gleichen Tag

6.5.5 Messungen von Ozon an der Doppellinie oberhalb 279 GHz

Bei der Kampagne 1999/2000 wurde erstmals systematisch versucht, aus den invertierten Ozonprofilen Säulengehalte zu bestimmen, da dies häufig den Vergleich mit anderen Messungen vereinfacht. Es stellte sich jedoch heraus, daß die so bestimmten Säulengehalte in der Regel zu große Werte aufwiesen. Der Verdacht lag nahe, daß langperiodische Baselineeffekte die Ursache sein könnten, da ein maßgeblicher Beitrag zum Säulengehalt von Ozon aus Höhen unterhalb 20 km kommt, einem Höhenbereich also, wo derartige Baselineartefakte einen großen Einfluß auf das Inversionsergebnis haben. Eine Lösung des Problems könnte eine Messung an zwei Ozonlinien gleichzeitig darstellen, da es dann unwahrscheinlich ist, daß ein Baselineartefakt sich auf beide Ozonsignaturen in gleicher Art und Weise auswirkt. Am äußeren Rand des von MIRA 2 erfaßten Frequenzbereichs befinden sich tatsächlich zwei benachbarte Ozonlinien ausreichender Stärke bei 279,485 GHz und 279,892 GHz, die bei einer Messung gleichzeitig detektiert werden können. Ab Phase 3 wurden zu Testzwecken regelmäßig Messungen an dieser Doppellinie vorgenommen.

Abbildung 6.56(a) zeigt ein am 6. März 2000 unter 90° Elevation gemessenes Spektrum dieser Doppellinie. Die Intensität dieser Spektrallinien ist deutlich geringer als die der 274,478 GHz- oder gar der 273,051 GHz-Ozonlinie (siehe auch Abbildung 4.5), jedoch wird dieser Nachteil unter Umständen von der schon besprochenen

geringeren Empfindlichkeit gegenüber Baselineeffekten aufgewogen. In Abbildung 6.56(b) ist das aus dieser Messung invertierte Höhenprofil im Vergleich zu Ozonmessungen, die am gleichen Tag, aber an anderen Linien gemessen wurden, dargestellt.¹² Deutlich zu sehen ist insbesondere an dem bei 274,478 GHz gemessenen Höhenprofil, daß unterhalb 20 km höhere Volumenmischungsverhältnisse invertiert werden, die wahrscheinlich von der Baseline verursacht werden. Dies macht sich natürlich gravierend in dem aus den Profilen abgeleiteten Säulengehalt bemerkbar: So erhält man für die Ozonmessung an der Doppellinie einen Wert von $7,47 \cdot 10^{22}$ Teilchen/cm², für die Messung bei 273,051 GHz $8,73 \cdot 10^{22}$ Teilchen/cm² und für die Messung bei 274,478 GHz gar $1,37 \cdot 10^{23}$ Teilchen/cm². Das schon erwähnte FTIR, das ebenfalls am IRF in diesem Zeitraum Messungen durchführte, erhielt für den 5. und 7. März $8,06 \cdot 10^{22}$ Teilchen/cm² bzw. $7,51 \cdot 10^{22}$ Teilchen/cm² ([11], [3]), was zeigt, daß der an der Ozon-Doppellinie gemessene Wert vertrauenswürdiger als die beiden anderen erscheint. Inwieweit jedoch Messungen an dieser Doppellinie dazu dienen können, Säulengehalte zu bestimmen um damit den Vergleich mit anderen Meßgeräten zu erleichtern, müssen weitere Tests auf zukünftigen Kampagnen zeigen.

¹²Für die in den Abbildungen 6.51 und 6.55 gezeigten Meßreihen sind die Messungen an der Ozon-Doppellinie schon benutzt worden.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Die passive bodengebundene Millimeterwellenradiometrie stellt eine effiziente Methode zur kontinuierlichen Erfassung stratosphärischer Spurengase dar. Die von Rotationsübergängen herrührenden Signaturen werden dabei spektral so hoch aufgelöst, daß die Druckverbreiterung ausgewertet werden kann. Ein nicht zu unterschätzender Vorteil gegenüber anderen Meßmethoden ist hierbei, daß Messungen unabhängig vom Vorhandensein externer Strahlungsquellen wie beispielsweise der Sonne durchgeführt werden können und der Meßbetrieb auch bei bewölktem Himmel noch in gewissem Umfang aufrecht erhalten werden kann.

Das bei Beginn der Arbeit zur Auswertung der gemessenen Spektren schon vorhandene aber kaum in der Praxis erprobte Programmpaket war bereits in der Lage, durch Stehwellen bedingte Artefakte bei der Auswertung der Spektren zu berücksichtigen. Unklar war hingegen, auf welche Weise die dazu benötigten Perioden der Stehwellen am besten zu bestimmen seien. Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen ergaben, daß mit einer diskreten Fouriertransformation des Differenzspektrums einer Vorwärtsrechnung und des gemessenen Spektrums die gesuchten Perioden sehr genau bestimmt werden können.

Weiterhin sollten die gemessenen Spektren vor der Integration um den Einfluß der Troposphäre korrigiert werden. Statt der weit verbreiteten Korrektur mit Hilfe eines Zweischichtenmodells fand in dieser Arbeit ein Mehrschichtenmodell Verwendung, das bei Tests mit synthetischen Daten dem einfachen Zweischichtenmodell leicht überlegen ist. In seiner ursprünglichen Fassung berücksichtigte das Troposphärenkorrekturprogramm jedoch nicht den Einfluß des Seitenbandfilters auf den troposphärischen Sockel, was in einer leichten Krümmung der Baseline in den resultierenden Spektren und damit in fehlerhaften Inversionsergebnissen in Höhenbereichen unterhalb 20 km resultierte. Es wurde deshalb eine Methode entwickelt, wie die Filtercharakteristik des Seitenbandfilters bei der Troposphärenkorrektur berücksichtigt werden kann und Tests mit synthetischen Daten ergaben eine drastische Reduzierung der von der Filtercharakteristik verursachten Fehler.

Die Leistungsfähigkeit der so erweiterten Auswertelgorithmen konnte bei der Auswertung der auf den Meßkampagnen in den Wintern 1995/1996 bis 1999/2000 gesammelten Daten unter Beweis gestellt werden. Dabei wurden die auf den einzelnen Kampagnen gemachten Erfahrungen für Verbesserungen bei den darauffolgenden Meßkampagnen genutzt, was zu einer sukzessiven Verbesserung der Meßstrategie und des gesammelten Datenmaterials führte.

