

**Prozessstudien der stratosphärischen  
Chemie und Dynamik mit Hilfe des  
Chemie-Klima-Modells ECHAM5/MESSy1**

zur Erlangung des akademischen Grades eines  
**DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN**  
von der Fakultät für Physik  
der Universität Karlsruhe

genehmigte

**DISSERTATION**

von

**Dipl. Geoökologe Oliver Kirner**  
aus Freiburg

**Tag der Verteidigung: 12. Dezember 2008**

**Referent: Herr Prof. Dr. H. Fischer**

**Korreferent: Herr Priv.-Doz. Dr. M. Höpfner**



## Zusammenfassung

Das Modell „ECHAM5/Modular Earth Submodel System (Version 1)“ (ECHAM5/MESSy1) [Jöckel et al., 2005, 2006], welches in den letzten Jahren am Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz entwickelt wurde, beinhaltet sowohl den Ansatz zum „Earth System Model“ (ESM) als auch den Anspruch die Atmosphäre in Einem, sowohl in der Troposphäre als auch in der mittleren Atmosphäre abzubilden. Durch das entwickelte Interface MESSy ist es möglich, ein atmosphärisches „General Circulation Model“ (GCM) mit anderen Modulen zu koppeln, so dass ein interaktiver Austausch zwischen atmosphärischem Kern und den Modulen sowie auch innerhalb der Module problemlos stattfinden kann.

Das Ziel der Dissertation war, im Modell ECHAM5/MESSy1 eine verbesserte Parameterisierung der Polaren Stratosphärischen Wolken (PSC) zu implementieren und deren Auswirkung auf die polare Ozonchemie zu untersuchen. Um dieses Ziel zu erreichen, wurde zunächst eine Validierung des Modells (Kapitel 3) in einer Modellkonfiguration durchgeführt, welche später für die Durchführung der PSC-Simulationen verwendet wurde und welche eine Nudging-Variante enthält, die sich in verschiedenen Sensitivitätsstudien (Kapitel 2) als am geeignetsten herausgestellt hatte.

Nach erfolgreicher Validierung des Modells ECHAM5/MESSy1 in der gewählten Modellkonfiguration konnte im Folgenden eine neue PSC-Parameterisierung in dessen Modul PSC eingebaut werden (Kapitel 4). Dieser neue PSC-Algorithmus nach van den Broek et al. [2004], basierend auf Carslaw et al. [2002], berücksichtigt das Wachstum und die Sedimentation von „Nitric Acid Trihydrat“ (NAT)-Partikeln im polaren Wirbel. Entsprechend ihrer Radien werden die NAT-Teilchen in verschiedene Grössenklassen eingeteilt, welche separat im Modell transportiert werden.

Mit dem neuen PSC-Schema wurde eine Mehrjahressimulation mit ECHAM5/MESSy1 von November 2002 bis Ende 2007 durchgeführt. Die simulierten Resultate wurden bezüglich der Zusammensetzung der PSCs (Typ 1a, Typ-1b und Typ 2) und deren räumlicher und zeitlicher Verteilung im Modell analysiert und mit einer Standard-ECHAM5/MESSy1-Simulation mit bisherigem thermodynamischen PSC-Schema verglichen.

Es konnte gezeigt werden, dass die Implementierung der neuen PSC-Parameterisierung erfolgreich durchgeführt wurde und das Wachstum und Verdunstung der NAT-Teilchen, sowie die unterschiedlichen Eigenschaften zwischen kleineren und grösseren NAT-Partikeln, insbesondere bezüglich deren Sedimentationsverhalten, im Modell berücksichtigt werden.

Im Vergleich zwischen bisheriger und neuer PSC-Parameterisierung im Modell ist festzustellen, dass die neue Parameterisierung in nördlichen polaren Breiten deutliche Verbesserungen in Verteilung und Anzahl der PSC-Partikel sowie auch bezüglich der simulierten Ozonchemie aufweist. In südlichen polaren Breiten werden ebenfalls durch die geänderten maximalen Anzahldichten für Eisteilchen höhere Ozonabbauraten simuliert, welche aufgrund der bisherigen zu hohen Ozonsäulen in dieser Region zu einer Verbesserung beitragen.

Beim Vergleich der Simulations- mit Messdaten von MIPAS auf ENVISAT sind recht gute Übereinstimmungen bezüglich des zeitlichen Verlaufs des PSC-Vorkommens sowie dessen Gesamtfläche festzustellen. Das zeitliche Vorkommen sowie die Fläche der simulierten und gemessenen STS-Teilchen stimmt ebenfalls sehr gut überein. Eine Überschätzung hingegen ist noch bei den NAT-Teilchen und auch bei den Eisteilchen ersichtlich. Diese Ergebnisse wurden mittels  $HNO_3$ -Messungen von MLS auf Aura bestätigt.

Über die Kopplung von Chemie und Klima über die temperaturabhängige Bildung der PSCs können so mit der neuen PSC-Parameterisierung verbesserte Prognosen der zukünftigen Entwicklung der Ozonschicht durchgeführt werden.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einführung</b>	<b>1</b>
1.1	Einleitung und Ziel der Arbeit . . . . .	1
1.2	Beschreibung und Konfiguration von ECHAM5/MESSy1 . . . . .	2
1.2.1	Aufbau des Modells ECHAM5/MESSy1 . . . . .	2
1.2.2	Das meteorologische Basismodell ECHAM5 . . . . .	3
1.2.3	Die verwendeten ECHAM5/MESSy1-Module . . . . .	4
1.2.4	Die Rechnerumgebung . . . . .	6
1.3	Die Ozonchemie in der mittleren Atmosphäre . . . . .	6
<b>2</b>	<b>Sensitivitätssimulationen mit Nudging-Höhenvariation</b>	<b>11</b>
2.1	Kurzfassung . . . . .	11
2.2	Einführung . . . . .	11
2.3	Beschreibung der Modellsimulationen . . . . .	12
2.4	Antarktischer Vortex-Split im September 2002 . . . . .	14
2.5	Antarktische Dynamik und stratosphärische Chemie 2003 . . . . .	16
2.5.1	Bestimmung der potentiellen Temperatur und der potentiellen Vorticity . . . . .	16
2.5.2	Der antarktische Wirbel 2003 . . . . .	18
2.5.3	Die Temperaturen im antarktischen Wirbel 2003 . . . . .	21
2.5.4	Antarktische PSCs und Denitrifizierung 2003 . . . . .	24
2.5.5	Antarktische Chloraktivierung und stratosphärischer Ozonabbau 2003 . . . . .	26
2.5.6	Validierung der Sensitivitätssimulationen mit TOMS . . . . .	29
2.6	Zusammenfassung der Ergebnisse des Kapitels . . . . .	33
<b>3</b>	<b>Sechs-Jahres-Simulation mit ECHAM5/MESSy1</b>	<b>34</b>
3.1	Kurzfassung . . . . .	34
3.2	Beschreibung der Modellsimulation . . . . .	34
3.3	Ergebnisse von ECHAM5/MESSy1 im Vergleich mit MIPAS auf ENVISAT . . . . .	35
3.3.1	Das Satelliteninstrument MIPAS auf ENVISAT . . . . .	35
3.3.2	Die Temperatur . . . . .	36
3.3.3	Der zonale Wind und die QBO . . . . .	39
3.3.4	Die Brewer-Dobson-Zirkulation . . . . .	41
3.3.5	Der Tape Recorder . . . . .	43
3.3.6	Das Methan . . . . .	45
3.3.7	Das Ozon . . . . .	46
3.4	Ozonsäulen von ECHAM5/MESSy1 im Vergleich mit TOMS . . . . .	49
3.5	Ergebnisse von ECHAM5/MESSy1 im Vergleich mit CARIBIC . . . . .	51
3.5.1	Flugzeugmessungen mit CARIBIC . . . . .	51
3.5.2	Das Ozon und Kohlenmonoxid während des Lufthansa-Flugs 121 . . . . .	51
3.5.3	Das Ozon und Kohlenmonoxid während des Lufthansa-Flugs 133 . . . . .	54
3.6	Zusammenfassung der Ergebnisse des Kapitels . . . . .	55

<b>4</b>	<b>Eine neue PSC-Parameterisierung</b>	<b>57</b>
4.1	Kurzfassung . . . . .	57
4.2	Einführung . . . . .	58
4.2.1	Bedeutung und Charakterisierung von PSCs . . . . .	58
4.2.2	Die Entstehung von STS (PSC-Typ 1b) . . . . .	59
4.2.3	Die Entstehung von NAT (PSC-Typ 1a) . . . . .	62
4.2.4	Die Bildung von Eisteilchen (PSC-Typ 2) . . . . .	63
4.3	Das ECHAM5/MESSy1-Modul PSC . . . . .	65
4.3.1	Die PSC-Parameterisierung im bisherigen PSC-Modul . . . . .	65
4.3.2	Die PSC-Parameterisierung im überarbeiteten PSC-Modul . . . . .	71
4.3.3	Die Sedimentation der PSC-Teilchen im PSC-Modul . . . . .	78
4.4	Beschreibung der Modellsimulationen . . . . .	80
4.5	Ergebnisse der Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung . . . . .	81
4.6	Ein Vergleich der Simulationen mit neuer und bisheriger PSC-Parameterisierung . . . . .	89
4.6.1	Anzahl- und Oberflächendichte der PSC-Teilchen . . . . .	89
4.6.2	PSCs und Ozonabbau im nordpolaren Winter und Frühling . . . . .	92
4.6.3	PSCs und Ozonabbau im südpolaren Winter und Frühling . . . . .	100
4.6.4	Vergleich der simulierten Ozonsäulen mit Satellitendaten von TOMS und OMI . . . . .	108
4.7	Vergleich der neuen PSC-Parameterisierung mit MIPAS auf ENVISAT . . . . .	110
4.7.1	Vergleich der antarktischen PSCs im Mai und Juni 2003 . . . . .	110
4.7.2	Vergleich der Flächenanteile der PSC-Typen . . . . .	115
4.8	Vergleich der neuen PSC-Parameterisierung mit MLS auf Aura . . . . .	123
4.8.1	Das Satelliteninstrument MLS auf Aura . . . . .	124
4.8.2	Vergleich der $HNO_3$ -Daten . . . . .	124
4.9	Zusammenfassung der Ergebnisse des Kapitels . . . . .	130
<b>5</b>	<b>Schlussfolgerungen und Ausblick</b>	<b>132</b>
<b>6</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>135</b>
<b>A</b>	<b>Abkürzungen und Symbole</b>	<b>147</b>
<b>B</b>	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>154</b>
<b>C</b>	<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>159</b>
<b>D</b>	<b>Hybridkoeffizienten und Druck bei 39 Modellschichten</b>	<b>160</b>
<b>E</b>	<b>PSC Submodel Namelist</b>	<b>161</b>
<b>F</b>	<b>NAT-Kondensationstemperatur auf 54 hPa</b>	<b>162</b>



# 1 Einführung

## 1.1 Einleitung und Ziel der Arbeit

Die Entwicklung in der Klimamodellierung wird heute dominiert von der Zielsetzung des Verständnisses des gesamten Erdsystems. Die Erdsystemmodellierung versucht über die bisherige Modellierung der Atmosphäre mit Hilfe der Lösung der meteorologische Grundgleichungen in den sogenannten „General Circulation Models“ (GCMs) hinauszugehen und weitere Komponenten in das Modell zu integrieren. Als erster Schritt zum „Earth System Model“ (ESM) wird dabei das Atmosphärenmodell mit einem Ozeanmodell gekoppelt. Daraufaufgehend werden zusätzliche Module, welche atmosphärische Chemie, atmosphärische Aerosole, Bodenbeschaffenheit, Vegetationszusammensetzung und andere Komponenten beinhalten, zu diesem „Atmosphere-Ocean General Circulation Model“ (AOGCM) hinzugefügt. Das Ziel der Erdsystemmodellierung ist hierbei, ein möglichst grosses Spektrum aller klimarelevanten Wechselwirkungen in der Natur wiederzugeben.

Um die längerfristige Entwicklung der Dynamik und der Chemie der unteren und mittleren Atmosphäre richtig zu verstehen, ist es zusätzlich günstig, wenn das Modellsystem vertikal möglichst die Strato- und Mesosphäre abdeckt. Die meisten GCMs, welche heute für die Klimasimulationen z.B. für den „Intergovernmental Panel on Climate Change“ (IPCC) genutzt werden, reichen jedoch nur bis 10 hPa (ca. 30 km). Andere Modelle simulieren nur die mittlere Atmosphäre mit dem Nachteil, dass die unteren Randbedingungen für die atmosphärischen Substanzen, sowie für Temperatur, Wind, Druck und Feuchte vorgegeben werden müssen und die Wechselwirkungen zwischen oberer Troposphäre und unterer Stratosphäre („Upper Troposphere Lower Stratosphere“ (UTLS)) nur begrenzt richtig erfasst werden. Um diese Begrenzungen aufzuheben, wurden neuartige Modelle entwickelt, welche sich vertikal von der Bodenoberfläche bis 0.01 hPa (ca. 80 km) erstrecken und sowohl die atmosphärischen Prozesse in der Tropo- und Strato- als auch in der Mesosphäre berücksichtigen.

Das Modell „ECHAM5/Modular Earth Submodel System (Version 1)“ (ECHAM5/MESSy1) [Jöckel et al., 2005, 2006], welches in den letzten Jahren am Max-Planck-Institut (MPI) für Chemie in Mainz entwickelt wurde, beinhaltet sowohl den Ansatz zum „Earth System Model“ als auch den Anspruch, die Atmosphäre in Einem, sowohl in der Troposphäre als auch in der mittleren Atmosphäre abzubilden. Durch das entwickelte Interface MESSy ist es möglich, ein atmosphärisches GCM mit verschiedenen anderen Modulen zu koppeln, so dass ein interaktiver Austausch zwischen atmosphärischem Kern und den Modulen sowie auch innerhalb der Module problemlos möglich ist.

Das in ECHAM5/MESSy1 eingebundene GCM ist ECHAM5, welches in einer mittleren Atmosphären-Version vorliegt, mit einer vertikalen Erstreckung ab der Bodenoberfläche bis zu 0.01 hPa (ca. 80 km). ECHAM (EC für ECMWF operational forecast model, HAM für Hamburg) basiert auf dem Vorhersagemodell des „European Centre for Medium-Range Weather Forecasts“ (ECMWF) in Reading, Grossbritannien [Simmons et al., 1989a, 1989b] und wurde vom MPI für Meteorologie in Hamburg modifiziert und zu ECHAM4 [Roeckner et al., 1996] bzw. ECHAM5 [Roeckner et al., 2003a, 2003b] weiterentwickelt.

Die erste vollständige Modellversion 1.1 von ECHAM5/MESSy1 wurde der atmosphärischen Forschungsgemeinschaft im Januar 2006 präsentiert. Ein Update dieser Modellversion wird jedes halbe Jahr durchgeführt, so dass die neueste Modellversion 1.4 seit Mai 2007 vorliegt. Diese Modellversion umfasst neben ECHAM5, weitere 33 Module, welche je nach Forschungsschwerpunkt ausgewählt werden können. Neben dem MPI für Chemie in Mainz sind an der Entwicklung von ECHAM5/MESSy1 aktuell das Institut für Physik der Atmosphäre des Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Oberpfaffenhofen, das MPI für Meteorologie in Hamburg, das Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK) am Forschungszentrum Karlsruhe (FZK) und das Meteorologische Institut der freien Universität Berlin beteiligt.

Die Arbeiten in dieser Doktorarbeit wurden mit der ECHAM5/MESSy Version 1.1 (Kapitel 2 und 3) und Version 1.4 (Kapitel 4) durchgeführt. Die Ziele waren, nach Optimierung der Modellkonfiguration inkl. der Nudging-Variante zum einen zu zeigen, dass ECHAM5/MESSy1 mit seinem fortschrittlichen Ansatz gute Ergebnisse in der Atmosphärenchemie liefert und zum anderen mit einer Weiterentwicklung des Moduls „Polar Stratospheric Clouds“ (PSC) zur weiteren Verbesserung und Optimierung hinsichtlich der Prognosefähigkeit des Modells für die zukünftige Entwicklung der Ozonsschicht beizutragen.

## 1.2 Beschreibung und Konfiguration von ECHAM5/MESSy1

### 1.2.1 Aufbau des Modells ECHAM5/MESSy1

Das Chemie-Klima-Modell ECHAM5/MESSy1 (Version 1) [Jöckel et al., 2005, 2006] besteht aus dem atmosphärischen Kern ECHAM5 (Version 5.3.1 [Roeckner et al., 2003a, 2003b, 2006]) und aus verschiedenen Modulen mit unterschiedlichen Funktionen, welche über ein Steuerprogramm an- und abgeschaltet werden können. Diese Module sind über das Online-Interface MESSy mit dem atmosphärischen Modell rückgekoppelt, welches auch den Datentransfer innerhalb der Module gewährleistet.

Das Modell erstreckt sich vertikal von der Bodenoberfläche bis in eine Höhe von 1 Pa (ca. 80 km) und umfasst so die Troposphäre, Stratosphäre und Mesosphäre. Die räumliche Auflösung ist dabei variabel. Es sind die horizontalen Auflösungen T21 (5.6°), T31 (3.75°), T42 (2.8°), T63 (1.875°), T85 (1.4°) und T106 (1.1°) verfügbar. Vertikal kann eine Auflösung von 39-Schichten- (L39) oder 90-Schichten (L90) gewählt werden. Mit Letzterer ist eine freie Simulation der „Quasi Biennial Oscillation“ (QBO) möglich [Giorgetta et al., 2006].

Die vertikalen Modellflächen entsprechen sogenannten Hybridflächen, welche in der Troposphäre und der untersten Stratosphäre an die Bodenoberfläche angepasst sind. Die Beeinflussung durch die Orografie ist dabei höhenabhängig, so dass ab einem Höhenbereich in der unteren/mittleren Stratosphäre die Modellflächen (Level 1 (oberste Modellfläche) bis Level 22 (70 hPa, ca. 18.7 km) in L39 bzw. Level 1 bis Level 54 (44 hPa, ca. 22 km) in L90) unabhängig von der Orografie sind und Flächen konstanten Drucks entsprechen. Die vertikale Auflösung ist im Modell in der Grenzschicht der Atmosphäre am höchsten und steigt mit der Höhe an.

Mit Hilfe zweier sogenannter Hybridkoeffizienten ( $A, B$ ) und des Oberflächendrucks ( $p_{bot}$ ) wird der ortsabhängige Druck ( $p_k$  ( $i =$  Längengrad,  $j =$  Breitengrad)) der oberen und unteren Flächen jeder Gitterbox (39 [90] Gitterboxen und 40 [91] Flächen in L39 [L90]) berechnet. Die Berechnung der Flächen ( $k=1$  bis 40 (L39) bzw.  $k=1$  bis 91 (L90)) erfolgt dabei entsprechend Gleichung 1.1:

$$p_k(i, j) = A(k) + B(k)p_{bot}(i, j) \quad (1.1)$$

$B(k)$  ( $0 \leq B(k) \leq 1$ ) gibt dabei den Wichtungsfaktor des Drucks ( $p_k$ ) am Oberflächendruck ( $p_{bot}$ ) an. Je grösser  $B(k)$  ist, desto stärker ist  $p_k(i, j)$  von der Orografie abhängig. Der mittlere Druck der Gitterbox ( $p_L$ ) wird als Durchschnitt der Drücke der oberen ( $p_k$ ) und unteren Fläche ( $p_{k+1}$ ) berechnet (Gleichung 1.2):

$$p_L(i, j) = \frac{1}{2}(p_k(i, j) + p_{k+1}(i, j)) \quad \text{mit } k = L \quad (1.2)$$

$p_L(i, j)$  ist der lokale Druck auf der Modellfläche  $L$  ( $L=1$  bis 39 (L39) bzw.  $L=1$  bis 90 (L90)).

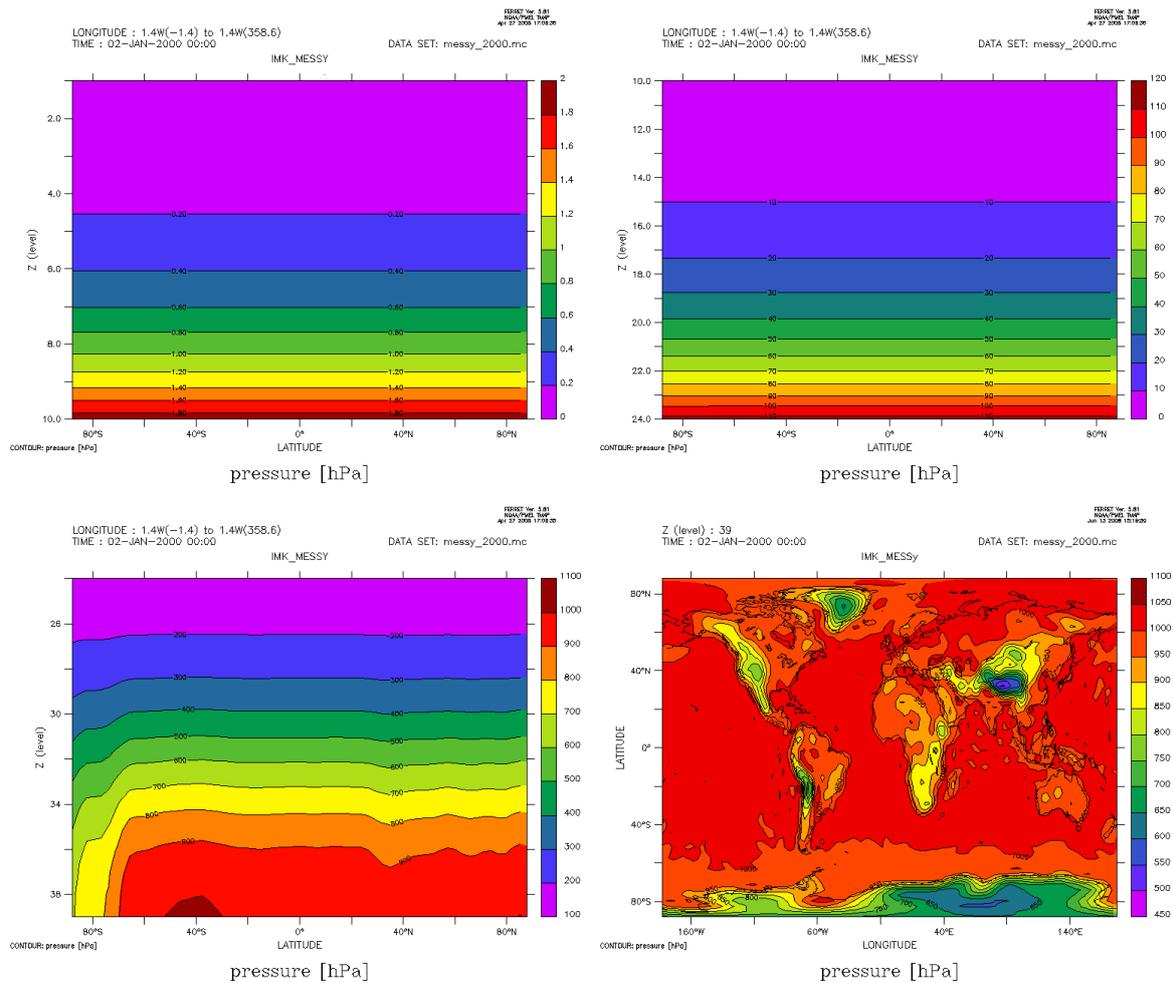


Abbildung 1.1: Druckverteilung in ECHAM5/MESSy1 in der 39 Schichten-Version, dargestellt für den 2.1.2000. Level 1 bis 10 - zonal gemittelt (oben links), Level 10 bis 24 - zonal gemittelt (oben rechts), Level 25 bis 39 - zonal gemittelt (unten links) und Höhengchnitt für Level 39 (unten rechts)

In Abbildung 1.1 ist die Druckverteilung im Modell auf den verschiedenen Modellflächen dargestellt. Man erkennt, dass die ersten 22 Modellflächen horizontal keine Druckänderung aufweisen und so nicht von der Orographie abhängig sind. Level 23 bis Level 25 sind vernachlässigbar von der Orographie abhängig. Ab Level 26 ist in den südlichen polaren Breiten die Erhebung der Antarktis zu erkennen und ab Level 28 erkennt man eine meridionale Druckänderung im Bereich des Himalajas (ca. 35°N). In Abbildung 1.1 (unten rechts) erkennt man im Höhengchnitt für Level 39 (im Schnitt ca. 25 m bis 30 m über der Bodenoberfläche) die im Modell berücksichtigte Orographie.

In Anhang D sind in Tabelle D.1 die in ECHAM5/MESSy1 verwendeten fixen Hybridkoeffizienten A und B der 39-Schichten-Version angegeben und exemplarisch der Druck auf den jeweiligen Modellflächen für einen angenommenen Standardoberflächendruck von 1013.25 hPa berechnet.

### 1.2.2 Das meteorologische Basismodell ECHAM5

Das in ECHAM5/MESSy1 integrierte atmosphärische Modell ECHAM5 ist ein spektrales Modell, d.h. die meteorologischen Grundgleichungen (horizontale Bewegungsgleichung, thermodynamische Wärmeleichung, Kontinuitätsgleichung und hydrostatische Approximation) werden mit Hilfe von

Kugelflächenfunktionen gelöst und daraus die grossräumige Dynamik und Thermodynamik berechnet. Das meteorologische System wird dabei durch die Erwärmungsraten innerhalb der Atmosphäre, berechnet im Strahlungsmodul, angetrieben.

Im Modell ist das „Flux-Form Semi-Lagrangian (FFSL) Advektions-Schema“ [Lin and Rood, 1996] für den Transport der Tracer implementiert. Die Ausbreitung und Dissipation der Gravitationswellen in der mittleren Atmosphäre wird durch die Parametrisierung von Hines [1997a,b], optimiert von Manzini und McFarlane [1998], beschrieben.

Für die Berechnung der zeitlichen Entwicklung einer Modellvariablen  $X$  wird eine zeitgemittelte Differenz genutzt:

$$\frac{\partial X(t)}{\partial t} \approx \frac{\Delta X(t)}{\Delta(t)} = \frac{X(t + \Delta t) - X(t - \Delta t)}{2\Delta t} \quad (1.3)$$

Der Zeitschritt  $\Delta t$  ist dabei variabel von der horizontalen Auflösung. Er beträgt 900s [600s] bei einer horizontalen Auflösung von T42 [T63].

Eine genauere Beschreibung von ECHAM5 befindet sich in Roeckner et al. [2003a, 2003b].

### 1.2.3 Die verwendeten ECHAM5/MESSy1-Module

Über das ECHAM5/MESSy1-Online-Interface wird ECHAM5 an Module gekoppelt, welche für eine optimale Beschreibung der wissenschaftlichen Fragestellung sinnvoll sind. In den für diese Doktorarbeit durchgeführten Simulationen wurden dabei folgende ECHAM5/MESSy1-Module verwendet:

CLOUD, CONVECT, CVTRANS, DRYDEP, H2O, HETCHEM, JVAL, LNOX, MECCA, OFFLEM, ONLEM, PSC, PTRAC, QBO, RAD4ALL, SCAV, SEDI, TNUDGE, TROPOP

Mit Hilfe des „Module Efficiently Calculating the Chemistry of the Atmosphere“ (MECCA) [Sander et al., 2005] wird die Gasphasenchemie, die heterogene Chemie und die Photolyse zusammengestellt. Über ein Steuerprogramm kann die gewünschte Zusammenstellung des chemischen Systems gewählt werden, welche mit Hilfe eines kinetischen Präprozessors in Fortran-Code umgewandelt wird [Sandu und Sander, 2006]. Für die durchgeführten Simulationen wurde dabei eine sogenannten „EVAL“-Chemie ausgewählt. Sie besteht aus 104 Gasphasen-Substanzen und 245 chemischen Reaktionen. Sie umfasst für die Troposphäre die Ozon relevante Chemie inklusive der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHCs) bis hin zu Isopren [von Kuhlmann et al., 2003]. Für die Stratosphäre sind die wesentlichen Chlor- [Steil et al., 1998] und Bromreaktionen [Meilinger, 2000] berücksichtigt.

Temperatur- und druckabhängige Reaktionsraten der Gasphase sind in MECCA implementiert, die Photolyseraten werden im Modul „J-values“ (JVAL) kalkuliert. Die Strahlungsflüsse werden dabei im Modul „Radiance for all“ (RAD4ALL) berechnet, wobei das Strahlungsmodul von ECHAM5 genutzt wird. In den beiden Modulen „Heterogeneous Chemistry“ (HETCHEM) und „Polar Stratospheric Clouds“ (PSC) werden die heterogenen Raten der Reaktionen in der Stratosphäre an „Nitric Acid Trihydrat“ (NAT)-Teilchen, Eispartikeln und an unterkühlten Schwefelsäureaerosolen und in der Tropopausenregion an Sulfat-Aerosolen bereitgestellt, welche in MECCA benutzt werden. Bei den durchgeführten Modellsimulationen wurde eine für die Module PSC und HETCHEM erstellte monatliche Klimatologie der stratosphärischen Schwefelsäure ( $H_2SO_4$ ) für die entsprechenden Zeiträume eingelesen, welche für die Jahre 1979-1999 aus Daten des „Stratospheric Aerosol and Gas Experiment“ (SAGE) abgeleitet wurde [Kerkweg, 2005].

Die Absorptionsquerschnitte und Geschwindigkeitskonstanten, welche in MECCA, JVAL, HETCHEM und PSC benutzt werden, basieren zum grössten Teil auf den Veröffentlichungen des „Jet Propulsion Laboratory“ (JPL) des California Institute of Technology, das die weltweiten

Fortschritte in den laborkinetischen Untersuchungen atmosphärisch relevanter Reaktionen zusammenträgt und publiziert. Die Absorptionsquerschnitte und Geschwindigkeitskonstanten der verwendeten ECHAM5/MESSy-Version stammen dabei aus der Veröffentlichung „Evaluation Number 14“ [Sander et al., 2003].

Das Modul H<sub>2</sub>O beinhaltet die Initialisierung von Wasserdampf in der Stratosphäre und Mesosphäre und kontrolliert die konsistente Rückkopplung des Wasserdampf mit der spezifischen Feuchte ( $q$ ) des Basismodells. Darüberhinaus wird die Methanoxidation in der mittleren Atmosphäre, als Quelle für Wasserdampf, berechnet. Das Wolken-Modul (CLOUD) kalkuliert die Wolkenbedeckung, sowie die grossskalige Wolken-Mikrophysik inklusive des Regen- und Schnee-Niederschlags. Es beinhaltet die Berechnung des Wasserdampfs, des Flüssigwassers und der Eisphase [Tost et al., 2007].

Die Module „Convection“ (CONVECT) und „Convective tracer transport“ (CVTRANS) sind für die Konvektion im Modell, die damit zusammenhängende Temperatur- und Feuchteänderung sowie den Transport verantwortlich [Tost et al., 2006b]. Das Modul „Passive Tracers“ (PTRAC) beinhaltet die Implementierung von passiven Tracern, welche nur transportabhängig sind. Mit dem Modul QBO kann der zonale Wind in den Tropen genutzt werden, wobei hierfür als Grundlage zonal gemittelte Daten für den Höhenbereich von 3 hPa (ca. 41 km) bis 90 hPa (ca. 17 km) dreier Messtationen auf Canton Island, Gan/Malediven und in Singapur herangezogen werden [Giorgetta und Bengtsson, 1999; Marquardt und Naujokat, 1997; Naujokat, 1986]. Das Modul „Tropopause“ (TROPOP) analysiert Parameter der Tropopause, wie z.B. die Tropopausenhöhe.

Das „Lightning Nitrogen Oxide Emissions“ Modul (LNOX) kalkuliert die Blitzfrequenz und die daraus resultierenden Emissionen von Stickstoffoxiden ( $NO_x$ ). Mit Hilfe der beiden Module „Online Emissions“ (ONLEM) und „Offline Emissions“ (OFFLEM) können Emissionen von Spurengasen und Aerosolen als Randbedingung berücksichtigt werden. Während in OFFLEM die Emissionen aus Dateien eingelesen werden, befinden sich in ONLEM Parameterisierungen, welche die Emissionen während der Simulation berechnen. Mit dem Modul „Tracer Nudging“ (TNUDGE) können Substanzen im Modell assimiliert werden, welche in Form von Volumenmischungsverhältnissen und nicht als Emissionen vorliegen [Kerkweg et al., 2006b].

In den durchgeführten Simulationen wurden dabei die Substanzen Stickstoffmonoxid ( $NO$ ), Kohlenmonoxid ( $CO$ ), Ethen ( $C_2H_4$ ), Ethan ( $C_2H_6$ ), Propen ( $C_3H_6$ ), Propan ( $C_3H_8$ ), Butan ( $C_4H_{10}$ ), Acetaldehyd ( $CH_3CHO$ ), Aceton ( $CH_3COCH_3$ ), Essigsäure ( $CH_3COOH$ ), Methanol ( $CH_3OH$ ), Formaldehyd ( $CH_2O$ ), Ameisensäure ( $HCOOH$ ), Methyl-Ethyl-Keton ( $MEK$ ), Schwefeldioxid ( $SO_2$ ) und Ammoniak ( $NH_3$ ) als Emissionen in OFFLEM berücksichtigt. Die Emissionsdaten stammen dabei aus der EDGAR3.2FT2000 Datenbank [Olivier et al., 2005]. Zusätzlich wurden aktive Stickoxide ( $NO_x$ ) aus Flugzeugemissionen als 3D-Feld assimiliert [Schmitt und Brunner, 1997].

Die Substanzen Lachgas ( $N_2O$ ), Methan ( $CH_4$ ), FCKW-11 ( $CFCl_3$ ), FCKW-12 ( $CF_2Cl_2$ ), Methylchloroform ( $CH_3CCl_3$ ), Tetrachlormethan ( $CCl_4$ ), Methylchlorid ( $CH_3Cl$ ), Methylbromid ( $CH_3Br$ ), Halon-1211 ( $CF_2ClBr$ ), Halon-1301 ( $CF_3Br$ ), Kohlendioxid ( $CO_2$ ) und Schwefelhexafluorid ( $SF_6$ ) wurden als untere Randbedingung in TNUDGE zeitabhängig vorgeschrieben. Die Daten stammen aus der AGAGE Datenbank [Prinn et al., 2001]. Mit Hilfe von ONLEM wurden die Oberflächenemissionen von Dimethylsulfid ( $DMS$ ) über dem Ozean, Stickstoffmonoxid ( $NO$ ) über Landoberflächen und der Isoprene über Pflanzendecken online kalkuliert [Kerkweg et al., 2006a].

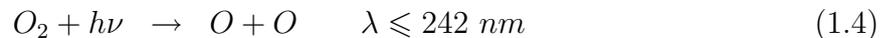
Das Modul „Dry Deposition“ (DRYDEP) [Kerkweg et al., 2006b] berechnet die trockene Deposition von Gasphasensubstanzen und Aerosolen. Im Modul „Scavenging“ (SCAV) [Tost et al., 2006a] wird die feuchte Deposition aufgrund von grossräumigen und konvektiven Niederschlägen berechnet. Es werden dabei Substanzen der Gasphase sowie auch Aerosole berücksichtigt. In „Sedimentation“ (SEDI) [Kerkweg et al., 2006b] wird zusätzlich die Sedimentation von troposphärischen Aerosolpartikeln berechnet.

### 1.2.4 Die Rechnerumgebung

Das Modell wurde an einem Personal Computer mit zwei Intel-Prozessoren und Linux-Betriebssystem sowie am Parallelrechner IBM 7028-6E4 pSeries 630 mit Power4-Prozessoren und AIX-Betriebssystem des Forschungszentrum Karlsruhe installiert. Die Installation erwies sich dabei als relativ zeitaufwändig, da die verschiedenen Komponenten wie Modellcode, benötigte Bibliotheken und Zusatzsoftware der Rechnerumgebung angepasst werden mussten. Zu Testzwecken wurden Simulationsläufe am Linux-PC parallel auf 2 Prozessoren durchgeführt, Simulationen über mehrere Monate Modellzeit fanden verteilt auf 8 oder 16 Prozessoren am IBM Parallelrechner statt.

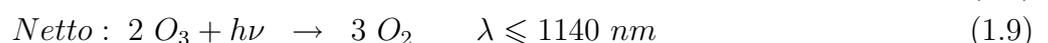
## 1.3 Die Ozonchemie in der mittleren Atmosphäre

Ozon ( $O_3$ ) entsteht in der Stratosphäre durch Photolyse von molekularem Sauerstoff ( $O_2$ ) und der darauf folgenden Reaktion des gebildeten atomaren Sauerstoffs ( $O$ ) mit einem weiteren molekularen Sauerstoffmolekül (Gleichungen 1.4 bis 1.6). Die zur Photolyse nötige Wellenlänge von Sauerstoff liegt dabei unterhalb 242 nm. In der Stratosphäre ist für die Ozonproduktion das Herzberg-Kontinuum mit der Absorptionsbande von 190 nm bis 242 nm ausschlaggebend, da Strahlung dieses Wellenlängenbereichs in diesen Höhenschichten noch vorhanden ist (kurzwelligere Strahlung wird schon in höheren Schichten absorbiert).

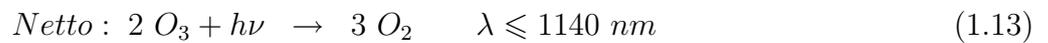


$M$  ist dabei ein Stosspartner (meistens molekularer Stickstoff ( $N_2$ ) oder Sauerstoff ( $O_2$ )), der für die Impuls- und Energieerhaltung in den verschiedenen Phasen der Reaktion notwendig ist.

Die Abbaureaktionen von Ozon sind vielfältig. Am längsten bekannt ist der photochemische Abbau von Ozon (Gleichungen 1.7 bis 1.9). Die Absorptionswellenlängen von Ozon reichen dabei vom UV-Licht bis ins sichtbare Licht hinein. Die Photolyse findet somit schon bei Wellenlängen unterhalb 1140 nm statt, wobei zwischen der Hartley- (ca. 220 nm bis 310 nm), Huggins- (ca. 310 nm bis 400 nm) und Chappuis-Bande (ab ca. 400 nm), mit zunehmenden Absorptionsquerschnitt mit abnehmender Wellenlänge, unterschieden werden kann.

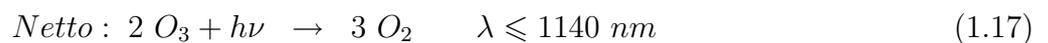
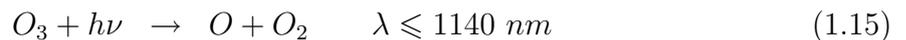


Die photochemischen Reaktionen 1.4 bis 1.9 sind auch als Chapman-Zyklus bekannt. Sie wurden schon 1930 von dem Geophysiker Sidney Chapman postuliert [Chapman, 1930]. Zusätzlich zu dem photochemischen Abbau gibt es in der Stratosphäre auch katalytische Reaktionskreisläufe, welche zu einem Abbau des Ozons führen. Zusammengefasst können sie wie folgt dargestellt werden:

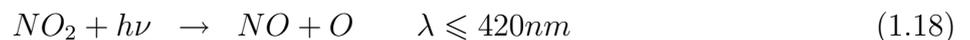


$X$  steht für verschiedene Gase, welche in diesem katalytischen Kreislauf nicht abgebaut werden und so den Reaktionszyklus immer wieder durchlaufen können. Hier sind vor allem Stickstoffmonoxid ( $NO$ ), Hydroxyl- ( $OH$ ), Chlor- ( $Cl$ ) und Bromradikale ( $Br$ ) zu nennen. Die katalytischen Reaktionskreisläufe finden aufgrund der Einbindung von Reaktion 1.11 nur bei Tageslicht statt.

Die Ozonabbaureaktion mit Stickstoffmonoxid ( $NO$ ) (Gleichung 1.14 bis 1.17) ist oberhalb von ca. 30 km in der Stratosphäre relevant, da Stickstoffmonoxid ( $NO$ ) und Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ) seine grössten Volumenmischungsverhältnisse in der mittleren Atmosphäre im Bereich von 30 km bis 50 km besitzen [Crutzen, 1970].



Im Anschluss an die Photolyse von Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ), formuliert in der Gleichungen 1.18, kann Ozon allerdings auch wieder aufgebaut werden:



Unterhalb von ca. 20 km und ab einem Bereich von oberhalb von ca. 40 km ist die Reduzierung von Ozon durch Radikale der Wasserstofffamilie ( $HO_x$ ) relevant. So finden in der unteren Stratosphäre folgende Reaktionen statt, durch welche ein direkter Abbau von Ozon ( $O_3$ ) geschieht (Gleichung 1.20 bis 1.22) [Brasseur et al., 1999]:



Reaktionsgleichung 1.21 steht dabei in Konkurrenz zu Gleichung 1.23, welche in Verbindung mit Gleichung 1.18 bis 1.20 zu einem „Nullzyklus“ führt.



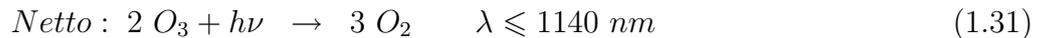
Von daher ist der  $HO_x - O_3$ -Zyklus nur in Höhen mit geringen Mischungsverhältnissen von Stickstoffmonoxid ( $NO$ ) für den Ozonabbau von Bedeutung.

In der oberen Stratosphäre und Mesosphäre führt ein Reaktionszyklus mit  $HO_x$ , durch die Reduzierung von atomarem Sauerstoff ( $O$ ), zu einer Abnahme von Ozon (Gleichung 1.24 bis Gleichung 1.27) [Brasseur et al., 1999]:



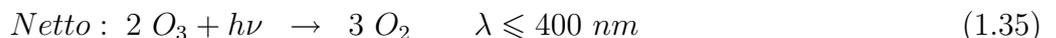
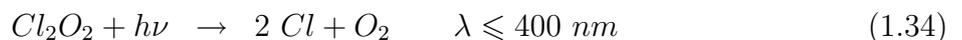
Reaktionsgleichung 1.26 ist oberhalb einer Höhe von ca. 40 km Reaktionsgleichung 1.21 überlegen.

Chlor- ( $Cl$ ) und Bromradikale ( $Br$ ) sind hauptverantwortlich für den Abbau von Ozon im Höhenbereich von 15 km bis 40 km, in welchem 90% des atmosphärischen Ozons zu finden ist. Das Chlorradikal ( $Cl$ ), welches aus der Photolyse von halogenierten Kohlenwasserstoffen entsteht, kann dabei nach Molina und Rowland [1974] mit Ozon wie folgt reagieren (Gleichung 1.28 bis 1.31):



Diese Reaktion ist im Höhenbereich von 35 km bis 40 km am effektivsten. In niedrigeren Höhen nimmt die Konzentration des atomaren Sauerstoffs sehr schnell ab, so dass Reaktion 1.30 mit Chloroxid ( $ClO$ ) nur geringe Umsätze hat. Dieser Reaktionszyklus führt von daher nur zu einer Abnahme des Ozons in der oberen Stratosphäre.

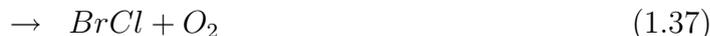
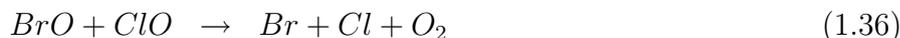
Es gibt für das Chlorradikal ( $Cl$ ) jedoch noch einen weiteren Ozon-Abbauzyklus (Gleichung 1.32 bis 1.35) [Molina und Molina, 1987]:



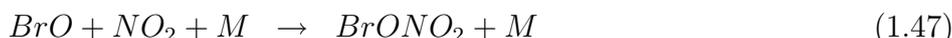
In diesem Reaktionszyklus findet sich die Bildung aus zwei Chlormonoxidmolekülen ( $ClO$ ) zu einem Chlormonoxid-Dimer ( $Cl_2O_2$ ) (Gleichung 1.33). Diese Reaktion findet nur bei sehr niedrigen Temperaturen statt. Zusätzlich ist für den gesamten Zyklus (wie auch für die anderen ozonabbauenden Zyklen) Tageslicht erforderlich, so dass dieser hauptsächlich während des polaren Frühlings stattfindet.

Obwohl Bromsubstanzen im Vergleich zu Chlorsubstanzen in der polaren Stratosphäre deutlich geringere Volumenmischungsverhältnisse aufweisen, sind sie zu einem beachtenswerten Teil mitverantwortlich für den Ozonabbau. Der Grund hierfür liegt darin, dass Reservoirsubstanzen von Brom (Bromsäuregas ( $HBr$ ) oder Bromnitrat ( $BrONO_2$ )) relativ leicht in hochreaktive Bromsubstanzen (z.B. Brom-Radikale ( $Br$ )) umgewandelt werden können, so dass sehr schnell aktives Brom ( $BrO_x$ ) in der Stratosphäre verfügbar ist. Die Reaktionszyklen von Bromradikalen ( $Br$ ) entsprechen dem der Chlorradikale in den Gleichungen 1.28 bis 1.31.

Es gibt aber auch Reaktionszyklen, an denen Chlor- ( $Cl$ ) und Bromradikale ( $Br$ ) zusammen beteiligt sind. Besonders zu erwähnen ist dabei der folgende Reaktionszyklus (Gleichung 1.36 bis 1.43) [McElroy et al., 1986]:



Durch die Reaktion der ozonabbauenden Radikale (z.B.  $NO_2$ ,  $OH$ ,  $Cl$ ) untereinander kann es zu einer vorläufigen Beschränkung des Ozonabbaus kommen. So entstehen beispielsweise durch die Reaktionen in Gleichung 1.44 bis 1.47 die sogenannten Reservoirgase Salzsäuregas ( $HCl$ ), Salpetersäure ( $HNO_3$ ), Chlornitrat ( $ClONO_2$ ) und Bromnitrat ( $BrONO_2$ ):



Diese entstandenen Reservoirgase bleiben aber nur bei fehlender Sonneneinstrahlung, also nachts erhalten. Tagsüber findet die allerdings nicht vollständige Rückreaktion mittels Photolyse statt.

Auch an Methan ( $CH_4$ ) können Chlornitradikale ( $Cl$ ) vorläufig deaktiviert werden (Gleichung 1.48) [Brasseur et al., 1999]:

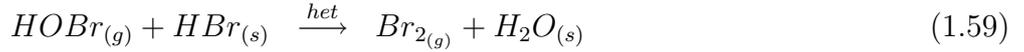
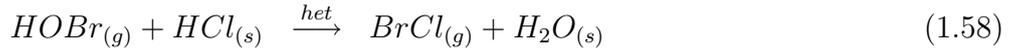
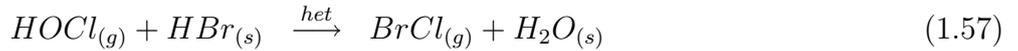
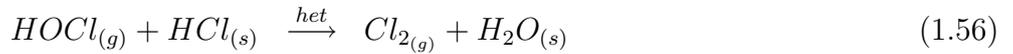
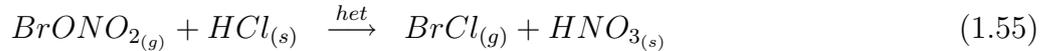
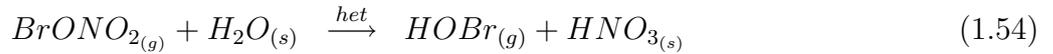
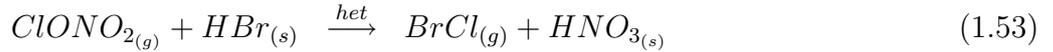
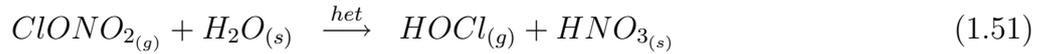
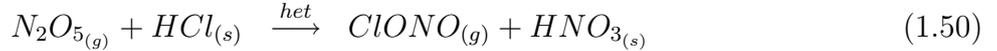


Durch die oben beschriebenen katalytischen Prozesse ist vor allem in Höhen über 25 km in den letzten Jahren die Ozonschicht immer mehr ausgedünnt worden [Graedel und Crutzen, 1994].

An den Polen ist jedoch ein sehr starkes Abnehmen der Mischungsverhältnisse des Ozons in den Höhen zwischen 12 km und 22 km zu beobachten, welches alleine durch die beschriebene Gasphasenchemie nicht zu erklären ist. Hierzu sind zusätzliche heterogene chemische Reaktionen notwendig.

Diese Reaktionen finden auf Oberflächen von flüssigen und festen Teilchen statt und verändern dadurch die Zusammensetzung der Gasphase. Bei den flüssigen und festen Teilchen kann zwischen unterkühlten ternären Lösungströpfchen („Supercooled Ternary Solutions“ (STS)), NAT- und Eisteilchen unterschieden werden, die zusammen als „Polar Stratospheric Clouds“ (PSCs) bezeichnet werden [Peter, 1999]. Eine detaillierte Beschreibung der PSCs befindet sich in Abschnitt 4.2.

An den Oberflächen der flüssigen und festen Phasen können folgende Reaktionen stattfinden [Abbatt und Molina, 1992; Crutzen et al., 1992; Hanson und Ravishankara, 1991, 1993; Solomon et al., 1986; Tolbert et al., 1987]:



Molekulares Chlor ( $Cl_2$ ), molekulares Brom ( $Br_2$ ), hypochlorige Säure ( $HOCl$ ), hypobromige Säure ( $HOBr$ ), Chlornitrit ( $ClONO$ ) und Bromchlorid ( $BrCl$ ) verbleiben dabei in der Gasphase (mit ( $g$ ) gekennzeichnet), wohingegen Salpetersäure ( $HNO_3$ ) (Denoxifizierung) und Wasserdampf ( $H_2O$ ) in die flüssige oder feste Phase ( $s$ ) aufgenommen werden. Im polaren Frühling finden photolytische Reaktionen statt, so dass schnell eine grosse Menge ozonzerstörender Radikale (z.B.  $NO_2$ ,  $OH$ ,  $Cl$ ) freigesetzt wird (Gleichung 1.60 bis 1.65):



Durch diese heterogenen Reaktionen, welche an den Oberflächen der PSC-Teilchen stattfinden, und anschliessender Photolyse kann man einen grossen Teil des beobachteten Ozonabbaus in der Stratosphäre im polaren Frühling erklären [Graedel und Crutzen, 1994].

Ein zusätzlicher Mechanismus, welcher den polaren Ozonabbau verlängert, ist die nachhaltige Entfernung von Salpetersäure ( $HNO_3$ ) durch die Bildung grosser fester NAT-Teilchen oder Eisteilchen mit NAT-Kern, welche im folgenden durch ihr Gewicht nach unten sedimentieren (Denitrifizierung). Durch den irreversiblen Entzug von  $HNO_3$  aus dieser Luftschicht fehlt die Quelle zur Bildung von Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ) im polaren Frühling und dieses kann damit nicht den Ozonabbau, durch Bildung von Reservoirgasen (Gleichungen 1.44, 1.45 und 1.47) oder durch eine direkte Bildung von Ozon (Gleichung 1.18 und 1.19), verhindern [Peter, 1999].

## 2 Sensitivitätssimulationen mit Nudging-Höhenvariation

### 2.1 Kurzfassung

Mit Hilfe der Newtonschen Relaxationstechnik wurde in ECHAM5/MESSy1 bis zu verschiedenen Höhen (13 hPa/ca. 30.2 km, 110 hPa/ca. 15.3 km und 220 hPa/ca. 10.6 km) mit Analysen des „European Centre of Medium-Range Weather Forecasts“ (ECMWF) genudgt und die Ergebnisse der daraus resultierenden Modellsimulationen mit einer ungenudgten Simulation sowie mit Messdaten des „Total Ozone Mapping Spectrometer“ (TOMS) verglichen. Es wurden so drei genudgte Modellläufe und ein ungenudgter Modelllauf für den Zeitraum von September 2002 bis Dezember 2003 durchgeführt.

Diese Sensitivitätssimulationen wurden durchgeführt, um die beste Variante des Nudgings angewandt in ECHAM5/MESSy1 zu erhalten und so eine genudgte Modellversion herauszufiltern, mit welcher dann im folgenden eine Mehrjahressimulation zur Evaluierung des Modells ECHAM5/MESSy1 mit Messdaten erstellt werden konnte.

Der antarktische Vortex-Split Ende September 2002 wird mit allen drei genudgten Simulationen nachgestellt. Die ungenudgte Simulation gibt dieses meteorologische Ereignis nicht wieder (Abschnitt 2.4).

Da sich aufgrund des unterschiedlichen Nudgings die simulierte Dynamik und Temperaturverteilung unterscheiden, variiert die simulierte stratosphärische Atmosphärenchemie in den vier Modellläufen. Im Vergleich zu den Ozonmessungen mit TOMS ist der simulierte Ozonabbau des antarktischen Frühlings 2003 in der Simulation mit der Variante des Nudgings bis 13 hPa (ca. 30.2 km) in grösster Übereinstimmung mit den Satellitenmessungen. Ebenfalls sind in dieser Simulation die simulierten Ozonsäulen in den nördlichen polaren Breiten am Besten wiedergegeben (Abschnitt 2.5).

Im Ergebnis stellte sich die Nudging-Variante als am sinnvollsten heraus, in welcher bis zu einer Höhe von 13 hPa (ca. 30.2 km) genudgt wird.

### 2.2 Einführung

Modellsimulationen mit genudgten meteorologischen Analysen oder Reanalysen bringen den Vorteil der verbesserten Möglichkeit der Validierung des Modells mit Messdaten, da in diesem Fall auch kurzzeitige dynamische Ereignisse wie arktische „sudden warmings“ oder der antarktische „Vortex Split“ des Jahres 2002 simuliert werden können.

Die Nudging-Technik wurde in ECHAM zuerst von Jeuken et al. [1996] getestet und angewandt. Jeuken et al. führten dabei verschiedene Sensitivitätssimulationen mit unterschiedlichem Nudging der meteorologischen Grössen Divergenz, Vorticity, Temperatur und Oberflächendruck mit ECMWF-Analysen durch. Die gewonnenen Ergebnisse wurden von Guldberg und Kaas [2000] modifiziert. Van Aalst et al. [2004] verwendete die empfohlenen Nudging-Parameter von Jeuken et al. [1996] in MA-ECHAM4 [Manzini und McFarlane, 1998; Manzini et al., 1997], die modifizierten Nudging-Parameter von Guldberg und Kaas [2000] in MA-ECHAM5 und in einer der ersten Versionen von ECHAM5/MESSy1 [van Aalst, 2005].

Um die meteorologischen Parameter des Modells ECHAM5/MESSy1 zu nudgen, wurde ein vierdimensionales Nudging basierend auf der Newtonschen Relaxationstechnik [Jeuken et al., 1996] angewandt. Die Grundlage dieses Verfahren wird in Gleichung 2.1 beschrieben:

$$\frac{\partial X}{\partial t} = F_m(X) + G_N(X_{obs} - X) \quad (2.1)$$

Hier wird die zeitliche Veränderung einer prognostischen Modellvariablen ( $\frac{\partial X}{\partial t}$ ) für einen Modellzeitschritt kalkuliert. Zu der vom Modell berechneten zeitlichen Veränderung ( $F_m(X)$ ) wird ein nicht physikalischer Term addiert. Dieser Term setzt sich zusammen aus der Differenz des beobachteten Wert der Variablen ( $X_{obs}$ ) und des Modellwerts ( $X$ ) gewichtet mit einem Relaxationskoeffizient bzw. Nudging Parameter ( $G_N$  in  $s^{-1}$ ). Dieser gibt an, mit welchem Anteil die jeweilige prognostische Variable mit Beobachtungsdaten oder Analysen anderer Modellsimulationen gewichtet wird. Da Beobachtungsdaten nicht zu jedem Zeitschritt vorliegen, wird eine lineare Interpolation zwischen den beiden nächsten Beobachtungszeitpunkten durchgeführt.

In den durchgeführten Simulationen wurden die Analysen des ECMWF genutzt, welche sechstündlich vorliegen. Das Modell des ECMWFs (IFS Cycle 25r1 bis 26r3) überdeckt vertikal mit 60 Leveln den Bereich vom Boden bis 0.1 hPa (ca. 65 km) und verwendet eine horizontale Auflösung von T511 (ca. 0.24°). Mit Hilfe der Software „Interpolation of ECMWF Reanalysis data“ (INTERA, Kirchner [2001]) wurden die Analysen auf das entsprechende Modellgitter von ECHAM5/MESSy1 interpoliert.

Es wurden die Größen Divergenz, Vorticity, Temperatur und Oberflächendruck genutzt. Wie stark die meteorologischen Größen der ECMWF-Analysen auf die Dynamik des Modells einwirken, wird über die Nudging-Parameter definiert. Die Nudging-Parameter sollten dabei nicht zu gross gewählt werden, da sonst die berechnete Modelldynamik aus dem numerischen Gleichgewicht geraten und so z.B. nicht realistische Gravitationswellen erzeugt werden könnten. Andererseits sollten sie auch nicht zu klein sein, da sonst die erwähnten kurzzeitigen meteorologischen Ereignisse nicht simuliert werden. Eine genauere Beschreibung des Nudgings befindet sich in Jeuken et al. [1996].

## 2.3 Beschreibung der Modellsimulationen

Um den Einfluss des Nudgings auf das Modell ECHAM5/MESSy1 abschätzen zu können, wurden vier Simulationen in einer horizontalen Auflösung von T42 und einer vertikalen Auflösung von L39 durchgeführt. Es wurden dabei die ECHAM5/MESSy1-Module CLOUD, CONVECT, CVTRANS, DRYDEP,  $H_2O$ , HETCHEM, JVAL, LNOX, MECCA, OFFLEM, ONLEM, PSC, PTRAC, QBO, RAD4ALL, SCAV, SEDI, TNUDGE, TROPOP sowie die EVAL-Chemie verwendet (siehe Abschnitt 1.2.3) verwendet. Die Atmosphärenchemie wird durch die sog. „EVAL-Chemie“ repräsentiert, d.h. die troposphärische Chemie wurde ohne Chlor (*Cl*)-, Brom (*Br*)- und Jod (*I*)-Reaktionen durchgeführt, dafür aber mit der Chemie der organischen Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMKW) bis zu Isopren und in der Stratosphäre wurde die vollständige Chemie verwendet.

Die vier Simulationen überdecken den Zeitraum von September 2002 bis Dezember 2003. Dabei wurde eine Simulation ungenutzt, eine mit Nudging von Level 36 (ca. 920 hPa) bis Level 16 (ca. 13 hPa/30.2 km) [NUDG10-Simulation], eine mit Nudging von Level 36 (ca. 920 hPa) bis Level 24 (ca. 110 hPa/15.3 km) [NUDG100-Simulation] und eine mit Nudging von Level 36 (ca. 920 hPa) bis Level 27 (ca. 220 hPa/10.6 km) [NUDG200-Simulation] durchgeführt. Bei dieser letzteren wurde somit in der Stratosphäre kein Nudging angewendet.

Die Werte der Nudging-Parameter für die jeweiligen prognostischen Variablen in den unterschiedlichen Simulationen sind exemplarisch höhenabhängig in der Abbildung 2.1 dargestellt.

Je nach Simulation ist gut zu erkennen, in welchen Höhen genutzt wird. In Tabelle 2.1 sind dabei maximale Werte der Nudgingparameter für Divergenz, Vorticity, Temperatur und Bodendruck angegeben. Diese finden sich in der NUDG10-Simulation im Höhenbereich von 690 hPa (ca. 2.7 km) bis 32 hPa (ca. 24.2 km), in der NUDG100-Simulation von 690 hPa (ca. 2.7 km) bis 220 hPa (ca. 10.6 km) und bei der NUDG200-Simulation von 700 hPa (ca. 2.7 km) bis 410 hPa (ca. 6.3 km).

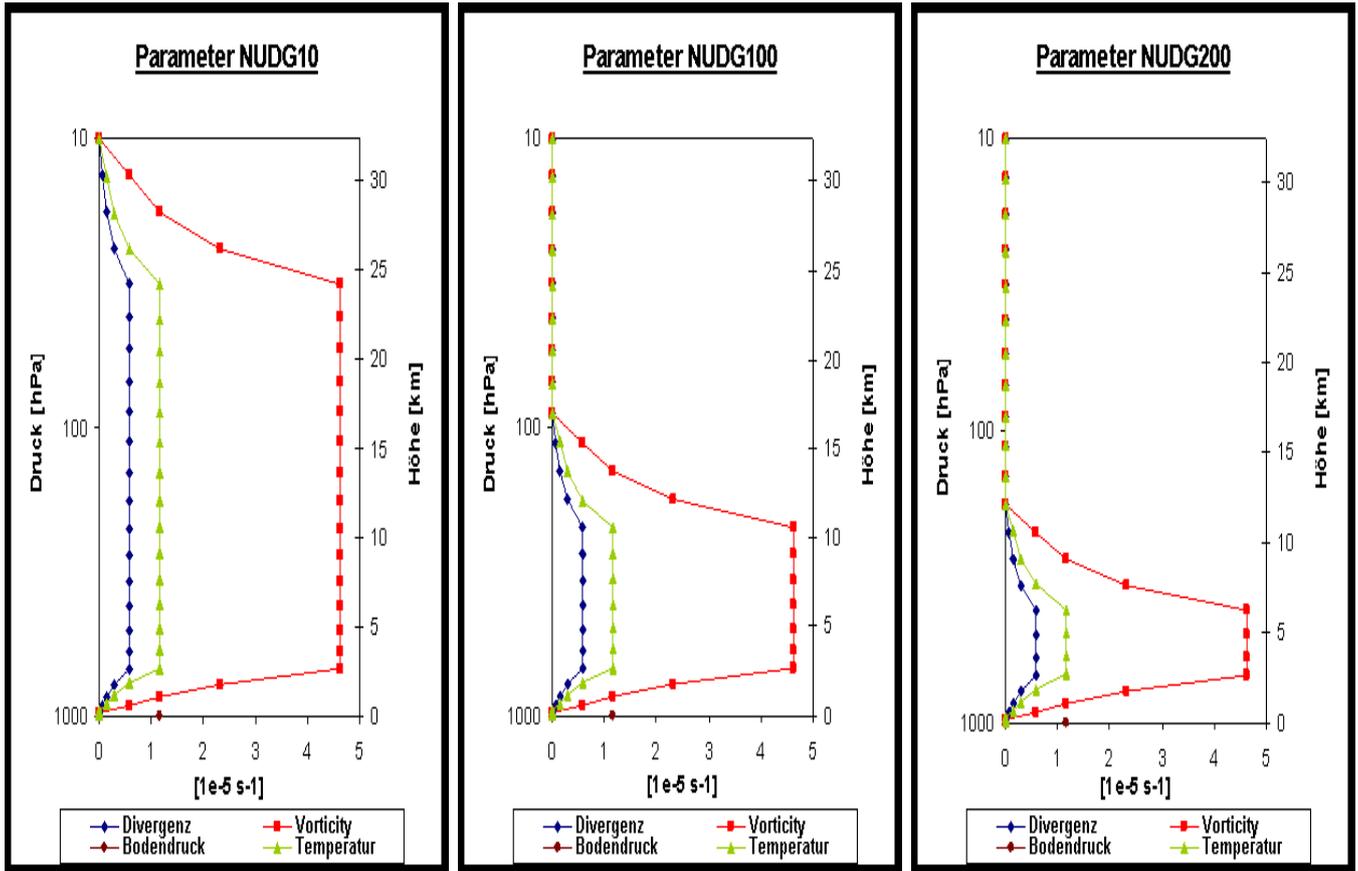


Abbildung 2.1: Verwendete höhenabhängige Nudgingparameter ( $G_N$ ) in den Simulationen NUDG10, NUDG100 und NUDG200

Unter und über diesem Höhenbereich befinden sich drei Level mit kleineren Nudging-Parametern. So nimmt das Nudging in den drei Leveln (36 bis 34) von 920 hPa (ca. 0.7 km) bis 780 hPa (ca. 1.8 km) langsam von unten nach oben zu. Die Nudging-Parameter variieren dabei von  $\frac{1}{8}$ ,  $\frac{1}{4}$  und  $\frac{1}{2}$  des Wertes des Höhenlevels in 690 hPa (ca. 2.7 km). Über dem Höhenbereich der maximalen Nudging-Parameter fallen die Werte in gleicher Weise über drei Level ab. Die untersten drei Level (Level 37 bis Level 39) werden aufgrund der unterschiedliche Orografie von ECHAM5/MESSy1 und des ECMWF-Modells nicht genutzt.

Die maximalen Werte der verwendeten Nudging Parameter ( $G_N$ ) sind in Tabelle 2.1 aufgeführt und wurden aus van Aalst [2005] entnommen.

Prognostische Variable	Nudging Parameter
Divergenz	$0.58 * 10^{-5} s^{-1}$
Vorticity	$4.63 * 10^{-5} s^{-1}$
Temperatur	$1.16 * 10^{-5} s^{-1}$
Oberflächendruck	$1.16 * 10^{-5} s^{-1}$

Tabelle 2.1: Nudging-Parameter ( $G_N$ ) für die meteorologischen prognostischen Variablen in ECHAM5/MESSy1 (nach van Aalst [2005])

## 2.4 Antarktischer Vortex-Split im September 2002

Im September 2002 kam es zu einer Teilung des antarktischen Wirbels in zwei eigenständige kleinere Wirbel aufgrund eines bis dahin nicht beobachteten „major warming“ in der südpolaren Stratosphäre [Baldwin et al., 2003]. Aufgrund der ungewöhnlichen meteorologischen Situation wird dieses Ereignis in ungenudgten Modellläufen nicht simuliert und ist von daher sehr gut geeignet, um einen ersten Eindruck über die Güte einer im Modell angewendeten Nudging-Technik zu erhalten.

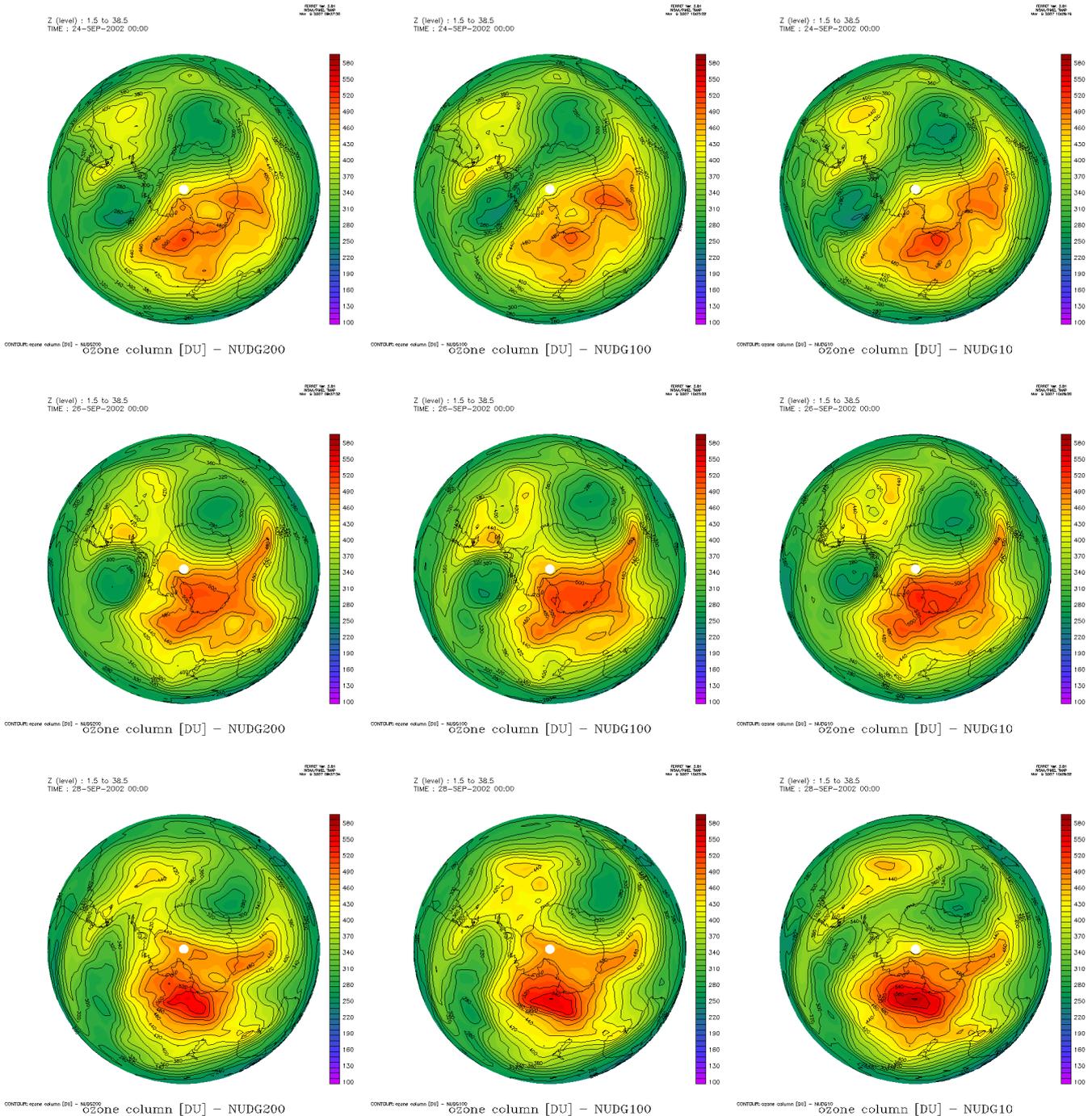


Abbildung 2.2: Vortex Split 2002: Südpolare Ozonsäulen (in DU) am 24.9.02 (oben), 26.9.02 (Mitte) und 28.9.02 (unten), simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen: NUDG200 (links), NUDG100 (Mitte), NUDG10 (rechts)

In Abbildung 2.2 sind drei Tage in der Entwicklung des „Vortex-Splits“ dargestellt. Der 24.9.2002 kurz vor der Teilung des Wirbels, der 26.9.2002 nachdem die Teilung in zwei Wirbelteile stattgefunden hat und der 28.9.2002, an welchem der Beginn der Auflösung des kleineren der beiden Wirbel erkennbar ist. Es sind dabei jeweils die Ozonsäulen der südhemisphärischen hohen Breiten der Simulationen NUDG200, NUDG100 und NUDG10 dargestellt. Zum Vergleich befinden sich in Abbildung 2.3 gemessene Ozonsäulen des Satelliteninstrumentes TOMS (Beschreibung siehe Abschnitt 2.5.6). Es sind die zwei unterschiedlichen Farbskalen zu beachten.

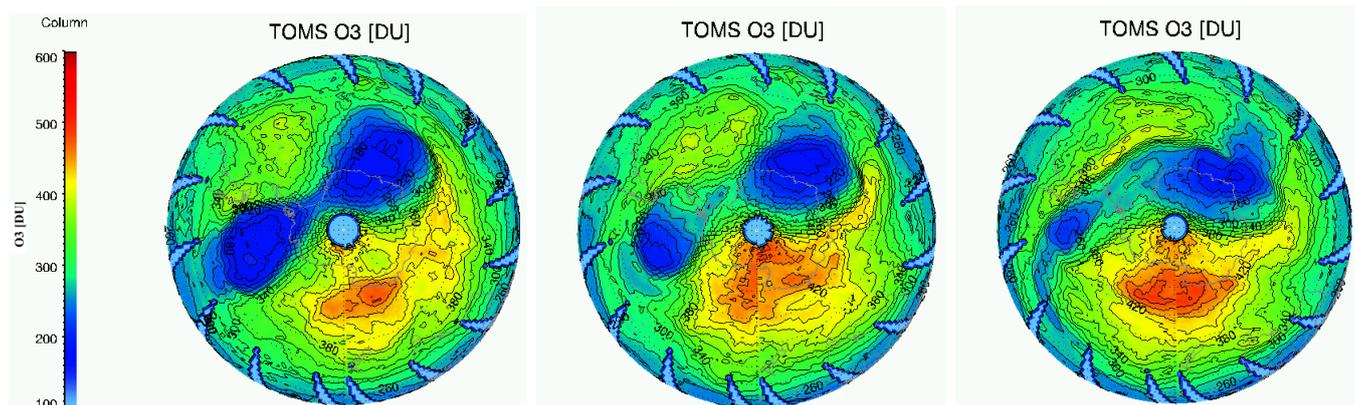


Abbildung 2.3: Südpolare Ozonsäule (in DU) am 24.9.2002 (links), 26.9.2002 (Mitte) und 28.9.2002 (rechts) gemessen mit TOMS

In den beiden Abbildungen ist zu erkennen, dass in ECHAM5/MESSy1 in den mittleren und hohen südlichen Breiten flächendeckend deutlich höhere Ozonsäulen simuliert werden, als mit TOMS gemessen wurden. Dies wird in Kapitel 3 noch genauer erläutert.

Am 24. September ist die Hantelform des Wirbels in allen drei Simulationen gut wiedergegeben. Die niedrigsten Ozonsäulen sind dabei in der Simulation NUDG10 im inneren Wirbel zu finden. Die Struktur des Wirbels, sowie die Ozonsäulengradienten am Rand des Wirbels sind in allen Simulationen mit den gemessenen Werten von TOMS vergleichbar. Am 26. September hat sich der Wirbel geteilt und es sind zwei separate Wirbel vorhanden. Diese Teilung findet in allen drei Simulationen statt. Am 28. September ist bei TOMS zu erkennen, dass der kleinere Wirbel sich anfängt aufzulösen. Diese Auflösung des kleineren separaten Wirbels wird in allen Modellläufen simuliert, wobei in der NUDG100- und in der NUDG200-Simulation die Auflösung weiter fortgeschritten ist als bei NUDG10. Im Vergleich mit TOMS ist zu erkennen, dass die NUDG10-Simulation am nächsten an den Satellitenmessungen liegt.

Zusammengefasst reicht das Nudging der Troposphäre (NUDG200) aus, um den „Vortex-Split“ zu simulieren. In Struktur und Form sind gute Übereinstimmungen mit den Messdaten von TOMS zu finden. Genauere Details sind aber umso realistischer simuliert, je höher genudgt wird. So sind die grössten Übereinstimmungen mit TOMS in der NUDG10 Simulation zu finden. Als Grundlage für eine Entscheidung, bis zu welcher Höhe das Nudging sinnvoll ist, sind diese Details alleine aber nicht ausreichend. Es wird von daher im folgenden die Dynamik und die atmosphärische Chemie des antarktischen Wirbels während des südhemisphärischen Sommers und Frühlings 2003 in den vier durchgeführten Simulationen betrachtet.

## 2.5 Antarktische Dynamik und stratosphärische Chemie 2003

Um die geeignetste Höhe, bis zu welcher genudgt werden sollte, zu finden, wird in diesem Abschnitt die antarktische Dynamik und die stratosphärische Chemie des Jahres 2003 der drei durchgeführten Simulationen mit Nudging bis ca. 220 hPa (NUDG200), Nudging bis ca. 110 hPa (NUDG100) und Nudging bis ca. 13 hPa (NUDG10) mit einer ungenudgten Simulation (UNG) verglichen. Zusätzlich findet ein Vergleich mit dem Satelliteninstrument TOMS statt.

### 2.5.1 Bestimmung der potentiellen Temperatur und der potentiellen Vorticity

Zunächst soll dabei die Entwicklung des antarktischen Wirbels während des südhemisphärischen Sommers und Frühlings betrachtet werden. Eine meteorologische Kenngrösse, welche sich besonders gut zur Charakterisierung des polaren Wirbels eignet, ist die potentielle Vorticity (pV). Sie ist definiert als:

$$pV = \frac{1}{\rho}(\vec{\omega}_{rel} + 2\Omega)\nabla\Theta = \frac{\eta}{\rho}\nabla\Theta \quad \text{in } \frac{Km^2}{kg \ s} \quad (2.2)$$

mit  $\rho$  = Luftdichte in  $\frac{kg}{m^3}$ ,  $\Theta$  = potentielle Temperatur in K,  $\vec{\omega}_{rel}$  = relative Vorticity in  $\frac{1}{s}$  ( $= \nabla \times \vec{v}$ ),  $\Omega$  = Winkelgeschwindigkeit der Erde in  $\frac{1}{s}$  und  $\eta$  = absolute Vorticity in  $\frac{1}{s}$  ( $= \vec{\omega}_{rel} + 2\Omega$ ).

Wenn die Isolinien der potentiellen Temperatur (Isentropen) horizontal verlaufen, kann man die potentielle Vorticity für grossräumige Strömungen wie folgt vereinfachen:

$$pV = \frac{1}{\rho}(f - \omega_z)\frac{\partial\Theta}{\partial z} \quad \text{in } \frac{Km^2}{kg \ s} \quad (2.3)$$

mit  $f$  = Coriolisparameter in  $\frac{1}{s}$  und  $\omega_z$  = Vertikalkomponente der relativen Vorticity in  $\frac{1}{s}$ .

Die potentielle Vorticity wird oft in Potential Vorticity Units (PVU) angegeben:

$$1 \text{ PVU} = 10^{-6} \frac{Km^2}{kg \ s} \quad (2.4)$$

Aufgrund der Vereinfachung der potentiellen Vorticity von Gleichung 2.2 zu Gleichung 2.3 werden die Betrachtungen im folgenden auf Flächen potentieller Temperatur stattfinden. Die potentielle Temperatur ( $\Theta$ ) entspricht der Temperatur, welche ein Luftpaket annehmen würde, wenn man es trockenadiabatisch auf Bodenniveau (bzw.  $p_0=1013.25$  hPa) absenkt. Sie ist wie folgt definiert:

$$\Theta[T(z)] = T(z) \left[ \frac{p_0}{p(z)} \right]^{\frac{R_L}{c_p}} \quad (2.5)$$

mit  $T$  = aktuelle Umgebungstemperatur in der Höhe  $z$  in K,  $p$  = aktueller Druck in der Höhe  $z$  in hPa,  $R_L$  = spezifische Gaskonstante trockener Luft =  $287.053 \frac{J}{Kkg}$  und  $c_p$  = spezifische Wärmekapazität trockener Luft =  $1004.67 \frac{J}{Kkg}$ .

Bei einer vertikalen Lageänderung eines Luftpaketes bleibt die potentielle Temperatur ( $\Theta$ ) konstant, solange die Temperaturänderung trockenadiabatisch erfolgt. Aufgrund der Stabilität der Stratosphäre kann  $\Theta$  als Höhenkoordinate in dieser atmosphärischen Schicht verwendet werden.

In Abbildung 2.4 ist auf der linken Seite die Temperatur und auf der rechten Seite die potentielle Temperatur ( $\Theta$ ) in Abhängigkeit von Druckhöhe und geographischer Breite dargestellt. Es ist

jeweils das zonal gemittelte Monatsmittel für September 2003 für die Südhemisphäre dargestellt. Die Temperatur- und  $\Theta$ -Daten stammen dabei aus der NUDG10-Simulation.

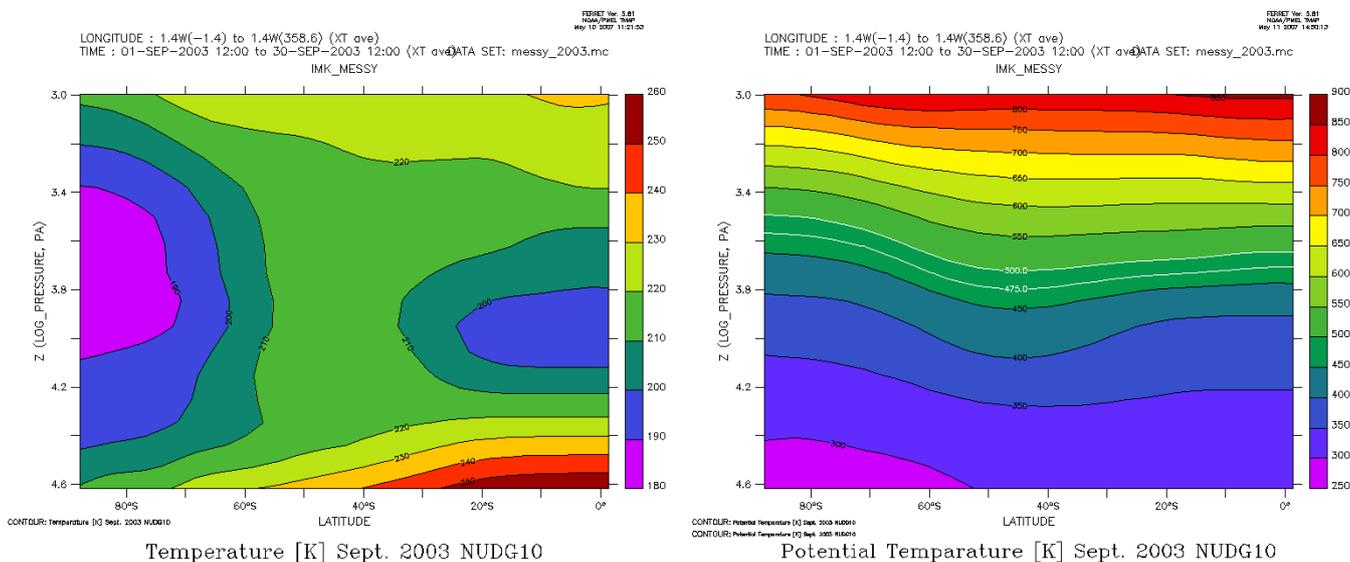


Abbildung 2.4: Monatsmittel September 2003 für Temperatur (links) und potentieller Temperatur (rechts), zonal gemittelt, dargestellt für die Südhemisphäre. Die Vertikalachse ist dabei in einer logarithmischen Druckskala in Pa angegeben. Es sind dabei die Exponenten der Zehnerpotenz dargestellt. Die vertikale Achse erstreckt sich von 4.6 (400 hPa, ca. 6.5 km) bis 3.0 (10 hPa, ca. 32.3 km). Die Daten entstammen der NUDG10-Simulation mit ECHAM5/MESSy1.

Man erkennt, dass die Isentropen Richtung Südpol, aufgrund der dortigen tieferen Temperatur, ansteigen. Eine  $\Theta$ -Fläche beschreibt somit nicht eine gleiche geometrische Höhe, sondern ist an Lokalitäten mit niedrigerer Temperatur (z.B. stratosphärischer antarktischer Wirbel im südhemisphärischen Winter) höher gelegen, als an Lokalitäten mit höheren Temperaturen (z.B. stratosphärische mittlere Breiten im südhemisphärischen Winter). In Abbildung 2.4 (rechts) erkennt man auch die Stabilität der atmosphärischen Schichtung. So steigen die Isentropen im Bereich der Stratosphäre (mittlerer und oberer Teil der Abbildung) aufgrund der sehr stabilen Schichtung (vertikale Temperaturzunahme) schneller an, als im Bereich der oberen Troposphäre, welche weniger stabil geschichtet ist (vertikale Temperaturabnahme).

In Abbildung 2.4 (rechts) sind die beiden Isentropen mit 475 K und 500 K in weiss markiert. Diese beiden  $\Theta$ -Flächen werden im folgenden benutzt, um die Charakteristik des antarktischen Wirbels in den durchgeführten Simulationen zu erläutern. Die Druckhöhe der 475 K-Fläche [500 K-Fläche] ist im Bereich des antarktischen Wirbels ca. 40 hPa (ca. 22.5 km) [ca. 30 hPa (ca. 24.5 km)]. In Richtung der mittleren Breiten sinkt die 475 K-Fläche [500 K-Fläche] auf ca. 65 hPa (ca. 19.0 km) [ca. 50 hPa (ca. 21 km)] ab, bevor sie in Richtung Tropen wieder leicht auf ca. 50 hPa (ca. 21.0 km) [ca. 45 hPa (ca. 22 km)] ansteigt.

Im folgenden werden die antarktischen Wirbel in den unterschiedlichen Simulationen während des Sommerhalbjahres 2003 sowie die Verteilung der Lufttemperaturen innerhalb dieser Wirbel betrachtet. Dabei sind die Grösse, Stabilität und Lage des Wirbels sowie die simulierten Temperaturen innerhalb des Wirbels, ausschlaggebend für die antarktische stratosphärische Chemie. Je nach Wirbelstruktur und Lufttemperatur kommt es im Laufe des südhemisphärischen Frühlings zu einer unterschiedlichen Ausprägung des Ozonlochs.

### 2.5.2 Der antarktische Wirbel 2003

Im Jahr 2003 blieb der antarktische Wirbel während des südhemisphärischen Winters durchgehend stabil. Diese Stabilität und tiefe Temperaturen unterhalb des Eiskondensationspunktes innerhalb des Wirbels führten zu einem ausgeprägten Ozonabbau im darauffolgenden südhemisphärischen Frühling.

Die Stabilität des Wirbels im antarktischen Winter 2003 ist in den Modellläufen UNG, NUDG200, NUDG100 und NUDG10 realitätsnah simuliert. Die Simulationen unterscheiden sich jedoch in einigen Charakteristika des antarktischen Wirbels. So sind horizontale Ausdehnung, Intensität und zeitliche Dauer der Stabilität des Wirbels unterschiedlich simuliert. Als Beispiel hierfür sind in Abbildung 2.5, mit Hilfe der potentiellen Vorticity in PVU, die antarktischen Wirbel der unterschiedlichen Modellsimulationen für den 1. September 2003 auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche dargestellt.

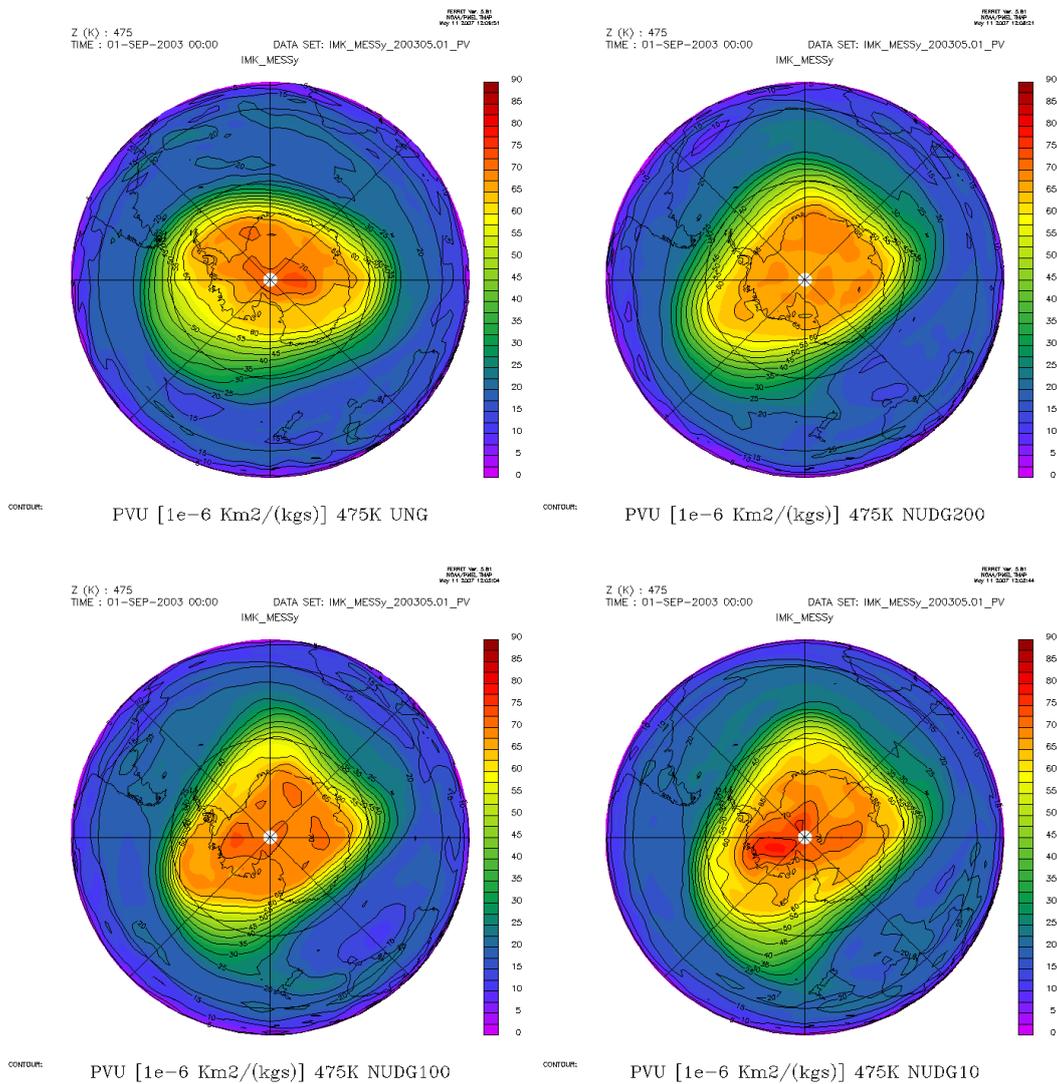


Abbildung 2.5: Antarktischer Wirbel am 1. September 2003 auf 475 K, dargestellt mit Hilfe der potentiellen Vorticity (pV) in der Einheit PVU (in  $10^{-6} \frac{Km^2}{kgs}$ ), simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen: UNG (oben links), NUDG200 (oben rechts), NUDG100 (unten links), NUDG10 (unten rechts). Abstand des geographischen Gitters: zonal  $45^\circ$ , meridional  $30^\circ$ .