Bei der Meßkampagne im Winter 1995/1996 in Kiruna wurden im Zeitraum vom 10. Februar bis zum 4. April Spektren sämtlicher von MIRA 2 erfaßbaren Spurengase gemessen und ausgewertet. Es zeigte sich, daß sich sowohl die Tikhonov-Phillips-Regularisierung als auch die Optimal Estimation Methode zur Inversion der gemessenen Spektren eignet, wobei auf den folgenden Kampagnen der Optimal Estimation Methode der Vorzug gegeben wurde, da hier das invertierte Profil in den Höhenbereichen, in denen das Radiometer nicht sensitiv ist, stärker mit dem a priori-Profil gewichtet werden kann. Weiterhin wurde exemplarisch für jedes Spurengas eine Fehleranalyse durchgeführt. Für die gemessenen Ozonprofile ergab sich so eine vertikale Auflösung von bis zu 7 km und eine Unsicherheit im invertierten Profil von mindestens 1 ppmv. In den invertierten ClO-Profilen zeigte sich eine zeitweise sehr starke Chloraktivierung mit über 2 ppbv ClO in einer Höhe um 20 km in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen anderer Meßgeräte. Die erreichbare vertikale Auflösung in den invertierten Profilen beträgt bis zu 10 km bei einem Fehler in den Volumenmischungsverhältnissen von mindestens 0,5 ppbv. Für die Spurengase N_2O und HNO_3 ergaben sich vertikale Auflösungen von jeweils bis zu 12 km bei einer Unsicherheit von mindestens 50 bzw. 1 ppbv.

Die Meßkampagne im Winter 1996/1997 in Ny-Ålesund war eine internationale Vergleichsmeßkampagne unter Beteiligung von insgesamt vier bodengestützten ClO-Radiometern. Beim Vergleich mittels einer Skalierungsmethode wurden Abweichungen zwischen den unterschiedlichen Geräten von bis zu 40 % gefunden, deren Ursachen noch nicht endgültig geklärt werden konnten. Aus den Messungen von MIRA 2 konnte eine kontinuierliche Zeitreihe für ClO vom 11. bis 29. März mit einer Unterbrechung vom 24. bis 25. März invertiert werden. Deutlich zeigte sich die tageszeitliche Variation des ClO-Maximums bei 20 km mit Maximalwerten bis etwa 1,8 ppbv. Ein Vergleich mit Modellrechnungen von KASIMA ergab eine im Rahmen der begrenzten Auflösung relativ gute Übereinstimmung, ebenso ein Vergleich von Ozonmessungen von MIRA 2, dem Radiometer der Universität Bremen und einem Ozonsondenaufstieg.

Aus der Meßkampagne im Winter 1997/1998 in Kiruna konnte eine kontinuierliche Zeitreihe aus Ozonhöhenprofilen für den Zeitraum vom 26. Januar bis zum 3. April gewonnen werden. Es zeigte sich eine Korrelation zwischen den maximalen Ozonmischungsverhältnissen und der potentiellen Vorticity, was sich auf die großräumige Absinkbewegung und Isolation der Luftmassen innerhalb des Vortex zurückführen läßt. Beim Vergleich mit Ergebnissen des vom IMK am IRF betriebenen

Infrarotspektrometers (FTIR) ergaben sich Abweichungen von etwa 30 %, während Modellrechnungen mit KASIMA etwa in der Mitte zwischen den Messungen von MIRA 2 und dem FTIR lagen. Ein Vergleich mit den Ergebnissen eines Ozonsondenaufstiegs brachte keine Erkenntnisse über die Ursachen der in den Messungen vorhandenen Abweichungen, da die Ergebnisse beider Meßverfahren mit denen des Sondenauflstiegs verträglich sind.

Auf dieser Kampagne konnte erstmals der inerte Tracer N_2O innerhalb und außerhalb des polaren Vortex gemessen werden. Es zeigte sich, daß das invertierte Höhenprofil innerhalb des Vortex im Vergleich zu dem außerhalb gemessenen Höhenprofil deutlich abgesunken war, was bedeutet, daß anhand von N_2O -Messungen Rückschlüsse auf die Dynamik in der Stratosphäre gezogen werden können.

Der Winter 1998/1999 zeichnete sich durch einen sehr schwachen Vortex aus und die Stratosphäre war dementsprechend warm. Infolgedessen konnten in den Messungen von MIRA 2 keinerlei Anzeichen für Chloraktivierung und chemisch verursachten Ozonabbau gefunden werden. Ebenso gaben die gemessenen HNO_3 -Profile keinerlei Hinweis auf stärkere Verluste durch die Bildung von PSCs und anschließende Sedimentation, was wiederum auf die vergleichsweise hohen Temperaturen in diesem Winter zurückgeführt werden kann.

Die Meßkampagne 1999/2000 in Kiruna war eingebunden in die bis dahin größte internationale arktische Meßkampagne, THESEO 2000/SOLVE. Durch eine verbesserte Meßstrategie konnten nahezu kontinuierliche Zeitreihen von Höhenprofilen aller von MIRA 2 detektierbaren Spurengase gewonnen werden.

Für Ozon zeigte sich im November/Dezember 1999 zunächst ein Maximum oberhalb 35 km mit relativ niedrigen Mischungsverhältnissen, ein zweites Maximum unterhalb von 30 km Höhe und ein Ansteigen der Mischungsverhältnisse auf der 475 K-Isentropenfläche. Diese Beobachtungen könnten auf die Absinkbewegung und Isolation der Luftmassen innerhalb des frühen Vortex, möglicherweise aber auch auf kompliziertere dynamische Prozesse zurückzuführen sein. Im Januar/Februar 2000 dann fand sich das Ozonmaximum unterhalb 35 km, was in der voranschreitenden Absinkbewegung im polaren Vortex seine Ursache haben dürfte. Auf der 475 K-Isentropenfläche fanden sich nun mit die höchsten Volumenmischungsverhältnisse für Ozon über den ganzen Winter, was typisch ist für diese Jahreszeit unter ungestörten chemischen Verhältnissen. Im Februar bis April ergab sich dann wie im Winter 1997/1998 eine deutliche Korrelation der maximalen Volumenmischungsverhältnisse mit der potentiellen Vorticity auf der 475 K-Isentropenfläche. Die Volumenmischungsverhältnisse von Ozon auf der 475 K-Isentropen zeigten innerhalb des Vortex nun deutlich geringere Werte als noch im Januar, was ein starker Hinweis auf chemisch bedingten Ozonabbau ist. Die Verluste betragen zeitweise über 40 %.

In den gemessenen ClO-Profilen konnte im November/Dezember 1999 nur ein ClO-Maximum oberhalb 35 km Höhe gefunden werden. Dies läßt sich auf das zu dieser Jahreszeit fehlende Sonnenlicht und auch auf die noch nicht allzu weit vor-

angeschrittene Vorkonditionierung des Polarwirbels zurückführen. Im Januar 2000 zeigte sich dann das für Chloraktivierung typische zweite ClO-Maximum unterhalb 20 km Höhe mit seiner starken tageszeitlichen Variation. Die Maximalwerte im unteren Maximum betragen bis 1,4 ppbv. Im März konnten vereinzelte ClO-Messungen durchgeführt werden. Die invertierten Profile zeigten im allgemeinen geringere Volumenmischungsverhältnisse im unteren Maximum im Vergleich zum Januar oder gar keine Chloraktivierung, was einen ersten Hinweis darauf gibt, daß Chlormonoxid zu dieser Zeit schon langsam wieder in seinen Reservoirdgasen gebunden wurde.