Man erkennt die unterschiedliche Ausdehnung und Lage des Wirbels in den Simulationen. In der ungenudgten Simulation ist die Längsachse des ellipsenförmigen Wirbels von  $90^\circ$ West nach  $90^\circ$ Ost ausgerichtet. In den genudgten Simulationen liegt diese Längsachse von  $135^\circ$ West nach  $45^\circ$ Ost. Die Intensität des Wirbels steigt in den genudgten Simulationen von NUDG200 über NUDG100 zu NUDG10 an. So sind in der NUDG200-Simulation maximale potentielle Vorticitywerte von über 65 PVU simuliert, in NUDG100-Simulation liegt das Maximum bei über 70 PVU und in der NUDG10-Simulation bei über 75 PVU.

Um die räumliche Ausdehnung der simulierten Wirbel zu quantifizieren, ist es nötig eine Vorticity-Grenze zu definieren, welche den Wirbelrand kennzeichnet. Die in dieser Arbeit verwendeten Grenzen wurden aus Woyke [1999] entnommen und sind in Tabelle 2.2 dargestellt. Für die betrachteten  $\Theta$ -Flächen 475 K und 500 K betragen die pV-Grenzen 35 PVU und 45 PVU.

$\Theta$ in K	400	435	475	500	550	575	600	635	675
pV in PVU	12	22	35	45	75	100	120	160	220

Tabelle 2.2: Grenzen der potentiellen Vorticity zur Definition des antarktischen Wirbels nach Woyke [1999]

Mit Hilfe dieser Grenzen der potentiellen Vorticity wurden die Flächen der simulierten antarktischen Wirbel bestimmt. In Abbildung 2.6 sind die Wirbelflächen der 475 K- $\Theta$ -Fläche (links) und der 500 K- $\Theta$ -Fläche (rechts) der durchgeführten Simulationen, im Zeitintervall Mai 2003 bis November 2003, dargestellt.

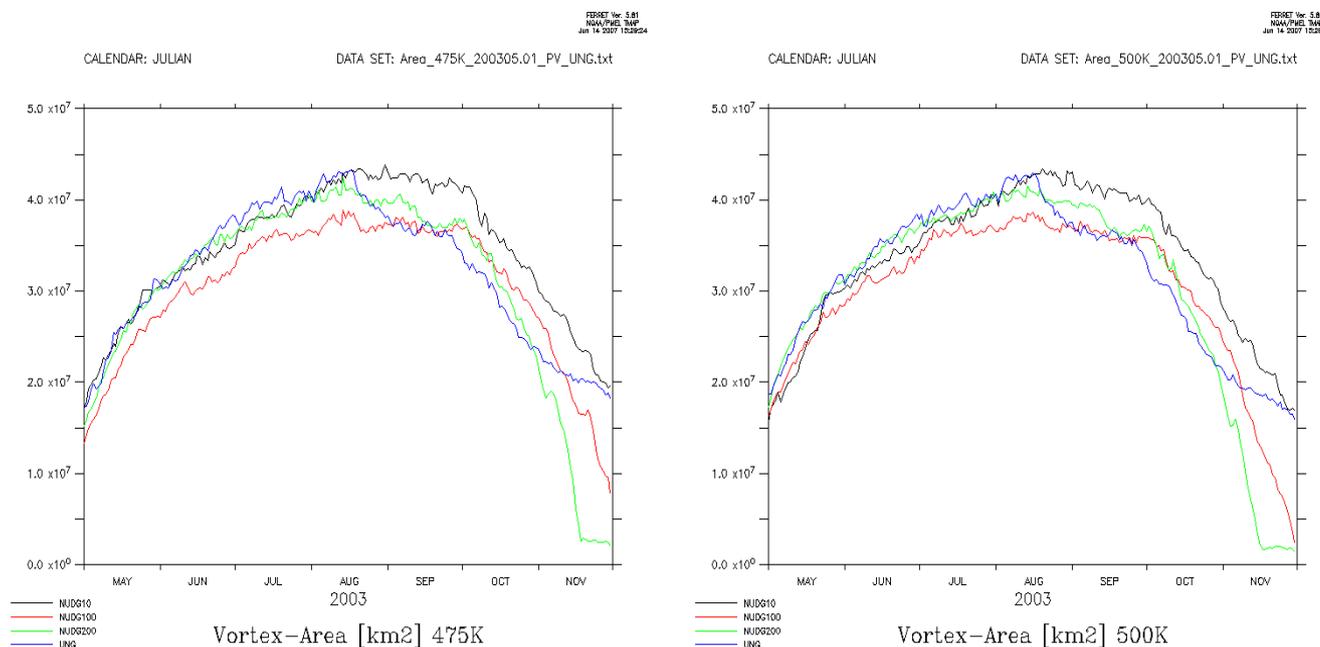


Abbildung 2.6: Zeitserie der Fläche des antarktischen Wirbels 2003 (in  $km^2$ ) auf 475 K (links) und 500 K (rechts). Der Wirbelrand wurde definiert mit einer Grenze der potentiellen Vorticity (pV) von 35 PVU auf 475 K und 45 PVU auf 500 K [Woyke, 1999]. Schwarz = NUDG10, rot = NUDG100, grün = NUDG200, blau = UNG

Auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche ist bis Mitte August 2003 die Fläche des Wirbels bei den Simulationen sehr ähnlich, mit Ausnahme der NUDG100-Simulation, in welcher die Fläche im Vergleich kleiner ist. Bis zu diesem Zeitpunkt wächst die Wirbelfläche in den Simulationen NUDG10, NUDG200 und UNG kontinuierlich von unter  $2 * 10^7 \text{ km}^2$  auf über  $4 * 10^7 \text{ km}^2$  an.

Ab Mitte August 2003 differieren die Flächengrößen dieser drei Simulationen. So ist ab Mitte August der Wirbel der NUDG10-Simulation im Vergleich zu den anderen simulierten Wirbeln am grössten. Bis Anfang Oktober bleibt in dieser Simulation eine Wirbelfläche von über  $4 * 10^7 \text{ km}^2$  erhalten. Danach verringert sich zwar die Fläche des Wirbels, aber der antarktische Wirbel bleibt noch bis Ende November relativ stabil und überdeckt zu diesem Zeitpunkt noch ca.  $2 * 10^7 \text{ km}^2$ .

Die Wirbelflächen der anderen beiden genudgten Simulationen nehmen hingegen schneller ab. So sinkt die Wirbelfläche in der NUDG100-Simulation, welche im gesamten Zeitraum unter der Fläche der NUDG10-Simulation liegt, bis Ende November auf einen Wert von ca.  $0.8 * 10^7 \text{ km}^2$ . Die Wirbelfläche der NUDG200-Simulation nimmt im Vergleich zu den anderen Simulationen am schnellsten ab. Folglich löst sich der antarktische Wirbel in dieser Simulation am schnellsten auf. Mitte November sind hier fast keine Flächen mit Werten der potentiellen Vorticity über 35 PVU zu finden.

In der Vergleichssimulation, der ungenudgten Simulation, ist ab Mitte August bis Mitte November eine deutlich kleinere Wirbelfläche als in der NUDG10-Simulation zu erkennen. Im November wird die Wirbelfläche, anders als in den genudgten Simulationen, nur sehr langsam kleiner, so dass der antarktische Wirbel in dieser Simulation bis Ende November relativ stabil bleibt und zu diesem Zeitpunkt nur eine geringfügig kleinere Fläche (ca.  $1.9 * 10^7 \text{ km}^2$ ) als in der NUDG10-Simulation (ca.  $2.0 * 10^7 \text{ km}^2$ ) zu finden ist.

Auf der 500 K- $\Theta$ -Fläche sind im Vergleich zur 475 K- $\Theta$ -Fläche keine essentiellen Unterschiede in der räumlichen Ausdehnung des antarktischen Wirbels zu erkennen. Der Kurvenverlauf der Wirbelflächen ist fast gleich wie auf 475 K. Die Charakteristik des antarktischen Wirbels setzt sich demnach vertikal von 475 K zu 500 K ohne grössere Änderungen fort.

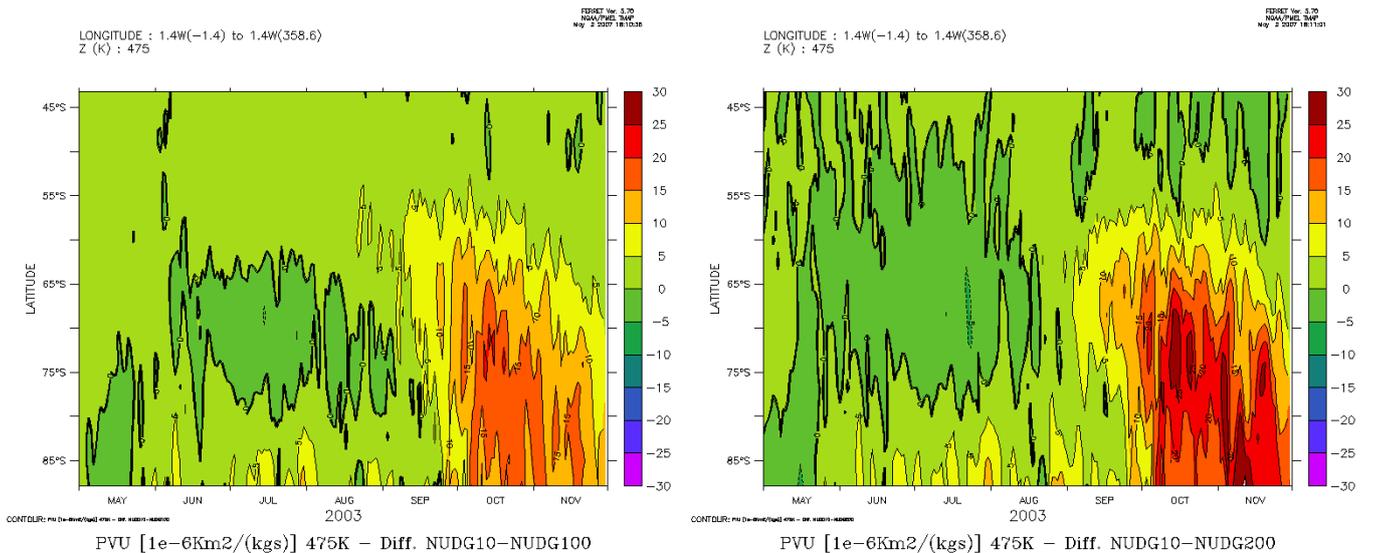


Abbildung 2.7: Zeitserien der Differenz der potentiellen Vorticity (pV) (in  $PVU(10^{-6} \frac{\text{Km}^2}{\text{kgs}})$ ) auf 475 K zwischen 45°S und dem Südpol (87.9°S) von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 zwischen den Simulation NUDG10 und NUDG100 (links) sowie NUDG10 und NUDG200 (rechts).

Um die Unterschiede der Wirbelflächen und vor allem der Intensität der antarktischen Wirbel in den durchgeführten genudgten Simulationen zu verdeutlichen, sind in Abbildung 2.7 zwei Zeitserien dargestellt, welche zum einen die Differenz in der potentiellen Vorticity für die südlichen hohen Breiten auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche zwischen der NUDG10-Simulation und der NUDG100-Simulation (links) und zum anderen zwischen der NUDG10-Simulation und der NUDG200-Simulation (rechts) beinhalten.

In den beiden Abbildungen wird sehr deutlich, dass die NUDG10-Simulation gegenüber der NUDG100-Simulation und der NUDG200-Simulation, insbesondere ab September 2003, im zeitlichen und geographischen Mittel deutlich höhere Werte in der potentiellen Vorticity aufweist. Der Wirbel wird in der NUDG10-Simulation insbesondere im antarktischen Frühling in seiner Intensität stärker und in seiner Fläche grösser simuliert als in den beiden anderen genudgten Simulationen.

In der Differenz zur NUDG100-Simulation (Abb.2.7 (links)) treten in der NUDG10-Simulation höhere PVU-Werte bis Mitte September vereinzelt im Bereich 85°S auf, wohingegen im Bereich 65°S bis 75°S auch niedrigere PVU-Werte auftreten. Von Mitte September 2003 bis Ende November 2003 ist jedoch südlich von 60°S eine deutlich höhere potentielle Vorticity in der NUDG10-Simulation zu finden. Die Intensität des Wirbels liegt dabei um bis zu 20 PVU über der NUDG100-Simulation.

Im Vergleich der NUDG10-Simulation zur NUDG200-Simulation (Abb.2.7 (rechts)) sind die Unterschiede noch grösser. So treten höhere PVU-Werte in der NUDG10-Simulation bis Mitte September vereinzelt (aber in mehreren Intervallen als im Vergleich NUDG10 zu NUDG100) um 85°S auf, wohingegen im Bereich von 55°S bis 75°S von Juni 2003 bis August 2003 niedrigere PVU-Werte auftreten. Von September bis Ende November 2003 werden südlich von 60°S dann aber durchgehend höhere potentielle Vorticity-Intensitäten in der NUDG10-Simulation modelliert. Es sind hier in der NUDG10-Simulation Differenzen zur NUDG200-Simulation von im Maximum über 25 PVU ersichtlich.

Diese Vergleiche decken sich mit den Erkenntnissen aus Abbildung 2.6. So wird der Wirbel in der NUDG200-Simulation im antarktischen Frühling im Vergleich zu den anderen Simulationen am schnellsten instabil, was die grossen Differenzen der potentiellen Vorticity zur NUDG10-Simulation, bei welcher der Wirbel am längsten stabil bleibt, erklärt. In der NUDG100-Simulation hingegen bleibt der antarktische Wirbel länger stabil als in der NUDG200-Simulation, jedoch kürzer als in der NUDG10-Simulation.

### 2.5.3 Die Temperaturen im antarktischen Wirbel 2003

Neben der Dynamik des antarktischen Wirbels sind die Temperaturen - über die Bildung von Polaren Stratosphärenwolken (PSCs) in den südlichen polaren Breiten - mitverantwortlich für den Ozonabbau im antarktischen Frühling.

So bilden sich bei Temperaturen unterhalb von ca. 193 K (NAT-Kondensationstemperatur, abhängig von Druck und der Konzentration von Salpetersäuregas ( $HNO_3$ )) PSCs des Typ-1a aus, welche aus festen NAT-Teilchen (NAT) bestehen. Zusätzlich entstehen PSCs des Typ-1b, welche als STS-Teilchen bezeichnet werden. Diese flüssigen Tröpfchen entstehen unterhalb der NAT-Kondensationstemperatur und oberhalb des Eiskondensationspunkts (ca. 188 K). Ab einer Temperatur unterhalb des Eiskondensationspunktes bilden sich PSCs des Typ-2, bestehend aus Eisteilchen [Peter, 1999]. Eine genauere Beschreibung der PSCs findet sich in Kapitel 4. An den Oberflächen der PSCs finden für den Ozonabbau relevante heterogene Reaktionen im polaren Winter statt, welche in Abschnitt 1.3 besprochen wurden.

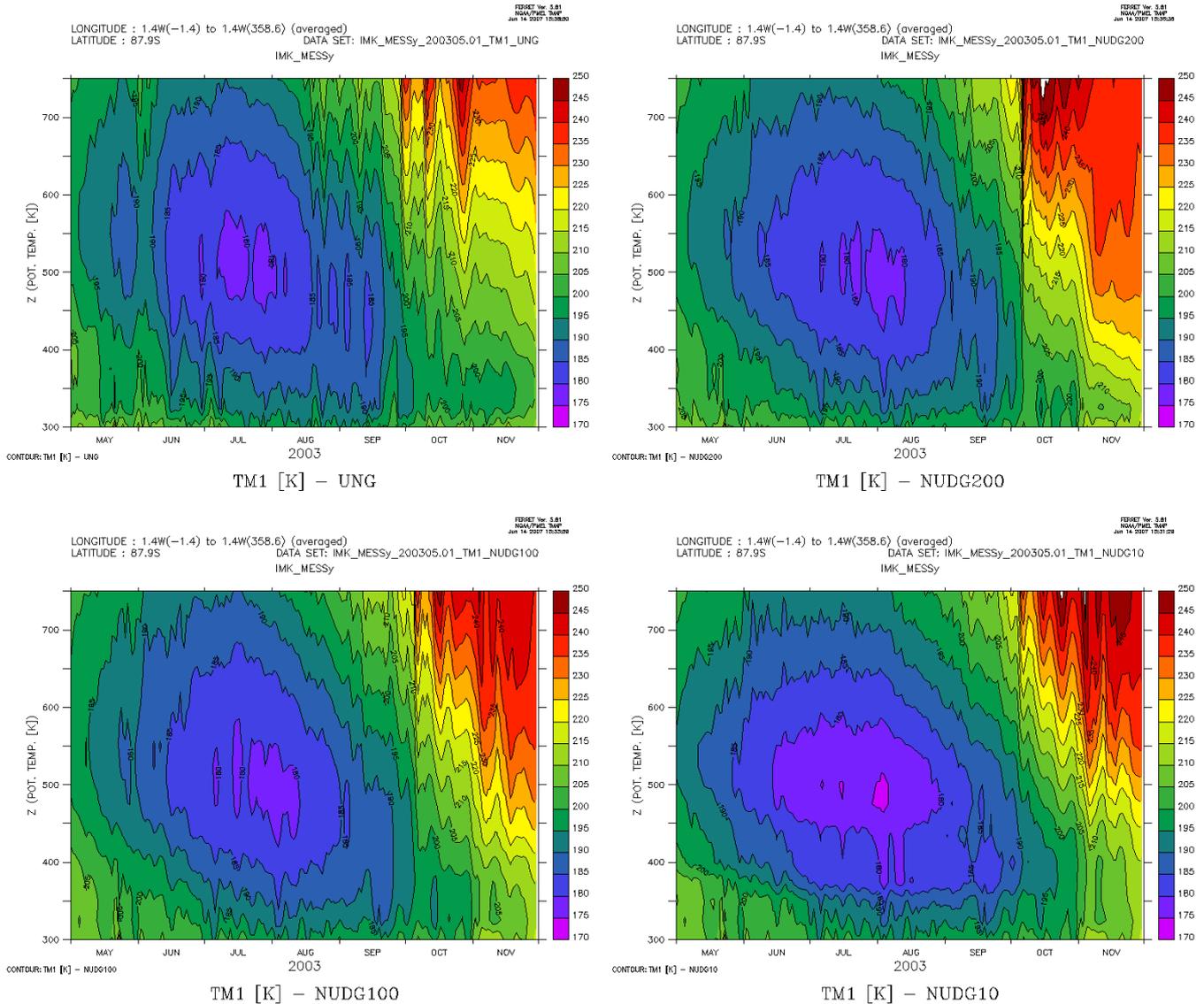


Abbildung 2.8: Zeitserie der zonal gemittelten Temperatur (in K) am Südpol von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen: UNG (oben links), NUDG200 (oben rechts), NUDG100 (unten links), NUDG10 (unten rechts). Als Höhenachse ist die potentielle Temperatur ( $\Theta$ ) gewählt.

Aufgrund der Bedeutung der Temperatur im polaren Wirbel für die PSC-Bildung wird diese zunächst am Südpol untersucht, dargestellt als Zeitserien in Abbildung 2.8 für das Zeitintervall Mai 2003 bis Ende November 2003. In den Temperaturzeitserien der vier durchgeführten Simulationen sind Unterschiede im Bereich der Temperaturminima während des antarktischen Winters in der Stratosphäre zu erkennen. So ist in den Zeitserien ersichtlich, dass der antarktische Winter des Jahres 2003 in der NUDG10-Simulation im Durchschnitt am Kältesten simuliert ist. Hier werden Anfang August Temperaturen von unter 175 K in der mittleren Stratosphäre erreicht, wohingegen in den anderen Simulationen nur Minima unter 180 K zu finden sind. Diese sehr tiefen Temperaturen unterhalb von 180 K sind ebenfalls am längsten anhaltend (Mitte Juni bis Ende August) in der NUDG10-Simulation zu finden.

Temperaturen unter 190 K findet man in der NUDG10-Simulation in der mittleren Stratosphäre von Anfang Mai bis Anfang Oktober. In den Simulationen NUDG100 und NUDG200 sind diese

Temperaturen, in beiden Simulationen sehr ähnlich verteilt, von Ende Mai bis Ende September zu erkennen. In der ungenudgten Simulation sind Temperaturen unter 190 K von Mitte Mai (danach noch einmal unterbrochen) bis Mitte September vorhanden.

Um die horizontale Erstreckung von Luftmassen mit tiefen Temperaturen zu ermitteln, wurden für die südpolaren Breiten Flächen mit Temperaturen unter 193 K (NAT-Kondensationstemperatur) berechnet (Abbildung 2.9). Diese Flächenbestimmung wurde für den Zeitraum von Mai 2003 bis Ende November 2003 auf den  $\Theta$ -Flächen 475 K (Abb. 2.9 (links)) und 500 K (Abb. 2.9 (rechts)) für alle genudgten Simulationen und für die ungenudgte Simulation durchgeführt.

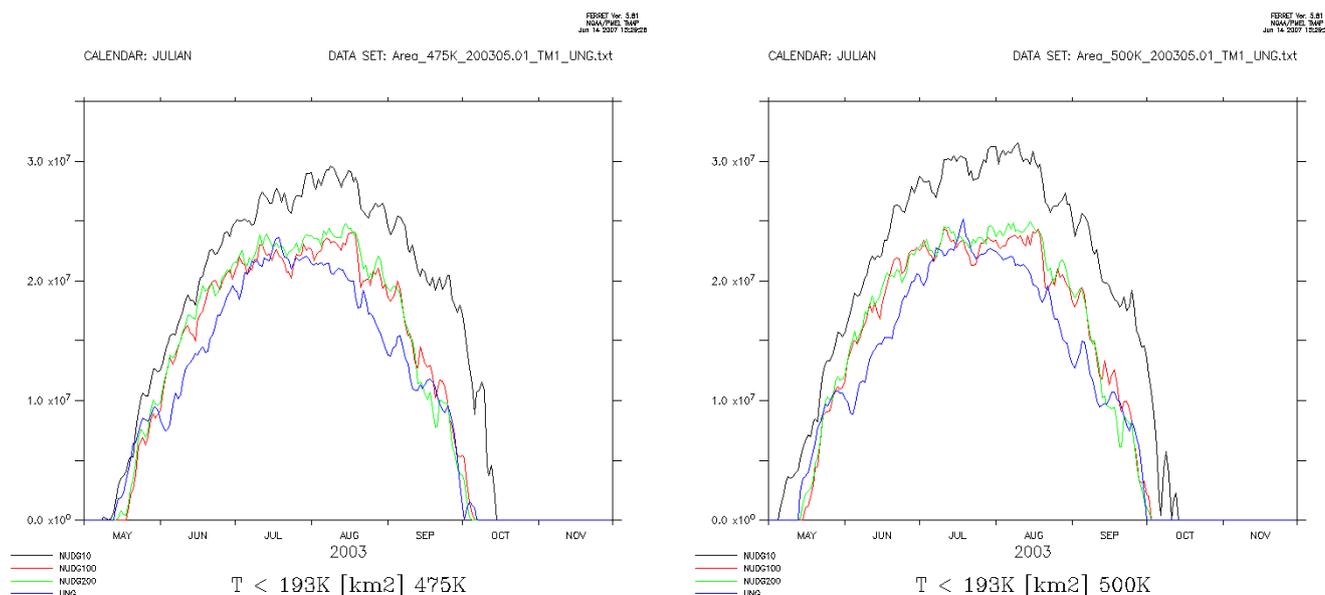


Abbildung 2.9: Zeitserie der Fläche mit einer Temperatur unter 193 K (in  $km^2$ ) auf 475K (links) und 500K (rechts) von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 in den südpolaren Breiten. Schwarz = NUDG10, rot = NUDG100, grün = NUDG200, blau = UNG

Auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche treten Temperaturen unterhalb des NAT-Kondensationspunktes (193 K) in der NUDG10- und UNG-Simulation ab Mitte Mai, in der NUDG100- und NUDG200-Simulation ein paar Tage später auf. Von Ende Mai an bis Mitte Oktober ist dann die grösste Temperaturfläche unter 193 K in der NUDG10-Simulation zu finden. Sie hat Mitte August eine maximale Ausdehnung von ca.  $3.0 \times 10^7 km^2$  und ist von Anfang Juli bis Ende September ca. 10% bis 40% grösser als in den beiden anderen genudgten Simulationen (NUDG100, NUDG200), welche beide ähnliche Flächengrössen simulieren. Die Ausbreitung der Fläche mit Temperaturen unter 193 K ist im zeitlichen Mittel in der ungenudgten Simulation am kleinsten. Ende September/Anfang Oktobers werden die Luftmassen mit Temperaturen unterhalb des NAT-Kondensationspunktes auf 475 K immer seltener. Temperaturen unterhalb von 193 K findet man in der NUDG100-, NUDG200- und UNG-Simulation bis Anfang Oktober und am längsten bis Mitte Oktober in der NUDG10-Simulation.

Auf der 500 K- $\Theta$ -Fläche ist der Kurvenverlauf der Flächengrössen, auf welchen Temperaturen unter 193 K vorkommen, in den Simulationen NUDG100, NUDG200 und UNG sehr ähnlich wie auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche. In der NUDG10-Simulation hingegen ist die Ausdehnung der Fläche mit Temperaturen unterhalb des NAT-Kondensationspunktes noch etwas grösser als auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche. Sie ist hier durchgehend von Anfang Mai bis Mitte Oktober am grössten und erreicht Mitte August maximale Werte von ca.  $3.1 \times 10^7 km^2$ . Temperaturen unter 193 K sind auf der 500 K- $\Theta$ -Fläche am frühesten (5. Mai) und am spätestens (15. Oktober) im NUDG10-Modelllauf simuliert.

Die simulierten Temperaturen korrelieren mit der horizontalen Ausbreitung und der zeitlich anhaltenden Stabilität des antarktischen Wirbels. So sind die Temperaturen in der Simulation NUDG10 am tiefsten und Luftmassen mit Temperaturen unterhalb des NAT-Kondensationspunktes von 193 K am grossflächigsten und zeitlich am längsten ausgebreitet, da hier auch die grösste Wirbelfläche vorhanden ist und der Wirbel zeitlich am längsten stabil bleibt. Es ist zu erwarten, dass in dieser Simulation am frühesten PSCs auftreten und am längsten und grossflächigsten vorhanden sind.

### 2.5.4 Antarktische PSCs und Denitrifizierung 2003

In Abbildung 2.10 sind die simulierten Flächen der PSCs mit festen Teilchen (NAT (PSC-Typ 1a) und Eispartikel (PSC-Typ 2)) auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche (links) und auf der 500 K- $\Theta$ -Fläche (rechts) für den Zeitraum von Mai 2003 bis November 2003 dargestellt.

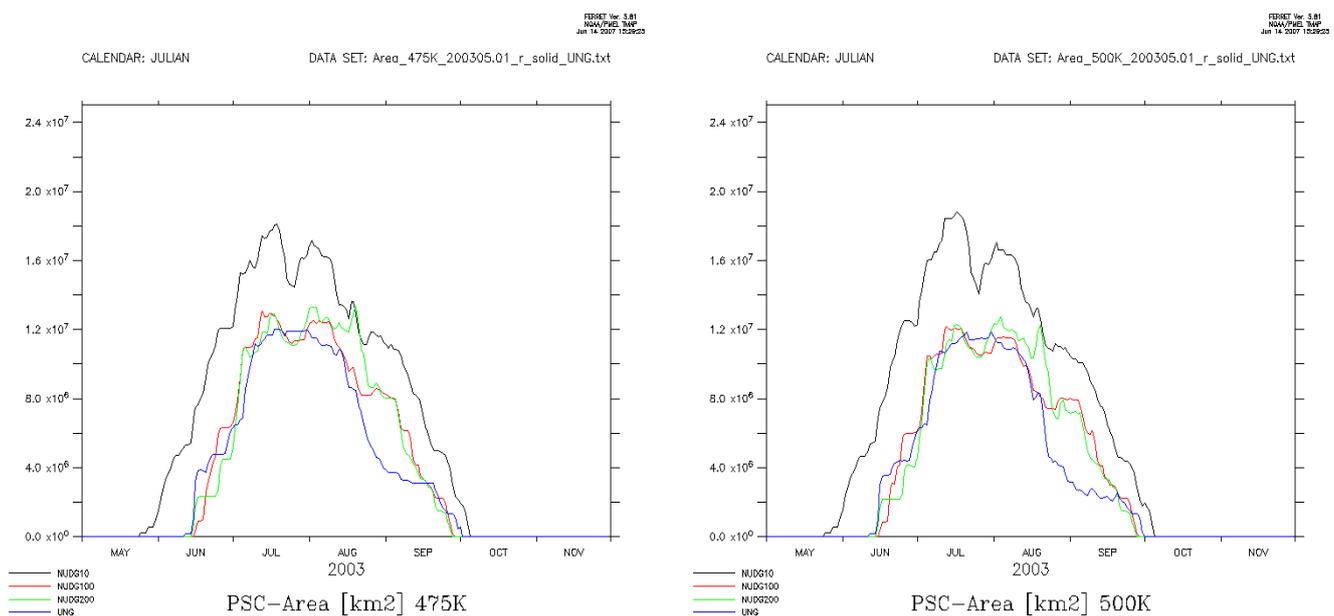


Abbildung 2.10: Zeitserie der Fläche der PSCs (NAT und Eis) (in  $km^2$ ) auf 475K (links) und 500K (rechts) von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 in den südpolaren Breiten. Schwarz = NUDG10, rot = NUDG100, grün = NUDG200, blau = UNG

Wie aufgrund der Temperaturverteilung zu erwarten ist, findet man auf der 475 K- und auf 500 K- $\Theta$ -Fläche die grösste räumliche PSC-Ausdehnung in der NUDG10-Simulation. Die PSCs treten in der NUDG10-Simulation am frühesten auf (Ende Mai) und sind deutlich am längsten (bis Anfang Oktober) vorhanden. Im Maximum findet man hier Flächen von ca.  $1.8 \times 10^7 km^2$  im Juli.

In den anderen drei Simulationen ist die horizontale Ausbreitung der PSCs untereinander relativ ähnlich, insbesondere sind die Unterschiede zwischen der NUDG100- und NUDG200-Simulation vernachlässigbar. Die ungenudgte Simulation hat im Zeitraum Mitte August bis Mitte September eine räumliche Ausbreitung der PSCs, welche etwas kleiner ist als die der NUDG100- bzw. NUDG200-Simulation. Die maximalen PSC-Flächen der NUDG100-, NUDG200- und UNG-Simulation sind mit ca.  $1.2 \times 10^7 km^2$  im Zeitraum von Anfang Juli bis Mitte August zu finden und zu den meisten Zeitpunkten etwa 20% bis 30% kleiner als in der NUDG10-Simulation (mit Ausnahme der PSC-Fläche der NUDG200-Simulation Ende August). In den drei Simulationen findet man PSCs erst später, ab Mitte Juni, als in der NUDG10-Simulation und nur bis Ende September.

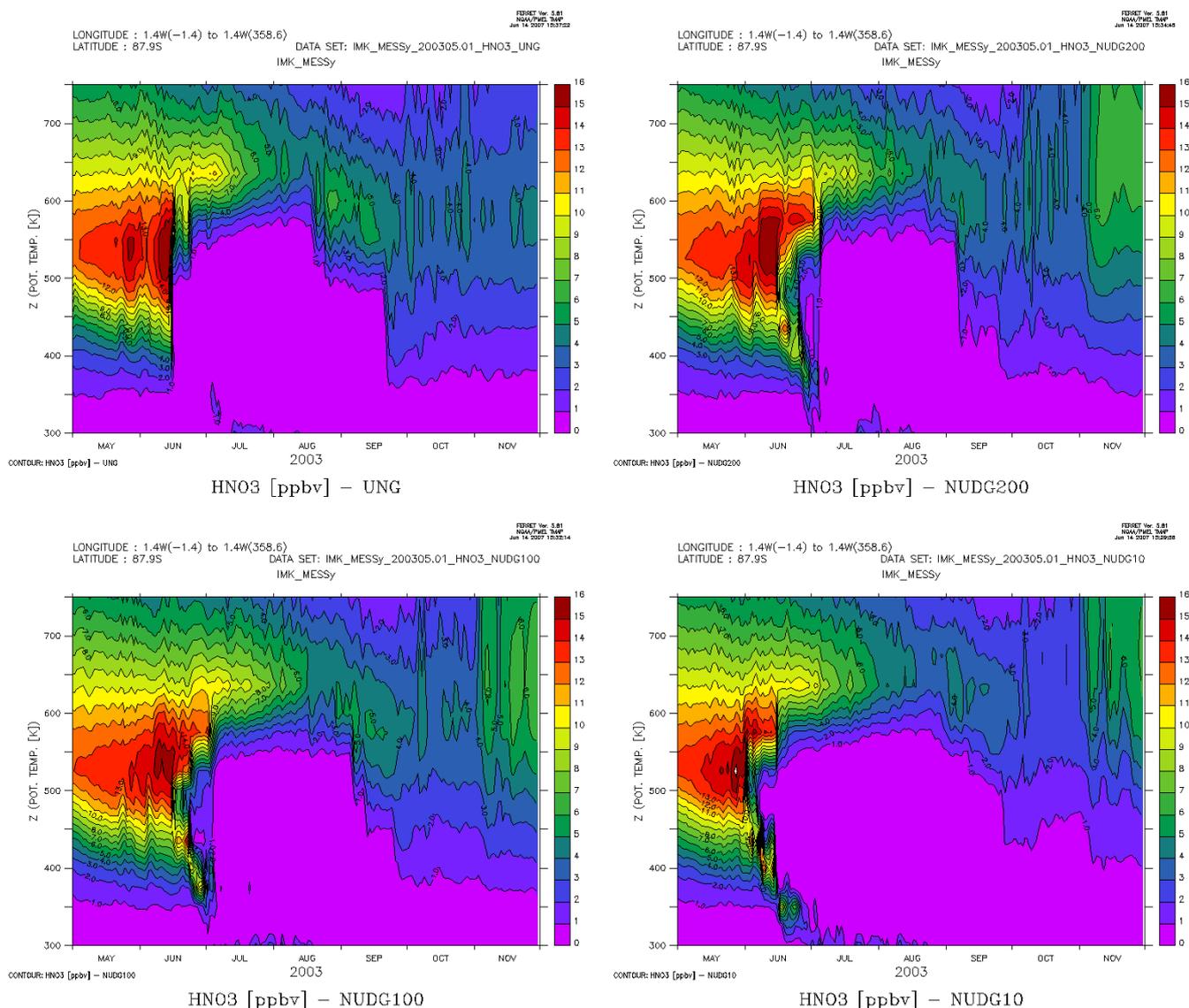


Abbildung 2.11: Zeitserien von  $HNO_3$  (in ppbv) am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) in der Stratosphäre von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen: UNG (oben links), NUDG200 (oben rechts), NUDG100 (unten links), NUDG10 (unten rechts). Als Höhenachse ist die potentielle Temperatur ( $\Theta$ ) gewählt.

Entsprechend der verschiedenen PSC-Verteilungen zwischen den Simulationen findet eine unterschiedliche Denitrifizierung in den südpolaren Breiten statt, welche in Abbildung 2.11 in Form von Zeitserien für Salpetersäuregas ( $HNO_3$ ) über dem Südpol ( $87.9^\circ S$ ) von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 für die Stratosphäre dargestellt ist.

Die Denitrifizierung geschieht durch die Sedimentation von grösseren NAT-Teilchen (PSC-Typ 1a), welche im davorigen Bildungsprozess  $HNO_3$  aus der Atmosphäre entfernen. Durch das Fehlen von  $HNO_3$  und somit von Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ) zum Beginn des antarktischen Frühlings wird die Rückbildung von  $ClO_x$  in Chlor-Reservoirsubstanzen (Chlornitrat ( $ClONO_2$ )) verzögert und der Ozonabbau kann länger stattfinden, als er ohne Denitrifizierung stattgefunden hätte [Brasseur et al., 1999].

In Abbildung 2.11 ist die unterschiedlich lange Dauer, bis sich das  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnis wieder erholt hat, besonders auffällig. Der Effekt der Denitrifizierung ist dabei in der NUDG10-Simulation am längsten zu beobachten, in welcher in der untersten Stratosphäre (370 K bis 400 K) Ende November noch Volumenmischungsverhältnisse von unter 1 ppbv  $HNO_3$  simuliert werden.

In der ungenudgten Simulation erholt sich hingegen das  $HNO_3$  ab Mitte September. In der NUDG200-Simulation im Höhenbereich über ca. 440 K findet die Erholung früher (Anfang September) und im Höhenbereich unter 440 K später (Ende September) statt. In der NUDG100-Simulation sind relativ ähnliche Mischungsverhältnisse von  $HNO_3$  wie in der NUDG200-Simulation zu finden. Am frühesten (Anfang Juni) tritt die Denitrifizierung im Höhenbereich von 490 K in der NUDG10-Simulation auf. In der untersten Stratosphäre (370 K bis 400 K) ist sie hingegen in der ungenudgten Simulation am frühesten (Mitte Juni) zu erkennen.

### 2.5.5 Antarktische Chloraktivierung und stratosphärischer Ozonabbau 2003

In Abbildung 2.12 sind Zeitserien des aktiven Chlors ( $ClO_x = Cl + ClO + HOCl + OClO + 2 * Cl_2O_2 + 2 * Cl_2$ ) auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche im Bereich von 45°S bis 90°S dargestellt. Hierbei sind für das  $ClO_x$  der Simulationen NUDG200, NUDG100 und NUDG10 die Differenzen der Volumenmischungsverhältnisse zwischen der jeweiligen Simulation und der ungenudgten Simulation aufgezeigt. Es ist wieder der Zeitraum von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 gewählt.

In der ungenudgten Simulation startet die Bildung von  $ClO_x$  Mitte Mai in den südlichen polaren Breiten zum Zeitpunkt der ersten Bildung von PSCs (PSC-Typ 1b, nicht gezeigt). In unterschiedlichen heterogenen Reaktionen an den Oberflächen von STS-, NAT- und Eisteilchen wird u.a. aus  $ClONO_2$  und  $HCl$ ,  $Cl_2$  und  $HOCl$  gebildet (siehe Abschnitt 1.3).  $Cl_2$  und  $HOCl$  werden mit beginnendem kurzweiligen Strahlungseinfall Ende August bis Anfang September (breitenabhängig) zu  $Cl$  umgewandelt, welches zum Abbau von Ozon führt [Brasseur et al., 1999].

Bis Mitte September findet zwischen 85°S und 90°S in der ungenudgten Simulation (Abbildung 2.12 (oben links)) ein Anstieg des aktiven Chlors ( $ClO_x$ ) statt. Zu diesem Zeitpunkt sind in diesem Bereich maximale  $ClO_x$ -Volumenmischungsverhältnisse von über 2.8 ppbv simuliert. Danach wird das aktive Chlor wieder in seine Reservoirsubstanzen ( $ClONO_2$  und  $HCl$ ) zurückgebildet und kurz nach Anfang Oktober sind keine  $ClO_x$ -Mischungsverhältnisse mehr ersichtlich.

Die grössten Differenzen zwischen genudgter Simulation und ungenudgter Simulation sind in der NUDG10-Simulation modelliert. Im Bereich des inneren Wirbels (maximal bis 70°S) im Zeitintervall von Mitte Juni bis Mitte September ist zu erkennen, dass in der ungenudgten Simulation höhere  $ClO_x$ -Volumenmischungsverhältnisse berechnet werden als in der NUDG10-Simulation (Abbildung 2.12 (unten rechts)). Horizontal nördlich von diesem Bereich sind die Volumenmischungsverhältnisse des  $ClO_x$  hingegen in der NUDG10-Simulation grösser als in der ungenudgten Simulation. Dies ist ein Resultat der räumlichen grösseren Erstreckung des antarktischen Wirbels (Abbildung 2.6) und der grössten horizontalen Ausbreitung der PSCs (Abbildung 2.10) in der NUDG10-Simulation.

Darüberhinaus ist in Abbildung 2.12 (unten rechts) das Resultat der zeitlich länger anhaltenden Denitrifizierung in der NUDG10-Simulation zu erkennen. So ist ein langsamerer Abbau des  $ClO_x$  zu beobachten, welcher durch niedrigere Konzentration von  $HNO_3$  und  $NO_2$  als Folge von unterschiedlicher Denitrifizierung in den Simulationen verursacht ist. Als Konsequenz sind Anfang bis Mitte Oktober, in den Breiten von ca. 65°S und 90°S, höhere  $ClO_x$ -Volumenmischungsverhältnisse in der genudgten Simulation als in der ungenudgten modelliert.

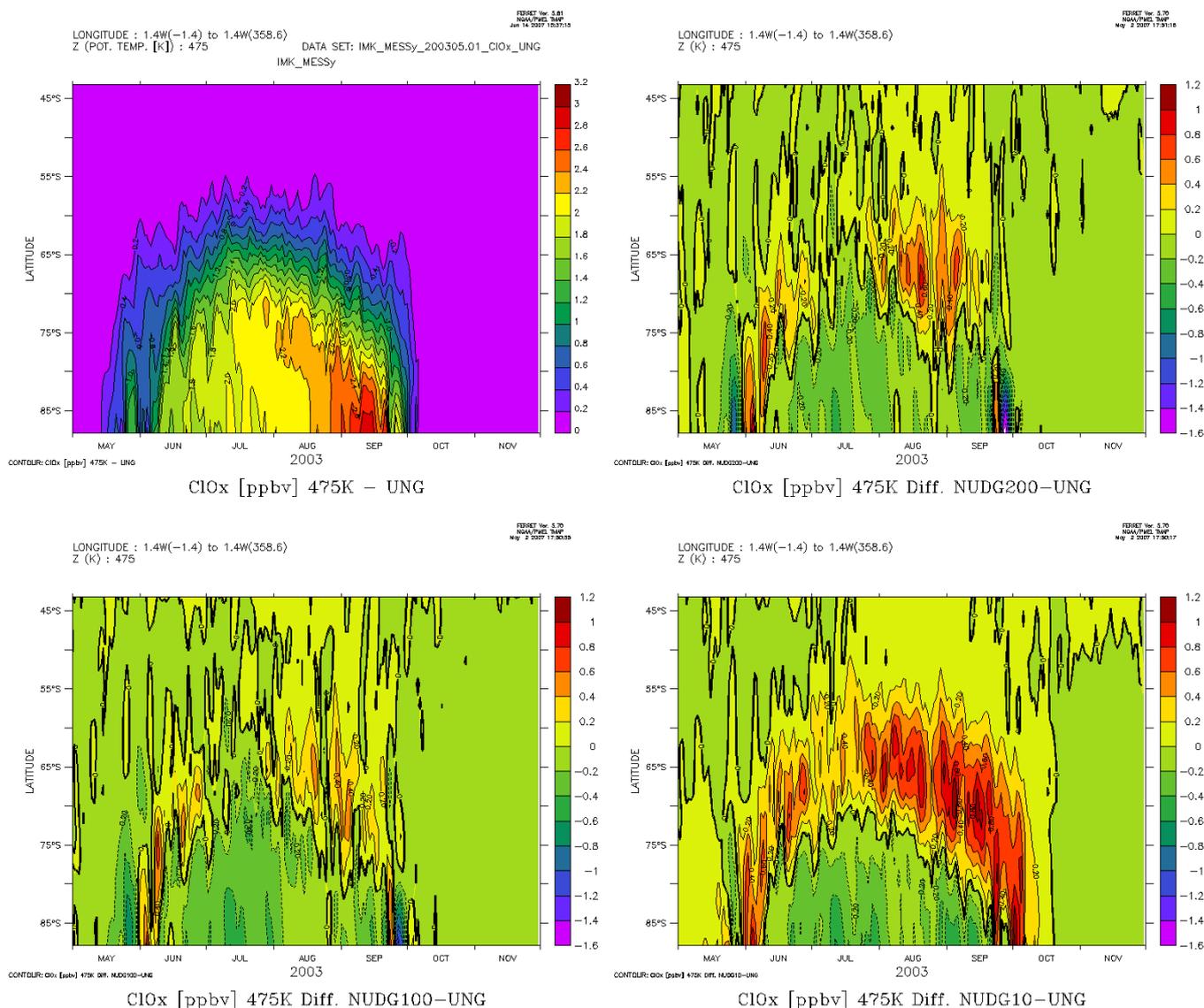


Abbildung 2.12: Zeitserien des aktiven Chlor ( $ClO_x$ ) (in ppbv) auf 475 K im Bereich 45°S bis 90°S von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen. Oben links:  $ClO_x$ -Werte der ungenudgten Simulation; oben rechts: Differenz  $ClO_x$  NUDG200-UNG; unten links: Differenz  $ClO_x$  NUDG100-UNG; unten rechts:  $ClO_x$  NUDG10-UNG

In den NUDG200- und NUDG100-Simulationen (Abbildung 2.12 (oben rechts und unten links)) finden sich ähnliche Muster bezüglich der horizontalen Ausdehnung des Wirbels, nur dass sie hier weniger ausgeprägt sind als in der NUDG10-Simulation. Da im Höhenbereich von 475 K in diesen Simulationen auch keine länger anhaltende Denitrifizierung im Vergleich zur ungenudgten Simulation zu verzeichnen ist, ist Anfang Oktober (wie in der ungenudgten Simulation) fast kein  $ClO_x$  mehr vorhanden.

Entsprechend der unterschiedlichen Ausdehnung des Wirbels sowie der verschieden lang anhaltenden Denitrifizierung und den daraus folgenden Volumenmischungsverhältnissen von aktivem Chlor findet in den vier Simulationen ein resultierender Ozonabbau statt. Die Größe des Wirbels ist dabei mitentscheidend für den Ozonabbau, da dieser zuerst an den Wirbelrändern stattfindet, an welchen im antarktischen Frühling am frühesten die Sonne auftritt.

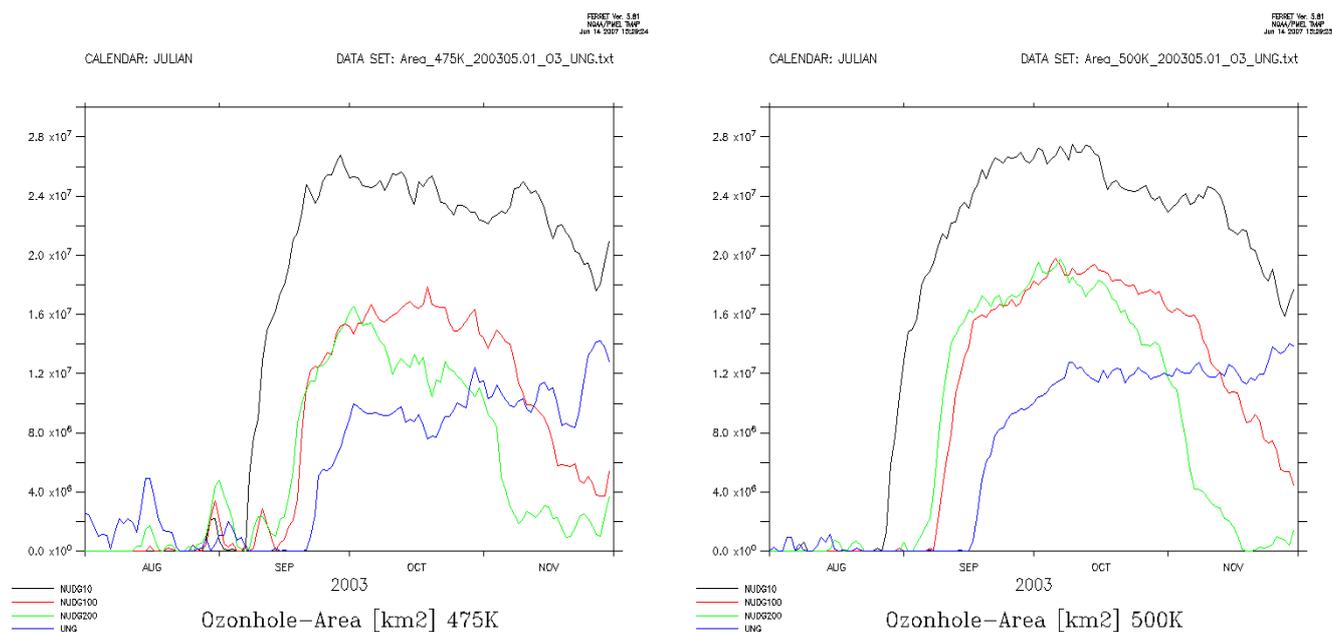


Abbildung 2.13: Zeitserie der Fläche des Ozonlochs (in  $km^2$ ) auf 475K (links) und 500K (rechts) von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, definiert mit Ozonwerten unter 2 ppmv (475 K) und 2.5 ppmv (500 K). Schwarz = NUDG10, rot = NUDG100, grün = NUDG200, blau = UNG

Um den Ozonabbau in den vier unterschiedlichen Modellsimulationen festzustellen, wurde in Abbildung 2.13 die Grösse des Ozonlochs im antarktischen Frühling berechnet. Es wurde dabei für die 475 K- $\Theta$ -Fläche (Abbildung 2.13 (links)) [500-K- $\Theta$ -Fläche (Abbildung 2.13 (rechts))] die Fläche berechnet, in der das Ozonvolumenmischungsverhältnis unter 2000 ppbv [2500 ppbv] simuliert wurde. In den Abbildungen ist dabei der Zeitraum von Anfang August 2003 bis Ende November 2003 berücksichtigt.

Das Ozonloch tritt in der NUDG10-Simulation auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche ab ca. 7. September 2003 auf (Abbildung 2.13 (links)). Es wächst dabei sehr schnell an und umfasst Mitte September über  $2 \times 10^7 km^2$ . Sein Maximum erreicht es um den 1. Oktober (ca.  $2.6 \times 10^7 km^2$ ) und bleibt mit Werten über  $2 \times 10^7 km^2$  bis Ende November 2003 erhalten. Die NUDG100- und NUDG200-Simulation haben bis Ende September untereinander eine ähnliche Flächengrösse des Ozonlochs, welche aber schon hier, wie innerhalb der gesamten Zeitperiode von Mitte September bis Ende November, deutlich unter der Grösse der NUDG10-Simulation liegt.

Das Ozonloch wird in der NUDG100- und NUDG200-Simulation auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche erst später simuliert (ab ca. 15. September 2003) als in der NUDG10-Simulation und erreicht Ende September nur eine Fläche von  $1.6 \times 10^7 km^2$ . Danach nimmt es in der NUDG200-Simulation wieder ab und erreicht Anfang November nur noch Werte unter  $0.4 \times 10^7 km^2$ . In der NUDG100-Simulation erreicht das Ozonloch Mitte Oktober ein Maximum (ca.  $1.8 \times 10^7 km^2$ ). Danach besitzt es noch ca. 2 Wochen eine ähnliche Grösse und wird ab ca. 5. November schnell kleiner. Es sind aber noch bis Ende November Ozonmischungsverhältnisse unter 2000 ppbv in einer Fläche von über  $0.4 \times 10^7 km^2$  zu finden.

In der ungenudgten Simulation tritt das Ozonloch im Verhältnis erst relativ spät auf (ca. 15. September auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche). Im Gegensatz zu den genudgten Simulationen nimmt es bis Ende November im Trend kontinuierlich zu. Dabei bleibt es bis ca. 25. Oktober (ca. 3. November) un-

ter der Fläche des Ozonlochs der NUDG200- (NUDG100)-Simulation und während der gesamten dargestellten Zeitdauer deutlich unter der Ozonlochfläche der NUDG10-Simulation.

Auf der 500 K- $\Theta$ -Fläche (Abbildung 2.13 (rechts)) sind bezüglich der Grösse des Ozonlochs in den unterschiedlichen Simulationen ähnliche Rückschlüsse zu ziehen wie auf der 475- $\Theta$ -Fläche. Das Ozonloch tritt hier in der NUDG10-Simulation etwas früher auf (ca. 26. August) und ist in dieser Simulation im Verhältnis zu den Ozonlochflächen der anderen Simulationen wieder deutlich am grössten. Die Ozonlochflächen der NUDG100- und NUDG200-Simulationen treten auf der 500 K- ebenfalls etwas früher auf (ca. 2. September (NUDG200) und ca. 6. September (NUDG100)) als auf der 475 K- $\Theta$ -Fläche und bleiben bis Mitte Oktober in ihren Ausdehnungen sehr ähnlich. Danach nimmt die Ozonlochfläche der NUDG200-Simulation wieder schneller ab als in der NUDG100-Simulation, bevor das Ozonloch Mitte November in der NUDG200-Simulation verschwindet. Die Unterschiede im Kurvenverlauf der ungenudgten Simulation zwischen der 500 K- und der 475 K- $\Theta$ -Fläche sind sehr gering.

Zusammengefasst ist die Ozonlochfläche in Folge des Ozonabbaus, welcher verursacht ist durch die stärkste Chloraktivierung (Abbildung 2.12), in der NUDG10-Simulation am grössten. Sie tritt im Vergleich zu den anderen Simulation hier am frühesten auf und hat Ende November noch die grösste Ausdehnung.

## 2.5.6 Validierung der Sensitivitätssimulationen mit TOMS

### Das Satelliteninstrument TOMS

Das „Total Ozone Mapping Spectrometer“ (TOMS) ist ein Satelliteninstrument, welches operationell vom 31. Oktober 1978 bis zum 6. Mai 1993 auf Nimbus-7 der NASA [McPeters et al., 1993], vom 22. August 1991 bis zum 28. Dezember 1994 auf dem russischen Satelliten Meteor-3 [Herman et al., 1996] und vom 25. Juli 1996 bis 2. Dezember 2006 auf dem Satelliten Earth Probe der NASA [McPeters et al., 1998] tätig war. Seit 1. Januar 2006 ist TOMS durch das „Ozone Monitoring Instrument“ (OMI) [Levelt et al., 2006] auf Aura ersetzt.

TOMS misst passiv im ultravioletten Spektralbereich die Gesamtsäule von Ozon. Es werden sechs Wellenlängen analysiert, welche dicht beieinander liegen, wobei vier davon zur direkten Bestimmung von Ozon verwendet werden und die zwei anderen zur Bestimmung des Reflexionsvermögens. TOMS untersucht dabei die von der Atmosphäre, den Wolken und der Erde gestreute bzw. reflektierte Sonnenstrahlung. Die Strahlung wird dabei zweimal durch die stratosphärische Ozonschicht geschwächt, einmal auf dem Weg zur Erde und dann zurück in den Weltraum [McPeters et al., 1993; 1998].

### Vergleich der Simulationen mit TOMS

Um die Simulationen mit den  $O_3$ -Messungen des Satelliteninstrument TOMS vergleichen zu können, ist das simulierte Ozonloch der unterschiedlichen Simulationen noch einmal in Abbildung 2.14 dargestellt, wobei die Darstellungen die Ozonsäulen (in DU) für die südlichen polaren Breiten am 1. Oktober 2003 beinhalten.

Die grösste Ausdehnung des Ozonlochs, sowie die niedrigsten Säulenwerte mit unter 170 DU sind dabei in der NUDG10-Simulation zu erkennen. In der NUDG200- und NUDG100 Simulation sind die niedrigsten Säulenwerte mit minimal 190 DU deutlich höher, in der ungenudgten Simulation sind sie mit nur etwas unter 220 DU am höchsten. Die Grösse des Ozonlochs nimmt von der NUDG10-Simulation über die NUDG100-/NUDG200- Simulationen zur ungenudgten Simulation ab.

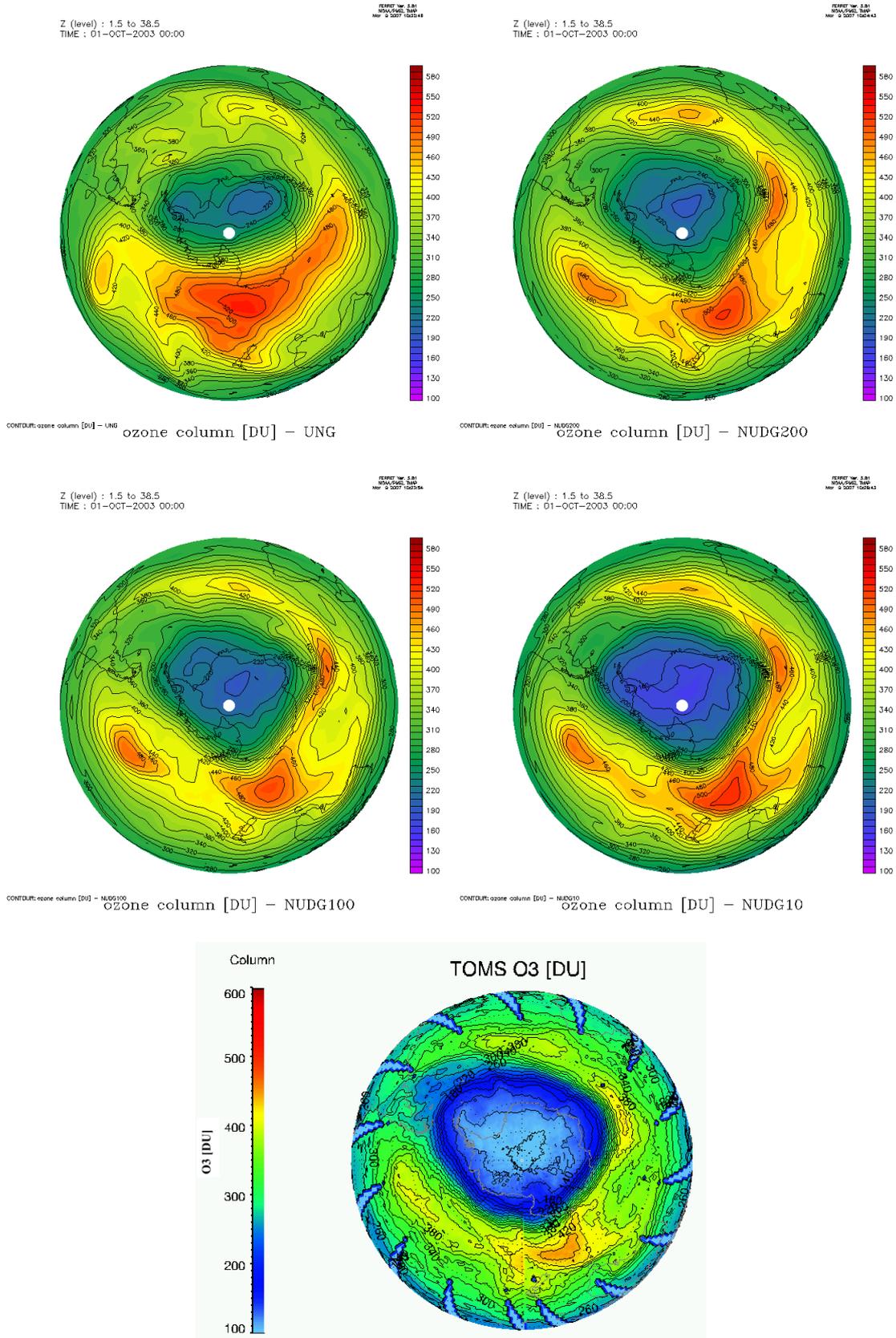


Abbildung 2.14: Ozonsäulen (in DU) am 1.10.2003 aus unterschiedlich genudgten Modellläufen und gemessen mit TOMS: UNG (oben links) und NUDG200 (oben rechts), NUDG100 (Mitte links), NUDG10 (Mitte rechts) und TOMS (unten). Unterschiede in der Farbskala beachten!

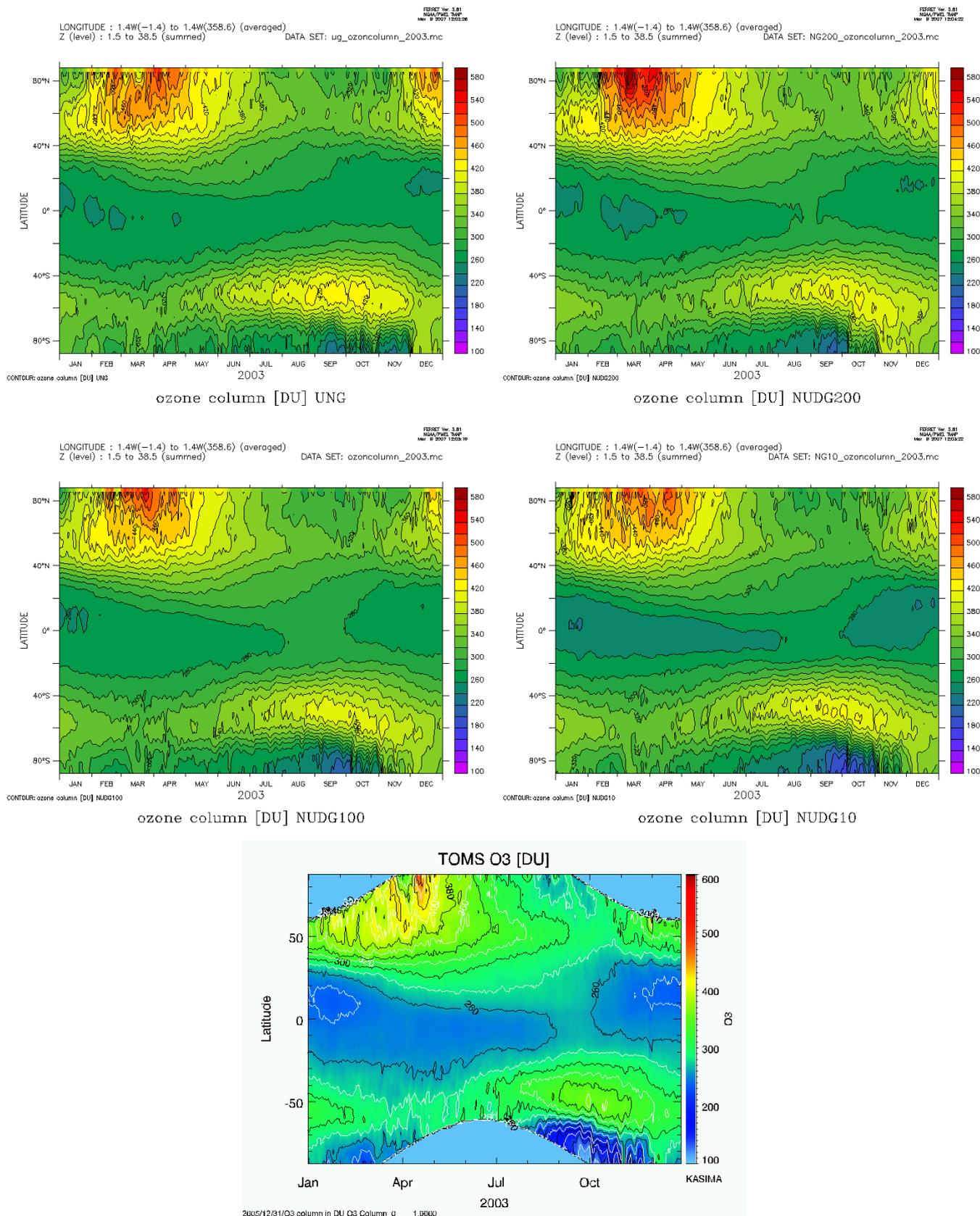


Abbildung 2.15: Zeitserie der zonal gemittelten Ozonsäulen (in DU) für das Jahr 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen und gemessen mit TOMS: UNG (oben links), NUDG200 (oben rechts), NUDG100 (Mitte links), NUDG10 (Mitte rechts) und TOMS (unten). Unterschiede in der Farbskala beachten!

Im Vergleich zu den gemessenen antarktischen TOMS-Ozonsäulen vom 1. Oktober 2003 (Abbildung 2.14 (unten)) ist die NUDG10-Simulation am nächsten an der Realität. Dabei sind die räumliche Ausdehnung des Ozonlochs sowie die horizontalen Gradienten der Ozonsäulen am Wirbelrand zwischen der NUDG10-Simulation und der TOMS-Messung vergleichbar. Allerdings ist im gesamten Bereich der südpolaren Breiten zu erkennen, dass die Ozonsäulen in ECHAM5/MESSy1 um etwa 40 bis 60 DU zu gross simuliert sind. So liegen die minimalen Ozonsäulen im antarktischen Wirbel in den TOMS-Daten bei unter 120 DU und auch außerhalb des Wirbels sind deutlich niedrigere Werte als in ECHAM5/MESSy1 zu finden. Eine mögliche Ursache dieses Phänomens wird noch in Kapitel 3 erläutert.

Betrachtet man die Zeitserien der Gesamtozonsäulen für das Jahr 2003 in den unterschiedlichen Simulationen (Abbildung 2.15 (oben und Mitte)) und vergleicht diese mit der entsprechenden TOMS-Zeitserie (Abbildung 2.15 (unten)), so sind die besten Übereinstimmungen ebenfalls bei der NUDG10-Simulation zu finden. In der zeitlichen Entwicklung sind bei TOMS während des antarktischen Frühlings zwei Intervalle mit niedrigen Ozonsäulen unterhalb 260 DU zu erkennen, unterbrochen durch eine instabile Phase des antarktischen Wirbels. Im ersten Intervall liegt das Minimum der Ozonsäulen unter 120 DU Ende September und erstreckt sich bis Ende Oktober.

Im zweiten Intervall von Anfang November bis Ende November sind die Ozonsäulen höher und es sind nur minimale Werte von unter 220 DU zu erkennen. Gerade an diesem zweiten Intervall wird die Güte der unterschiedlichen Simulationen deutlich (Abbildung 2.15 (oben und Mitte)). So findet man in der ungenudgten Simulation und in der NUDG10-Simulation dieses zweite Intervall deutlich ausgeprägt. In der NUDG200-Simulation ist es nicht zu erkennen, in der NUDG100-Simulation nur sehr schwach. In der ungenudgten Simulation sind die Ozonsäulen des zweiten Intervalls allerdings, entsprechend der Zunahme in Abbildung 2.13, im Verhältnis zum ersten Intervall viel zu niedrig. Dieses Verhältnis ist in der NUDG10-Simulation deutlich besser. Auch ist die zeitliche und räumliche Erstreckung des ersten Intervalls sowie die Quantität des Ozonabbaus im Vergleich zu TOMS in der NUDG10-Simulation am besten modelliert.

In den arktischen Polargebieten ist der Ozonabbau nicht so ausgeprägt wie in den antarktischen Regionen. Dies hat zwei Hauptursachen. Erstens sind hier die Temperaturen nicht so niedrig wie in den südpolaren Breiten, was zu einer weniger ausgeprägten Bildung der PSCs führt. Zweitens ist der polare Wirbel, hauptsächlich aufgrund der nördlichen Topografie, weniger stabil und wird im Mittel etwa zwei Monate früher aufgelöst als der südpolare Wirbel („final warming“). Der Ozonabbau ist von daher in diesen Breiten seltener als Ozonloch zu erkennen [Brasseur et al., 1999; Labitzke, 1999].

Bei TOMS (Abbildung 2.15 (unten)) ist oberhalb von 70° N im zeitlichen Intervall von Ende März bis Anfang April zu erkennen, dass es in Folge eines stabilen Wirbels und der frühlingsbedingten Ozonzerstörung zu deutlich reduzierten Ozonsäulen kommt. Die niedrigsten Ozonsäulen liegen dabei unter 380 DU und sind somit ca. 80 DU kleiner als die Maxima mit über 460 DU in der darauffolgenden zeitlichen Periode. Nicht alle der vier durchgeführten Modellläufe simulieren diese Struktur.

Im ungenudgten Simulationslauf erkennt man ein Intervall mit relativ geringen Ozonsäulenwerten, welches aber zeitlich (Anfang bis Mitte März) mit den Ozonsäulen von TOMS nicht übereinstimmt. Im NUDG200-Modelllauf ist im März/April oberhalb 70° N kein Minimum simuliert. Im NUDG100-Modelllauf erkennt man Mitte April eine Abnahme der Ozonsäulen, welche aber noch zu gering ausfällt, wohingegen im NUDG10-Modelllauf Ende März bis Anfang April die gemessenen Struktur der niedrigen Ozonsäulen im Vergleich zu den anderen Modellsimulationen am „besten“ wiedergegeben ist.

Die minimalen Ozonsäulen in diesem arktischen Intervall liegen bei 440 DU, die Ozonsäulen des zeitlich darauffolgenden Maximum bei ca. 520 DU. Die Differenz beträgt hier so auch ca. 80 DU, wobei die Gesamtozonsäulen, wie auch in den südlichen polaren Breiten, in ECHAM5/MESSy1 im Vergleich zu TOMS ca. 60 DU zu hoch simuliert sind. Diese zu hohen Ozonsäulen sind nicht in den tropischen Regionen erkennbar. Hier finden sich Strukturen der Ozonsäulen in allen vier Simulationen mit fast exakten Übereinstimmungen zu TOMS.

## 2.6 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kapitels

Nach Vergleich der Ergebnisse dreier unterschiedlich genudgter Simulationen (NUDG10, NUDG100 und NUDG200) mit den Resultaten einer ungenudgten Simulation und mit den Messdaten des TOMS-Instruments ist deutlich zu erkennen, dass das Nudging zu einer besseren Vergleichsmöglichkeit mit Messdaten hinsichtlich der Ozonchemie führt. In der Auflösung T42L39 und der gewählten Modellkonfiguration bezüglich der ECHAM5/MESSy1-Module und der atmosphärischer Chemie ist es sinnvoll, die untere und mittlere Stratosphäre bis zu einer Höhe von 13 hPa zu nudgen. Diese Nudging-Variante wurde daher in den folgenden Simulationen der Kapitel 3 bis 4 verwendet.

## 3 Sechs-Jahres-Simulation mit ECHAM5/MESSy1

### 3.1 Kurzfassung

Um die Langzeitstabilität des Modells zu testen sowie eine Betrachtung und Modellvalidierung über einen längeren Zeitraum durchzuführen, wurde mit ECHAM5/MESSy1 (Version 1.1, ECHAM-Version 5.3.1) [Jöckel et al., 2005, 2006] eine genudgte Simulation (Nudging bis 13 hPa) über sechs Jahre von 1. Januar 2000 bis 31. Dezember 2005 mit einer horizontalen Auflösung T42 (ca. 2.8°) in der 39-Schichtenversion durchgeführt.

Die Ergebnisse der Sechs-Jahres-Simulation wurden mit Messdaten der Satelliteninstrumente „Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding“ (MIPAS) auf ENVISAT [Fischer, 1992; Fischer et al., 2008; von Clarmann et al., 2003a] und TOMS auf Earth Probe [McPeters et al., 1993, 1998] validiert.

Die Vergleiche von Temperatur, Lachgas, Methan, Ozon und des „Tape Recorders“ zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS auf ENVISAT zeigen in der mittleren Atmosphäre relativ gute Übereinstimmungen. Es ist allerdings eine zu stark ausgeprägte „Brewer-Dobson-Zirkulation“ im Modell vorhanden, welche in manchen Regionen durch adiabatische Erwärmung [Abkühlung] zur Überschätzung [Unterschätzung] der Temperaturen führt und durch zu hohe Transportgeschwindigkeiten die Volumenmischungsverhältnisse der atmosphärischen Spurengase regional zu hoch bzw. zu tief simuliert. Die zu starke „Brewer-Dobson-Zirkulation“ gilt allerdings nicht für die polar nahen Regionen, hier ist insbesondere während der Winterperiode ein zu schwaches Absinken innerhalb des Polarwirbels zu beobachten

Bei den Vergleichen der Ozonsäulen von ECHAM5/MESSy1 mit TOMS sind gute räumliche Übereinstimmungen zu finden. In den hohen Breiten sind jedoch in ECHAM5/MESSy1 zu hohe Ozonsäulen (ca. 40 bis 60 DU) simuliert worden. Dieser Effekt ist verursacht durch einen zu geringen Ozonabbau während der polaren Frühjahre.

Eine weitere Validierung fand für den Bereich der oberen Troposphäre und Tropopausenregion mit den Flugzeugmessungen von Ozon und Kohlenmonoxid des CARIBIC-Projekts [Brenninkmeijer et al., 1999, 2007; Zahn et al., 2002] statt. Die Vergleiche zwischen Modelldaten und Messungen brachten in diesem Fall sehr gute Übereinstimmungen.

### 3.2 Beschreibung der Modellsimulation

Die ECHAM5/MESSy1-Sechsjahressimulation wurde mit der horizontalen Auflösung T42 (ca. 2,8°) und der vertikalen Auflösung L39 durchgeführt. Die Nudging-Variante wurde, entsprechend den Ergebnissen des Vergleichs der bis zu unterschiedlichen Höhen genudgten Simulationen (Kapitel 2), bis zu einer Höhe von 13 hPa (ca. 30.2 km) mit den Nudging-Parameter der Tabelle 2.1 [Van Aalst, 2005] gewählt.

Für diese Modellsimulation wurden die Module CLOUD, CONVECT, CVTRANS, DRYDEP, H2O, HETCHEM, JVAL, LNOX, MECCA, OFFLEM, ONLEM, PSC, PTRAC, QBO, RAD4ALL, SCAV, SEDI, TNUDGE und TROPOP verwendet. Durch die Verwendung des Moduls QBO wurde so neben den meteorologischen Größen auch die QBO in den stratosphärischen Tropen genudgt [Giorgetta und Bengtsson, 1999; Naujokat, 1986].

Mit Hilfe des Moduls MECCA [Sander et al., 2005] wurde dabei für die Modellsimulation die „EVAL“- Chemie ausgewählt. Sie umfasst in der Troposphäre die Ozon-relevante Chemie inklusive der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHCs) bis zu den Isopren und berücksichtigt zusätzlich

die bekannte stratosphärische Chemie, inklusive der hauptsächlich Chlor- [Steil et al., 1998] und Bromreaktionen [Meilinger, 2000].

Mit Hilfe von OFFLEM und TNUDGE wurden als Randbedingungen verschiedene Spurengase eingelesen. So wurden Volumenmischungsverhältnisse der Substanzen Lachgas, Methan, FCKW-11, FCKW-12, Tetrachlormethan, Methylchlorid, Methylbromid, Halon 1211 und Halon 1301 aus der AGAGE-Datenbank [Prinn et al., 2001] für die Jahre 2000 bis 2003 eingelesen. Für die Jahre 2004 und 2005 wurden die Daten des Jahres 2003 wiederholt.

Aus der EDGAR3.2FT2000-Datenbank [Olivier et al., 2005] wurden für die Jahre 2000 bis 2004 die zwei Substanzen Kohlendioxid und Schwefelhexafluorid in der oberen Mesosphäre (oberste fünf Modellschichten) und als Oberflächendaten festgeschrieben. Für das Jahr 2005 wurden die Daten des Jahres 2004 wiederholt. Zusätzlich ebenfalls aus der EDGAR3.2FT2000-Datenbank wurden für jedes Simulationsjahr die Emissionsdaten des Jahres 2000 der Substanzen des aktiven Stickstoff ( $NO_x$ ), Kohlenmonoxid und verschiedener organischer Substanzen eingelesen. Darüber hinaus wurde jedes Jahr  $NO_x$  aus Flugzeugemissionen als 3D-Feld assimiliert, abgeleitet aus Messdaten für das Jahr 1995 [Schmitt und Brunner, 1997].

Mit Hilfe von ONLEM wurden die Oberflächenemissionen von Dimethylsulfid (DMS) über dem Ozean, Stickstoffmonoxid über Landoberflächen und von Isopren über Pflanzendecken online kalkuliert [Kerkweg et al., 2006a]. Die Initialisierung der atmosphärischen Chemie zum 1.1.2000 erfolgte mit Daten einer ECHAM5/MESSy1-Simulation von 1998 bis 2005 (Auflösung T42L90), die vom Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz durchgeführt wurde [Jöckel et al., 2006].

### 3.3 Ergebnisse der ECHAM5/MESSy1-Modellsimulation in der mittleren Atmosphäre und Vergleich mit MIPAS auf ENVISAT

In diesem Unterkapitel findet eine Betrachtung der Ergebnisse der Sechs-Jahres-Simulation mit ECHAM5/MESSy1 statt. Es werden dabei simulierte meteorologische Größen wie die Temperatur und das Windfeld betrachtet, sowie simulierte Verteilungen chemischer Substanzen mit Ergebnissen des Satelliteninstruments MIPAS auf ENVISAT verglichen.

#### 3.3.1 Das Satelliteninstrument MIPAS auf ENVISAT

Das Satelliteninstrument MIPAS [Fischer, 1992; Fischer et al., 2008, von Clarmann et al., 2003a] befindet sich auf dem „Environmental Satellite“ (ENVISAT), welcher seit dem 1. März 2002 in einer sonnensynchronen, polaren Umlaufbahn die Erde umkreist. Andere für die Atmosphärenforschung wichtige Instrumente auf ENVISAT sind die Instrumente „Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Cartography“ (SCIAMACHY) [Bovensmann et al., 1999] und „Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars“ (GOMOS) [Bertaux et al., 1991]. ENVISAT wurde entwickelt und wird betrieben durch die „European Space Agency“ (ESA).

MIPAS ist ein Fouriertransformations-Spektrometer zur Messung von hochaufgelösten Emissionsspektren in Horizontsondierung in der mittleren und oberen Atmosphäre. Das MIPAS-Satelliteninstrument ist eine Weiterentwicklung der ebenfalls noch betriebenen ballon- [Fischer und Oelhaf, 1996] und flugzeuggetragenen [Blom et al., 1999] MIPAS-Versionen.

Durch Horizontsondierungen im infraroten Spektralbereich zwischen ca. 4  $\mu m$  und 15  $\mu m$  werden aus Emissionsmessungen Profile von atmosphärischen Spurenstoffen in einem Höhenbereich von ca. 12 km bis ca. 68 km abgeleitet. Die vertikale Auflösung beträgt dabei ca. 3 km bis 4 km. So werden aus MIPAS z.B. Profile der Temperatur [von Clarmann et al., 2003b, Wang et al., 2005] und der Substanzen Ozon [Gil-López et al., 2005], Wasserdampf [Milz et al., 2005], Methan,

Salpetersäuregas [Wang et al., 2007], Lachgas [Carli et al., 2004], Distickstoffpentoxid ( $N_2O_5$ ) [Mengistu Tsidu et al., 2004], Stickstoffmonoxid, Stickstoffdioxid [Funke et al., 2005], Chlornitrat [Höpfner et al., 2004], Chloroxid [Glatthor et al., 2004], Peroxisalpetersäure ( $HO_2NO_2$ ) [Stiller et al., 2007], Peroxyacetylnitrat ( $PAN$ ) [Glatthor et al., 2007] und einigen anderen bestimmt. Auch Bestandteile der PSCs können durch MIPAS erkannt werden [Höpfner et al., 2006a]. MIPAS deckt so ein breites Spektrum der wichtigsten atmosphärischen Substanzen der mittleren Atmosphäre ab. Es ist daher prädestiniert für die Validierung der ECHAM5/MESSy1-Sechsjahressimulation.

### 3.3.2 Die Temperatur

Die Temperatur in ECHAM5/MESSy1 wird beeinflusst durch das Nudging der ECMWF-Analysen bis 13 hPa (ca. 30.2 km). Diese haben von der Bodenoberfläche bis in die mittlere Stratosphäre das

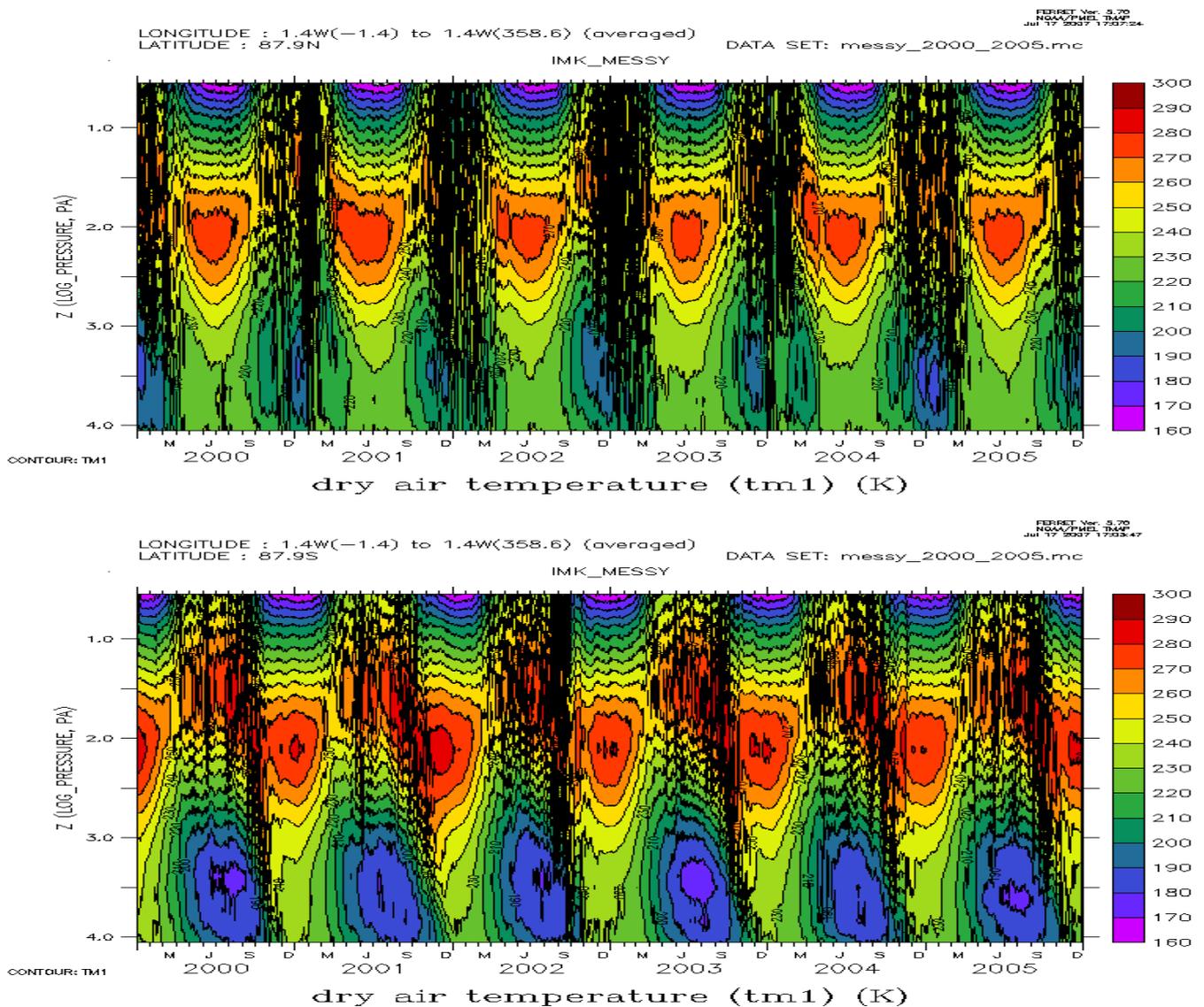


Abbildung 3.1: Zeitserien der zonal gemittelten Temperatur (in K) in der mittleren Atmosphäre am Nordpol (87.9°N) (oben) und am Südpol (87.9°S) (unten) für die Jahre 2000 bis 2005 in ECHAM5/MESSy1. Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse gewählt. Sie erstreckt sich von ca. 100 hPa ( $10^{4.0}$  Pa) bis 0.04 hPa ( $10^{0.6}$  Pa) und überdeckt so die mittlere Atmosphäre.

aufgeprägte Muster der Temperaturen des ECMWF-Modells. Über 13 hPa werden die Temperaturen von ECHAM5/MESSy1 frei simuliert. Da die Temperaturen relevant für die chemischen Reaktionen in der mittleren Atmosphäre sind, werden sie hier als erstes betrachtet.

In Abbildung 3.1 sind die Temperaturen für die mittlere Atmosphäre für 87.9°S (Südpol) und 87.9°N (Nordpol) für den gesamten simulierten Zeitraum von 2000 bis 2005 dargestellt. In den beiden Zeitserien ist das generelle Muster des jahreszeitlichen Temperaturgangs gut wiedergegeben. So finden sich an den Polen im jeweiligen hemisphärischen Sommer [Winter] in der Mesosphäre die kältesten [wärmsten] und in der Stratosphäre die wärmsten [kältesten] Temperaturen. Die tiefsten Temperaturen mit unter 170 K sind im Bereich der Mesopause im jeweiligen hemisphärischen Winter zu beobachten, die höchsten Temperaturen mit über 270 K im Bereich der Stratopause.

Am Südpol werden in der unteren und mittleren Stratosphäre niedrige Temperaturen unter 190 K während der Monate Juni bis August simuliert. Dabei sind die südhemisphärischen Winter der Jahre 2000, 2003 und 2005, in denen über längere Zeitperioden auch Temperaturen unter 180 K vorkommen, die kältesten. In der unteren Stratosphäre im Jahr 2001 halten die kalten Temperaturen mit Werten von unter 190 K bis Mitte Oktober und mit Werten von unter 200 K bis fast Ende November am längsten an. Im Jahr 2002 hingegen sind kalte Temperaturen unter 200 K nur bis Mitte September zu finden, da in diesem Jahr Ende September das schon besprochene antarktische „major warming“ stattfand (siehe Abschnitt 2.4).

Am Nordpol sind die Temperaturen während des nordhemisphärischen Winters aufgrund des instabileren arktischen Wirbels nicht so tief wie am Südpol. Temperaturen unter 190 K sind hier nur in den Wintern 1999/2000, 2000/2001, 2002/2003 und 2004/2005 simuliert. Dabei sind tiefe Temperaturen unter 200 K über einen längeren Zeitintervall nur in den Wintern 1999/2000, 2002/2003 und 2004/2005 zu finden.

Um die simulierten Temperaturen von ECHAM5/MESSy1 zu validieren, werden diese mit Temperaturen von MIPAS auf ENVISAT verglichen. In Abbildung 3.2 sind dazu die simulierten, gemittelten Januar- und Juli-Modelltemperaturen des Jahres 2003 dargestellt und deren Differenz zu gemessenen Temperaturen von MIPAS auf ENVISAT.

Für die gemittelte Monatstemperatur des Modells wurden ausgewertete Messtage von MIPAS verwendet, an denen die vorhandenen Profile so verteilt waren, dass sich eine möglichst grosse Breitenabhängigkeit ergab. Für das Januar-Mittel 2003 [Juli-Mittel 2003] wurden dabei die Tage 1. Januar, 8. Januar, 11. Januar, 13. Januar, 19. Januar und 26. Januar [1. Juli, 6. Juli, 11. Juli, 17. Juli, 21. Juli, 25. Juli und 27. Juli] ausgewählt. An diesen Tagen war ein Vergleich zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS mit einer gesamten Breitenabdeckung der Erde möglich. Für jeden der ausgewählten Tagen wurden zwischen ca. 600 und 1000 MIPAS-Profilen ausgewertet.

Für alle ECHAM5/MESSy1- und MIPAS-Daten fand dabei eine logarithmische Interpolation auf ein vorgegebenes Gitter mit 64 Schichten zwischen 0.01 hPa (ca. 80.7 km) und 100 hPa (ca. 17.0 km) statt. Danach wurde für die jeweilige MIPAS-Geolokation eine lineare Interpolation zwischen den vier nächsten ECHAM5/MESSy1-Profilen durchgeführt, wobei das zeitlich nächste Profil ausgewählt wurde. Diese Vorgehensweise wurde nicht nur für die Temperatur, sondern auch für die in den nächsten Unterkapiteln beschriebenen chemischen Substanzen  $N_2O$ , Methan und Ozon durchgeführt. Es wurden dabei für die gebildeten Januar- und Julimittel die gleichen Tage wie bei der Temperatur verwendet.

Beim Vergleich der Monatsmitteltemperaturen von ECHAM5/MESSy1 mit Messungen von MIPAS auf ENVISAT (Abbildung 3.2 (rechts)) findet man in vielen Regionen in der mittleren Atmosphäre recht gute Temperaturübereinstimmungen, wenn man dabei den absoluten mittleren Fehler von 1-2 K bei den MIPAS-Messungen, welcher in den oberen Regionen der Mesosphäre allerdings zunimmt [Wang et al., 2005], beachtet.