Für HNO_3 fanden sich in den im November/Dezember 1999 gemessenen Profilen mit bis zu 12 ppbv recht hohe Volumenmischungsverhältnisse unterhalb 25 km Höhe. Dies ist eine Folge der fehlenden Sonneneinstrahlung jenseits des Polarkreises zu dieser Jahreszeit, wodurch viele Gase in ihren Reservoirdgasen gebunden sind und dadurch u. a. HNO_3 gebildet wird. Ende Januar dann fanden sich beim Auftreten von PSCs deutlich geringere Volumenmischungsverhältnisse von HNO_3 , da dieses Spurengas zusammen mit Wasser und Schwefelsäure PSC-Partikel gebildet hatte. Noch geringere Volumenmischungsverhältnisse wurden im März gefunden, was sich zum einen mit einer Denitrifizierung der unteren Stratosphäre erklären ließe, zum anderen aber auch durch Photolyse aufgrund der nun zunehmenden Sonneneinstrahlung. Das dabei freigesetzte NO_2 kann dann zusammen mit Chlormonoxid Chlornitrat bilden, was die zu dieser Zeit niedrigen Werte für Chlormonoxid erklären würde.

In den gemessenen N_2O -Profilen zeigte sich über den Winter hinweg das Absinken innerhalb des Polarwirbels und gleichzeitig deutlich höhere Volumenmischungsverhältnisse in den Zeiträumen, in denen Kiruna außerhalb des Polarwirbels lag. Dies dokumentiert erneut die Möglichkeit von Studien der Dynamik der unteren Stratosphäre anhand dieses inerten Tracers.

Auf zukünftigen Kampagnen soll weiter untersucht werden, inwieweit Messungen an der Ozon-Doppellinie oberhalb 279 GHz die Möglichkeit bieten, Säulengehalte von Ozon zu bestimmen um damit Vergleiche mit Messungen anderer Geräte zu erleichtern. Weiterhin sollen Messungen in Absorptionsgeometrie gegen die Sonne durchgeführt werden, wodurch unter gewissen Umständen ein deutlich höherer Kontrast in den gemessenen Spektren erzielt werden sollte ([2]), was die Messung von schwächeren Signaturen auch unter ungünstigeren troposphärischen Bedingungen ermöglichen würde. Der Aufbau eines Radiometers mit SIS-Mischertechnologie wird das Signal- zu Rauschverhältnis drastisch verbessern und stellt somit eine hervorragende Möglichkeit dar, die zeitliche Auflösung in den gemessenen Zeitreihen erheblich zu verbessern bzw. auch kurze Perioden mit günstigen Witterungsbedingungen zur Messung schwacher Signaturen wie ClO zu nutzen. Außerdem wird aufgrund der wachsenden Datenmengen eine stärkere Automatisierung der Auswerteverfahren angestrebt.

Auch in Zukunft werden Vergleiche der Höhenprofile aller von MIRA 2 erfaßbaren Spurengase mit anderen Meßinstrumenten, insbesondere mit dem vom IMK in Kiru-

na betriebenen FTIR, durchgeführt. Die invertierten Höhenprofile stehen ebenfalls zur Validierung von Modellrechnungen mit KASIMA zur Verfügung, wobei hierfür zunächst einmal die ausgedehnten Zeitreihen der Meßkampagne 1999/2000 herangezogen werden. Des weiteren ist geplant, die von MIRA 2 gesammelten Daten in Zukunft auch zur Satellitenvalidierung einzusetzen.

Insgesamt hat sich die bodengebundene Millimeterwellenradiometrie als geeignete und auch vergleichsweise preiswerte Meßmethode zur Gewinnung kontinuierlicher Zeitreihen einiger für die Ozonchemie wichtiger Spurengase erwiesen. Da die Messungen vom troposphärischen Geschehen beeinträchtigt werden, muß auf einen geeigneten Meßstandort mit niedrigem troposphärischen Wasserdampfgehalt geachtet werden. Kiruna und Ny-Ålesund erwiesen sich jedoch auf den bisherigen Meßkampagnen als sehr geeignete Standorte für die bodengebundene Millimeterwellenradiometrie, was die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse eindrucksvoll belegen.

Literaturverzeichnis

- [1] Baumeister, J., *Stable Solutions of Inverse Problems, Advanced Lectures in Mathematics*, Vieweg Verlag, Braunschweig Wiesbaden, 1987
- [2] Berg, H., *Weiterentwicklung der Millimeterwellenradiometrie stratosphärischer Spurengase in Emission und Absorption*, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6515, Forschungszentrum Karlsruhe, Oktober 2000
- [3] Blumenstock, T. et al., *Ground Based FTIR Measurements of O_3 , HCl, ClONO₂, NO₂, NO, and HNO₃ at Kiruna (Sweden) during Winter 1999/2000*, SOLVE/THESEO 2000 Science Meeting, Palermo, 2000
- [4] Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie, *Ozonschicht über Europa*, Bonn 1997
- [5] Bronstein, I. N., K. A. Semendjajew, *Taschenbuch der Mathematik*, Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt/Main, 1985
- [6] Chandrasekhar, S., *Radiative Transfer*, Dover Publications Inc., New York, 1960
- [7] Chapman, S., *A Theory of Upper Atmospheric Ozone*, Mem. Roy. Meteorol. Soc. 3, 103, 1930
- [8] Farman, J. C., B. G. Gardiner, J. D. Shanklin, *Large Losses of Total Ozone in Antarctica Reveal Seasonal ClO_x/NO_x Interaction*, Nature, Vol. 315, pp. 207–210, May 1985
- [9] Gerthsen, C., H. O. Kneser, H. Vogel, *Physik: Ein Lehrbuch zum Gebrauch neben Vorlesungen*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1989
- [10] Hadamard, J., *Lectures on the Cauchy Problem in Linear Partial Differential Equations*, Yale University Press, New Haven, 1923
- [11] Hase, F., *private Mitteilungen* 2000

- [12] Hase, F., *Inversion von Spurengasprofilen aus hochaufgelösten bodengebundenen FTIR-Messungen in Absorption*, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6512, Forschungszentrum Karlsruhe, Oktober 2000
- [13] Janssen, A., *Atmospheric Remote Sensing by Microwave Radiometry*, John Wiley & Sons Inc., New York, 1993
- [14] Joos, G., *Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Aula-Verlag, Wiesbaden, 1989
- [15] Kanamitsu, M., *Description of the NMC global data assimilation and forecast system*, Weather and Forecasting, Vol. 4, pp. 335–342, 1989
- [16] Klein, U., *Aufbau und Betrieb eines breitbandigen, bodengestützten Millimeterwellen-Radiometers zur Messung atmosphärischer Spurenstoffe*, Dissertation am Institut für Fernerkundung der Universität Bremen, 1993
- [17] Klein, U. et. al., *Intercomparison of four ground-based chlorine monoxide radiometers at Spitsbergen in Spring 1997*, Polar Stratospheric Ozone 1997: Proc. of the Fourth European Symposium, Schliersee, 22 to 26 September 1997, Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 1998, pp. 689–691
- [18] Klein, U., *private Mitteilungen* 1999
- [19] von König, M., *private Mitteilungen* 2000
- [20] Kopp G., H. Berg, G. Hochschild, R. Krupa, M. Kuntz, Å. Steen, *Millimeter Wave Observations of Stratospheric Trace Gases at Kiruna during Spring 1996*, Polar Stratospheric Ozone 1997: Proc. of the Fourth European Symposium, Schliersee, 22 to 26 September 1997, Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 1998, pp. 463–466
- [21] Kopp G., H. Berg, G. Hochschild, R. Ruhnke, *Profiles of Stratospheric Trace Gases Retrieved from Ground-Based Millimeter Wave Radiometry at Ny-Ålesund 1997 and Kiruna 1998*, Proc. of 1999 IEEE International Geoscience and Remote Sensing Symposium, Vol. IV, pp. 2293–2295, Hamburg, July 1999
- [22] Kouker, W., I. Langbein, Th. Reddmann, R. Ruhnke, *The Karlsruhe Simulation Model of the Middle Atmosphere (KASIMA), Version 2*, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6278, Forschungszentrum Karlsruhe, März 1999
- [23] Krupa, R., G. Hochschild, *A 278 GHz Radiometer with Advanced Calibration for Monitoring of Stratospheric Trace Gases*, Proc. of 21st International Conference on Infrared and Millimeter Waves, Berlin, 14 to 19 July 1996, ISBN 3-00-000800-4, pp. BM4, 1996