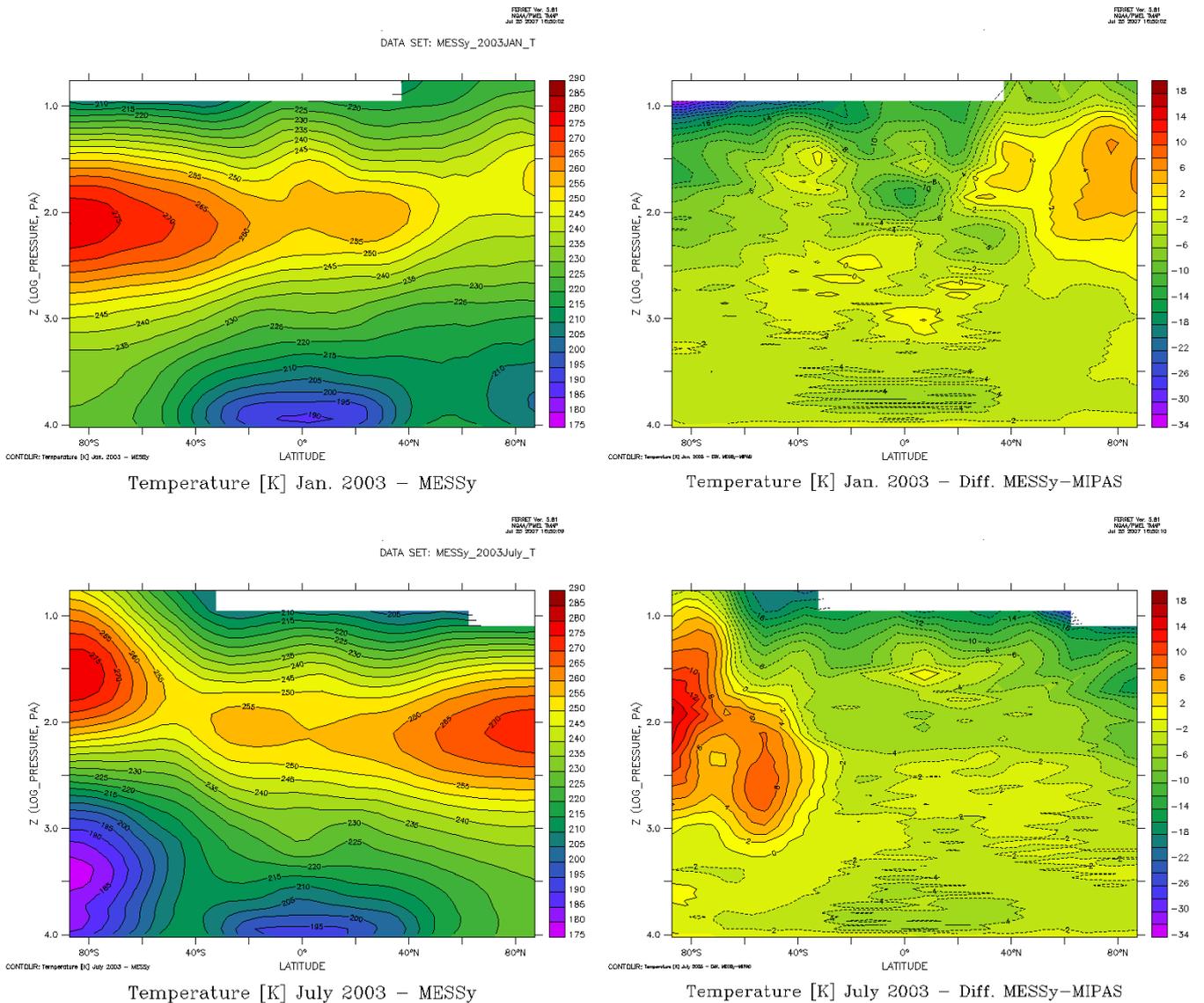


Abbildung 3.2: Gemittelte Januar- (oben) und Juli- (unten) Temperatur (in K) des Jahres 2003 in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (links) und als Differenz zu Messdaten von MIPAS auf ENVISAT (rechts). Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse dargestellt. Sie erstreckt sich von ca. 100 hPa ( $10^{4.0}$  Pa) bis 0.04 hPa ( $10^{0.6}$  Pa) und überdeckt so die mittlere Atmosphäre.

Es sind aber auch deutliche Unterschiede zwischen den simulierten und gemessenen Temperaturen zu erkennen. So ist in der unteren und mittleren Stratosphäre in den Tropen ein „cold-bias“ von bis zu 5 K zu erkennen, welcher sowohl im Januar, als auch im Julimittel vorhanden ist. Der von vielen GCMs simulierte „cold-bias“ in der unteren und mittleren Stratosphäre im südhemisphärischen Winter [Eyring et al., 2006] hingegen ist in ECHAM5/MESSy1 nicht zu erkennen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass in diesen Höhen noch mit ECMWF-Analysen genutzt wird.

In der oberen Stratosphäre und unteren/mittleren Mesosphäre im Juli 2003 ist ein sehr ausgeprägter „warm-bias“ vorhanden, welcher bis zu 16 K höhere Temperaturen im Modell gegenüber den Satellitenmessungen aufweist. Ein solche Überschätzung der Temperaturen findet man, wenn auch mit maximal nur ungefähr 6 K, im gleichen Höhenbereich im Januar 2003 in den polaren nördlichen

Breiten. In der jeweiligen Sommerhemisphäre ist in den polaren Breiten das entgegengesetzte Muster von der mittleren bis zur oberen Stratosphäre in Form eines leichten „cold bias“ ersichtlich.

In der unteren und mittleren Stratosphäre sind in den mittleren und hohen Breiten im Januar- und Juli-Temperaturmittel sehr gute Übereinstimmungen innerhalb der Messfehler zwischen den Daten von ECHAM5/ MESSy1 und MIPAS auf ENVISAT zu erkennen.

Das Muster der zu hohen Temperaturen in der oberen Stratosphäre bis zur mittleren Mesosphäre im jeweiligen hemisphärischen Winter und der zu niedrigen Temperaturen im jeweiligen hemisphärischen Sommer lässt auf eine zu starke adiabatische Erwärmung bzw. Abkühlung in Form eines zu starken Absinkens bzw. Aufsteigens der Luftmassen schliessen. Verbunden mit dem Muster der zu kalten tropischen unteren und mittleren Atmosphäre könnte die Ursache für diese Effekte eine zu starke „Brewer-Dobson-Zirkulation“ sein (siehe Abschnitt 3.3.4). Diese zu intensive Zirkulation in der mittleren Atmosphäre wird auch nicht durch das Nudging verbessert, da sie in den ECMWF-Analysen ebenfalls zu stark ausgeprägt ist [Monge-Sanz et al., 2007].

### 3.3.3 Der zonale Wind und die QBO

Durch den positiven Temperaturgradient vom Winterpol zum Sommerpol entsteht in der mittleren Atmosphäre ein horizontales Druckgefälle, aus welchem resultierend isobarenparallele zonale Winde entstehen. In der mittleren Atmosphäre dominieren dabei im jeweiligen hemisphärischen Winter Westwinde und im hemisphärischen Sommer Ostwinde. Der stärkste horizontale Temperaturgradient ist am Rand der Polarnacht und in der unteren Mesosphäre zu finden. Aus ihm resultiert der intensivste zonale Wind, der sogenannte „Polar Night Jet“ mit westlicher Strömung. Aufgrund der im Winter stärker ausgebildeten Temperaturgradienten in den südlichen polaren Breiten ist auf der Südhemisphäre ein stärkerer „Polar Night Jet“ vorhanden [Holton, 1975; Morris et al., 2000].

Um den zonalen Wind von ECHAM5/MESSy1 zu betrachten, wurden dessen Mittelwerte für die Monate Januar und Juli (Abbildung 3.3) über die Zeitraum der Modellsimulation von 2000 bis 2005 gebildet und meridional abhängig dargestellt.

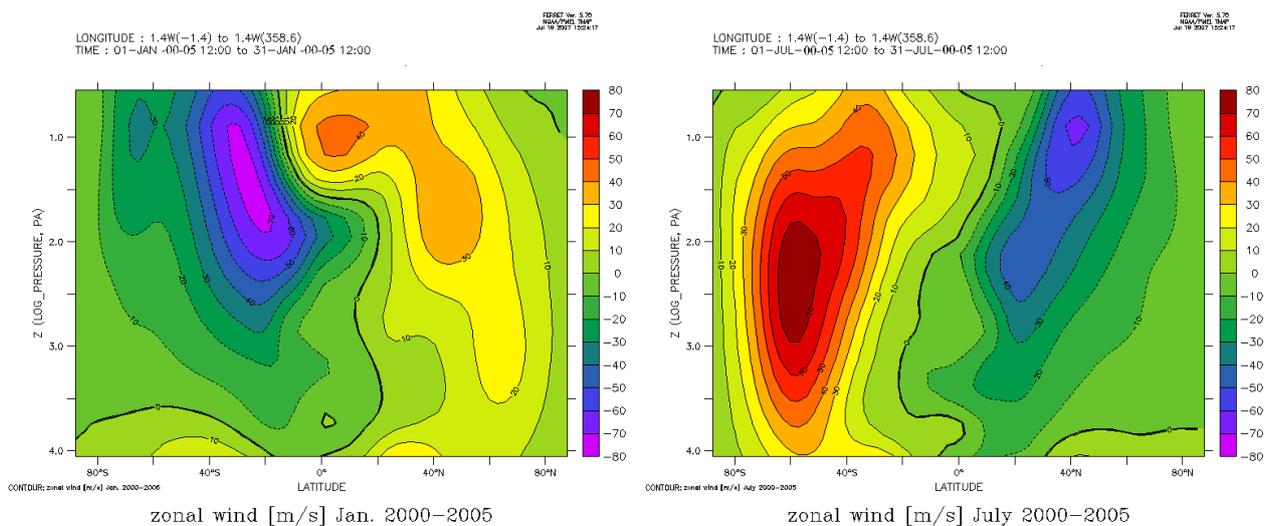


Abbildung 3.3: Zonal gemittelte Zeitserien des mittleren zonalen Windes (in  $\frac{m}{s}$ ) für die mittlere Atmosphäre simuliert mit ECHAM5/MESSy1: Januarmittel der Jahre 2000 bis 2005 (links), Julimittel der Jahre 2000 bis 2005 (rechts). Positive Werte entsprechen dabei Westwinden, negative Ostwinden. Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse dargestellt.

Die Hauptstrukturen des zonalen Windes sind in ECHAM5/MESSy1 gut zu erkennen. So bildet sich eine starke Ostwindphase jeweils in der Sommerhemisphäre und eine starke Westwindphase in der Winterhemisphäre aus. Die Westwindphase ist im Juli als antarktischer „Polar Night Jet“ auf der Südhemisphäre, mit Windgeschwindigkeiten von über  $70 \frac{m}{s}$  im Maximum bei  $60^\circ S$  in der oberen Stratosphäre, stärker ausgeprägt als im Januar als arktischer „Polar Night Jet“ auf der Nordhemisphäre. Die im Vergleich zwischen Januar und Juli stärkere Ostwindphase ist ebenfalls auf der Südhemisphäre mit über  $70 \frac{m}{s}$  zu finden, wobei ihr Maximum nicht in der oberen Stratosphäre sondern in der Mesosphäre und näher am Äquator bei  $30^\circ S$  liegt.

Zusätzlich zu dem grossräumig ausgebildeten zonalen Wind wird in den Tropen in der Stratosphäre eine quasi zweijährige Schwingung, die sogenannte „Quasi Biennial Oscillation“ (QBO) beobachtet. Das Maximum der QBO liegt dabei in der mittleren tropischen Stratosphäre in ca. 20 hPa (ca. 27.5 km). Sie führt in den Tropen zu Perioden vorherrschender West- und Ostwinde [Labitzke, 1999].

Die Anregung der QBO geschieht durch Brechung von tropischen Schwerewellen in der oberen Stratosphäre. Die entstandenen Ost- und Westwindphasen dehnen sich dabei von oben nach unten mit einer durchschnittlichen Geschwindigkeit von ca. 1 km/Monat aus. Die gemessenen Ostwindphasen haben dabei maximale Windgeschwindigkeiten von ca.  $30 \frac{m}{s}$  und sind länger anhaltend als die Westwindphasen, bei denen nur maximale Windgeschwindigkeiten von ca.  $15 \frac{m}{s}$  gemessen werden. Die gemessene mittlere Phase der QBO liegt bei 28 Monaten, wobei Perioden zwischen 2 und 3 Jahren beobachtet wurden [Baldwin et al., 2001].

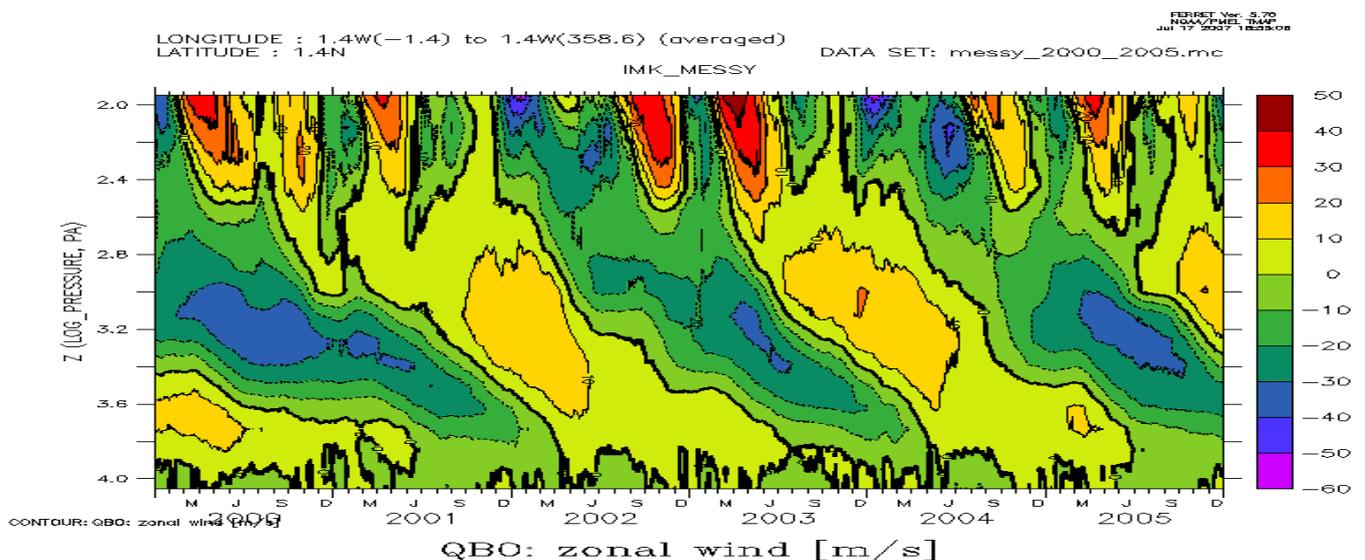


Abbildung 3.4: Zonal gemittelte Zeitserien für die „Quasi Biennial Oscillation“ (QBO) am Äquator simuliert mit ECHAM5/MESSy1. Positive Werte entsprechen dabei Westwinden, negative Ostwinden. Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse dargestellt. Sie erstreckt sich von 100 hPa bis 1 hPa (Stratosphäre).

Die QBO kann mit ECHAM5/MESSy1 in der 90-Schichten Version frei simuliert werden [Giorgetta et al., 2002]. In der 39-Schichten Version ist dies nicht möglich, so dass in der durchgeführten Sechsjahressimulation die QBO durch Nudging von Messdaten im Höhenbereich von 3 hPa (ca. 41 km) bis 90 hPa (ca. 17 km) von drei Messtationen (Canton Island, Gan/Malediven und Singapur) angeregt wurde [Giorgetta und Bengtsson, 1999; Marquardt und Naujokat, 1997; Naujokat, 1986].

In Abbildung 3.4 ist die simulierte QBO für den Simulationszeitraum von 2000 bis 2005 dargestellt. In der mittleren und unteren Stratosphäre sind deutlich drei Perioden mit östlicher Windströmung und zweiundeinhalb Perioden mit westlicher Windströmung zu erkennen. Die Ostwindphasen sind dabei zeitlich länger vorhanden als die Westwindphasen und mit maximalen Windgeschwindigkeiten von über  $30 \frac{m}{s}$  gegenüber maximal über  $20 \frac{m}{s}$  stärker ausgeprägt. Die QBO kann somit mit ECHAM5/MESSy1 realitätsnah simuliert werden.

### 3.3.4 Die Brewer-Dobson-Zirkulation

Der vertikale und meridionale Transport der Luftpakete wird in der mittleren Atmosphäre durch die sogenannte „Brewer-Dobson-Zirkulation“ bestimmt. Diese teilt sich in der unteren Stratosphäre in einen Ast in den Tropen mit einer vertikal aufsteigenden Bewegung, einen Ast mit einem meridionalen Transport in Richtung der Pole und einen Ast mit absinkender Luft in den mittleren und polaren Regionen auf. In den mittleren Breiten wird dabei die absinkende Luft wieder zum Teil zurück in die Tropen transportiert, in den polaren Breiten hingegen sinkt sie im Polarwirbel bis in die Troposphäre ab. In der oberen Stratosphäre und in der Mesosphäre beinhaltet die „Brewer-Dobson-Zirkulation“ einen aufwärtsgerichteten Ast am Sommerpol, einen meridionalen Transport von Sommer- zu Winterpol und einen absteigenden Ast am Winterpol [Brasseur und Solomon, 1984].

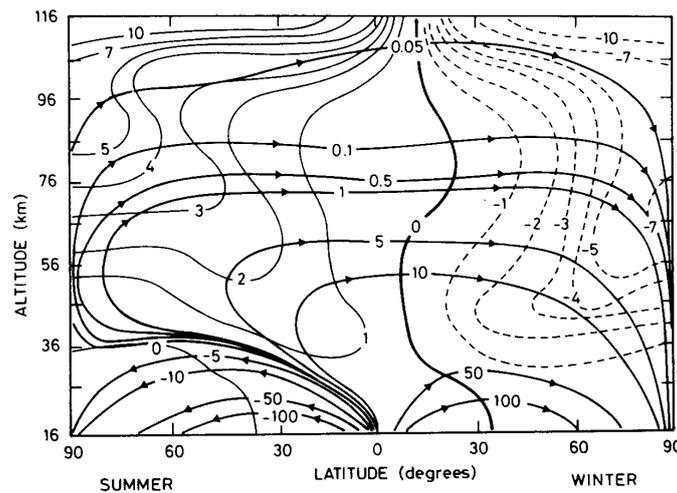


Abbildung 3.5: Stromlinien der Brewer-Dobson-Zirkulation (schwarze Pfeillinien) nach einem Modell von Garcia und Solomon. Dünne (gestrichelte) Linien entsprechen den Nettoerwärmungsraten [aus Brasseur und Solomon, 1984]

In Abbildung 3.5 ist die „Brewer-Dobson-Zirkulation“ dargestellt. Zusätzlich sind hier die Nettoerwärmungsraten eingezeichnet. Man erkennt in Bereichen mit negativen Erwärmungsraten absinkende Vertikalbewegungen und im Bereich mit positiven Erwärmungsraten aufsteigende Vertikalbewegungen. Die „Brewer-Dobson-Zirkulation“ wird dabei zum einen durch die vertikale Ausbreitung der Rossby-Wellen und deren Brechung in der unteren Stratosphäre und zum anderen durch Brechung von Schwerewellen in der Mesosphäre angetrieben [Brasseur und Solomon, 1984].

Die Merkmale der simulierten „Brewer-Dobson-Zirkulation“ in ECHAM5/MESSy1 werden im folgenden mit  $N_2O$  beschrieben. So ist es möglich, einen Vergleich mit den  $N_2O$ -Messungen von MIPAS auf ENVISAT durchzuführen.

Bei der Angleichung der ECHAM5/MESSy1- an die MIPAS-Daten wurde dabei das gleiche Verfahren und die gleichen Tage wie beim oben beschriebenen Vergleich der Temperaturen zwischen Modell und Satellitenmessung verwendet. In Abbildung 3.6 sind dabei zum einen die Breiten-Höhen-schnitte von  $N_2O$  gemittelt für die Monate Januar 2003 und Juli 2003 und zum anderen deren Differenz zu MIPAS auf ENVISAT dargestellt.

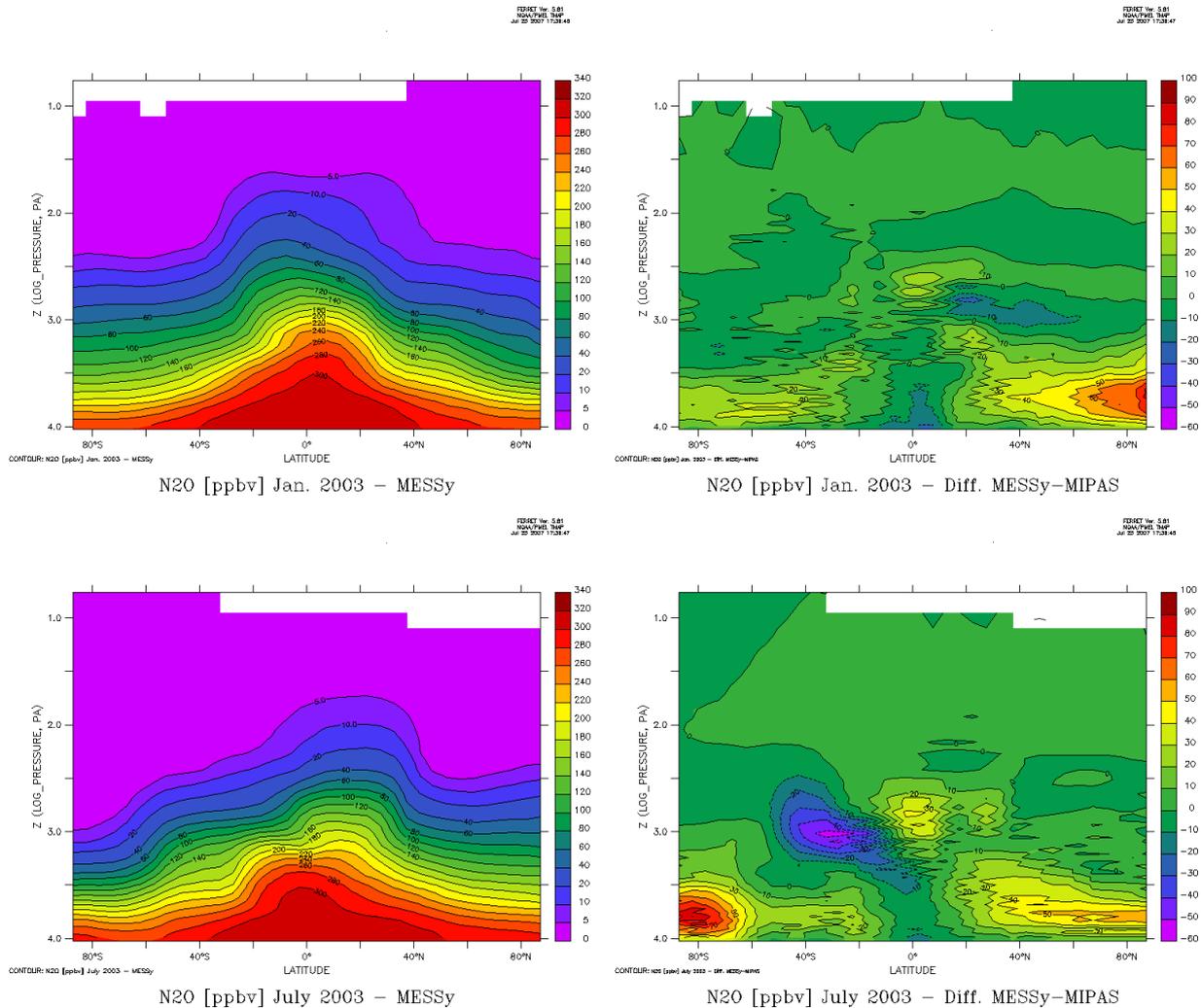


Abbildung 3.6: Zonal gemittelte Januar- (oben) und Julimittel (unten) des Jahres 2003 von  $N_2O$  (in ppbv) in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (links) und als Differenz zu Messdaten von MIPAS auf ENVISAT (rechts). Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse dargestellt.

Für die meisten Regionen ist die Übereinstimmung zwischen MIPAS auf ENVISAT und Modell innerhalb der Unsicherheitsbandbreite von 7% für den totalen systematischen Fehler der Messungen [Glatthor et al., 2005].

In den hohen Breiten der unteren Stratosphäre modelliert ECHAM5/MESSy1 jedoch deutlich zu hohe  $N_2O$ -Werte, wobei diese Überschätzung in der jeweiligen Winterhemisphäre besonders hoch ist. So sind im  $N_2O$ -Januarmittel die simulierten Volumenmischungsverhältnisse gegenüber MIPAS im Bereich des arktischen Wirbels in der unteren Stratosphäre um mehr als 70 ppbv zu hoch. Noch etwas höhere Differenzen mit bis zu über 80 ppbv treten im  $N_2O$ -Julimittel in der unteren Stratosphäre im Bereich des antarktischen Wirbels auf. Aber auch in der Sommerhemisphäre, wenn auch etwas geringer wie in der Winterhemisphäre, sind im zeitlichen Mittel zu hohe  $N_2O$ -Werte simuliert.

So ist in der unteren Stratosphäre das  $N_2O$  im Januarmittel in den mittleren und hohen Breiten in der Südhemisphäre über 40 ppbv, im Julimittel in der Nordhemisphäre um mehr als 50 ppbv zu hoch simuliert. ECHAM5/MESSy1 scheint den Abwärtstransport im winterlichen Polarwirbel zu unterschätzen, was zu den zu hohen  $N_2O$ -Werten in den Winterhemisphären führt. Die zu hohen  $N_2O$ -Werte des Winters sind auch der Grund der ebenfalls zu hohen  $N_2O$ -Werte im Sommer.

In der oberen tropischen Stratosphäre befinden sich im Modell im Januar- und Julimittel grössere  $N_2O$ -Volumenmischungsverhältnisse als mit MIPAS auf ENVISAT gemessen. Diese deuten auf einen überschätzten vertikalen Aufstieg in den Tropen hin.

Die im Januar- als auch im Julimittel in der unteren Stratosphäre im Bereich der Tropen niedrigere  $N_2O$ -Mischungsverhältnisse von ECHAM5/MESSy1 gegenüber den Messungen zeigen auf, dass in diesen Bereichen in ECHAM5/MESSy1 etwas zu wenig  $N_2O$  simuliert wird, wobei die Abweichungen allerdings innerhalb der Fehlertoleranz der MIPAS-Messungen liegen.

In den jeweiligen Winterhemisphären sind in den subtropischen und mittleren Breiten in der mittleren Stratosphäre zu niedrige  $N_2O$ -Mischungsverhältnisse ersichtlich. Diese deuten auf ein zu starkes Absinken innerhalb des Modells in diesem Gebiet hin, welches im südhemisphärischen Winter stärker ausgeprägt ist.

Mit Berücksichtigung der Ergebnisse aus dem Vergleich der Temperatur zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS auf ENVISAT (Abschnitt 3.3.2) ist davon auszugehen, dass im Modell die „Brewer-Dobson-Zirkulation“ in einigen Bereichen überschätzt ist. So ist in den Tropen ein überschätzter vertikaler Aufstieg und von der polaren oberen Stratosphäre bis zur mittleren Mesosphäre in der Winterhemisphäre ein zu starkes Absinken sowie in der Sommerhemisphäre ein zu starkes Aufsteigen ersichtlich (siehe auch Abbildung 3.2).

Das zu starke Absinken in der Winterhemisphäre wird allerdings nicht in den Polarwirbel beobachtet, in denen die vertikale Absinkbewegung zu schwach ist, sondern ausserhalb des Wirbels Richtung Äquator im Bereich der mittleren Breiten und den Subtropen in der mittleren Stratosphäre.

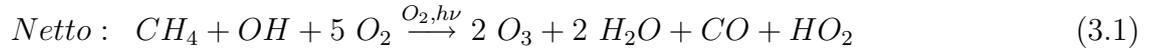
### 3.3.5 Der Tape Recorder

In den Tropen findet man eine jahreszeitliche Schwankung des Wasserdampfgehalts in der unteren Stratosphäre. In Höhe der Tropopause in ca. 100 hPa (ca. 17 km) ist diese Schwankung korreliert mit dem Jahreszyklus der Temperatur, welcher durch unterschiedliche adiabatische Abkühlungen in Folge verschieden starker Vertikalbewegungen verursacht ist [Lelieveld et al., 2007].

Im nordhemisphärischen Winter findet in den Tropen ein schnelleres Aufsteigen der Luft als im nordhemisphärischen Sommer statt, so dass in diesem Zeitraum durch stärkeres adiabatisches Abkühlen niedrigere Temperaturen entstehen. Diese niedrigeren Temperaturen korrelieren mit niedrigen Wasserdampfgehalten, da der Wasserdampf bei Temperaturen unter dem Eiskondensationspunkt durch Gefrieren in Eiskristalle umgewandelt wird und die Eiskristalle durch ihr Gewicht sedimentieren und so aus der untersten Stratosphäre entfernt werden (Dehydratation). Im Sommer der Nordhemisphäre findet man in der tropischen untersten Stratosphäre höhere Wasserdampfgehalte, da in diesem Zeitraum die Temperaturen nicht unter den Eiskondensationspunkt fallen.

Die unterschiedlichen Mischungsverhältnisse des Wasserdampfs an der Tropopause kann man als Eingangssignale auffassen, welche sich durch die aufwärtsgerichteten Vertikalbewegungen langsam in die Höhe ausbreiten. Mit einer bestimmten Zeitverzögerung findet man so in grösseren Höhen ebenfalls den Jahreszyklus der Quellregion. Da sich die Signale wie auf einem aufzeichnenden, laufenden Magnetband darstellen, heisst dieses Phänomen „Tape Recorder“. Dieser Effekt unterliegt dabei auch der QBO mit ihren zyklischen auf- und abwärtsgerichteten Vertikalbewegungen [Mote et. al, 1996].

Der Wasserdampfgehalt wird in der Stratosphäre zusätzlich durch die Methanoxidation beeinflusst (Reaktion 3.1):



Um den Einfluss dieser chemischen Interaktion graphisch zu überdecken, wird bei der Darstellung des „Tape Recorders“ oft das Mischungsverhältnis der Summe von zweimal Methan und einmal Wasserdampf angegeben, da dieses näherungsweise chemisch konstant ist. Eine genauere Beschreibung des „Tape Recorders“ findet sich bei Mote et al. [1996].

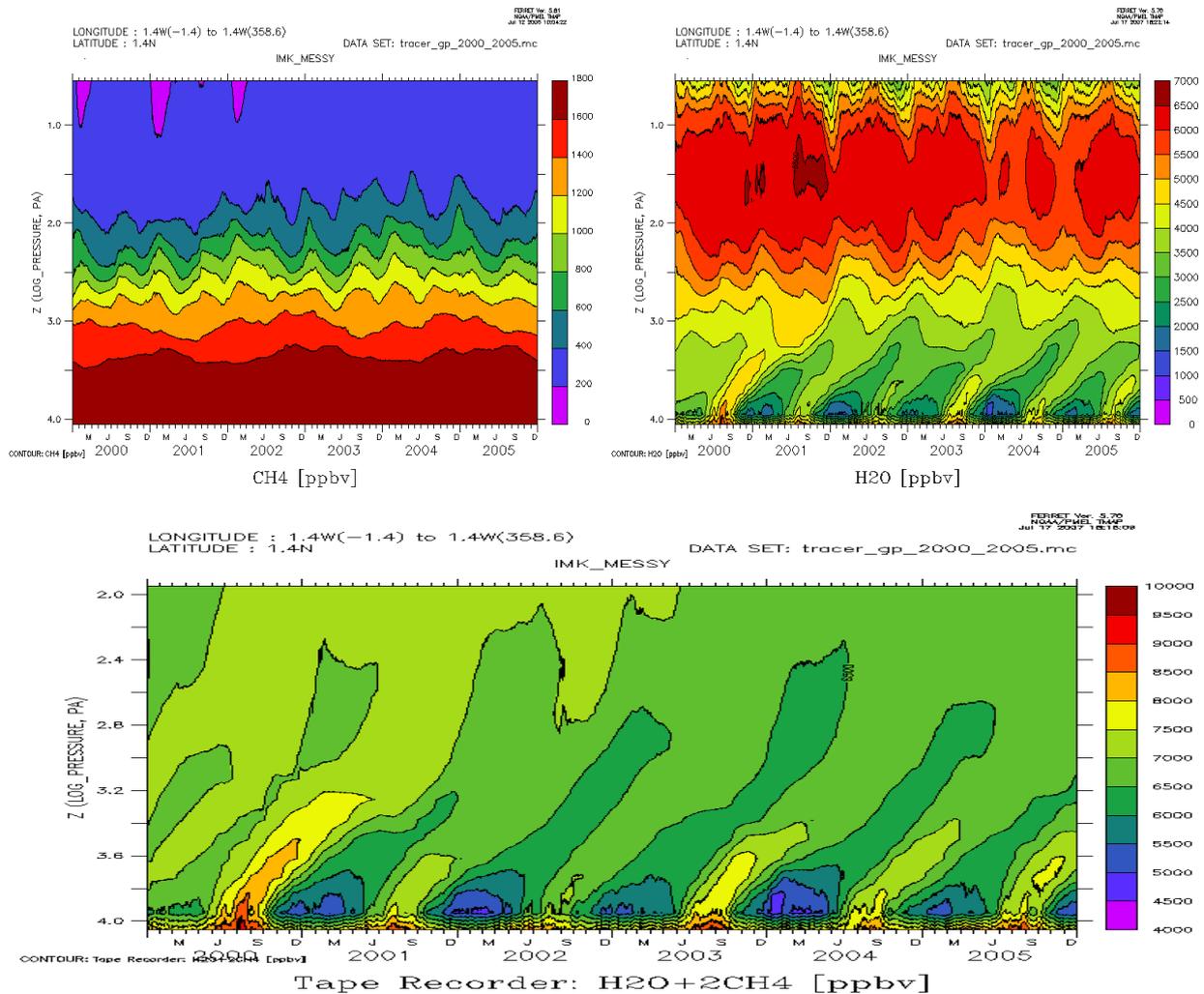


Abbildung 3.7: Zonal gemittelte Zeitserien am Äquator in der mittleren Atmosphäre für die Jahre 2000 bis 2005 simuliert mit ECHAM5/MESSy1:  $CH_4$  (in ppbv) (oben links),  $H_2O$  (in ppbv) (oben rechts) und der „Tape Recorder“ ( $H_2O + 2CH_4$ ) (in ppbv) (unten) (nur Stratosphäre). Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse gewählt.

In Abbildung 3.7 sind die simulierten Zeitserien von ECHAM5/MESSy1 für Methan und Wasserdampf am Äquator für die mittlere Atmosphäre sowie der „Tape Recorder“ am Äquator für die Stratosphäre dargestellt. Beim Wasserdampf sind die erwähnten höheren Mischungsverhältnisse in der unteren Stratosphäre während des nordhemisphärischen Sommers und die niedrigeren Mischungsverhältnisse im nordhemisphärischen Winter, verursacht durch Dehydratation, zu erkennen.

In der Addition mit zwei Anteilen Methan können die niedrigeren Mischungsverhältnisse im „Tape Recorder“ (Abbildung 3.7 (unten)) mit Volumenmischungsverhältnissen von unter 6500 ppbv bis in die mittlere und obere Stratosphäre verfolgt werden.

Durch den „Tape Recorder“ können die Vertikalgeschwindigkeiten in den Tropen bestimmt werden. Nach Berechnung liegen sie in ECHAM5/MESSy1 im Bereich von 40-48  $\frac{m}{Tag}$  (je nach Jahr unterschiedlich) und sind im Vergleich zu Literaturwerten von Cordero et al. [2000] (10 bis 20  $\frac{m}{Tag}$ ) zu hoch. Dies bestätigt das zu schnelle vertikale Aufsteigen in der tropischen Stratosphäre, welches bei den Vergleichen der simulierten Temperatur (Abbildung 3.2) und der simulierten Verteilung von  $N_2O$  (Abbildung 3.6) mit Daten von MIPAS auf ENVISAT ersichtlich wurde.

### 3.3.6 Das Methan

Im Folgenden wird das mit ECHAM5/MESSy1 modellierte Methan (Abbildung 3.8) mit Daten von MIPAS auf ENVISAT verglichen. Dabei wurde das gleiche Verfahren und die gleichen Tage wie beim Vergleich der Temperaturen (Abbildung 3.2) und von  $N_2O$  (Abbildung 3.6) verwendet.

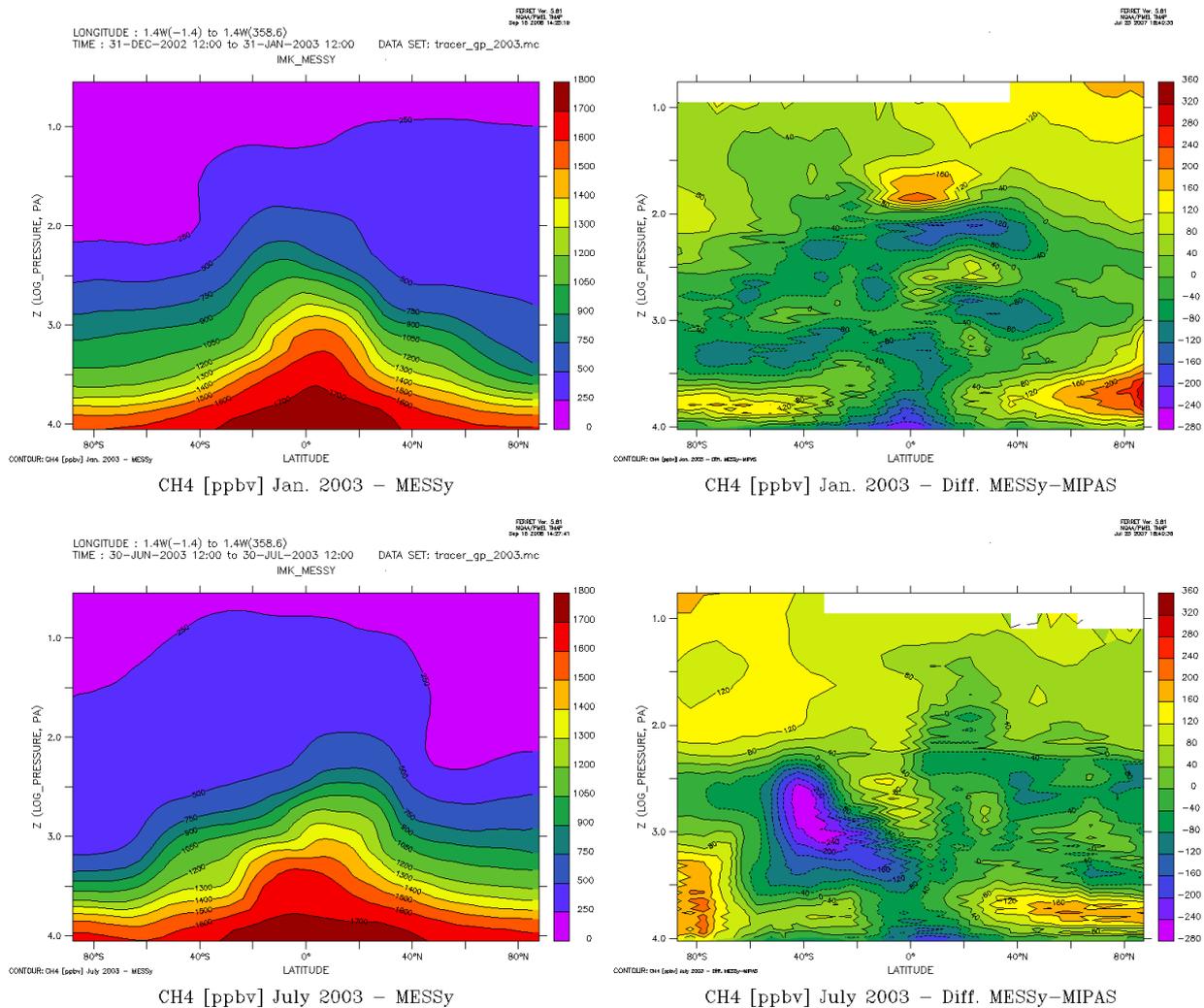


Abbildung 3.8: Januar- (oben) und Julimittel (unten) von  $CH_4$  (in ppbv) für das Jahr 2003 in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (links) und als Differenz zu Messdaten von MIPAS auf ENVISAT (rechts). Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse gewählt.

Beim Vergleich der Januar- und Julimittel 2003 von Methan zwischen Modell und MIPAS auf ENVISAT (Abbildung 3.8) sind ähnliche Strukturen wie beim Vergleich von  $N_2O$  (Abbildung 3.6) zu erkennen. So sind auch beim Methan sowohl im Januarmittel als auch im Julimittel zu hohe  $CH_4$ -Mischungsverhältnisse in den polaren Breiten in der unteren Stratosphäre, insbesondere auf der Winterhemisphäre, zu finden, verursacht durch einen zu schwachen Abwärtstransport innerhalb der Polarwirbel.

In den Tropen sind in der oberen tropischen Stratosphäre zu hohe  $CH_4$ -Werte simuliert, welche durch ein zu starkes Aufsteigen der Luft verursacht sein dürfte. Wie bei  $N_2O$  sind auch bei  $CH_4$  im Vergleich zu den MIPAS-Messungen zu niedrige Mischungsverhältnisse in der unteren tropischen Stratosphäre simuliert.

Die zu niedrigen simulierten  $CH_4$ -Werte im Bereich der Subtropen/mittleren Breiten und in der mittleren bis oberen Stratosphäre, insbesondere im Juli 2003, bestätigen das zu starke Absinken in diesem Gebiet während der Winterperiode (siehe Abschnitt 3.3.4). In der Mesosphäre sind im räumlichen Mittel zu hohe  $CH_4$ -Volumenmischungsverhältnisse zu finden. Es ist dabei ein Gradient in der Differenz zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS von Sommer- zu Winterpol zu erkennen.

Die Ergebnisse des Vergleichs der  $CH_4$ -Daten von ECHAM5/MESSy1 und MIPAS auf ENVISAT unterstützen die Annahme der zu stark ausgeprägten „Brewer-Dobson-Zirkulation“ im Modell. Das zu starke stratosphärische Absinken der Luft in der Winterhemisphäre findet dabei aber nicht polnah sondern eher im Bereich der mittleren Breiten und Subtropen statt. Im Polarwirbel ist entgegengesetzt ein zu schwaches Absinken der Luft im Modell zu beobachten.

### 3.3.7 Das Ozon

Der Vergleich des simulierten  $O_3$ -Januar- bzw.  $O_3$ -Julimittel von 2003 mit Messdaten von MIPAS auf ENVISAT in Abbildung 3.9 zeigt in der mittleren Atmosphäre einige Abweichungen.

In der mittleren Stratosphäre, in welcher die maximalen Ozonmischungsverhältnisse auftreten, überschätzt ECHAM5/MESSy1 das Ozon um bis zu 800 ppbv. So werden in den Tropen im  $O_3$ -Januarmittel maximale Werte von über 11 ppmv und im  $O_3$ -Julimittel von über 10 ppmv simuliert, wohingegen mit MIPAS im Januarmittel nur  $O_3$ -Werte über 10 ppmv und im Julimittel von knapp unter 10 ppmv gemessen werden.

Zusätzlich ist im Bereich der unteren Stratosphäre in den mittleren und hohen Breiten beider Hemisphären ebenfalls eine Überschätzung von Ozon in ECHAM5/MESSy1 zu finden. Diese sind in den jeweiligen hemisphärischen Wintern, mit  $O_3$ -Differenzen von über 800 ppbv in den hohen arktischen Breiten im Januar 2003 und von über 600 ppbv in den hohen antarktischen Breiten im Juli 2003, besonders stark ausgeprägt (siehe auch Abschnitt 3.4).

In der unteren tropischen Stratosphäre ist eine Unterschätzung von Ozon mit über 1200 ppbv im Januar 2003 und über 1400 ppbv im Juli 2003 ersichtlich. Diese Unterschätzung ist auch in der oberen tropischen Stratosphäre, wenn auch weniger stark ausgeprägt, gegeben. Zusätzlich ist in der oberen Stratosphäre und unteren Mesosphäre in den südlichen polaren Breiten eine deutliche Unterschätzung von Ozon von über 800 ppbv zu finden. Im Höhenbereich um 30 hPa ( $10^{3.5}$  hPa) in den polaren Breiten sind zu hohe Ozonwerte, sowohl im Januar 2003 als auch im Juli 2003, simuliert, wobei die Überschätzung im Bereich von 400 bis 800 ppbv liegt.

Das gesamte Muster der  $O_3$ -Differenzen lässt wieder auf eine zu starke „Brewer-Dobson-Zirkulation“ schließen. So sind die zu niedrigen Ozonmischungsverhältnisse in der unteren tropischen Stratosphäre ein Indiz für ein zu starkes tropisches vertikales Aufsteigen.