- [24] Krupa, R., G. Hochschild, *A Variable Reference Load for Advanced Millimeterwave Radiometry*, Workshop digest of the 4th International Workshop on Terahertz Electronics, Erlangen, 1996
- [25] Krupa, R., *Millimeterwellen-Radiometrie stratosphärischer Spurengase unter Anwendung balancierter Kalibrierung*, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6048, Forschungszentrum Karlsruhe, Januar 1998
- [26] Kuntz, M., *Inversion schlecht gestellter Probleme am Beispiel der bodengebundenen, passiven Millimeterwellenradiometrie*, KfK-Bericht Nr. 5421, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1993
- [27] Kuntz, M., *Bestimmung der Höhenverteilung stratosphärischer Spurengase aus Emissionsspektren eines bodengebundenen Millimeterwellen-Radiometers*, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 5719, Forschungszentrum Karlsruhe, Februar 1996
- [28] Kuntz, M., *New Procedures for the Retrieval of Stratospheric Trace Gases from Spectra of a Ground-Based Millimeter Wave Radiometer*, Proc. of IGARSS'96, ISBN 0-7803-3068-4, pp. 433–435, 1996
- [29] Kuntz M., H. Berg, G. Hochschild, G. Kopp, R. Krupa, *Simultaneous Retrieval of Chlorine Monoxide and Ozone Profiles from High Resolution Millimeterwave Spectra*, Polar Stratospheric Ozone 1997: Proc. of the Fourth European Symposium, Schliersee, 22 to 26 September 1997, Luxembourg: Office for Official Publications of the European Communities, 1998, pp. 467–469
- [30] Kuntz M., G. Hochschild, R. Krupa, *Retrieval of ozone mixing ratio profiles from ground-based millimeter wave measurements disturbed by standing waves*, Journal of Geophysical Research, Vol. 102, No. D18, pp. 21,965–21,975, September 1997
- [31] Kuntz M., *private Mitteilungen*, 1997
- [32] Kuntz, M., G. Kopp, H. Berg, G. Hochschild, R. Krupa *Joint retrieval of atmospheric constituent profiles from ground-based millimeterwave measurements: ClO, HNO₃, N₂O, and O₃*, Journal of Geophysical Research, Vol. 104, No. D11, pp. 13,981–13,992, June 1999
- [33] Louis, A. K., *Inverse und schlecht gestellte Probleme*, Teubner Studienbücher, 1989
- [34] Menke, W., *Geophysical Data Analysis: Discrete Inverse Theory*, Academic Press Inc., SanDiego, 1989

- [35] Molina, L. T., and M. J. Molina, *Production of Cl_2O_2 from the self-reaction of the ClO radical*, J. Phys. Chem., Vol. 91, pp. 433–436, 1987
- [36] Parrish, A., R. L. de Zafra, P. M. Solomon and J. W. Baret, *A ground-based technique for millimeter wave spectroscopic observations of stratospheric trace constituents*, Radio Science, No. 23, pp. 106–118, 1988
- [37] Pickett, H. M., R. L. Poynter, E. A. Cohen, M. L. Delitsky, J. C. Pearson, and H. S. P. Müller, *Submillimeter, Millimeter, and Microwave Spectral Line Catalog*, J. Quant. Spectrosc. & Rad. Transfer, Vol. 60, pp. 883–890 1998
- [38] Press, W. H., W. T. Vetterling, S. A. Teukolsky, B. P. Flannery, *Numerical Recipes in C, The Art of Scientific Computing*, Cambridge University Press, 1992.
- [39] Raffalski, U., *Messung stratosphärischer Spurengase über Ny-Ålesund, Spitzbergen, mit Hilfe eines bodengebundenen Mikrowellen-Radiometers*, Dissertation am Institut für Fernerkundung der Universität Bremen, 1998
- [40] Raffalski, U. et al., *Ground based millimeter-wave observations of Arctic chlorine activation during winter and spring 1996/1997*, Geophysical Research Letters, Vol. 25, No. 17, pp. 3227–3330, 1998
- [41] Ricaud, P., J. de la Noë, R. Lauqué, *Analysis of stratospheric chlorine monoxide measurements recorded by a ground-based radiometer located at the Plateau de Bure, France*, Journal of Geophysical Research, Vol. 102, No. D1, pp. 1423–1439, Jan. 1997
- [42] Richter, M., *Auswertung hochaufgelöster, solarer IR-Spektren aus dem Winter 1995/96: NO_X in der polaren Stratosphäre*, Diplomarbeit am Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe, 1997
- [43] Rodgers, C. D., *Remote Sounding of the Atmospheric Temperature Profile in the Presence of Cloud*, Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, Vol. 96, pp. 654–666, 1970
- [44] Rodgers, C. D., *Retrieval of Atmospheric Temperature and Composition From Remote Measurements of Thermal Radiation*, Reviews of Geophysics and Space Physics, Vol. 14, No. 4, pp. 609–624, Nov. 1976
- [45] Rodgers, C. D., *Characterization and Error Analysis of Profiles Retrieved from Remote Sounding Measurements*, Journal of Geophysical Research, Vol. 95, No. D5, pp. 5587–5595, Apr. 1990