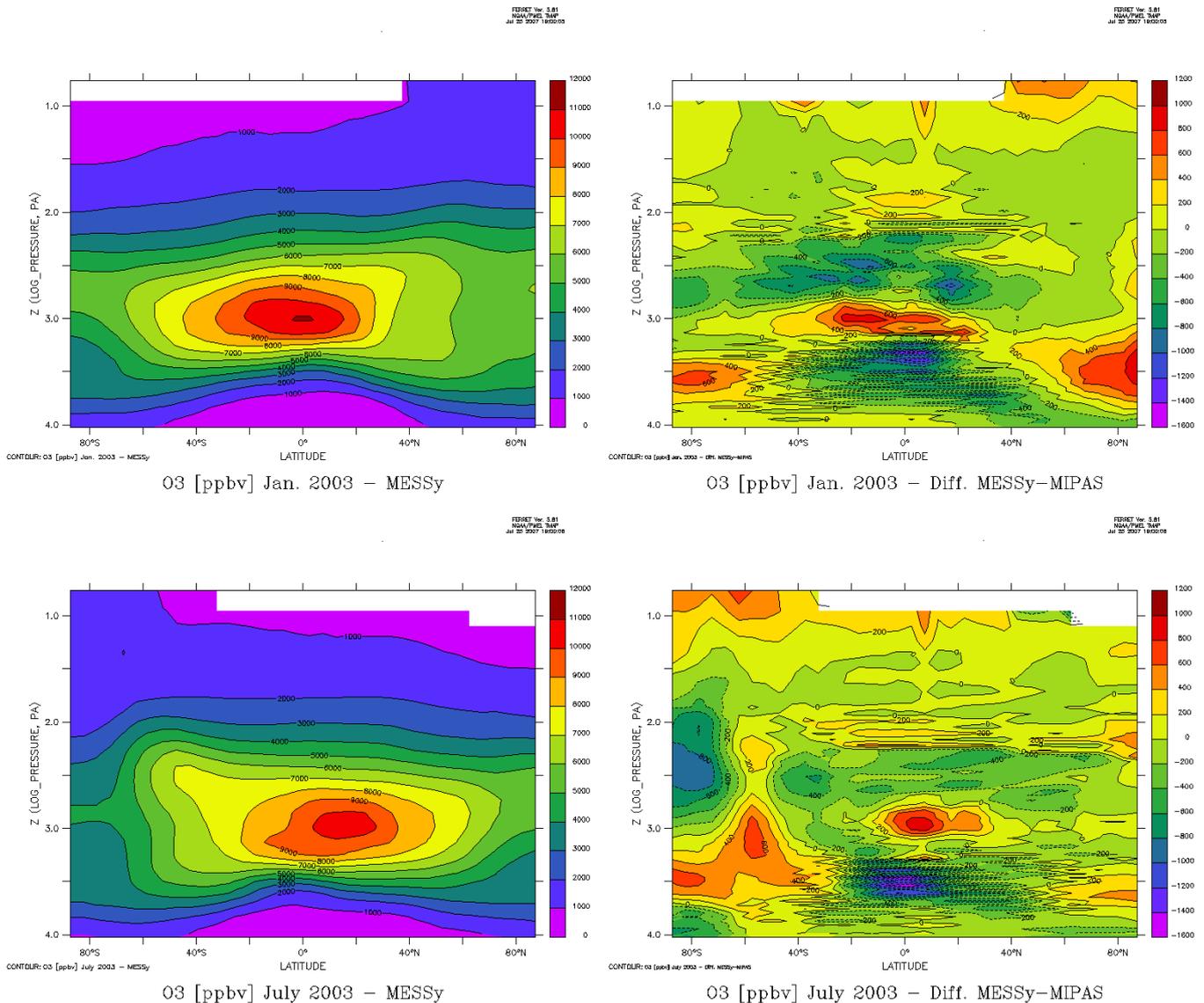


Abbildung 3.9: Januar- (oben) und Julimittel (unten) von  $O_3$  (in ppbv) für das Jahr 2003 in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESy1 (links) und als Differenz zu Messdaten von MIPAS auf ENVISAT (rechts). Die vertikale Achse ist als logarithmische Druckachse gewählt.

Die zu hohen Ozonwerte in der tropischen mittleren Stratosphäre in ECHAM5/MESy1 können unterschiedlich erklärt werden. So wäre eine zu hohe Produktion von Ozon verursacht durch zu hohe Photolyseraten innerhalb des Chapman-Zyklus in MECCA möglich oder es wäre denkbar, dass die  $NO_x$ -Werte in der tropischen mittleren Stratosphäre, aufgrund des zu schnellen tropischen vertikalen Transports, zu niedrig sind und so ein zu geringer Ozonabbau durch  $NO_x$  in diesem Bereich simuliert wird.

Zur weiteren Validierung von Ozon wurde daher eine Korrelation zwischen ECHAM5/MESy1 und MIPAS auf ENVISAT durchgeführt (Abbildungen 3.10). Es wurde dabei alle Ozonwerte der verwertbaren Höhen der Profile von MIPAS verwendet, welche im Zeitbereich von September 2002 bis Dezember 2003 ausgewertet wurden und diese mit entsprechenden ECHAM5/MESy1-Gitterpunkten korreliert.

Bei der Korrelation wurden verschiedene Höhenbereiche verwendet. So wurden alle Ozon-Volumenmischungsverhältnisse von ECHAM5/MESSy1 und MIPAS zwischen 10 km und 30 km (Abbildung 3.10 (links oben)) und zwischen 30 km und 50 km (Abbildung 3.10 (oben rechts)) korreliert. Die Breitenabhängigkeit wurde farbkodiert. Zusätzlich wurde eine resultierende Korrelation der gesamten mittleren Atmosphäre angefertigt (Abbildung 3.10 (unten)).

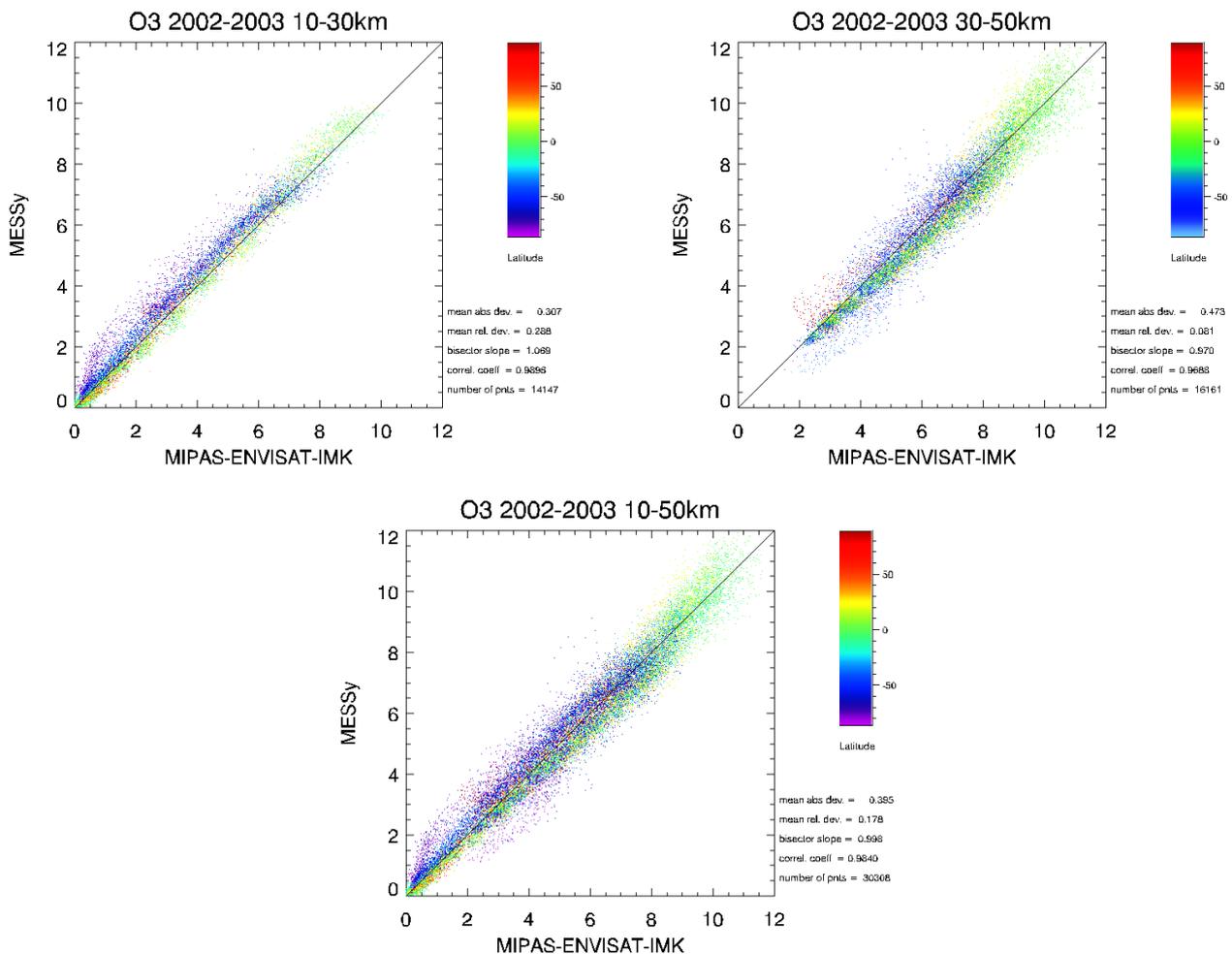


Abbildung 3.10: Korrelation des O<sub>3</sub> (in ppmv) zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS: Auswertung der Höhen 10 km bis 30 km (oben links), 30 km bis 50 km (oben rechts) und 10 km bis 50 km (unten)

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Übereinstimmung im Höhenintervall 30 km bis 50 km besser ist als im Höhenintervall 10 km bis 30 km. So ist die mittlere relative Abweichung im Höhenintervall 30 km bis 50 km nur 8.1%, im Höhenintervall 10 km bis 30 km jedoch 28.8%. Im gesamten Höhenbereich von 10 km bis 50 km liegt die mittlere relative Abweichung bei 17.8%. Auch die stärkeren Überschätzungen in den höheren Breiten sind, insbesondere im Höhenbereich 10 km bis 30 km, gut zu erkennen.

Die Überschätzung der Ozonwerte in den hohen Breiten und unteren Stratosphäre wird so bestätigt. In der oberen Stratosphäre stimmen die mit ECHAM5/MESSy1 simulierten O<sub>3</sub>-Volumenmischungsverhältnisse mit den gemessenen Ozondaten von MIPAS auf ENVISAT besser überein.

### 3.4 Ozonsäulen der ECHAM5/MESSy1-Modellsimulation im Vergleich mit Messungen von TOMS

Nach Validierung des simulierten Ozons mit Messdaten des Satelliteninstrument MIPAS auf ENVISAT, soll dieses nun mit Hilfe der gemessenen Ozonsäulen des Satellitenexperiments TOMS abschliessend evaluiert werden. Es wurden von daher die Ozonsäulen der ECHAM5/MESSy1-Modell-daten erstellt und in Abbildung 3.11 mit den von TOMS gemessenen Ozonsäulen verglichen.

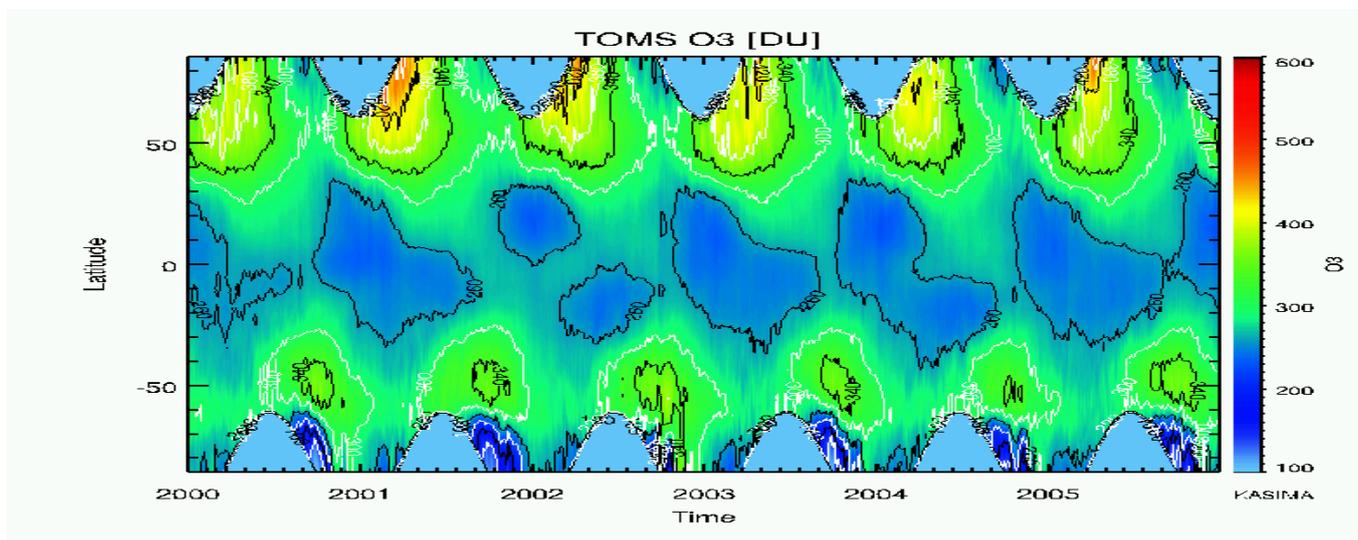
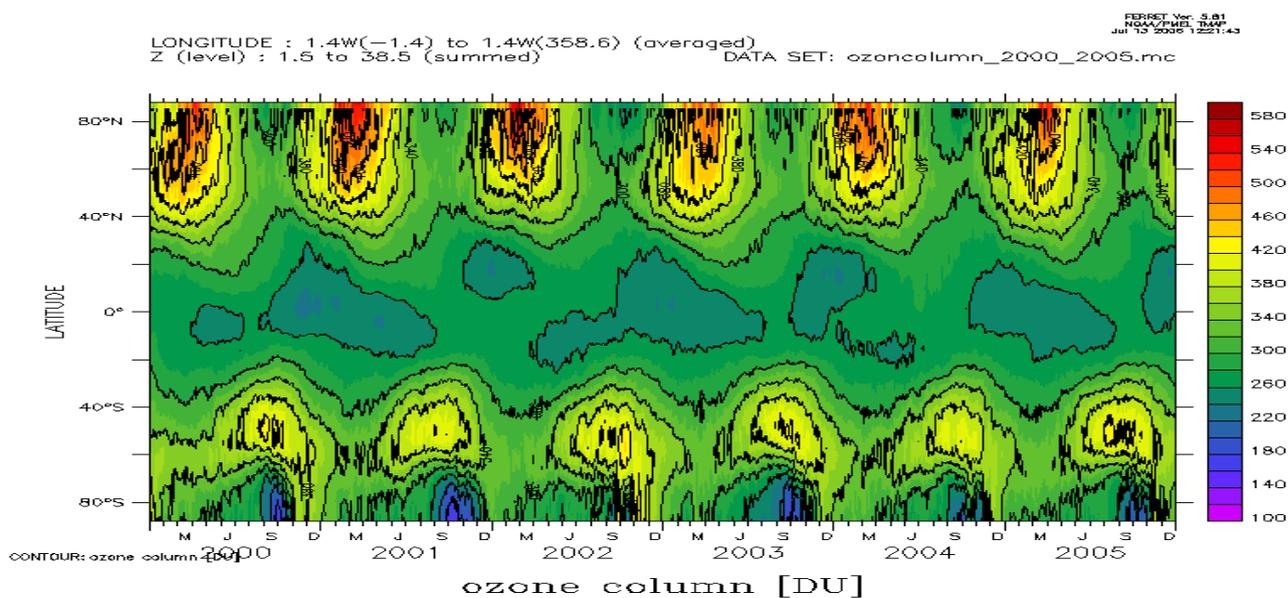


Abbildung 3.11: Zeitserie der zonal gemittelten Ozonsäule (in DU) von 2000 bis 2005 simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (oben) und gemessen mit TOMS (unten)

Im Vergleich mit TOMS sind die Werte der Ozonsäulen in den antarktischen Breiten durchgehend zu hoch. So sind bei TOMS in den Jahren 2000 und 2001 während des südpolaren Frühlings minimale Säulen von unter 120 DU im antarktischen Ozonloch zu finden, wohingegen in ECHAM5/MESSy1 in diesem Zeitraum nur Werte von 180 DU (2000) und 160 DU (2001) simuliert worden sind.

Im Jahr 2001 sind aufgrund der lang anhaltenden Existenz von PSCs im südpolaren Winter (nicht gezeigt), welche zu einer starken Denitrifizierung geführt haben, niedrige Ozonsäulen unter 260 DU bis Ende November simuliert. Mit TOMS wurden bis Ende November ebenfalls lang anhaltend Ozonsäulen unter 180 DU gemessen. Im Jahr 2003 wird der drittstärkste Ozonabbau der Simulationsperiode berechnet, hier werden niedrigste simulierte Ozonsäulen Ende September/Anfang Oktober mit etwas unter 180 DU erreicht (TOMS unter 120 DU).

Die zeitliche und räumliche Ausdehnung des Ozonlochs und die Ozonabnahme im antarktischen Frühling ist dabei in ECHAM5/MESSy1 sehr gut simuliert. Es ist aber eine generelle Überschätzung der Ozonsäulen in südpolaren Breiten von 40 DU bis 80 DU gegenüber TOMS vorhanden. Dies ist auch in den antarktischen Sommer- und Herbstmonaten zu erkennen.

In den nördlichen polaren Breiten finden sich in ECHAM5/MESSy1 ebenfalls überschätzte Ozonsäulen. So treten maximale Ozonsäulen im Modell im Februar/März der jeweiligen Jahre auf. Hier werden z.B. im März 2001 Werte von über 520 DU erreicht, im März 2002 sogar Werte von über 540 DU. Bei TOMS dagegen werden in diesen Perioden nur Ozonsäulen von über 480 DU und über 440 DU gemessen.

Durch die relativ kalten Temperaturen (Abbildung 3.2) in den arktischen Wintern 1999/2000 (ab 1.1.2000 simuliert), 2002/2003 und 2004/2005 wurden PSCs über längere Zeiträume beobachtet [Fahey et al., 2001]. An deren Oberflächen fanden heterogenen Reaktionen statt, bei denen längerlebige Chlor- und Bromsubstanzen in kürzerlebige umgewandelt wurden. Durch Photolyse in den darauf folgenden arktischen polaren Frühlingen wurde  $ClO_x$  und  $BrO_x$  freigesetzt, was zu einem verstärkten Ozonabbau führte.

Dieser Effekt ist in den ECHAM5/MESSy1-Ergebnissen gut nachvollzogen. So sind Ende März bis Anfang April 2000 relativ niedrige maximale Ozonsäulen von ungefähr 480 DU ersichtlich, wohingegen in den Frühlingen 2001 bis 2002 mit vorangegangenen wärmeren Wintern Ende März bis Anfang April höhere  $O_3$ -Säulengehalte simuliert sind ( $>520$  DU (2001),  $>540$  DU (2002)). Im Frühjahr 2003 bzw. 2005 wird ebenfalls nur ein Maximum der Ozonsäulen von ungefähr 480 DU erreicht, wohingegen 2004 über 520 DU simuliert werden.

Bei den Daten von TOMS können aus der Zeitperiode von 2000 bis 2003 ähnliche Schlussfolgerungen gezogen werden. So sind Ende März bis Anfang April 2000 maximale Ozonsäulen von ca. 420 DU gemessen, wohingegen 2001 und 2002 deutlich höhere Werte vorhanden sind ( $>480$  DU (2001) und  $>440$  DU (2002)). Ende März bis Anfang April 2003 findet man bei den Ozonsäulen ein kurzfristiges und lokales Minimum mit weniger als 360 DU. In den Frühjahren 2004 und 2005 hingegen stimmen die TOMS-Beobachtungen mit der Korrelation, dass kalte Winter zu hohem Ozonabbau führen, nicht überein. So sind 2004 relativ niedrige und 2005 relativ hohe Ozonsäulen gemessen.

In den Tropen sind die Abweichungen zwischen den simulierten und gemessenen Ozonsäulen am geringsten. Hier sind in ECHAM5/MESSy1 mit TOMS übereinstimmende Ozonsäulen mit Werten um die 240 bis 260 DU simuliert.

Insgesamt sind Ozonsäulen in den hohen polaren Breiten im Bereich von 40 bis 60 DU gegenüber TOMS zu hoch. Dies ist auf einen zu schwachen Ozonabbau im polaren Frühjahr zurückzuführen. Insbesondere im antarktischen Frühling wird in ECHAM5/MESSy1 zu wenig Ozon abgebaut, so dass die zu diesem Zeitpunkt niedrigen Ozonsäulen von TOMS nicht erreicht werden. Verursacht durch die beschriebenen zu schwachen Abwärtstransporte im polaren Wirbel während des polaren Winters und Frühling sind in der unteren Stratosphäre zu geringe  $Cl_y$ -Mischungsverhältnisse vorhanden, welche zu geringe Ozonabbauraten zur Folge haben.

### 3.5 Ergebnisse der ECHAM5/MESSy1-Modellsimulation im Vergleich mit CARIBIC-Messungen

Nach Validierung der Modellergebnisse der mittleren Atmosphäre simuliert mit ECHAM5/MESSy1 mit Hilfe von Satellitendaten (Abschnitt 3.3 und 3.4) ist eine abschliessende Evaluierung des UTLS-Bereichs sowie der Tropopausenregion sinnvoll. Diese soll in diesem Unterkapitel mit Daten von Flugzeugmessungen durchgeführt werden.

Der Vergleich der Modelldaten finden dabei mit Messungen des Flugzeugexperiment „Civil Aircraft for the Regular Investigation of the Atmosphere Based on an Instrument Container“ (CARIBIC) [Brenninkmeijer et al., 1999, 2005, 2007; Zahn et al., 2002] statt.

#### 3.5.1 Flugzeugmessungen mit CARIBIC

CARIBIC ist ein europäisches Projekt zur Untersuchung der chemischen und physikalischen Prozesse in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (UTLS). Mit Hilfe von unterschiedlichen wissenschaftlichen Instrumenten, welche in einem Frachtcontainer installiert sind, werden dabei Messungen von atmosphärischen Substanzen während interkontinentale Passagier-Linienflüge durchgeführt.

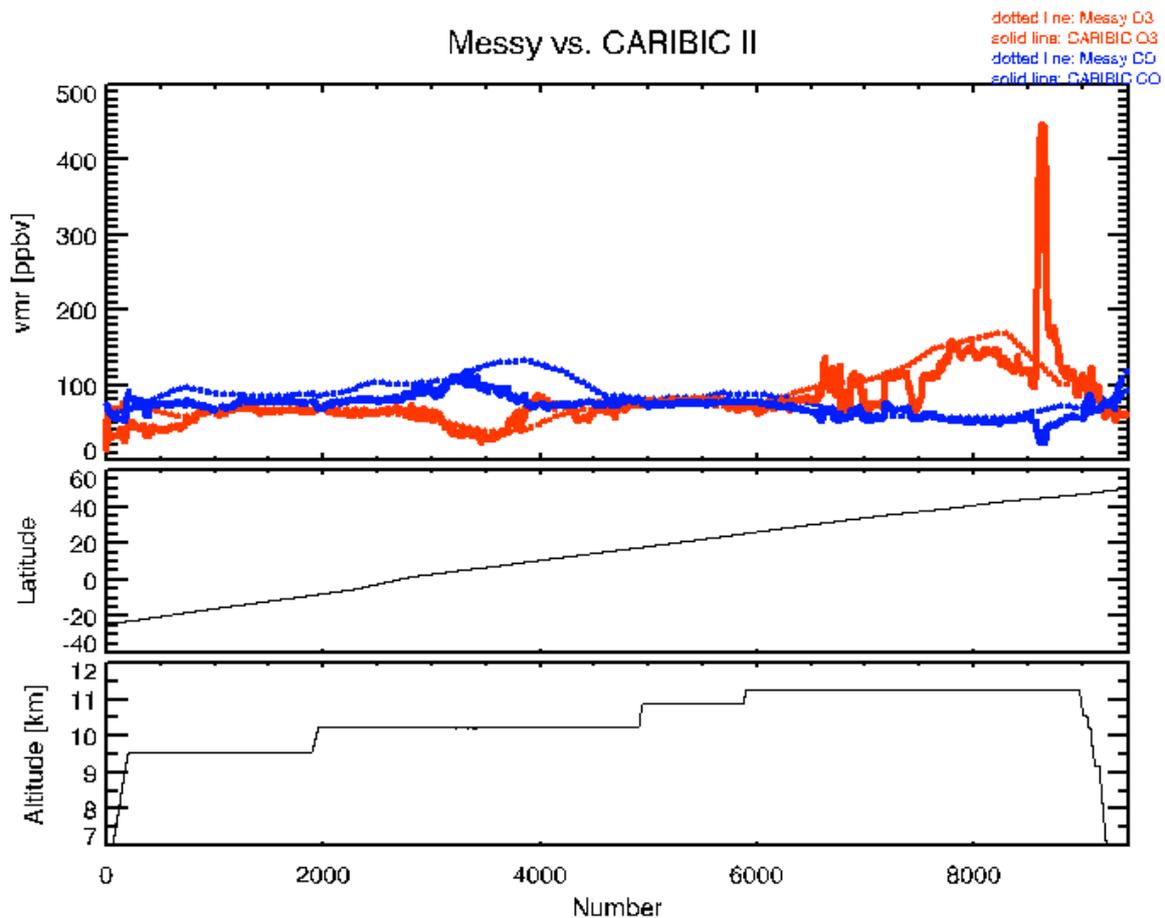
In der ersten Phase von CARIBIC wurde von November 1997 bis April 2002 ein Container mit den Messinstrumenten in einer Boeing 767-300 ER der LTU International Airways installiert. Es wurden insgesamt 75 Flüge zwischen den Orten München bzw. Düsseldorf und Male (Malediven) bzw. Colombo (Sri Lanka) durchgeführt. Mit Hilfe der Messinstrumente konnten für diese Flüge  $CH_4$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $N_2O$ ,  $O_3$ ,  $SF_6$ , unterschiedliche Aerosole, ca. 40 verschiedenen halogenierte Kohlenwasserstoffe, ca. 15 andere Kohlenwasserstoffe, sowie die Isotopenverhältnisse ( $^{13}C/^{12}C$ ,  $^{14}C/^{12}C$  und  $^{18}O/^{16}O$ ) von  $CO$  und  $CO_2$  ausgewertet werden [Brenninkmeijer et al., 1999; Zahn et al., 2002]. Es fanden in-situ Messungen und spätere Labormessungen von Luftproben (z.B. der Kohlenwasserstoffe) statt.

In einer zweiten Phase von CARIBIC ist seit Dezember 2004 ein grösserer Frachtcontainer mit erweiterten und verbesserten Messinstrumenten in einem Airbus A340-600 der Deutschen Lufthansa AG installiert. Der Airbus bedient dabei die Flugrouten von Frankfurt nach Manila (Philippinen) über Kanton/Guangzhou (China) und von Frankfurt nach Santiago de Chile (Chile) über Sao Paulo (Brasilien). Es werden Messungen von  $O_3$ , Gesamt- $H_2O$ ,  $H_2O$  in Gasphase,  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $NO_y$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $O_2$ ,  $BrO$ , Quecksilber ( $Hg$ ), salpetrige Säure ( $HONO$ ) und von Aerosol-Anzahldichten im Nanometerbereich ( $> 4$  nm,  $> 12$  nm,  $> 18$  nm und  $> 150$  nm) durchgeführt. Darüber hinaus können mit einem Massenspektrometer Protonen gemessen werden und es werden mit Hilfe von Luftproben halogenierte und andere Kohlenwasserstoffe sowie Isotopenverhältnisse von  $CO$  und  $CO_2$  im Labor bestimmt [Brenninkmeijer, 2005; 2007].

Insgesamt sind 20 Institute bzw. Organisationen an CARIBIC beteiligt. In Deutschland sind dies das Max-Planck-Institut für Chemie (MPI) in Mainz, das Institut für Troposphärenforschung (IFT) in Leipzig, das IMK am Forschungszentrum Karlsruhe und das Deutsche Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR).

#### 3.5.2 Das Ozon und Kohlenmonoxid während des Lufthansa-Flugs 121

Für einen exemplarischen Vergleich von ECHAM5/MESSy1 und Flugzeugmessung wurde Ozon und Kohlenmonoxid für zwei CARIBIC-Lufthansa-Flüge ausgewertet. Die Modelldaten wurden dabei räumlich auf die einzelnen Positionen der Flugroute interpoliert.



LH121 28.07/29.07.05

Abbildung 3.12: Vergleich von  $O_3$  (in ppbv) (rot) und  $CO$  (in ppbv) (blau) simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (gepunktete Linie) und gemessen mit CARIBIC (durchgezogene Linie) auf dem Lufthansaflug 121. Darstellung: Volumenmischungsverhältnisse von  $O_3$  und  $CO$  (oben), Position des Flugzeuges bezüglich Breitengrad (Mitte) und Höhe in km (unten).

Der Lufthansa-Flug Nr. 121 von Sao Paulo (Brasilien, 23.5°S; 46.6°W) nach Frankfurt am Main (50.1°N; 8.7°O) fand am 28.07./29.07.2005 statt, war ein Transatlantikflug und überquerte den Äquator (Abbildung 3.12).

Nach Start des Flugzeuges lagen die gemessenen Volumenmischungsverhältnisse von Ozon zunächst bei ca. 50 ppbv und stiegen dann langsam (Zeitpunkt 700 bis 900) auf ca. 70 ppbv an. Das gemessene Kohlenmonoxid lag im entsprechenden Zeitraum mit 80 bis 90 ppbv etwas über den Werten des Ozons. Die  $O_3$ - und  $CO$ -Mischungsverhältnisse blieben darauf stabil bis zur Überquerung des Äquators. Verursacht durch die höhere Tropopausenhöhe in den Tropen sanken die  $O_3$ -Volumenmischungsverhältnisse ab und die  $CO$ -Werte stiegen an.

Im weiteren Flugverlauf in Richtung nördlichere Breiten bei einer Flughöhe von ca. 11 km pendeln sich die  $O_3$ - und  $CO$ -Mischungsverhältnisse solange bei ca. 100 ppbv ein, bis sich nach einem weiteren Anstieg der Flughöhe auf 11.5 km (Zeitpunkt 6000) und der Überschreitung von ca. 30°N immer mehr stratosphärische Luft bemerkbar macht. Dies führt im Trend zu einer sukzessiven Erhöhung der Ozonwerte und einem Absinken der  $CO$ -Werte. Das Maximum von Ozon mit ca. 450 ppbv

wird dabei zum Zeitpunkt der Messung-Nr. 8700 erreicht, bei dem kurzfristig stratosphärische Luft vom Flugzeug durchflogen wurde. Zu diesem Zeitpunkt wurde für Kohlenmonoxid ein Minimum von ca. 20 ppbv gemessen.

Die Modelldaten entsprechen in etwa während der gesamte Flugdauer den Messdaten. Das simulierte Ozon ist dabei bis zum Anstieg der Flughöhe auf 11.5 km dem gemessenen Ozon sehr ähnlich. Nach diesem Anstieg weichen die modellierten Werte allerdings zeitweise von den Beobachtungen ab, wobei vor allem kurzfristige Ereignisse wie das Durchfliegen stratosphärischer Luft vom Modell nicht erfasst werden. Dies ist vor allem auf die niedrigere zeitliche und räumliche Auflösung der gewählten Modellkonfiguration (T42L39) zurückzuführen, durch welche regional und zeitlich kurzfristige Schwankungen gemittelt werden. Bei Kohlenmonoxid ist, vor allem in der ersten Hälfte des Fluges, eine Überschätzung im Modell gegenüber den Flugzeugdaten zu beobachten. In der zweiten Hälfte des Fluges ist aber, bis auf das Ereignis des Durchfliegens der stratosphärischen Luft, eine sehr gute Übereinstimmung zu finden.

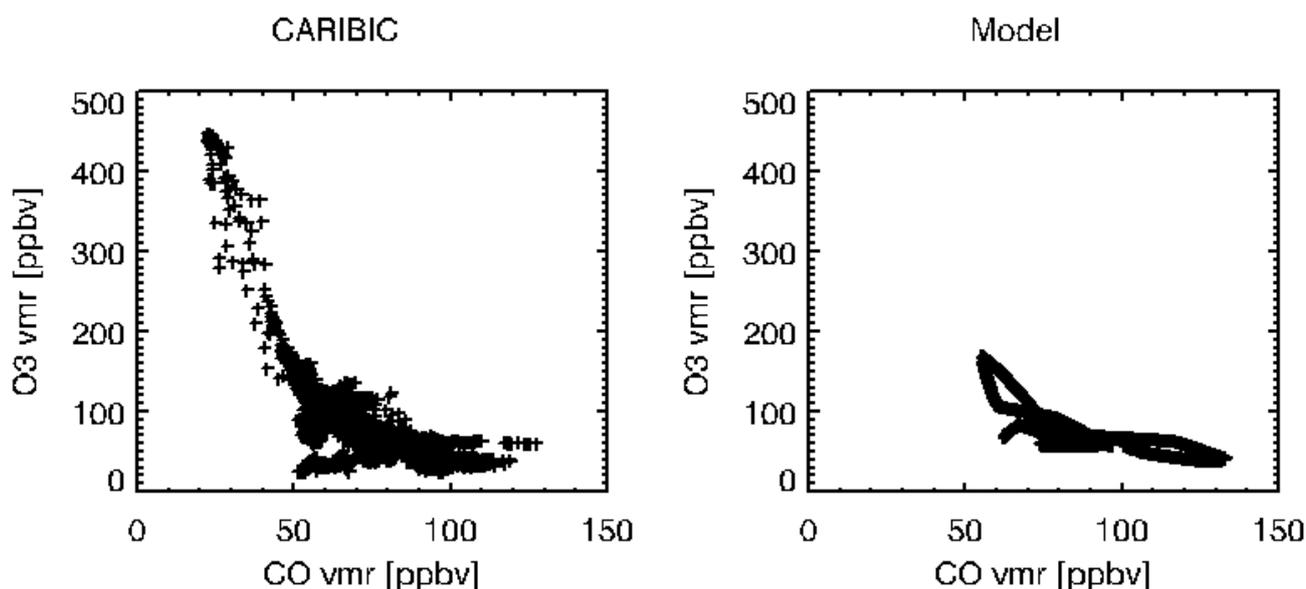


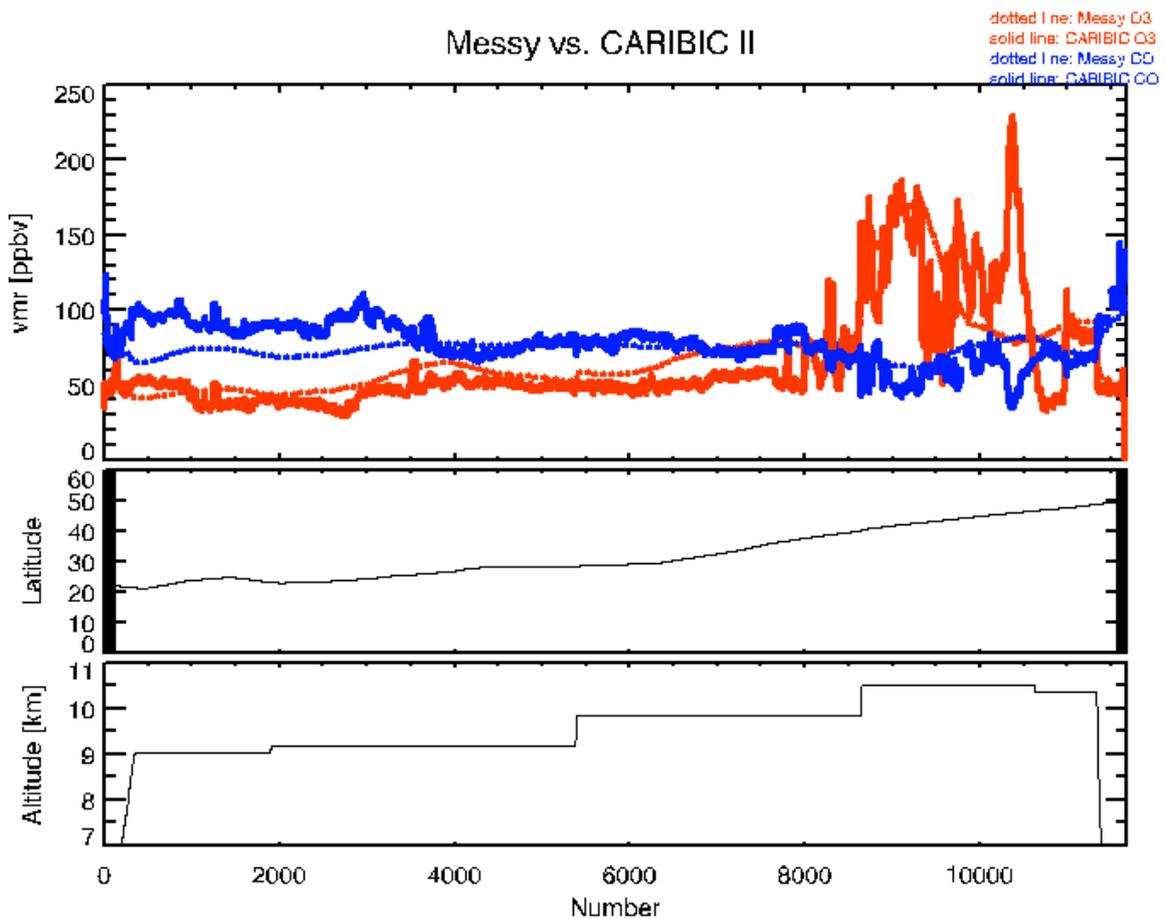
Abbildung 3.13: Korrelation von  $O_3$  (in ppbv) mit  $CO$  (in ppbv), jeweils gemessen mit CARIBIC (links) und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (rechts) für den Lufthansa-Flug 121

In Abbildung 3.13 sind Korrelationen zwischen Ozon und Kohlenmonoxid für alle Datenpunkte der CARIBIC-Messungen und mit Werten in ECHAM5/MESSy1-Simulation dargestellt. Die  $O_3$ - und  $CO$ -Werte zeigen dabei eine Antikorrelation. Je höher der Flug ansteigt, desto höher ist das Ozon und desto niedriger das Kohlenmonoxid.

Aufgrund der zeitlich höher aufgelösten Messung liegen mehr Datenpunkte von CARIBIC als von ECHAM5/MESSy1 vor. Es ist dabei in den CARIBIC-Daten eine grössere Streuung zu erkennen. Im Modell liegen die  $CO$ -Mischungsverhältnisse bei 50 ppbv bis 130 ppbv und die  $O_3$ -Mischungsverhältnisse im Bereich von 40 ppbv bis 170 ppbv. In diesem  $CO$ -Bereich findet man bei den Messungen ähnliche Ergebnisse, allerdings etwas stärker gestreut. Das Durchfliegen der stratosphärischen Luft mit  $CO$ -Werten unter 50 ppbv und  $O_3$ -Werten von über 170 ppbv ist im Modell nicht erfasst.

### 3.5.3 Das Ozon und Kohlenmonoxid während des Lufthansa-Flugs 133

Der Lufthansa-Flug Nr. 121 von Guangzhou (China, 23.1°N; 113.3°O) nach Frankfurt am Main (50.1°N; 8.7°O) fand am 15.11./16.11.2005 statt und überflog Asien und Osteuropa (Abbildung 3.14). Dieser Flug befand sich während der gesamten Flugdauer in der Nordhemisphäre und überflog nicht den Äquator oder die Tropen.



LH133 15.11/16.11.05

Abbildung 3.14: Vergleich von  $O_3$  (in ppbv) (rot) und  $CO$  (in ppbv) (blau) simuliert mit ECHAM5/MESSY1 (gepunktete Linie) und gemessen mit CARIBIC (durchgezogene Linie) auf dem Lufthansaflug 133. Darstellung: Volumenmischungsverhältnisse von  $O_3$  und  $CO$  (oben), Position des Flugzeuges bezüglich Breitengrad (Mitte) und Höhe in km (unten).

Die gemessenen  $O_3$ -Mischungsverhältnisse lagen bei diesem Flug bis zum Zeitpunkt 8000 bei einer Flughöhe von 9 km bis 10 km in den Breiten 23.1°N bis 40.0°N im Bereich zwischen 40 ppbv und 60 ppbv, die  $CO$ -Mischungsverhältnisse zwischen 70 ppbv und 100 ppbv. In diesem Zeitraum sind die  $O_3$ -Werte korreliert und die  $CO$ -Werte antikorreliert zur Flughöhe. Im weiteren Flugverlauf in Richtung nördlicherer Breiten und eines weiteren Anstieg des Flugzeuges auf 11.5 km, wurde wieder stratosphärische Luft durchflogen. Diese war charakterisiert durch  $O_3$ -Werte zwischen 100 ppbv und 230 ppbv und  $CO$ -Werte zwischen 30 ppbv und 70 ppbv.

Die modellierten  $O_3$ -Mischungsverhältnisse folgen relativ gut den gemessenen Daten. Tendenziell liegt allerdings eine leichte Überschätzung im Modell vor und kurzfristige Schwankungen in den Messungen werden (wie auch bei Flug 121) nicht erfasst, sondern gemittelt. Die modellierten  $CO$ -Mischungsverhältnisse folgen zumeist dem Kurvenverlauf der Messungen. Allerdings werden hier die kurzfristigen Schwankungen der Messungen ebenfalls nicht simuliert und während des ersten Drittels des Fluges ist eine deutliche Unterschätzung von  $CO$  von bis zu 40 ppbv zu beobachten.

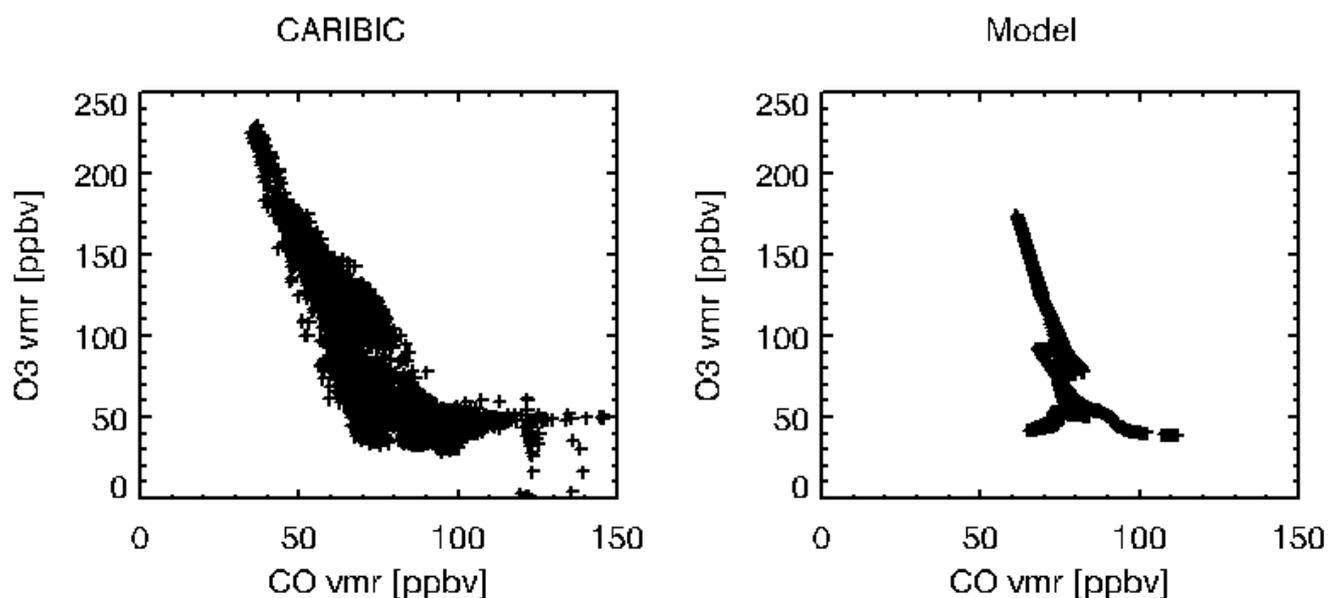


Abbildung 3.15: Korrelation von  $O_3$  (in ppbv) mit  $CO$  (in ppbv), jeweils gemessen mit CARIBIC (links) und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (rechts) für den Lufthansa-Flug 133

In den Korrelationen von Ozon und Kohlenmonoxid für den Lufthansa-Flug Nr.133 (Abbildung 3.15) ist wieder eine stärkere Streuung in der Korrelation der Flugzeugmessdaten ersichtlich. Insbesondere das Kohlenmonoxid schwankt bei CARIBIC mit Werten von 30 ppbv bis 150 ppbv deutlich stärker als bei ECHAM5/MESSy1 (60 ppbv bis 110 ppbv). Es ist aber im Modell als auch bei den Messdaten die erwartete Antikorrelation zwischen Ozon und Kohlenmonoxid zu beobachten und die Modelldaten liegen im mittleren Bereich der Messdaten.