- [46] Roedel, W., *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1994
- [47] Rothman, L. S. et al., *The HITRAN Database: 1986 Edition*, Applied Optics, Vol. 26, No. 19, pp. 4058–4097, 1986
- [48] Rothman, L. S. et al., *The HITRAN Molecular Database: Editions of 1991 and 1992*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, Vol. 48, pp. 469–507, June 1992
- [49] Rothman, L. S. et al., *The HITRAN Molecular Spectroscopic Database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 Edition*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, Vol. 60, No. 5, pp. 665–710, 1998
- [50] Ruhnke, R. et al., *The vertical distribution of ClO at Ny-Ålesund during March 1997*, Geophysical Research Letters, Vol. 26, No. 7, pp. 839–842, April 1999
- [51] Santee, M. L. et al., *MLS observations of ClO and HNO₃ in the 1996-1997 Arctic polar vortex*, Geophys. Res. Lett., Vol. 24, pp. 2713–2716, 1997
- [52] Schimpf, B., *Inversion durch Regularisierung zur Bestimmung von atmosphärischen Molekül-Konzentrationen aus Fern-Infrarot-Spektren*, Diplomarbeit an der Technischen Universität München, 1996
- [53] Schimpf, B., *Analyse von Fern-Infrarot-Spektren zur Bestimmung der OH-Konzentration der mittleren Erdatmosphäre*, Dissertation, Universität Bremen und Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) e. V. in Oberpfaffenhofen, 1999
- [54] Shindell, D. T., *Model/Measurement Comparison of Ozone Depleting Chlorine Chemistry in the Polar Stratosphere*, Dissertation, State University of New York at Stony Brook, 1995
- [55] Ulaby, F. T., R. K. Moore and A. K. Fung, *Microwave Remote Sensing, Active and Passive*, Addison-Wesley, 1981
- [56] Urban, J., *Messungen der stratosphärischen Spurengase ClO, HCl, O₃, N₂O, H₂O und OH mittels flugzeuggetragener Submillimeterwellen-Radiometrie*, Berichte zur Polarforschung, 264, Universität Bremen, 1998
- [57] Van Vleck, J. H., V. F. Weisskopf, *On the Shape of Collision-Broadened Lines*, Reviews of Modern Physics, Vol. 17, No. 2 and 3, pp. 227–236, 1945
- [58] Waters, J. W. et al., *Validation of UARS Microwave Limb Sounder ClO measurements*, Journal of Geophysical Research, Vol. 101, No. D6, pp. 10091–10127, 1996

- [59] World Meteorological Organization, *Scientific assessment of ozone depletion*, Rep. 25, Global ozone research and monitoring project, Genf 1996

Anhang A

Potentielle Temperatur und potentielle Vorticity

Die potentielle Temperatur θ ist die Temperatur, die ein Luftpaket mit den Zustandsgrößen T und p annehmen würde, wenn man es trockenadiabatisch (isentrop) und damit reversibel auf einen Druck von $p_0 = 1000 \text{ hPa} = 1000 \text{ mbar}$ bringen würde. Sie berechnet sich gemäß

$$\theta = T \left(\frac{p_0}{p} \right)^{\frac{c_p - c_V}{c_p}} = T \left(\frac{p_0}{p} \right)^{\frac{R}{c_p}},$$

mit c_p und c_V den spezifischen Wärmekapazitäten bei konstantem Druck bzw. konstantem Volumen und R der Gastkonstanten. Für trockene Luft hat der Exponent ungefähr den Wert 0,286. Die potentielle Temperatur bleibt bei isentropen Prozessen erhalten, weswegen Flächen gleicher potentieller Temperatur Isentropenflächen sind. Luftpakete, die keine Wärme mit der Umgebung austauschen, bewegen sich deshalb auf diesen Isentropenflächen, wodurch die Beschreibung der Bewegung von Luftmassen bei Kenntnis dieser Isentropenflächen von einem dreidimensionalen auf ein zweidimensionales Problem reduziert wird.

Eine weitere wichtige Erhaltungsgröße bei isentropen und reibungsfreien Strömungen ist die Potentielle Vorticity PV oder potentielle Wirbelstärke, die sich wie folgt berechnet:

$$PV = (\zeta_\theta + f) \left(-g \frac{\partial \theta}{\partial p} \right) = \left(\frac{\partial V}{\partial x} - \frac{\partial U}{\partial y} - f \right) \left(-g \frac{\partial \theta}{\partial p} \right)$$

Die relative Vorticity ζ_θ beschreibt die zweidimensionale Rotation der Luftmassen innerhalb der Strömung auf der Isentropenfläche mit konstantem θ , U und V sind die zonalen und meridionalen Windkomponenten und g die Erdbeschleunigung. Der Coriolisparameter f verknüpft die Corioliskraft F_c mit der Geschwindigkeit v_h in

der Horizontalebene gemäß $F_c = f v_h$ und ergibt sich zu $f = 2\Omega \sin \Phi$. Ω ist hier die Winkelgeschwindigkeit der Erde und Φ die geographische Breite. Als polarer Vortex wird auf der 475 K-Isentropenfläche häufig die Region innerhalb der Isolinie der potentiellen Vorticity von $42 \cdot 10^{-6} \text{ K} \cdot \text{m}^2/\text{kg} \cdot \text{s}$ definiert.

Symbolverzeichnis

α_ν	Absorptionskoeffizient bei der Frequenz ν , (3.2)
α_j	Absorptionskoeffizient der j -ten Höhenschicht, S. 30
α_{mn}	Absorptionskoeffizient eines Moleküls mit den Energiezuständen E_m und E_n , S. 12
$\Delta\nu_D$	Halbwertsbreite einer dopplerverbreiterten Linie, S. 14
$\Delta\nu_p$	Halbwertsbreite einer druckverbreiterten Linie, (3.6)
ΔG	Gewinnschwankungen, S. 22
Δh_j	Dicke der j -ten Höhenschicht, S. 30
ΔT_b	erreichbare Auflösung in der Helligkeitstemperatur, (4.1)
ϵ_ν	Emissivität bei der Frequenz ν , (3.2)
γ	temperaturabhängiger Druckverbreiterungsfaktor, S. 14
γ^2	Lagranger Multiplikator, Regularisierungsparameter, (5.12)
$\gamma_{c_{v_1}}, \gamma_{c_{v_1}}, \dots$	Regularisierungsparameter für die einzelnen Spurengase, S. 37
μ_{mn}	Dipolmatrixelement für den Übergang vom Zustand m zum Zustand n , S. 12
ν	Frequenz, S. 12
ν_1, \dots, ν_n	Frequenzen der spektralen Stützstellen der gemessenen Spektren, S. 39
ν_{mn}	Frequenz eines beim Übergang vom Energiezustand E_m zum Energiezustand E_n emittierten Photons, (3.1)

ν_{rot}	Frequenz des bei einem Rotationsübergang emittierten Photons, S. 11
Ω	Winkelgeschwindigkeit der Erde, S. 121
Φ	geographische Breite, S. 121
ϕ	Phasenlage der stehenden Welle im Spektrum, S. 39
$\rho(h)$	Dichte, S. 5
τ	mittlere Stoßzeit, (3.6)
$\tau_\nu(h_0, h)$	Opazität der Atmosphäre vom Boden bis zur Höhe h bei der Frequenz ν , (3.9)
τ_i	Opazität der i -ten Höenschicht, S. 44
τ_T	Opazität der Troposphäre, (5.30)
θ	potentielle Temperatur, S. 120
φ	Elevationswinkel, S. 17
ζ_θ	relative Vorticity, S. 120
ε	Vektor mit den Meßfehlern, S. 35
$\delta(h_i)$	Störung in der Höenschicht h_i , (5.20)
A	Airmass-Faktor, S. 17
A	Amplitude der stehenden Welle im Spektrum, S. 39
a, b	sin- und cos-Anteil der Amplitude der stehenden Welle im Spektrum, S. 39
B	Rotationskonstante, S. 10
B	spektrale Bandbreite, (4.1)
$B_\nu(T)$	Planckfunktion, (3.3)
c	Lichtgeschwindigkeit, (3.3)
c_p, c_V	spezifische Wärmekapazitäten bei konstantem Druck bzw. konstanter Temperatur, S. 120

c_{vj}	Volumenmischungsverhältnis der j -ten Höhenschicht, S. 29
c_{vi}	Volumenmischungsverhältnis der Molekülsorte i , S. 13
E_J, E_{J-1}	Energie der Zustände mit Drehimpulsquantenzahl J bzw. $J - 1$, S. 11
E_m, E_n	Energie der Zustände m und n , (3.1)
f	Coriolisparameter, S. 120
$f(\nu, \nu_{mn})$	Linienform, S. 13
F_c	Corioliskraft, S. 120
$f_D(\nu, \nu_{mn})$	Formfunktion der Dopplerverbreiterung, S. 13
$f_p(\nu, \nu_{mn})$	Formfunktion der Druckverbreiterung, (3.5)
f_s, f_{sp}	Filtercharakteristik des Seitenbandfilters im Signal- und Spiegelseitenband, S. 45
f_V	Voigtfunktion, S. 15
G	Gesamtgewinn des Radiometersystems, S. 22
$g, g(h)$	Erdbeschleunigung, S. 5
g_n	Entartungsgrad des Energiezustandes E_n , S. 12
H	Skalenhöhe, (2.3)
h	Höhe, S. 5
h	Plancksches Wirkungsquantum; $h = 6,626076 \cdot 10^{-34}$ Js, (3.1)
$h\nu$	Photon der Energie $h\nu$, S. 7
h_∞	oberer Rand des betrachteten Höhenbereichs der Atmosphäre, S. 16
I	Trägheitsmoment des Moleküls, S. 10
I_ν	Strahlungsintensität bei der Frequenz ν , (3.7)
$I_\nu(h_\infty)$	Hintergrundstrahlung bei der Frequenz ν , S. 16
I_x, I_y, I_z	Trägheitsmomente der Hauptträgheitsachsen, S. 11

J	Drehimpulsquantenzahl, S. 10
$J_\gamma(\mathbf{f}_\gamma)$	Tikhonov-Phillips-Funktional, (5.12)
k	Wellenzahl der stehenden Welle im Spektrum, S. 39
k_B	Boltzmannkonstante, $k_B = 1,38066 \cdot 10^{-23}$ J/K, (3.3)
K_{-1}, K_{+1}	Quantenzahlen für prolate und oblate Rotoren, S. 12
l	Resonatorlänge, (4.2)
M	molare Masse, S. 5
m	Exponent der Temperaturabhängigkeit der Linienstärke, S. 55
m	Molekülmasse, S. 13
n	Anzahldichte der Moleküle, S. 12
N_i	Anzahl der Molekülsorte i , S. 13
n_i	Anzahldichte der Molekülsorte i , S. 13
P	Periode einer stehenden Welle, (4.2)
$p, p(h)$	Druck, S. 5
P_h, P_c, P_{obj}	Empfängerausgangsleistung bei Messung auf die warme bzw. kalte Eichlast oder auf das interessierende Meßobjekt, S. 22
PV	potentielle Vorticity, S. 120
Q	Zustandssumme, S. 12
R	Erdradius, (3.10)
R	Gaskonstante; $R = 8,31451$ J / K mol, S. 5
$S(T)$	Linienstärke, S. 55
$T, T(h)$	Temperatur, S. 5
$T_b(\nu)$	Helligkeitstemperatur bei der Frequenz ν , S. 18
$T_b(T_i)$	Helligkeitstemperatur eines Schwarzkörpers der thermodynamischen Temperatur T_i , S. 44

$T_b(T_T)$	Helligkeitstemperatur eines Schwarzkörpers der thermodynamischen Temperatur T_T , (5.30)
T_h, T_c	Temperatur der warmen bzw. kalten Eichlast, S. 22
T_j	thermodynamische Temperatur der j -ten Höhengschicht, S. 29
T_T	thermodynamische Temperatur der Troposphäre, (5.30)
$T_{b,atm}$	Helligkeitstemperatur der zu messenden Strahlung, (4.1)
T_{b_h}, T_{b_c}	Helligkeitstemperatur der warmen bzw. kalten Eichlast, S. 22
$T_{b_{obj}}$	Helligkeitstemperatur des Meßobjekts, S. 22
T_{bB}	am Boden gemessene Helligkeitstemperatur, (5.30)
T_{bB}^0	Helligkeitstemperatur der am Boden gemessenen Spektren weit weg von den Linienzentren starker Signaturen, S. 43
$T_{b_i}, T_{b_{(i+1)}}, \dots$	Helligkeitstemperaturen der Höhengschichten $i, i + 1, \dots$, S. 44
$T_{b_j}(h_0, T_j, c_{vj})$	Beitrag der j -ten Höhengschicht zu der am Boden meßbaren Helligkeitstemperatur, S. 29
$T_{bS_s}, T_{bS_{sp}}$	Helligkeitstemperatur des stratosphärischen Signals im Signal- und Spiegelseitenband, S. 45
T_{bS}	Helligkeitstemperatur des stratosphärischen Signals, (5.30)
$T_{bU_s}, T_{bU_{sp}}$	Helligkeitstemperatur des Untergrunds im Signal- und Spiegelseitenband, S. 45
t_{int}	Integrationszeit, (4.1)
T_{rec}	Empfängerrauschtemperatur, (4.1)
U, V	zonale und meridionale Windkomponenten, S. 120
V	Volumen, S. 12
v_h	Geschwindigkeit der Luftmassen in der Horizontalebene, S. 120
V_i	von der Molekülsorte i eingenommenes Volumen, S. 13
ds	infinitesimal kurzes Wegstück entlang des Sehstrahls, S. 17
M	neutraler Stoßpartner, S. 7

X	Katalysator, (2.5)
$(S_T)_j$	Sensitivitätsfunktion für die Temperatur, (5.2)
$(S_{c_v})_j$	Sensitivitätsfunktion für das Volumenmischungsverhältnis, (5.3)
\hbar	Plancksches Wirkungsquantum; $\hbar = h/2\pi = 1,054573 \cdot 10^{-34}$ Js, S. 11
\mathbf{A}	entspricht \mathbf{A}^0 , (5.8)
\mathbf{A}^0	Aus \mathbf{A}_T^0 und $\mathbf{A}_{c_v}^0$ zusammengesetzte Jakobimatrix, (5.6)
\mathbf{A}^T	Transponierte der Matrix \mathbf{A} , (5.9)
\mathbf{A}^{-1}	Inverse der Matrix \mathbf{A} , S. 32
$\mathbf{A}_T^0, \mathbf{A}_{c_v}^0$	Jakobimatrizen, (5.5)
\mathbf{b}_0	Vektor mit einem mit Standardprofilen vorwärts gerechneten Spektrum, (5.5)
\mathbf{B}	Matrix mit den Nebenbedingungen an die Lösung bei Tikhonov-Phillips-Regularisierung, (5.10)
\mathbf{b}	Vektor mit den gemessenen spektralen Intensitäten, (5.5)
\mathbf{C}	Matrix zur Gewichtung des Datenvektors \mathbf{g} , S. 34
\mathbf{f}'	gestörtes Höhenprofil, (5.20)
\mathbf{f}_γ	regularisiertes Höhenprofil, (5.12)
$\mathbf{f}_{c_{v_1}\gamma}, \mathbf{f}_{c_{v_2}\gamma}, \dots$	regularisierte Höhenprofile der verschiedenen Konstituenten, (5.28)
$\mathbf{f}_T, \mathbf{f}_{c_v}$	Vektoren mit den Höhenprofilen von Temperatur bzw. Volumenmischungsverhältnis in der Atmosphäre, (5.5)
$\mathbf{f}_T^0, \mathbf{f}_{c_v}^0$	Vektoren mit den Startprofilen von Temperatur bzw. Volumenmischungsverhältnis in der Atmosphäre, (5.5)
\mathbf{f}_{opt}	Lösung der Optimal Estimation Methode, (5.18)
\mathbf{g}'	gestörtes gemessenes Spektrum, (5.21)
\mathbf{g}	Datenvektor, (5.8)
\mathbf{I}	Einheitsmatrix, S. 33