Zusammengefasst ist mit Berücksichtigung der im Vergleich zu den Messungen schlechten zeitlichen (900s) und räumlichen (T42L39) Auflösung in ECHAM5/MESSy1 eine recht gute Übereinstimmung zwischen Modell- und Messdaten des Flugzeugexperiments CARIBIC erkennbar, auch wenn kurzfristige oder lokale Ereignisse im Modell nicht erfasst werden.

### 3.6 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kapitels

Die Validierung von ECHAM5/MESSy1 in der horizontalen Auflösung T42 mit 39 vertikalen Schichten und der gewählten Modellkonfiguration liefert gute Ergebnisse.

Meteorologische Strukturen sind dabei bezüglich der Jahresgänge der Temperaturen (Abbildung 3.1) und den zonalen Winden (Abbildung 3.3) in ECHAM5/MESSy1 gut wiedergegeben.

Ebenfalls ist die QBO (Abbildung 3.4) und der „Tape Recorder“ (Abbildung 3.7) im Modell realitätsnah simuliert.

Im Vergleich der Temperaturen (Abbildung 3.2), des  $N_2O$  (Abbildung 3.6), Methan (Abbildung 3.8) und Ozon (Abbildung 3.9) von ECHAM5/MESSy1 mit Daten gemessen mit MIPAS auf ENVISAT ist unter Berücksichtigung der Fehlertoleranzen eine recht gute Übereinstimmung vorhanden. In einigen Regionen gibt es aber gegenüber MIPAS systematisch Abweichungen in den Verteilungen. So sind in den hohen und teilweise auch schon in den mittleren Breiten die simulierten Volumenmischungsverhältnisse von  $N_2O$ , Methan und Ozon in der unteren Stratosphäre gegenüber den Daten von MIPAS zu hoch. Dieser Effekt ist besonders stark in der Winterhemisphäre ausgeprägt und ist verursacht durch einen zu schwachen Abwärtstransport innerhalb der Polarwirbel.

In den Tropen ist in ECHAM5/MESSy1 ein zu stark ausgeprägter Aufwärtstransports ersichtlich. So befinden sich in Daten von  $N_2O$ , Methan und Ozon im Gebiet der tropischen oberen Stratosphäre positive Differenzen gegenüber MIPAS auf ENVISAT, welche auf diesen zu hohen vertikalen Transport hindeuten. Bestätigt wird dies durch abgeleitete vertikale Geschwindigkeiten aus dem simulierten „Tape Recorder“ welche im Vergleich zu Literaturdaten zu gross sind.

Weitere Vergleiche führen zu einem zu starken Absinkens [Aufsteigens] in den jeweiligen hohen Breiten der Winterhemisphäre [Sommerhemisphäre] in der oberen Stratosphäre und Mesosphäre (Abbildung 3.1). In ECHAM5/MESSy1 sind so also auch mehrere Bereiche der „Brewer-Dobson-Zirkulation“ zu stark ausgeprägt, wobei dies nicht für die polar nahen Gebiete gilt, in welchen in den Polarwirbeln eine zu schwache Absinkbewegung zu beobachten ist.

Dieses zu schwache Absinken innerhalb der Polarwirbel und die daraus folgenden zu niedrigen Mischungsverhältnisse von  $Cl_y$  führen zu einem zu geringen Ozonabbau im polaren Frühjahr. Im Vergleich der simulierten Ozonsäulen von ECHAM5/MESSy1 mit Messdaten von TOMS (Abbildung 3.11) resultieren so zu hohe Säulenwerten in den hohen Breiten (im Mittel ca. 40 bis 60 DU zu hoch). Die Entstehung des antarktischen Ozonlochs ist zwar in Ausdehnung und zeitlichem Verlauf in ECHAM5/MESSy1 realitätsnah simuliert, es werden aber nicht die von TOMS gemessenen Ozonminima erreicht.

Eine recht gute Übereinstimmung ist auch im Vergleich der Modell- mit Messdaten des Flugzeugexperiments CARIBIC erkennbar, auch wenn hier kurzfristige oder lokale Ereignisse im Modell nicht erfasst werden und die simulierten und gemessenen Daten teilweise etwas voneinander abweichen.

Zusammengefasst ist ECHAM5/MESSy1 ein neues „Chemistry Climate Model“ (CCM), welches mit seinen Vorteilen wie z.B. der Überdeckung der gesamten unteren und mittleren Atmosphäre sowie der grossen Variabilität in seiner Modellkonfiguration, für viele verschiedene wissenschaftliche Zwecke einsetzbar ist und trotz einiger noch vorhandener Schwächen gute Ergebnisse im Vergleich zu Messdaten von Satelliten- und Flugzeugexperimente liefert.

Das Modell ECHAM5/MESSy1 wurde von daher in der genannten Modellkonfiguration für die wissenschaftlichen Studien des Einbaus einer neuen PSC-Parameterisierung (Kapitel 4) verwendet.

## 4 Eine neue PSC-Parameterisierung in ECHAM5/MESy1

### 4.1 Kurzfassung

Verursacht durch den Klimawandel [IPCC, 2007] werden sich in einem zukünftigen Klima die stratosphärischen Temperaturen verändern. Diese Temperaturänderungen werden eine andere Verteilung und Variabilität der polaren stratosphärischen Wolken (PSC) verursachen. Als Träger der heterogenen Reaktionen welche im stratosphärischen Frühling zu Ozonabbau führen, verbinden die PSCs so die Klimaveränderung mit der stratosphärischen Chemie. Um diese Chemie-Klima Wechselwirkungen in einem Chemie-Klima-Modell (CCM) untersuchen zu können, ist eine möglichst genaue Beschreibung der PSCs nötig.

Es wurde von daher im Modul PSC des CCMs ECHAM5/MESy1 ein neuer Algorithmus nach van den Broek et al. [2004], basierend auf Carslaw et al. [2002] eingebaut, welcher das Wachstum und die Sedimentation von „Nitric Acid Trihydrat“ (NAT)-Partikeln im polaren Wirbel berücksichtigt. Das Wachstum der NAT-Partikel wird dabei mit Hilfe eines Wachstumsfaktors beschrieben, welcher abhängig von Temperatur, Partialdruck, Volumenmischungsverhältnis von Salpetersäure ( $HNO_3$ ) und Radius der jeweiligen Partikel ist.

Es wurden acht verschiedene Klassen mit Grössenverteilungen der Radien der NAT-Teilchen festgelegt, wobei für jede Klasse ein mittlerer Radius (von  $0.1 \mu m$  bis  $18 \mu m$ ) definiert wurde. Die Berechnung des Wachstums der Radien der Teilchen über ein Zeitintervall erfolgte mit Hilfe des Wachstumsfaktors. Bei der Sedimentation, welche zur Denitrifizierung der Stratosphäre führt, wurde jede Grössenklasse separat berücksichtigt. In der neuen PSC-Parameterisierung wurden zusätzlich NAT- und Eisteilchen, entgegen der bisherigen PSC-Parameterisierung, in welcher nur feste Teilchen berücksichtigt wurden, separat behandelt.

Mit Hilfe dieses neuen PSC-Schemas wurde eine Mehrjahressimulation mit ECHAM5/MESy1 von November 2002 bis Ende 2007 durchgeführt. Die simulierten Resultate wurden bezüglich der Zusammensetzung der PSCs (Typ 1a, Typ-1b und Typ 2) und deren räumlicher und zeitlicher Verteilung im Modell analysiert und mit einer Standard-ECHAM5/MESy1-Simulation mit bisherigem thermodynamischen PSC-Schema verglichen.

Im Gegensatz zu den Ergebnissen der Standard-Simulation wurden in den betrachteten nordhemisphärischen Wintern und Frühlingen 2002/2003 und 2006/2007 über längere Zeiträume NAT-Teilchen simuliert. Aufgrund dessen konnte in den nördlichen Breiten im Frühjahr ein bisher nicht vorhandener Ozonabbau festgestellt werden. In den betrachteten südpolaren Wintern und Frühlingen konnten mit der neuen PSC-Parameterisierung grössere Ozonabbauraten simuliert werden. Dies wurde durch eine zusätzliche Anpassung der Anzahldichten von Eisteilchen erzielt. Aufgrund der niedrigeren Ozonsäulen im antarktischen Frühling, ist die Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit Messungen der beiden Satelliteninstrumente TOMS und OMI besser.

Ein weiterer Vergleich der Modelldaten fand mit PSC-Messungen des Satelliteninstruments MIPAS auf ENVISAT [Höpfner et al., 2006a] statt. Hier sind recht gute Übereinstimmungen bezüglich des zeitlichen Verlaufs des PSC-Vorkommens, sowie dessen Gesamtfläche festzustellen. Das zeitliche Vorkommen sowie die Fläche der simulierten und gemessenen STS-Teilchen stimmt ebenfalls sehr gut überein. Eine Überschätzung hingegen ist noch bei den NAT-Teilchen ersichtlich. Diese werden zu früh, zu lang und im Mittel mit noch zu grossen Flächen simuliert. Dies ist ebenfalls bei den Eisteilchen der Fall.

Diese Charakteristika der PSC-Bildung und Existenz im Modell im Vergleich zu MIPAS auf ENVISAT wird bezüglich der STS- und NAT-Teilchen durch einen Vergleich mit  $HNO_3$ -Daten von MLS auf Aura bestätigt. Hier werden ebenfalls die guten Übereinstimmungen im Auftreten der STS-Teilchen, sowie das zu frühe Auftreten der NAT-Teilchen erkannt. Darüber hinaus wird die simulierte Denitrifizierung mit diesem Vergleich bestätigt.

Zusammengefasst ist es gelungen, im ECHAM5/MESSy1-Modul PSC eine neue Parameterisierung einzubauen, welche das Wachstum und das Schrumpfen einzelner NAT-Partikel sowie deren Sedimentation berücksichtigt und gegenüber der bisherigen PSC-Parameterisierung einige Vorteile beinhaltet. Mit dieser neuen PSC-Parameterisierung sind nun verbesserte Prognosen der zukünftigen Entwicklung der Ozonschicht möglich.

## 4.2 Einführung

Polare Stratosphärenwolken (PSCs) spielen eine wesentliche Rolle im polaren Ozonabbau. Zum einen findet an ihrer Oberfläche eine Aktivierung von längerlebigen Chlor- und Bromsubstanzen während des polaren Winters statt, zum anderen werden über Sedimentation von NAT-Teilchen, Stickstoffverbindungen aus der Stratosphäre entfernt (Denitrifizierung). Diese Denitrifizierung führt im polaren Frühling zu einer verzögerten Deaktivierung des aktives Chlors. Trotz der beschriebenen Relevanz der PSCs, ist die Umsetzung in Form einer realitätsnahen PSC-Parameterisierung in Chemie-Klima-Modellen bis heute oft unzureichend.

In einem sich zukünftigen veränderten Klima werden sich die stratosphärischen Temperaturen gegenüber heute verändern. Diese Temperaturänderungen werden auch eine andere Verteilung und Variabilität der PSCs verursachen. Aufgrund der oben genannten Verbindung der stratosphärischen Chemie mit dem Auftreten der PSCs verursachen diese in einem CCM wie ECHAM5/MESSy eine Chemie-Wechsel-Wirkung. Um in ECHAM5/MESSy1 diese Chemie-Wechsel-Wirkungen mit hoher Signifikanz untersuchen zu können sollte von daher eine möglichst realistische Beschreibung der PSCs im Modell vorhanden sein.

### 4.2.1 Bedeutung und Charakterisierung von PSCs

Bei polaren Stratosphärenwolken werden drei Unterarten unterschieden: Typ-1a, bei dem die Wolke primär aus festen NAT-Partikeln ( $HNO_3(H_2O)_3$ ) besteht, Typ-1b, in dem flüssige unterkühlte ternäre Lösungströpfchen („supercooled ternary solutions“ (STS)) vorkommen, Typ-2, in der überwiegend Eisteilchen vorhanden sind.

PSC-Typ 1b und PSC-Typ 2 sind zum grössten Teil die Träger der heterogenen Chemie der Chloraktivierung. Typ-1a ist hauptsächlich für die Denitrifizierung verantwortlich, wobei auch an dessen Oberfläche heterogene Reaktionen stattfinden, welche aber aufgrund der im Vergleich zu STS und Eisteilchen geringeren Anzahldichte von NAT nur untergeordnete Bedeutung haben<sup>1</sup> [Turco et al., 1992; Peter, 1999].

Die heterogenen Reaktionen (Reaktionen 1.49 bis 1.59) finden an den Oberflächen der PSC-Teilchen während des polaren Winters statt. Im darauf folgenden polaren Frühling werden durch photolytische Reaktionen (Gleichung 1.60 bis 1.65) ozonzerstörende Radikale (z.B.  $NO_2$ ,  $OH$ ,  $Cl$ ) gebildet, welche darauffolgend zum Ozonabbau führen. Durch die Aufnahme von  $HNO_3$  in die feste Phase und die darauf folgende Sedimentation der NAT-Teilchen, wird  $NO_y$  (Denitrifizierung)

<sup>1</sup>Gilt streng genommen nur für die heterogenen Reaktionen, bei denen die Reaktionswahrscheinlichkeiten für die drei PSC-Typen nicht sehr stark voneinander abweichen.

aus Schichten der unteren und mittleren Stratosphäre während des polaren Winters entfernt. Da im polaren Frühling sonst die Quelle zur Bildung von  $NO_2$  fehlt, wird die Ozonzerstörung durch Bildung von Reservoirgasen (Gleichungen 1.44 bis 1.47) oder durch eine direkte Bildung von Ozon (Gleichung 1.18 und 1.19) nicht verlangsamt [Carslaw, 1997; Daerden, 2007].

#### 4.2.2 Die Entstehung von STS (PSC-Typ 1b)

Der Entstehungsmechanismus der STS-Teilchen (PSC-Typ 1b) ist nach heutigem Stand der Wissenschaft weitgehend akzeptiert. Er ist u.a. in Beyer et al. [1994], Carslaw et al. [1994, 1997], Luo et al. [1995] und Peter [1999] beschrieben. STS-Teilchen (PSC-Typ 1b) entstehen bei Abkühlung durch Aufnahme von  $HNO_3$  aus Schwefelsäureaerosolen ( $H_2SO_4 \cdot H_2O$ ), welche in der sogenannten Junge-Schicht [Junge et al., 1961] als Hintergrund immer vorhanden sind.

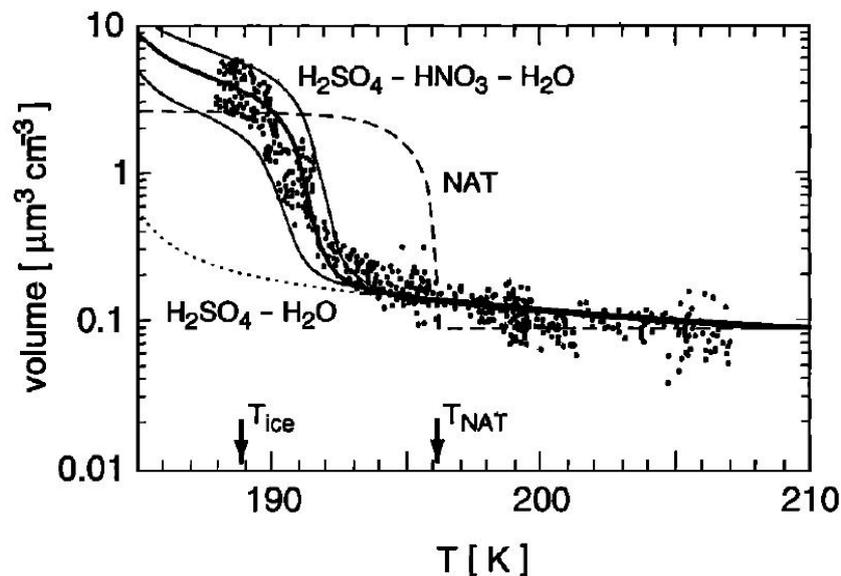


Abbildung 4.1: Flugzeugmessung des Partikelvolumen [Dye et al., 1992] für den 24. Januar 1989 im Vergleich mit Modellkalkulationen für das Wachstum verschiedener stratosphärischer Partikel aus Carslaw [1994]: flüssige  $H_2SO_4/H_2O$ -Aerosole (gepunktete Linie), NAT-Partikel (gestrichelte Linie) [Hanson und Mauersberger, 1988],  $HNO_3/H_2SO_4/H_2O$ -Aerosole (STS) (durchgezogene Linien). Berechnetes Volumen für 55 hPa,  $H_2O = 5$  ppmv,  $HNO_3 = 10$  ppbv (dünne Linien korrespondieren mit 5 und 15 ppbv  $HNO_3$ ). Abbildung aus Dye et al. [1992].

Ein Hinweis auf das Vorhandensein von STS-Teilchen erhielt man durch Volumenmessungen der stratosphärischen Partikel durch Dye et al. [1992], dargestellt in Abbildung 4.1, welche mit Modellberechnungen verglichen wurden. Es ist zu erkennen, dass das gemessene Volumen weder durch die Entstehung von NAT-Teilchen bei Abkühlung unter die NAT-Kondensationsstemperatur ( $T_{NAT}$ ) nach Hanson und Mauersberger [1988] noch mit alleiniger Aufnahme von  $H_2O$  durch die Schwefelsäure-Aerosole erklärbar ist. Berechnungen von Carslaw et al. [1994], in welchen die Schwefelsäureaerosole bei Abkühlung durch ein erhöhtes Löslichkeitsverhalten  $HNO_3$  aufnehmen, stimmen dahingegen mit den Beobachtungen überein. Ähnliche Berechnungen führten auch Drdla et al. [1994] und Tabazadeh et al. [1994a] durch.

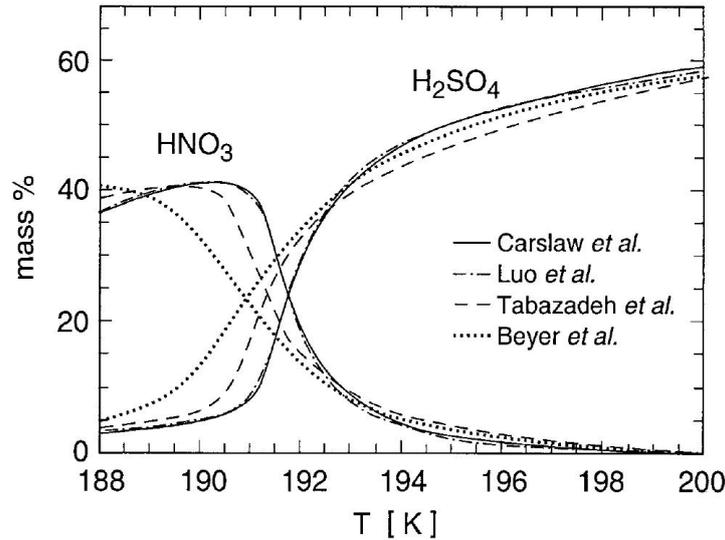


Abbildung 4.2: Massenanteile (in %) von  $HNO_3$  und  $H_2SO_4$  in flüssigen stratosphärischen Aerosolen in Abhängigkeit der Temperatur. Die vorhergesagte Zusammensetzungen von Tabazadeh et al. [1994b], Carslaw et al. [1995a], Luo et al. [1995] und Beyer et al. [1994] gelten für vorgegebene Mischungsverhältnisse von  $H_2O = 5$  ppmv,  $H_2SO_4 = 0.5$  ppbv,  $HNO_3 = 10$  ppbv und für einem Druck von 50 hPa. Abbildung aus Carslaw et al. [1997].

Der genaue Entstehungsmechanismus von STS ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Es werden dabei verschiedene Labormessungen von Tabazadeh et al. [1994b], Carslaw et al. [1995a], Luo et al. [1995] und Beyer et al. [1994] miteinander verglichen. Die Stoffanteile des stratosphärischen Aerosols verändern sich mit abnehmender Temperatur. So nimmt der  $H_2SO_4$ -Massenanteil mit abkühlenden Temperaturen von ca. 60% bei 200 K zunächst relativ langsam auf ca. 45% bei 194 K und dann sehr schnell auf ca. 8% bei 191 K ab (Prozentzahlen gelten für Carslaw et al. [1995a]).

$HNO_3$  ist über 200 K nur vernachlässigbar in Schwefelsäureaerosolen löslich. Unter einer Temperatur von 200 K ändert sich dies aber sehr schnell. So wächst der Stoffanteil von  $HNO_3$  im Aerosol bei Abkühlung unterhalb von 200 K zunächst langsam bis 194 K an, wo er bei ca. 5% liegt. Zwischen 194 K und 190 K vollzieht sich das Wachstum aber dann sehr schnell, so dass der maximale Stoffanteil von etwas über 40% bei ca. 190,5 K erreicht wird. Danach fällt der Anteil wieder etwas ab und liegt bei 188 K bei ca. 37%. Der restliche Massenanteil (ausser  $HNO_3$  und  $H_2SO_4$ ) besteht hauptsächlich aus  $H_2O$ .

Nach Carslaw et al. [1994, 1997] kann das stratosphärische Aerosol im flüssigen Zustand bis zum Eiskondensationspunkts existieren. Bei tieferen Temperaturen ist die flüssige Phase nicht mehr stabil, sondern wandelt sich vollständig in eine feste Phase um. Sobald  $HNO_3$  im Aerosol gelöst ist, spricht man von „supercooled ternary solutions“ (STS), davor von „supercooled binary solutions“ oder von „supercooled sulfuric acid“ (SSA).

Mit Aufnahme des  $HNO_3$  in das flüssige Schwefelsäureaerosol ist eine schnelle kontinuierliche Volumenzunahme der STS-Teilchen verbunden (Abbildung 4.3 (unten)). So steigt das Gesamtvolumen von ca.  $0.3 \frac{\mu m^3}{cm^3}$  bei 193 K auf ca.  $2.5 \frac{\mu m^3}{cm^3}$  bei 190 K an. Bei 186 K (2 K unterhalb des Eiskondensationspunktes) hat das Gesamtvolumen sogar  $60 \frac{\mu m^3}{cm^3}$  erreicht. Die Existenz der STS unterhalb dieser Temperatur ist unwahrscheinlich, da es spätestens hier zum Gefrieren der Teilchen kommt. Die Angaben im schraffierten Bereich der Abbildung sind von daher hypothetisch.

Mit der im Labor gewonnenen Volumenänderung der STS-Teilchen in Abhängigkeit von der Temperatur kann die mit Hilfe der Flugzeugbeobachtungen gemessene Volumenzunahme der stratosphärischen Aerosole aus Abbildung 4.1 erklärt werden.

Neben der Löslichkeit von  $HNO_3$  steigt auch die Löslichkeit von anderen Spurengasen in der ternären Lösung. So nehmen die Massenanteile von  $HCl$ ,  $HBr$  und  $HOCl$  (Abbildung 4.3 (oben)) im stratosphärischen Aerosol mit sinkender Temperatur zu. Gleichzeitig sinkt der Anteil dieser Substanzen in der Gasphase. Die Massenanteile liegen dabei weit unter den Anteilen von  $HNO_3$ . So erreicht  $HCl$  maximal einen Anteil von ca. 1-2% bei 186 K,  $HBr$  maximal ca. 0.5% bei 192 K und  $HOCl$  maximal ca.  $5 \cdot 10^{-5}\%$  bei 186 K (ausserhalb des hypothetischen Bereichs).

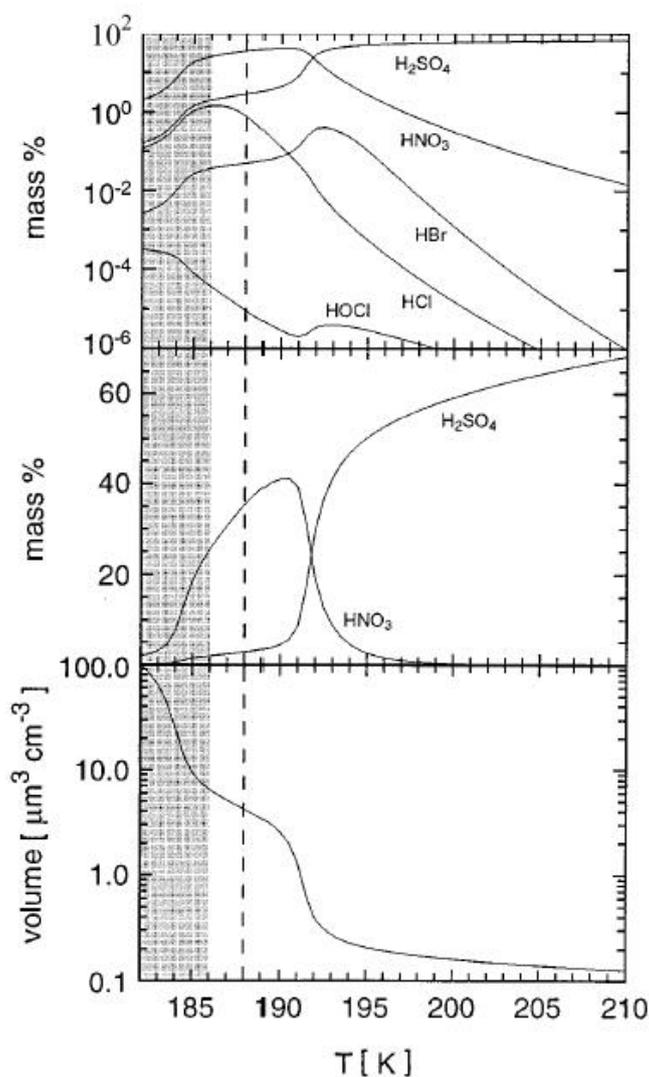
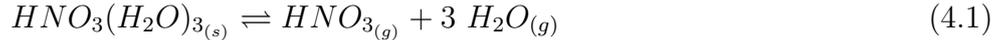


Abbildung 4.3: Massenanteile (in %) von  $HNO_3$  und  $H_2SO_4$  (Mitte und oben),  $HCl$ ,  $HBr$  und  $HOCl$  (oben) sowie Volumenänderung (in  $\frac{\mu m}{cm^3}$ ) (unten) von flüssigen stratosphärischen Aerosolen in Abhängigkeit der Temperatur. Berechnet für die vorgegebenen Mischungsverhältnisse von  $H_2O = 5$  ppmv,  $H_2SO_4 = 0.5$  ppbv,  $HNO_3 = 10$  ppbv,  $HCl = 1$  ppbv,  $HBr = 0.01$  ppbv,  $HOCl = 0.01$  ppbv für einem Druck von 50 hPa. Die gestrichelte Linie kennzeichnet den Eisfrostpunkt bei 188 K. Der schraffierte Bereich kennzeichnet den hypothetischen Teil. Abbildung aus Carslaw et al. [1997]

### 4.2.3 Die Entstehung von NAT (PSC-Typ 1a)

Die Entstehung von NAT ist bis heute im Detail noch nicht endgültig geklärt. NAT ist dabei als festes Teilchen der Bestandteil des PSC-Typs 1a. Es steht mit Salpetersäure ( $HNO_3$ ) in der Gasphase und Wasserdampf im Gleichgewicht:



Die Bildung von NAT erfolgt zunächst mit Hilfe des flüssigen Schwefelsäure-Aerosols, welches in der flüssigen Phase nach Abkühlung unterhalb von Temperaturen von 200 K  $HNO_3$  aufnimmt, wie im vorigen Unterkapitel 4.2.2 dargestellt [Carslaw, 1997; Peter, 1999; Turco et al., 1992]. Nach weiterer Abkühlung kann es zur Bildung von NAT kommen. Zu welchem Zeitpunkt die Nukleation einsetzt, ist aber unklar.

Nach Hansen und Mauersberger [1988] kann NAT unter stratosphärischen Bedingungen bis zu der sogenannten NAT-Kondensationstemperatur ( $T_{NAT}$ ) existieren. Diese ist druckabhängig und abhängig von den Partialdrücken von Salpetersäure und Wasserdampf. Ein typischer Wert der NAT-Kondensationstemperatur ist dabei 193 K, welche z.B. bei 54 hPa für Volumenmischungsverhältnisse von ca. 5.0 ppbv  $HNO_3$  und ca. 3.0 ppmv  $H_2O$  gilt (Anhang F zeigt die Abhängigkeit der NAT-Kondensationstemperatur von  $HNO_3$  und  $H_2O$  auf 54 hPa). Beobachtungen [Schlager et al., 1990; Dye et al., 1992] deuten allerdings darauf hin, dass NAT-Teilchen erst bei einer Unterkühlung von 2-3 K entstehen.

Laborstudien [Middlebrook et al., 1996; Biermann et al., 1998] und flugzeuggetragene Lidar-Messungen [Carslaw et al., 1998; Wirth et al., 1999] beweisen die heterogene Bildung von NAT auf Eispartikeln. In diesem Fall bildet sich dieses durch Anlagerung von  $HNO_3$  auf den Eispartikeln, z.B. wenn sedimentierende Eispartikel durch  $HNO_3$ -haltige Luft fallen [Wofsy et al., 1990].

Spätere Untersuchungen haben gezeigt, dass neben der Bildung von NAT über die Eisphase, zumindest ein zweiter Bildungsmechanismus vorhanden ist. Diese Bildung führt über die homogene Nukleation von Salpetersäure-Dihydrat (Nitric Acid Dihydrat (NAD) ( $HNO_3 \cdot (H_2O)_2$ ) aus STS und einer darauf folgenden Umwandlung des metastabilen NAD in NAT [Carslaw et al., 2002; Daerden et al., 2007].

Die NAD-Kondensationstemperatur liegt dabei unterhalb der NAT-Kondensationstemperatur und könnte so die gemessene Unterkühlung von 2-3 K von Schlager et al. [1990] und Dye et al. [1992] erklären. Dieser Bildungsmechanismus fand Unterstützung durch Laboruntersuchungen von Tabazadeh et al. [2002]. Diese haben nachgewiesen, dass die Nukleation von NAD auch an der Oberfläche von Tröpfchen beginnen kann (davor wurde angenommen, dass der Gefrierprozess immer im Inneren der Tröpfchen beginnt) und somit die Bildungsraten von NAD deutlich höher sind.

Abbildung 4.4 zeigt dabei die Unterschiede der Nukleationsraten bei angenommener Volumennukleation bzw. Oberflächennukleation. Die stündlichen Nukleationsraten von NAD steigen dabei mit abnehmender Temperatur unter 194 K deutlich schneller an, wenn eine Oberflächennukleation angenommen wird. So werden mit dieser Annahme maximale Raten von ca.  $2.5 \cdot 10^{-3} \frac{\text{particles}}{\text{cm}^3 \text{ h}}$  bei 191 K erreicht, wohingegen bei angenommener Volumennukleation nur maximale Raten von  $2 \cdot 10^{-5} \frac{\text{particles}}{\text{cm}^3 \text{ h}}$  bei 192 K entstehen. Die Gesamtanzahl der gebildeten NAT-Teilchen unterscheidet sich somit deutlich, wenn neben der Volumennukleation auch eine Oberflächennukleation stattfindet.

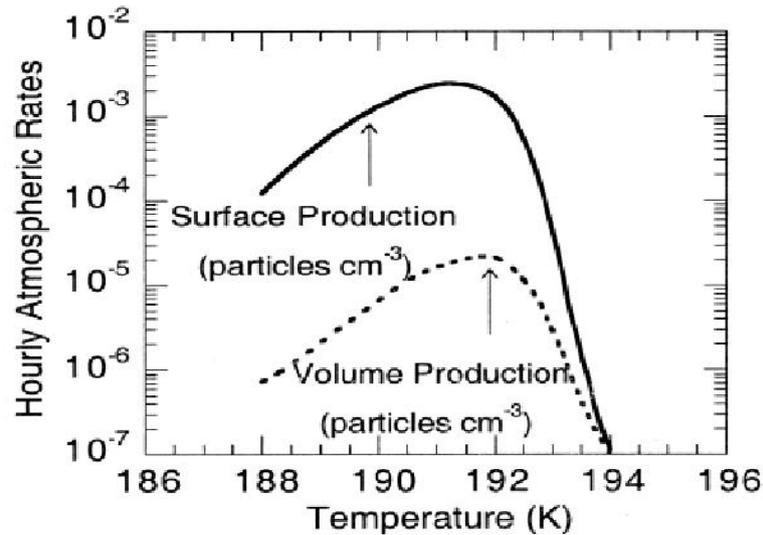


Abbildung 4.4: Stündliche Nukleationsraten in  $\frac{\text{particles}}{\text{cm}^3}$  von NAD in Abhängigkeit von der Temperatur bei Annahme einer Volumennukleation und einer Oberflächennukleation. Abbildung aus Tabazadeh et al. [2002]

Eine weitere Hypothese zur Bildung von NAT über die Anlagerung von  $HNO_3$  an gefrorenem Schwefelsäure-Tetrahydrat (Sulphuric Acid Tetrahydrate (SAT)  $H_2SO_4 \cdot (H_2O)_4$ ) welche Zhang et al. [1996] angenommen haben, ist später als unrealistisch betrachtet worden [Peter, 1999].

Es bleiben somit die beiden oben erwähnten Bildungsmechanismen von NAT, die der heterogenen Bildung über die Eisphase sowie die Bildung durch Umwandlung von NAD, wobei NAD durch homogene Nukleation aus STS entstanden ist. Nach Entstehung wachsen die NAT-Teilchen durch weitere Aufnahme von  $H_2O$  und  $HNO_3$ , solange die Temperaturen unter der NAT-Kondensationstemperatur liegen.

#### 4.2.4 Die Bildung von Eisteilchen (PSC-Typ 2)

Eisteilchen werden in der Stratosphäre erst bei sehr niedrigeren Temperaturen gebildet, typischerweise unterhalb der Eiskondensationstemperatur ( $T_{ICE}$ ) von ca. 188 K.

Es gibt dabei verschiedene Theorien zur Entstehung der Eisteilchen:

1. Anlagerung von Wasserdampf an bestehenden kleineren NAT-Teilchen
2. Homogene Nukleation von Eis aus unterkühlten Schwefelsäureaerosolen (SSA) [Bertram et al., 1996], oder aus ternärer Lösung (STS) [Carslaw et al., 1998; Koop et al., 2000; Tabazadeh et al., 1997]
3. Heterogene Nukleation von Eis aus flüssigen stratosphärischen Aerosol (SSA, STS) mit unlöslichen Bestandteilen von Mineraloxiden oder Russ [DeMott et al, 1997; Jensen und Toon, 1997]
4. Heterogene Nukleation von Eis an Teilchen aus Schwefelsäure-Tetrahydrat (SAT) [Fortin et al., 2003]

Der erste Bildungsmechanismus für die Entstehung von Eispartikeln, die heterogene Bildung durch Anlagerung von Wasserdampf an bestehenden kleineren NAT-Teilchen, ist denkbar, es liegen allerdings keine Studien vor, welche ihn belegen könnten. Barone et al. [1997] untersuchten aber einen ähnlichen Bildungsmechanismus. In ihrer Studie erfolgt die Bildung von Eis auf NAT mit einer flüssigen  $HNO_3$ -Schicht. Über die flüssige  $HNO_3$ -Schicht konnte sich  $H_2O$  anlagern und im folgenden kristallisieren. Zur Nukleation war dabei eine Unterkühlung von ca. 2 K unterhalb des Eiskondensationspunktes nötig.

Sollte sich in der Atmosphäre  $H_2O$  direkt oder über eine flüssige  $HNO_3$ -Schicht auf NAT anlagern und sollten daraus Eispartikel entstehen, so wäre dieser Bildungsmechanismus zumindest im antarktischen Winter als untergeordnet anzusehen, da in diesem die Anzahldichte der Eisteilchen die der NAT-Teilchen um einige Größenordnungen übertrifft [Newman et al., 2003].

Der zweite Bildungsmechanismus, die homogene Nukleation von Eis aus SSA- oder aus STS-Teilchen wird in der Literatur sehr häufig genannt und als realistisch angesehen. Er setzt allerdings eine Unterkühlung von einigen Kelvin unterhalb der Eiskondensationstemperatur voraus. So nehmen Tabazadeh et al. [1997] bei der Bildung von Eis aus STS eine notwendige Unterkühlung von 2 bis 3 K, Carslaw et al. [1998] von ca. 4 K und Daerden et al. [2007] (abgeleitet aus Koop et al., [2000]) von 3 bis 4 K gegenüber  $T_{ICE}$  an. Sollten diese Temperaturen in der Stratosphäre vorhanden sein, ist dieser Bildungsmechanismus als relevant anzusehen.

Für den dritten Bildungsmechanismus der heterogenen Nukleation von Eis aus flüssigen Aerosolen mit Hilfe bestimmter Nukleationskerne (Russ oder Mineraloxide) wären nach theoretischen Arbeiten

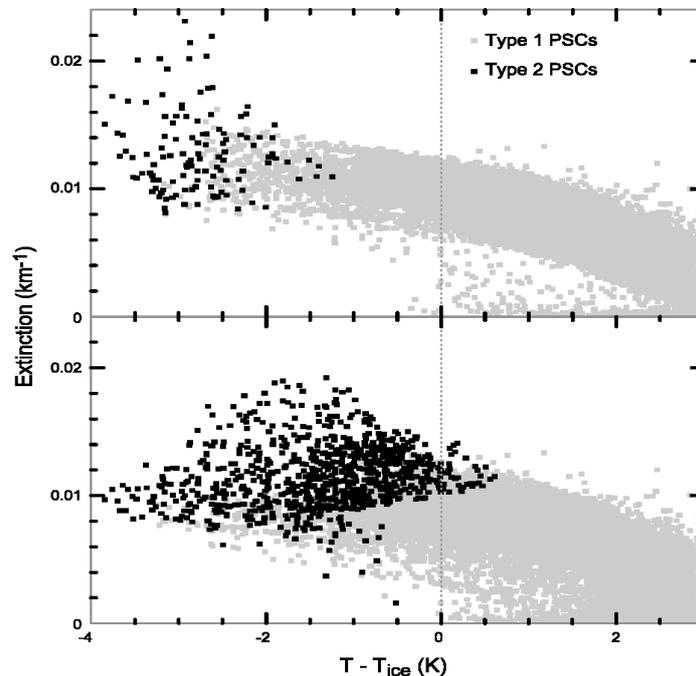


Abbildung 4.5: Auftreten von PSCs im Modell bei zwei unterschiedlichen Bildungsmechanismen in Abhängigkeit zur Temperatur. Der erste Bildungsmechanismus zeigt die homogene Nukleation von Eis aus SSA und STS (oben), der zweite Bildungsmechanismus erlaubt zusätzlich die heterogene Nukleation von Eis an SAT (Konzentration:  $10^{-2} \frac{1}{cm^3}$ ) (unten). Die Abzisse ist als relative Temperatur zum Eisfrostpunkt dargestellt. Als Ordinate ist die Extinktion (in  $km^{-1}$ ) gewählt. PSC-Typ 2 sind als schwarze Punkte, PSC-Typ 1 als graue Punkte erkennbar. Der angenommener  $H_2O$ -Gehalt ist konstant 5 ppmv. Abbildung aus Fortin et al. [2003]

von DeMott et al. [1997] und Jensen und Toon [1997] weniger niedrige Bildungstemperaturen nötig. Jedoch sind diese Arbeiten nur für die obere Troposphäre durchgeführt worden und es gibt nur sehr wenige Labordaten, um diese Theorien zu stützen [Fortin et al., 2003]. Für stratosphärische Bedingungen ist bis heute dieser Bildungsmechanismus nicht belegt.

Der vierte Bildungsmechanismus von Eisteilchen, nämlich die Depositon von Wasserdampf auf festen SAT-Teilchen, vorgestellt von Fortin et al. [2003], könnte von Bedeutung sein. Er findet bei Temperaturen nahe des Eiskondensationspunktes statt. So waren in den durchgeführten Laboruntersuchungen von Fortin et al. [2003] für die Bildung von Eis nur Unterkühlungen von 0.1 K bis 1.3 K unterhalb von  $T_{ICE}$  nötig. Fortin et al. [2003] sehen von daher diesen Eisbildungsprozess als sehr relevant bis eventuell dominant für die Bildung des PSC-Typs 2 an.

In Abbildung 4.5 ist erkennbar, dass Fortin et al. [2003] in ihrem Modell mit der Annahme, dass Eispartikel sich auch an SAT bilden, den PSC-Typ 2 an deutlich mehr Modellgitterpunkten simulieren können als ohne diese Annahme. Bei dieser Annahme muss die Temperatur weniger stark sinken, um Eispartikel zu bilden und der PSC-Typ 2 entsteht in einigen Luftpaketen schon ab  $T_{ICE}$ . Die benötigten Temperaturen, um Eis zu bilden, sind so gegenüber dem Bildungsmechanismus der homogenen Nukleation aus SSA und STS weniger tief. Die Eisteilchen bilden sich daher primär heterogen.

Zusammengefasst ist nach heutigem Stand der Wissenschaft unter stratosphärischen Bedingungen die Bildung von Eispartikeln über eine homogene Nukleation aus SSA und STS sowie über eine heterogene Nukleation mit SAT als Nukleationskeim am wahrscheinlichsten. Bei der heterogenen Nukleation ist dabei eine weniger tiefe Bildungstemperatur als bei der homogenen Nukleation nötig.

## 4.3 Das ECHAM5/MESSy1-Modul PSC

In Kapitel 3 wurde erkannt, dass die bisherige PSC-Parameterisierung im PSC-Modul von ECHAM5/MESSy1 insbesondere in den nördlichen hohen Breiten einige Defizite aufweist. Um diese Defizite zu beseitigen, wurde in diesem PSC-Modul eine neue Parameterisierung der NAT-Teilchen nach van den Broek, Williams und Bregman [2004] eingebaut, welche ein Anwachsen und Schrumpfen dieser NAT-Teilchen berücksichtigt.

Dies geschah in der Absicht eine genauere Beschreibung der PSCs durchzuführen. So werden mit der neuen PSC-Parameterisierung die NAT-Teilchen in verschiedene Grössen mit unterschiedlichem Sedimentationsverhalten aufgeteilt und diese separat transportiert. Es werden dabei auch sehr grosse NAT-Partikel mit Durchmessern von über  $15 \mu m$  berücksichtigt, welche z.B. Fahey et al. [2001] in ihren Messungen nachweisen konnten. Mit Beschreibung des Wachstums der NAT-Teilchen können diese über eine bestimmte Zeit noch existieren, wenn die Temperaturen über  $T_{NAT}$  steigen. Insgesamt wird so die Mikrophysik der NAT-Teilchen besser berücksichtigt.

### 4.3.1 Die PSC-Parameterisierung im bisherigen PSC-Modul

Das ECHAM5/MESSy1-Modul PSC wurde 2002 von S. Meilinger am MPI für Chemie in Mainz entwickelt. Es basiert auf der heterogenen Chemie des „Mainz Stratospheric Box Models“, welches in Carslaw [1994] beschrieben ist. Das PSC-Modul wurde von Joachim Buchholz innerhalb seiner Promotion von 2003 bis 2005 ebenfalls am MPI für Chemie erweitert und überarbeitet [Buchholz, 2005].

Das Modul beinhaltet dabei Parameterisierungen für die Bildung von STS-, NAT- und Eisteilchen und verschiedene wählbare Sedimentationschemata. Über eine Namelist können einzelne Optionen für das Modul gewählt werden (siehe Anhang E).

## Der Algorithmus für die Entstehung des flüssigen, stratosphärischen Aerosols

Die Parameterisierung der STS-Teilchen (PSC-Typ 1b) basiert auf Carslaw et al. [1995b]. Mit Hilfe dieser werden die Anteile von  $H_2SO_4$ ,  $HNO_3$ ,  $H_2O$ , sowie  $HCl$ ,  $HOCl$ ,  $HBr$ ,  $HOBr$  im stratosphärischen Aerosol (SSA und STS) berechnet. Für die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten ( $\kappa$ ) der heterogenen Reaktionen auf der flüssigen Phase des stratosphärischen Aerosols wird die dafür benötigte Gesamtoberfläche ( $A_{LIQ}$ ) der Aerosolteilchen und deren mittlerer Radius ( $r_{LIQ}$ ) bestimmt. Die Gültigkeit des Algorithmus von Carslaw et al. [1995b] besteht dabei in folgendem Temperaturbereich:

$$\max(T_{ICE} - 3K, 185K) \leq T \leq 240 K \quad (4.2)$$

Bei simulierten Temperaturen in ECHAM5/MESy1 unterhalb von 185 K, welche insbesondere im antarktischen Winter in der Stratosphäre auftreten können, wird die Temperatur für die Bildung von STS bei 185 K festgehalten. Da bei dieser Temperatur der Eiskondensationspunkt ( $T_{ICE}$ ) von 188 K schon um 3 K unterschritten ist, ist die Existenz von flüssigen Teilchen hypothetisch, da hier spätestens der Gefrierprozess von Eis eingetreten ist (bei einer angenommen notwendigen Unterkühlung zur Eisbildung von 1.5 K, siehe unten).