\mathbf{O}	Nullmatrix, S. 38
\mathbf{o}	Nullvektor, S. 33
\mathbf{R}	Auflösungsmatrix, (5.22)
\mathbf{r}	Hilfsvektor für die Formulierung der Nebenbedingung bei der Tikhonov-Phillips-Regularisierung, (5.10)
$\bar{\mathbf{f}}$	Mittel- oder Erwartungswert des Vektors \mathbf{f} , (5.15)
$\widetilde{\mathbf{B}}_{c_{v_1}}, \widetilde{\mathbf{B}}_{c_{v_2}}$	Erweiterte Matrizen mit den Nebenbedingungen für Tikhonov-Phillips-Regularisierung bei simultaner Inversion mehrerer Spurengase, S. 38
$\widetilde{\mathbf{r}}_{c_{v_1}}, \widetilde{\mathbf{r}}_{c_{v_2}}$	Erweiterte Hilfsvektoren für Tikhonov-Phillips-Regularisierung bei simultaner Inversion mehrerer Spurengase, S. 38
\mathbf{S}_γ	Fehlerkovarianzmatrix, S. 36
\mathbf{S}_f	a priori-Kovarianzmatrix, (5.16)
\mathbf{S}_ε	Kovarianzmatrix des Meßfehlers, S. 35
\mathbf{A}^{-1}	verallgemeinerte Inverse der Matrix \mathbf{A} , (5.9)
\mathbf{A}_γ^{-1}	regularisierte verallgemeinerte Inverse, (5.14)

Verzeichnis der Abkürzungen

AOS Akusto-Optisches Spektrometer

ASUR Airborne Submillimeter Radiometer

CLI Constrained Linear Inversion

CRL Communications Research Laboratories

DSB Double Side Band

ECMWF European Centre for Medium-Range Weather Forecasts

FCKWs Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe

FFT Fast Fourier Transform

FTIR Fourier Transform Infrared Spectrometer

GSFC Goddard Space Flight Center

HF Hochfrequenz

HITRAN High Resolution Transmission Molecular Absorption Database

IMK Institut für Meteorologie und Klimaforschung

IRF Institutet för Rymdfysik

IUP Institut für Umweltphysik

JPL Jet Propulsion Laboratory

KASIMA Karlsruhe Simulation Model of the Middle Atmosphere

LNA Low Noise Amplifier

LO Lokaloszillator

LSB Lower Sideband

MIRA Millimeterwellenradiometer

NASA National Aeronautics & Space Administration

NAT Nitric Acid Trihydrate

NCEP National Centers for Environmental Prediction

NDSC Network for the Detection of Stratospheric Change

OEM Optimal Estimation Method

PLL Phase-Locked Loop

PSC Polar Stratospheric Cloud

PV Potentielle Vorticity

RAM Radiometer for Atmospheric Measurements

SAGE Stratospheric Aerosol and Gas Experiment

SAT Sulfuric Acid Trihydrate

SNR Signal-to-Noise Ratio

SOLVE SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment

SSB Single Side Band

SÜG Strahlungsübertragungsgleichung

STS Supercooled Ternary Solution

SUNY State University of New York at Stony Brook

THESEO Third European Stratospheric Experiment on Ozone

USB Upper Sideband

VMR Volume Mixing Ratio

ZF Zwischenfrequenz

Abbildungsverzeichnis

2.1	Temperaturverlauf in der Erdatmosphäre	4
3.1	Spektrallinien von Chlormonoxid und Ozon	11
3.2	Druck- und Dopplerverbreiterung von ClO bei 278,631 GHz	15
3.3	Weglängenänderung bei nichtorthogonaler Beobachtungsgeometrie	17
3.4	Der Airmass-Faktor	17
3.5	Relative Fehler bei der Umrechnung der Spektren auf Zenitrichtung	18
3.6	Unterschied zwischen thermodynamischer Temperatur und Helligkeitstemperatur	19
4.1	Funktionseinheiten eines Radiometers	20
4.2	Prinzip der Frequenzumsetzung	21
4.3	Einstellbare Referenzlast	24
4.4	Das 268–280 GHz Radiometer MIRA 2	26
4.5	Der Spektralbereich 268–280 GHz	28
5.1	Residuum und Fouriertransformierte einer Ozonmessung	41
5.2	Zweischichten- und Mehrschichtenmodell zur Troposphärenkorrektur	45
5.3	Seitenbandfiltercharakteristik bei der Troposphärenkorrektur	46
5.4	Troposphärenkorrektur mit und ohne Berücksichtigung des Seitenbandfilters	47
5.5	Inversion nach Troposphärenkorrektur mit und ohne Berücksichtigung des Seitenbandfilters	48
6.1	Potentielle Vorticity der Winter 1995/1996 bis 1999/2000 über Ny-Ålesund bei 475 K	50
6.2	Minimale Temperatur der Winter 1995/1996 bis 1999/2000 nördlich 40° N bei 475 K	51
6.3	Potentielle Vorticity und Temperatur bei 475 K über Kiruna während der Meßkampagne 1996	52
6.4	Relative systematische Fehler der invertierten Höhenprofile	57
6.5	Ozonspektrum bei 273,051 GHz vom 29. März 1996	59

6.6	Ozonprofile und Averaging Kernels der Messung vom 29. März	60
6.7	Höhenauflösung (a) und Residuum (b) der Ozonmessung an der 273,051 GHz-Linie	61
6.8	Ozonspektrum bei 274 GHz vom 19. Februar 1996	62
6.9	Ozonprofile und Averaging Kernels der Messung vom 19. Februar . .	63
6.10	Höhenauflösung und Residuum der Ozonmessung an der 274,478 GHz-Linie	64
6.11	ClO-Spektren vom 1. und 2. März 1996	65
6.12	Ozon- und ClO-Profile vom 1. und 2. März 1996	67
6.13	Averaging Kernels der ClO-Messung vom 2. März 1996	68
6.14	Höhenauflösung und Residuum der ClO-Messung vom 2. März 1996 .	68
6.15	Synthetisches ClO-Spektrum mit Stehwellen, Rauschen und Fre- quenzshift	69
6.16	Inversion des gestörten synthetischen Spektrums	70
6.17	N ₂ O-Spektrum vom 31. März 1996	71
6.18	Ozon- und N ₂ O-Profile vom 31. März 1996	71
6.19	Averaging Kernels der N ₂ O-Messung vom 31. März 1996	72
6.20	Höhenauflösung und Residuum der N ₂ O-Messung vom 31. März 1996	72
6.21	HNO ₃ -Spektrum vom 20. März 1996	73
6.22	Ozon- und HNO ₃ -Profil vom 20. März 1996	74
6.23	Averaging Kernels der HNO ₃ -Messung vom 20. März 1996	74
6.24	Höhenauflösung und Residuum der Messung von HNO ₃ vom 20. März 1996	75
6.25	Potentielle Vorticity und Temperatur bei 475 K über Ny-Ålesund während der Meßkampagne 1997	76
6.26	Skalierungsfaktoren der verschiedenen ClO-Messungen in Ny-Ålesund 1997	77
6.27	Vergleich der ClO-Messungen von MIRA 2 1997 in Ny-Ålesund mit Modellrechnungen von KASIMA	79
6.28	Ozonprofile vom 24. und 25. März 1997 über Ny-Ålesund	80
6.29	Potentielle Vorticity und Temperatur bei 475 K über Kiruna während der Meßkampagne 1998	81
6.30	Vergleich der Ozonzeitreihen von FTIR, KASIMA und MIRA 2 1998 über Kiruna	82
6.31	Vergleich der Ozonprofile vom 27. März 1998	83
6.32	N ₂ O-Messungen vom 6. und 23. Februar 1998	84
6.33	Potentielle Vorticity und Temperatur bei 475 K über Kiruna während der Meßkampagne 1999	85
6.34	Vergleich von Ozon mit der potentiellen Vorticity bei 475 K über Kiru- na während der Meßkampagne 1999	86
6.35	ClO- und HNO ₃ -Messungen 1999 in Kiruna	87

6.36	Potentielle Vorticity und Temperatur bei 475 K über Kiruna während der Meßkampagne 1999/2000	88
6.37	Potentielle Vorticity bei 475 K auf der Nordhalbkugel am 10. Dezember 1999	89
6.38	Potentielle Vorticity und Temperatur über Kiruna bei 475 K in Phase 1	90
6.39	Ozon über Kiruna in Phase 1	91
6.40	ClO über Kiruna in Phase 1	92
6.41	HNO ₃ über Kiruna in Phase 1	93
6.42	N ₂ O über Kiruna in Phase 1	94
6.43	Potentielle Vorticity bei 475 K auf der Nordhalbkugel am 28. Januar 2000	95
6.44	Potentielle Vorticity und Temperatur über Kiruna bei 475 K in Phase 2	96
6.45	Ozon über Kiruna in Phase 2	97
6.46	ClO über Kiruna in Phase 2	97
6.47	HNO ₃ über Kiruna in Phase 2	98
6.48	N ₂ O über Kiruna in Phase 2	99
6.49	Potentielle Vorticity bei 475 K auf der Nordhalbkugel am 10. März 2000	100
6.50	Potentielle Vorticity und Temperatur über Kiruna bei 475 K in Phase 3	101
6.51	Ozon über Kiruna in Phase 3	102
6.52	ClO über Kiruna in Phase 3	103
6.53	HNO ₃ über Kiruna in Phase 3	104
6.54	N ₂ O über Kiruna in Phase 3	105
6.55	Ozon und potentielle Vorticity über Kiruna bei 475 K im Winter 1999/2000	106
6.56	Messung an der Ozon-Doppellinie bei 279,485 GHz und 279,892 GHz .	107

Tabellenverzeichnis

2.1	Eigenschaften der PSC-Typen	8
4.1	Daten des 268–280 GHz Radiometers MIRA 2	27
6.1	Temperaturabhängigkeit der Linienstärken und daraus resultierende relative Fehler bei falsch angenommener Stratosphärentemperatur . .	56

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als Doktorand am Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK) des Forschungszentrums Karlsruhe und der Universität Karlsruhe (TH). Ich möchte an dieser Stelle all denen danken, die durch Rat und Tat zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Herrn Dr. Gerd Hochschild für die angenehme und sehr kompetente Betreuung meiner Arbeit. Durch seine aufgeschlossene und verständnisvolle Art hat er maßgeblichen Anteil am ausgezeichneten Arbeitsklima in der MIRA-Gruppe des IMK.
- Dem Institutsleiter des IMK, Herrn Prof. Dr. Herbert Fischer, für die Übernahme des Hauptreferates, viele nützliche Verbesserungsvorschläge für die Dissertation und dafür, daß er mir die Arbeit auf diesem interessanten Forschungsgebiet erst ermöglichte.
- Herrn Priv. Doz. Dr. habil. Cornelis Blom für die bereitwillige und freundliche Übernahme des Korreferates.
- Herrn Dr. Hermann Berg für die hervorragende Zusammenarbeit und viele ertragreiche Diskussionen zu allen Bereichen der Wissenschaft.
- Herrn Dr. Martin Kuntz, der mich mit viel Geduld in die Kunst der Vorwärts- und Inversionsrechnung einführte und auch sonst für alle auftretende Fragen stets ein offenes Ohr hatte.
- Herrn Dr. Richard Krupa für die zahlreichen Diskussionen technischer Natur insbesondere zu Beginn meiner Zeit als Doktorand am IMK.
- Den Herren Dr. Frank Hase und Dr. Thomas Blumenstock von der Gruppe für bodengebundene FTIR-Messungen für die sehr gute Zusammenarbeit auch auf den Meßkampagnen in Kiruna und die Bereitstellung ihrer in dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse.

- Herrn Dr. Roland Ruhnke für die Durchführung der Modellrechnungen mit KASIMA, die Bereitstellung der Daten in geeigneter Form und viele aufschlußreiche Antworten auf Fragen die stratosphärische Chemie betreffend.
- Meinen Kollegen von der AME-Gruppe (Algorithm development and MIPAS-Envisat) für die Bereitstellung eines Büroarbeitsplatzes für die Dauer von zwei Jahren und für den regen wissenschaftlichen und nichtwissenschaftlichen Austausch.
- Für die gute Zusammenarbeit und Unterstützung auf den Meßkampagnen in Kiruna den Herren Dr. Uwe Raffalski und Dr. Åke Steen vom Institutet för Rymdfysik.
- Den Mitarbeitern der Gruppen für bodengebundene und flugzeuggestützte Millimeterwellenradiometrie am Institut für Umweltphysik der Universität Bremen für vielfältige wissenschaftliche Kontakte und die Bereitstellung ihrer in dieser Arbeit gezeigten Daten.
- Dem ECMWF für die Bereitstellung der verschiedenen in dieser Arbeit gezeigten Daten.
- Für die komfortable Bereitstellung der Temperatur- und Druckprofile der NCEP durch das Automailersystem des GSFC den Herren Lait, Newman und Schoeberl der Atmospheric Chemistry and Dynamics Branch am Goddard Space Flight Center.
- Für die kritische Durchsicht der Arbeit neben den schon genannten Mitgliedern der MIRA-Gruppe: Dr. Frank Hase, Thilo Kutt, Peter Nagelmüller und Dr. Roland Ruhnke.
- Nicht zuletzt auch meinen Eltern, auf deren Unterstützung ich mich immer verlassen konnte.