Im PSC-Modul werden zunächst mit Hilfe der Parameterisierungen aus Carslaw et al. [1995b] die molaren Anteile (in  $\frac{mol}{kg}$ ) von  $H_2SO_4$  ( $bH_2SO_4(binary)$ ) und  $HNO_3$  ( $bHNO_3(binary)$ ) in „supercooled binary solutions“ ( $H_2SO_4 \cdot H_2O$  (SSA) und  $HNO_3 \cdot H_2O$ ) berechnet. Die jeweiligen Anteile sind abhängig von Druck, Temperatur und Mischungsverhältnis von  $H_2O$ . Über 215 K wird der flüssige Anteil von  $HNO_3$  in der binären Lösung auf Null gesetzt.

Darauffolgend werden die flüssigen molaren Anteile (in  $\frac{mol}{kg}$ ) von  $H_2SO_4$  ( $bH_2SO_4(ternary)$ ) und  $HNO_3$  ( $bHNO_3(ternary)$ ) in der „supercooled ternary solution“ (STS) berechnet. Auch hier wird  $bHNO_3(ternary)$  über 215 K auf Null gesetzt.

Aus den genannten Berechnungen können der Massenanteil von  $H_2SO_4$  ( $w_{H_2SO_4}$ ) und  $HNO_3$  ( $w_{HNO_3}$ ) im flüssigen stratosphärischen Aerosol berechnet werden (in  $\frac{kg}{kg}$ ) [Carslaw et al., 1995b].

Mit Hilfe der Henry-Konstanten ( $k_H$  (in  $\frac{mol}{kg \cdot mol}$ ), vor allem abhängig von der Zusammensetzung des flüssigen Aerosols, siehe Carslaw et al. [1997]), werden die Löslichkeiten der Spurengase  $HCl$ ,  $HBr$  [Parameterisierungen aus Luo et al., 1995],  $HOCl$  [Huthwelker et al., 1995] und  $HOBr$  [Hanson und Rawishankara, 1995] berechnet. Mit Hilfe dieser Löslichkeiten können die Massenanteile von  $HCl$  ( $w_{HCl}$ ),  $HBr$  ( $w_{HBr}$ ),  $HOCl$  ( $w_{HOCl}$ ),  $HOBr$  ( $w_{HOBr}$ ) in  $\frac{kg}{kg}$  im stratosphärischen Aerosol kalkuliert werden. Der Massenanteil von  $H_2O$  ( $w_{H_2O}$ ) ergibt sich aus der Differenz von 1.0 und der genannten Massenanteile.

Im nächsten Schritt werden die Mischungsverhältnisse der Flüssigphasen der besprochenen Substanzen berechnet ( $H_2SO_{4(LIQ)}$ ,  $HNO_{3(LIQ)}$ ,  $H_2O_{(LIQ)}$ ,  $HCl_{(LIQ)}$ ,  $HBr_{(LIQ)}$ ,  $HOCl_{(LIQ)}$ ,  $HOBr_{(LIQ)}$ ) in  $\frac{mol}{mol}$  bzw. ppbv). Es wird dabei davon ausgegangen, dass in der Stratosphäre die gesamte Schwefelsäure in der flüssigen Phase ( $H_2SO_{4(LIQ)}$ ) vorliegt. Die anderen flüssigen Anteile ergeben sich durch das Verhältnis zu  $H_2SO_{4(LIQ)}$ . So wird z.B.  $H_2O_{(LIQ)}$  wie folgt berechnet:

$$H_2O_{(LIQ)} = \frac{w_{H_2O} \cdot H_2SO_{4(LIQ)} \cdot M_{H_2O}}{w_{H_2SO_4} \cdot M_{H_2SO_4}} \quad (4.3)$$

$M_{H_2O}$  und  $M_{H_2SO_4}$  sind dabei die Molmassen von  $H_2O$  und  $H_2SO_4$ . Um die Oberfläche der stratosphärischen, flüssigen Aerosole ( $A_{LIQ}$ ) zu berechnen, wird zunächst die gesamte Masse der flüssigen Phase ( $m_{total}$ ) für ein Luftvolumen (in  $\frac{g}{cm^3}$ ) berechnet.

Danach folgt die Berechnung der Massendichte der Flüssigphase ( $dens_{LIQ}$  in  $\frac{g}{cm^3}$ ). Mit

$$V_{LIQ} = \frac{m_{total}}{dens_{LIQ}} \quad (4.4)$$

erhält man das Gesamtvolumen der flüssigen Partikel ( $V_{LIQ}$ ) in einem Luftvolumen (in  $\frac{cm^3}{cm^3}$ ) und mit Hilfe der Relation zwischen Oberfläche und Volumen

$$A_{LIQ} = 8.406 V_{LIQ}^{0.751} \quad (4.5)$$

aus Grainger et al. [1995] kann  $A_{LIQ}$  in einem Luftvolumen (in  $\frac{cm^2}{cm^3}$ ) berechnet werden.

Den mittleren Radius der flüssigen Aerosole ( $r_{LIQ}$  in cm) erhält man durch eine Relation zwischen dem effektiven Radius ( $r_{eff}$ ) und dem Volumen der Aerosolteilchen ( $V_{LIQ}$ ) [Grainger et al., 1995], sowie dem Verhältnis von  $r_{LIQ}$  und  $r_{eff}$  mit Annahme einer logarithmischen Normalverteilung ( $sigma_{log}$ =Weite der Verteilung):

$$r_{LIQ} = r_{eff} e^{-0.5(\ln sigma_{log})^2} \quad (4.6)$$

$$mit \ r_{eff} = 0.357 V_{LIQ}^{0.249} \quad (4.7)$$

$A_{LIQ}$  und  $r_{LIQ}$  sind notwendige Größen für die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten ( $\kappa$ ) der heterogenen Reaktionen (Gleichung 1.49 bis 1.59) auf PSC-Oberflächen des Typs 1b (siehe Gleichung 4.12).

### Der (thermodynamische) Algorithmus für die Entstehung von NAT

Die Parameterisierung der NAT-Partikel (PSC-Typ 1a) erfolgt im bisherigen PSC-Modul mit Hilfe einer Gleichgewichtsannahme, welche die Bildung nur abhängig von Temperatur und Mischungsverhältnis von  $HNO_3$  macht. Es wird dabei mit Hilfe des Partialdrucks von  $HNO_3$  ( $e_{HNO_3}$  in hPa) und des temperaturabhängigen Sättigungsdampfdrucks von  $HNO_3$  über NAT ( $E_{HNO_3}^{NAT}$  in hPa) das Mischungsverhältnis von  $HNO_3$ , welches in NAT gebunden ist ( $HNO_{3(NAT)}$  in  $\frac{mol}{mol}$ ), berechnet:

$$HNO_{3(NAT)} = (e_{HNO_{3(total)}} - E_{HNO_3}^{NAT})/p \quad (4.8)$$

Dabei wird in einem Vorschritt aus der Gesamtmenge an  $HNO_3$  (Summe aus Gasphase, Flüssigphase und Festphase) der Gesamtdampfdruck ( $e_{HNO_{3(total)}}$  in hPa) berechnet. Die Berechnung  $E_{HNO_3}$  (in hPa) erfolgt nach Hanson und Mauersberger [1988]. Durch Dividieren mit dem Umgebungsdruck ( $p$  in hPa) wird das Mischungsverhältnis von  $HNO_{3(NAT)}$  (in  $\frac{mol}{mol}$ ) berechnet.

Im bisherigen PSC-Modul wird die Bildung der PSC-Teilchen über die Variable *phase* kontrolliert. *phase* gibt dabei an, ob an einem Gitterpunkt die Bedingungen für die Bildung und Existenz von STS, NAT und Eis vorhanden sind. Dabei gilt:

- phase=1 → Bildungsbedingungen für STS erfüllt
- phase=2 → Bildungsbedingungen für STS und NAT erfüllt
- phase=3 → Bildungsbedingungen für STS, NAT und Eis erfüllt

Es wird dabei für die NAT-Bildung die heterogene Nukleation mit Hilfe von Eisteilchen [Carslaw et al., 1998] angenommen. Sobald die Bedingungen für Eiskondensation erfüllt sind, wird `phase=3` gesetzt und es ist auch eine NAT-Bildung möglich. Nach Schmelzen der Eisteilchen und weiter positiver Bedingung für die Existenz von NAT ( $T \leq T_{NAT}$  bzw.  $e_{HNO_3(total)} \geq E_{HNO_3}^{NAT}$ ) wird `phase=2` gesetzt und NAT kann weiter gebildet werden, auch wenn keine Eispartikel mehr vorhanden sind. Es wird dabei davon ausgegangen, dass als Nukleationskeime nicht mehr Eispartikel, sondern schon bestehende NAT-Partikel verwendet werden.

Mit Hilfe des Parameter `NatFormThreshold` aus der PSC-Namelist (siehe Anhang E) kann man die Bildungstemperatur von NAT heruntersetzen, was entsprechend der genannten Bildungsmechanismen in Abschnitt 4.2.3 sinnvoll sein kann. Dieser Parameter ist aber nur von Bedeutung, wenn auch der Parameter `LHomNucNAT` für die homogene Nukleation als wahr gesetzt ist. In diesem Fall wird davon ausgegangen, dass NAT-Nukleation nicht nur über die Eisteilchen stattfindet, sondern auch durch eine Bildung von NAT durch Umwandlung aus NAD, welches sich homogen aus STS gebildet hat [Tabazadeh et al., 2002].

### Der (thermodynamische) Algorithmus für die Entstehung von Eispartikeln

Die Parameterisierung der Eispartikel (PSC-Typ 2) erfolgt ebenfalls über eine Gleichgewichtsannahme, welche neben dem Wasserdampfdruck nur von der Temperatur abhängt.

Es wird dabei der Wasseranteil in Eis ( $H_2O_{(ICE)}$  in  $\frac{mol}{mol}$ ) als Differenz aus  $H_2O$ -Partialdruck ( $e_{H_2O}$  in hPa) und  $H_2O$ -Sättigungsdampfdruck ( $E_{H_2O}^{ICE}$  in hPa) über Eispartikel berechnet:

$$H_2O_{(ICE)} = (e_{H_2O(total)} - E_{H_2O}^{ICE})/p \quad (4.9)$$

Hier wird ebenfalls in einem Vorschritt die Grösse  $e_{H_2O(total)}$  (in hPa) berechnet, welche neben der Gasphase auch die Flüssigphase und Eisphase von  $H_2O$  umfasst. Durch Dividieren mit dem Umgebungsdruck ( $p$  in hPa) wird das Mischungsverhältnis von  $H_2O_{(ICE)}$  (in  $\frac{mol}{mol}$ ) ermittelt.

Wie in Abschnitt 4.2.4 dargestellt, wird bei den Bildungsmechanismen der Eisteilchen davon ausgegangen, dass eine Bildungstemperatur (in K) unterhalb der Eiskondensationstemperatur notwendig ist. Diese kann durch den Parameter `SupSatIce` aus der Namelist (siehe Anhang E) eingestellt werden. Je höher `SupSatIce` desto niedriger ist die Temperatur, welche für Eisbildung nötig ist.

### Die Berechnung der Anzahldichte und des mittleren Radius der festen Teilchen

Mit Hilfe von  $HNO_3_{(NAT)}$  und  $H_2O_{(ICE)}$  wird die Gesamtmasse der festen Teilchen ( $m_{solid}$ ) sowie das Gesamtvolumen ( $V_{solid}$ ) dieser Masse berechnet.

Darauffolgend wird die Anzahldichte aller festen Teilchen ( $N_{solid}$  in  $\frac{1}{m^3}$ ) berechnet:

$$N_{solid} = \frac{3.0 V_{solid}}{4.0 \pi r_{min}^3} \quad (4.10)$$

Hier fließt in die Berechnung ein minimaler Radius ( $r_{min}$ ) ein, welcher aus der Namelist übernommen wird (siehe Anhang E). Je höher dieser gewählt wird, desto niedriger ist im ersten Schritt  $N_{solid}$ .

In einem zweiten Schritt wird die berechnete Anzahldichte aller festen Teilchen zusätzlich mit einer maximalen Anzahldichte ( $N_{max}$ ) ebenfalls aus der Namelist (siehe Anhang E) verglichen. Ist  $N_{solid}$  grösser als  $N_{max}$ , so wird  $N_{solid}$  auf den Wert von  $N_{max}$  gesetzt.

Mit Hilfe  $N_{solid}$  wird der mittlere Radius der festen Teilchen  $r_{solid}$  (in m) ermittelt:

$$r_{solid} = \sqrt[3]{\frac{3 V_{solid}}{4\pi N_{solid}}} \quad (4.11)$$

Die Größen  $N_{solid}$  und  $r_{solid}$  dienen zur Berechnung der Reaktionsraten der heterogenen Reaktionen auf Eisteilchen und NAT-Teilchen (siehe Gleichung 4.16).

### Die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten der heterogenen Reaktionen auf den Oberflächen von STS-, NAT- und Eisteilchen

Bei der Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten ( $\kappa$ ) für die heterogenen Reaktionen wird unterschieden zwischen Reaktionen die auf flüssigen STS oder SSA und Reaktionen die auf NAT- oder Eisteilchen stattfinden.

#### Die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten der heterogenen Reaktionen auf den Oberflächen der STS-Teilchen

Die Geschwindigkeitskonstante<sup>2</sup> ( $\kappa$  in  $\frac{cm^3}{s}$ ) für die Reaktionen auf flüssigen stratosphärischen Aerosolen (STS und SSA) wird in einem ersten Schritt mit Hilfe einer Geschwindigkeitskonstanten erster Ordnung<sup>3</sup> ( $\kappa^I$  in  $\frac{1}{s}$ ) berechnet [Hanson et al., 1996]:

$$\kappa^I = \frac{\gamma \cdot c_{bar} \cdot A_{LIQ}}{4.0} \quad (4.12)$$

$\gamma$  ist dabei die Reaktionswahrscheinlichkeit,  $A_{LIQ}$  die Oberfläche der flüssigen Aerosolteilchen (siehe Gleichung 4.5) und  $c_{bar}$  eine Hilfsvariable (siehe Gleichung 4.13).

Die Reaktionswahrscheinlichkeit ist dabei abhängig vom Radius der flüssigen Aerosole, von der Temperatur und von der Konzentration der an der Reaktion beteiligten Substanzen in der Gasphase. Für die einzelnen Reaktionen wird sie berechnet nach Carslaw et al. [1995b], Luo et al. [1995], Hanson und Ravishankara [1994] und Hanson et al. [1996].

$c_{bar}$  (in  $\frac{1}{m^2 s}$ ) ist von einer Konstanten ( $c$ ) und der Temperatur ( $T$ ) wie folgt abhängig:

$$c_{bar} = \frac{c}{\sqrt{T}} \quad (4.13)$$

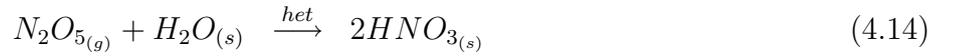
Je nach Reaktion schwankt die Konstante  $c$  in Gleichung 4.13 von 1221.4 (Reaktion 1.54) bis 1616 (Reaktion 1.59).

Bei den heterogenen Reaktionen (Gleichung 1.49 bis 1.59) handelt es sich um bimolekulare Reaktionen, wobei ein Edukt in der Gasphase und ein Edukt in der flüssigen Phase vorhanden ist. Um aus  $\kappa^I$  (in  $\frac{1}{s}$ ) die benötigte Geschwindigkeitskonstante  $\kappa$  (in  $\frac{cm^3}{s}$ ) für diese bimolekularen Reaktionen zu erhalten, muss  $\kappa^I$  durch die Gasphasenkonzentration der an der Reaktion beteiligten Substanz in der Flüssigphase, geteilt werden.

<sup>2</sup>zweiter Ordnung, gilt für bimolekulare Reaktionen

<sup>3</sup>gilt für monomolekulare Reaktionen

Für Gleichung 1.49 gilt dann z.B. :



$$\kappa_{1.49} = \frac{\kappa_{1.49}^I}{[H_2O]} \quad (4.15)$$

Diese Berechnung ist möglich, da die Konzentration von  $H_2O$  viel höher ist als die von  $N_2O_5$  und so durch die Reaktion nicht beeinflusst wird. Die Konzentration von  $N_2O_5$  ist demnach der limitierende Faktor.

### Die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten der heterogenen Reaktionen auf den Oberflächen der NAT- und Eisteilchen

Die Berechnung von  $\kappa$  (in  $\frac{cm^3}{s}$ ) für die Reaktionen auf NAT- oder Eisteilchen erfolgt ebenfalls zunächst über  $\kappa^I$  (in  $\frac{1}{s}$ ) mit Hilfe der Gleichung 4.16:

$$\kappa^I(r) = \frac{4.564 \cdot 10^4 \gamma \sqrt{\frac{T}{M_A}} r_{solid}^2 N_{solid}}{1 + 3.3 \cdot 10^4 \gamma r_{solid} \frac{p}{T}} \quad (4.16)$$

mit  $M_A$ = Molekulargewicht der Substanz  $A$  (an der heterogenen Reaktion beteiligtes Edukt in der Gasphase) (in  $\frac{g}{mol}$ ),  $T$ =Temperatur (in  $K$ ),  $p$ =Druck (in  $hPa$ ),  $r_{solid}$ =Radius der festen Teilchen auf denen die Reaktion stattfindet (in  $cm$ ),  $N_{solid}$ =Anzahldichte der festen Teilchen (in  $\frac{1}{cm^3}$ ) und  $\gamma$ =Reaktionswahrscheinlichkeit auf den festen Teilchen (siehe Tabelle 4.1 nach Sander [2006]).

Gleichung 4.16 ist in Müller [1994] genauer beschrieben. Sie basiert auf der Gleichung von Turco et al. [1989]:

$$\kappa^I(r) = \frac{\gamma \pi r^2 v_{th} [A] N}{1 + 3 \gamma r / (4l_a)} \quad (4.17)$$

wobei  $v_{th}$  (in  $\frac{m}{s}$ ) die mittlere thermische Geschwindigkeit von Gasmolekülen der Substanz  $A$  und  $l_a$  (in  $m$ ) deren mittlere freie Weglänge in Luft darstellt.

Um  $\kappa$  für die entsprechenden heterogenen Reaktion zu erhalten, muss  $\kappa^I$  entsprechend Gleichung 4.15 durch die Gasphasenkonzentration der an der Reaktion beteiligten Substanz in der Festphase geteilt werden.

Die im PSC-Modul verwendeten Reaktionswahrscheinlichkeiten ( $\gamma$ ) der Reaktionen auf NAT und Eis sind in Tabelle 4.1 dargestellt. Die meisten Reaktionswahrscheinlichkeiten stammen dabei aus Sander et al. [2003; 2006], wobei fehlende aus dem Originalcode des PSC-Moduls basierend auf dem „Mainz Stratospheric Box Model“ [Carslaw, 1994] übernommen wurden. Die Temperaturbereiche geben an, für welche Temperaturen die Reaktionswahrscheinlichkeiten im Labor gemessen wurden.

Aus Tabelle 4.1 ist ersichtlich, dass sich die Reaktionswahrscheinlichkeiten auf NAT-Teilchen und Eisteilchen deutlich unterscheiden können. So ist z.B. die Reaktionswahrscheinlichkeit für die Reaktion 1.49 auf Eis 2% und auf NAT hingegen nur 0.04%. Es sollten von daher für jede heterogene Reaktion, welche auf Eisteilchen oder NAT-Teilchen abläuft, die jeweiligen Anzahldichten und mittlere Radien der Eis- oder NAT-Teilchen verwendet werden.

Reaktion	auf Eis	auf NAT
$N_2O_{5(g)} + H_2O_{(s)}$ (1.49)	0.02 (188-195 K)	$4 \cdot 10^{-4}$ (200 K)
$N_2O_{5(g)} + HCl_{(s)}$ (1.50)	0.03 (190-220 K)	0.003 (200 K)
$ClONO_{2(g)} + H_2O_{(s)}$ (1.51)	0.3 (180-200 K)	0.004 (200-202 K)
$ClONO_{2(g)} + HCl_{(s)}$ (1.52)	0.3 (180-200 K)	0.2 (185-210 K)
$ClONO_{2(g)} + HBr_{(s)}$ (1.53)	0.3 (200 K)	0.3 (200 K)
$BrONO_{2(g)} + H_2O_{(s)}$ (1.54)	0.3 (190-200 K)	<i>0.001</i>
$BrONO_{2(g)} + HCl_{(s)}$ (1.55)	<i>0.3</i>	<i>0.3</i>
$HOCl_{(g)} + HCl_{(s)}$ (1.56)	0.2 (195-200 K)	0.1 (195-200 K)
$HOCl_{(g)} + HBr_{(s)}$ (1.57)	0.3 (189 K)	<i>0.3</i>
$HOBr_{(g)} + HCl_{(s)}$ (1.58)	0.3 (180-228 K)	<i>0.1</i>
$HOBr_{(g)} + HBr_{(s)}$ (1.59)	0.1 (228 K)	<i>0.1</i>

Tabelle 4.1: Verwendete Reaktionswahrscheinlichkeiten ( $\gamma$ ) in ECHAM5/MESSy1. Nicht kursiv: Aus Laborexperimenten bestimmtes  $\gamma$  und gültiger Temperaturbereich (in K) [Sander et al., 2003; 2006]. Kursiv: Abgeschätzte Werte entsprechend dem Originalcode des „Mainz Stratospheric Box Model“ [Carslaw, 1994].

In dem bisherigen PSC-Modul werden jedoch bei der Berechnung von  $\kappa$  für die heterogenen Reaktionen auf Eis und auf NAT die Anzahldichten und mittleren Radien nicht nach Eis- und NAT-Teilchen unterschieden, sondern der oben erwähnte berechnete mittlere Radius ( $r_{solid}$ ) und die Anzahldichte ( $N_{solid}$ ) aller festen Teilchen jeweils für die Berechnungen von  $\kappa$  auf Eis und  $\kappa$  auf NAT verwendet.

#### 4.3.2 Die PSC-Parameterisierung im überarbeiteten PSC-Modul

##### Wachstum und Schrumpfen der NAT-Teilchen mit Hilfe eines Wachstumsfaktors

Im Gegensatz zu dem bisherigen thermodynamischen Ansatz der instantanen Bildung der NAT-Teilchen beschreibt Carslaw et al. [2002] eine Parameterisierung, welche das Wachstum und das Schrumpfen der Teilchen berücksichtigt. Das zeitliche Wachstum dieser NAT-Teilchen wird dabei mit Hilfe eines Wachstumsfaktors ( $G$  in  $\frac{m^2}{s}$ ) beschrieben und ist zusätzlich abhängig vom Partikelradius ( $r$  in m):

$$\frac{dr}{dt} = \frac{G}{r} \quad (4.18)$$

mit

$$G = \frac{D_{HNO_3}^* M_{NAT}}{\rho_{NAT} R_{gas} T} (e_{HNO_3} - E_{HNO_3}^{NAT}) \quad (4.19)$$

In Gleichung 4.19 ist die Abhängigkeit des Wachstumsfaktors ( $G$ ) von der Temperatur ( $T$  in K), der Differenz zwischen  $HNO_3$ -Dampfdruck ( $e_{HNO_3}$  in hPa) und  $HNO_3$ -Sättigungsdampfdruck über NAT ( $E_{HNO_3}^{NAT}$  in hPa) sowie zusätzlich von einem  $HNO_3$ -Diffusionskoeffizient ( $D_{HNO_3}^*$  in  $\frac{m^2}{s}$ ) der Gasphase dargestellt.

Die Molarmasse von NAT ( $M_{NAT}=0.117 \frac{kg}{mol}$ ), die universelle Gaskonstante ( $R_{gas}=8.314 \frac{J}{mol K}$ ) und die kristalline Massendichte von NAT ( $\rho_{NAT}=1626 \frac{kg}{m^3}$ ) sind Konstanten.

$D_{HNO_3}^*$  berücksichtigt auch Nichtkontinuumseffekte, welche beim Massentransfer der  $HNO_3$ -Moleküle mit Molekülgrößen ähnlich der mittleren freien Weglänge ( $l_{HNO_3}$  in m) entstehen können [Carlson et al., 2002] und ist wie folgt gegeben:

$$D_{HNO_3}^* = \frac{D_{HNO_3}}{1 + 4 D_{HNO_3} / (v_{HNO_3} r)} \quad (4.20)$$

In Gleichung 4.20 wird der eigentliche Diffusionskoeffizient von  $HNO_3$  in der Gasphase ( $D_{HNO_3}$  in  $\frac{m^2}{s}$ ), welcher temperatur- und druckabhängig ist, und die mittlere molekulare Geschwindigkeit von  $HNO_3$  ( $v_{HNO_3}$  in  $\frac{m}{s}$ ), welche wiederum von der Temperatur abhängt, berücksichtigt.

Aus Gleichung 4.18 folgt nach Integration Gleichung 4.21:

$$r^2 = r_0^2 + 2 G t \quad (4.21)$$

Mit  $r_0$  (in m) als Anfangsradius und  $t$  (in s) als Modellzeitschritt wurde diese Gleichung in das ECHAM5/MESSy1-Modul PSC eingebaut. Ist  $G$  positiv, so findet ein Anwachsen der NAT-Teilchen durch Kondensation von  $HNO_3$  statt, ist er negativ, so schrumpfen die Partikel durch Verdampfen.

### Wachstum der NAT-Teilchen mit Hilfe von Größenklassen

Van den Broek et al. [2004] verwenden für das Wachstum und die Sedimentation der NAT-Teilchen einen Algorithmus, der auf einer Einteilung der NAT-Teilchen in verschiedene Größenklassen aufbaut. Da einzelne Teilchen in einem Eulerischen Modell wie ECHAM5/MESSy1 im Gegensatz zu „Lagrangische Modellen“ nicht verfolgt werden können, ist die Einteilung der NAT-Teilchen in Größenklassen eine Möglichkeit, um deren Wachstum und Schrumpfen zu simulieren.

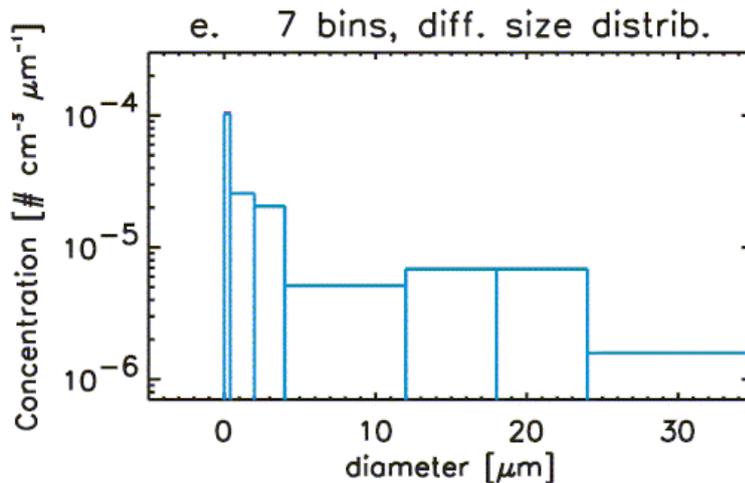


Abbildung 4.6: Einteilung der NAT-Teilchen in 7 Größenklassen wie in van den Broek et al. [2004] verwendet. Angaben in Durchmessern.

Für den Einbau dieses Algorithmus in das PSC-Modul von ECHAM5/MESSy1 wurde eine Einteilung der NAT-Teilchen in 8 Grössenklassen gewählt. Die Verteilungen der Grössenklassen basieren auf einer Einteilung in 7 Grössenklassen, wie sie von van den Broek et al. [2004] (Abbildung 4.6) vorgeschlagen haben. Für jede Grössenklasse wird dabei ein minimaler, maximaler und mittlerer Radius ( $r_{NAT_{bin}}$  in  $\mu m$ ) sowie eine maximale Anzahldichte (in  $\frac{1}{cm^3}$ ) festgelegt.

Die Einteilung der Grössenklassen von van den Broek et al. geht auf Flugzeugmessungen der Anzahldichte und Radien von NAT-Teilchen zurück, welche im arktischen Winter 1999/2000 von Fahey et al. [2001] durchgeführt wurden. Die Gesamtanzahldichte aller NAT-Teilchen geben Fahey et al. dabei mit  $2.3 \cdot 10^{-4} \frac{1}{cm^3}$  an, wobei im Grössenbereich mit Durchmessern von  $3.5 \mu m$  und 12 bis  $17 \mu m$  die grössten Anzahldichten pro  $\mu m$  gemessen wurden.

Van den Broek et al. übernehmen bei der Einteilung der Grössenklassen, dargestellt in Abbildung 4.6, die Gesamtanzahldichte  $2.3 \cdot 10^{-4} \frac{1}{cm^3}$  von Fahey et al. und teilen diese in sieben Grössenklassen auf, so dass für jede Grössenklasse eine Anzahldichte von  $3.28 \cdot 10^{-5} \frac{1}{cm}$  entsteht.

Die unterschiedliche Verteilung der NAT-Teilchen wird durch die unterschiedlichen Differenzen zwischen den jeweiligen maximalen und minimalen Radien der Grössenklassen gewährleistet. Die grössten Anzahldichten je  $\mu m$  sind bei dieser Einteilung in den kleineren Grössenbereichen unter  $4 \mu m$  Durchmesser zu finden, sowie zwischen 12 und  $24 \mu m$ .

Die im ECHAM5/MESSy1-Modul PSC verwendeten ersten 6 Grössenklassen sind mit denen von van den Broek et al. identisch. Die 7. und 8. Grössenklasse sind allerdings Teilmengen der in van den Broek et al. verwendeten 7. Grössenklasse (gezeigt in Tabelle 4.2, wobei hier nicht Durchmesser sondern Radien dargestellt sind).

Die Teilung der letzten Grössenklasse nach van den Broek et al. wird benötigt, um einen gleichmässigeren Anstieg der mittleren Sedimentationsgeschwindigkeit ( $v_{sed}$ ) der NAT-Teilchen in Abhängigkeit der Grössenklassen zu erhalten. Der in Abbildung 4.10 (links) dargestellte Sprung von  $v_{sed}$  zwischen der 6. und 7. Grössenklasse bei Einteilung in 7 Grössenklassen ist bei der Einteilung in 8 Grössenklassen (Abbildung 4.10 (rechts)) daher nicht mehr vorhanden.

Grössenklassen	1	2	3	4	5	6	7	8
Minimaler Radius ( $\mu m$ )	0.0	0.2	1.0	2.0	6.0	9.0	12.0	16.0
Maximaler Radius ( $\mu m$ )	0.2	1.0	2.0	6.0	9.0	12.0	16.0	20.0
Mittlerer Radius ( $\mu m$ )	0.1	0.6	1.5	4.0	7.5	10.5	14.0	18.0
Max. Anzahldichte ( $10^{-5} cm^{-3}$ )	3.28	3.28	3.28	3.28	3.28	3.28	1.64	1.64

Tabelle 4.2: Einteilung der NAT-Teilchen in 8 Grössenklassen wie im PSC-Modul von ECHAM5/MESSy1 verwendet.

Die im neuen PSC-Modul verwendeten mittleren Radien der NAT-Teilchen (Tabelle 4.2) betragen in den 8 Grössenklassen  $0.1 \mu m$ ,  $0.6 \mu m$ ,  $1.5 \mu m$ ,  $4.0 \mu m$ ,  $7.5 \mu m$ ,  $10.5 \mu m$ ,  $14.0 \mu m$  und  $18.0 \mu m$ . Die maximalen Anzahldichten, entsprechend den obigen Beschreibungen, sind in den ersten sechs Grössenklassen mit  $3.28 \cdot 10^{-5} \frac{1}{cm^3}$  und in den beiden letzten mit  $1.64 \cdot 10^{-5} \frac{1}{cm^3}$  festgelegt.

### Implementierter NAT-Algorithmus im überarbeiteten PSC-Modul

Die Implementierung der neuen PSC-Parameterisierung erfolgt entsprechend der Graphik in Abbildung 4.7.

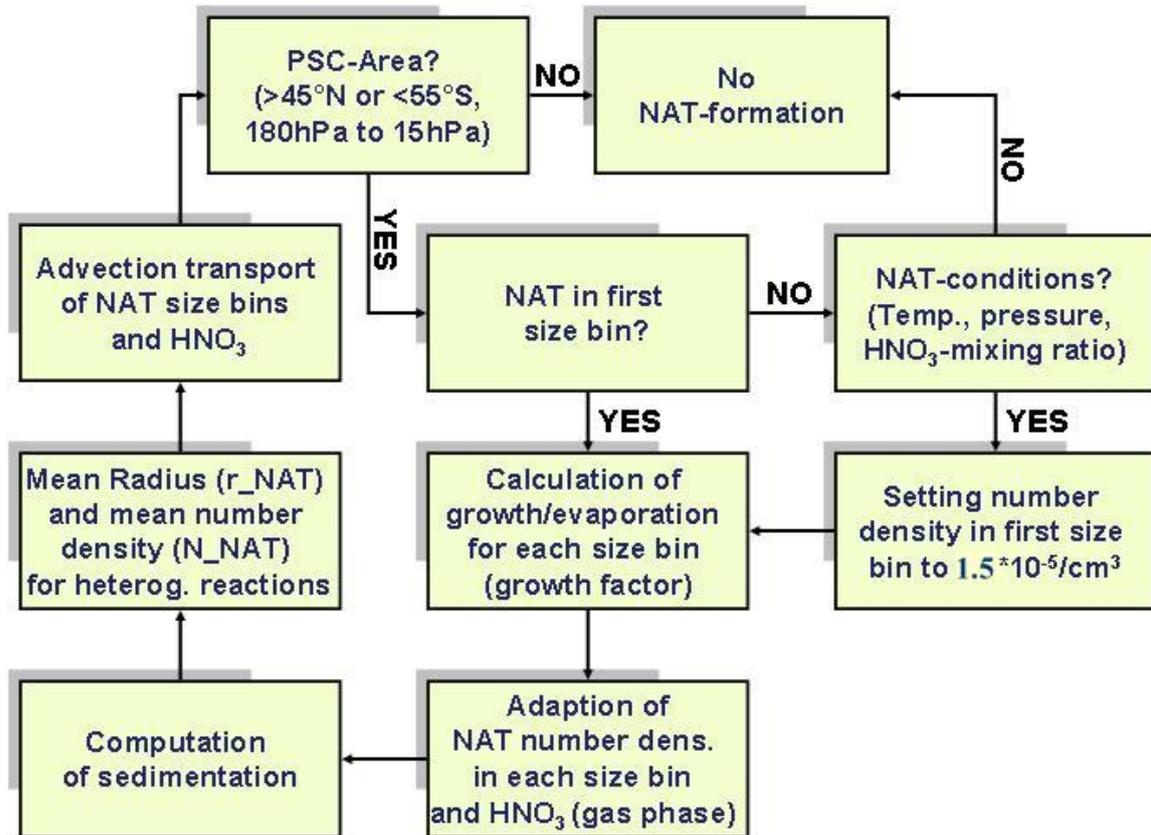


Abbildung 4.7: Programmablaufplan des überarbeiteten ECHAM5/MESSy1-Modul PSC

Zuerst wird dabei abgefragt, ob der Modellgitterpunkt innerhalb eines definierten PSC-Gebietes ( $> 45^\circ N$  oder  $< 55^\circ S$  und zwischen  $180 \text{ hPa}$  und  $15 \text{ hPa}$ )<sup>4</sup> liegt.

Danach findet in einem ersten Schritt bei Erreichen von NAT-Bedingungen (abhängig von Temperatur, Druck und  $HNO_3$ -Mischungsverhältnis) eine Initialisierung in der ersten Grössenklasse mit einer NAT-Anzahldichte von  $1.5 \cdot 10^{-5} \frac{1}{\text{cm}^3}$  statt. Darauf folgend wird für jede Grössenklasse, welche NAT-Partikel beinhaltet, mit Hilfe des Wachstumsfaktor der Gleichung 4.19 eine Zunahme oder Abnahme der NAT-Anzahldichte berechnet.

Übertritt die Anzahldichte die Grenze der Grössenklasse (maximale Anzahldichte) wird die entsprechende überschüssige Masse in die nächste Grössenklasse überführt und unter Berücksichtigung des dortigen mittleren Radius zur vorhandenen Anzahldichte addiert.

<sup>4</sup>Die Grenzen entsprechen dem Standard im PSC-Modul, siehe Buchholz [2005]

Die Gesamtanzahldichte von NAT ( $N_{NAT}$ ) wird als Summe über die NAT-Anzahldichten der einzelnen Größenklassen ( $N_{NAT_{bin}}$ ) berechnet:

$$N_{NAT} = \sum_{bin=1}^8 N_{NAT_{bin}} \quad (4.22)$$

Der mittlere Radius über alle Klassen ergibt sich nach Gleichung 4.23:

$$r_{NAT} = \sqrt{\left( \sum_{bin=1}^8 N_{NAT_{bin}} * r_{NAT_{bin}}^2 \right) / N_{NAT}} \quad (4.23)$$

wobei hier der mittlere Radius jeder Größenklasse  $r_{NAT_{bin}}$  berücksichtigt wird.

Die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten ( $\kappa$ ) erfolgt wieder über ( $\kappa^I$ ) entsprechend Gleichung 4.16, wobei im neuen PSC-Modul zwischen  $N_{NAT}$  [ $r_{NAT}$ ] und  $N_{ICE}$  [ $r_{ICE}$ ] unterschieden wird.  $N_{ICE}$  und  $r_{ICE}$  wird dabei entsprechend den Gleichungen 4.9 bis 4.11 kalkuliert.

Für  $\kappa^I$  der heterogenen Reaktionen auf NAT gilt dann:

$$k^I(r) = \frac{4.56 \cdot 10^4 \gamma \sqrt{\frac{T}{M_A}} r_{NAT}^2 N_{NAT}}{1 + 3.3 \cdot 10^4 \gamma r_{NAT} \frac{p}{T}} \quad (4.24)$$

mit  $M_A$ = Molekulargewicht der Substanz A (Edukt in der Gasphase) in  $\frac{g}{mol}$ ,  $T$ =Temperatur in  $K$ ,  $p$ =Druck in  $hPa$ ,  $r_{NAT}$ =Radius der NAT-Teilchen in  $cm$ ,  $N_{NAT}$ =Anzahldichte der NAT-Teilchen in  $\frac{1}{cm^3}$  und  $\gamma$ =Reaktionswahrscheinlichkeit entsprechend Tabelle 4.1.

Für  $\kappa^I$  der heterogenen Reaktionen auf Eis gilt:

$$k^I(r) = \frac{4.56 \cdot 10^4 \gamma \sqrt{\frac{T}{M_A}} r_{ICE}^2 N_{ICE}}{1 + 3.3 \cdot 10^4 \gamma r_{ICE} \frac{p}{T}} \quad (4.25)$$

mit  $r_{ICE}$ =Radius der Eisteilchen in  $cm$  und  $N_{ICE}$ =Anzahldichte der Eisteilchen in  $\frac{1}{cm^3}$ .

Die Berechnung der STS-Teilchen sowie deren Geschwindigkeitskonstanten wurde im neuen PSC-Modul nicht verändert, sondern findet entsprechend der Beschreibung in Abschnitt 4.3.1 statt.

## Mit ECHAM5/MESSy1 berechnete PSC-Oberflächen

Die Geschwindigkeitskonstanten  $\kappa$  für die heterogenen Reaktionen auf PSCs, berechnet aus  $\kappa^I$  (Gleichung 4.15) sind, wie beschrieben, vor allem von den entsprechenden PSC-Oberflächen abhängig. In Abbildung 4.8 sind die Oberflächendichten der flüssigen Aerosole, der NAT- und Eisteilchen exemplarisch anhand des antarktischen Winters 2003 in der Stratosphäre dargestellt.

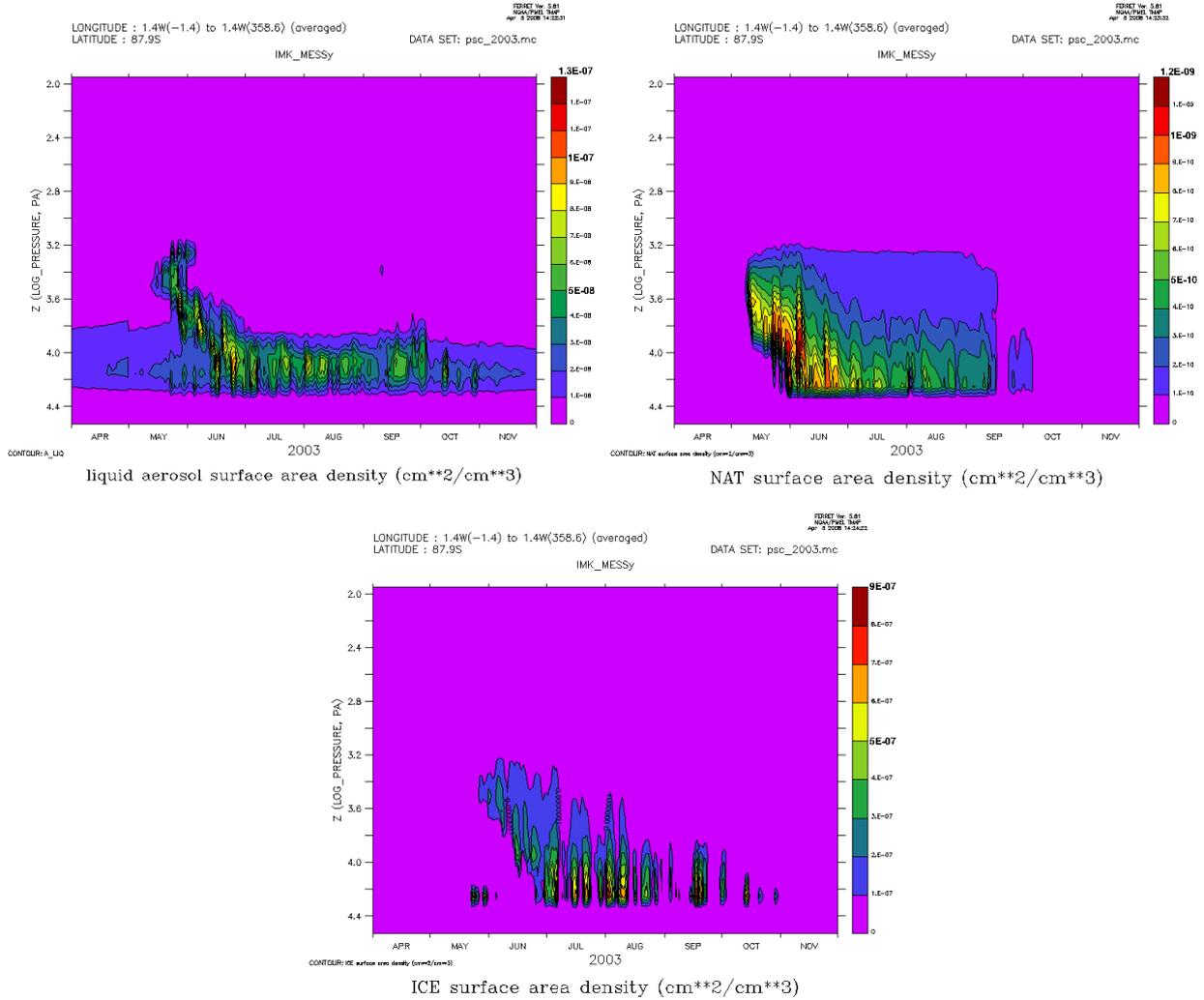


Abbildung 4.8: Oberflächen der verschiedenen PSC-Typen pro Volumeneinheit (in  $\frac{cm^2}{cm^3}$ ) im antarktischen Winter 2003 am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) in der Stratosphäre (1 hPa ( $10^{2.0}$  Pa) bis 250 hPa ( $10^{4.4}$  Pa)): Oberfläche der flüssigen Aerosole (oben links), NAT-Teilchen (oben rechts) und Eisteilchen (unten). Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung. Bitte die unterschiedlichen Farbskalen beachten.

Die Oberflächendichte ist dabei abhängig von den Radien und der Anzahldichte der entsprechenden Teilchen. Die modellierten mittleren Radien der flüssigen Aerosol-Teilchen liegen dabei im Größenbereich von 0.1 bis 0.3  $\mu m$  und die der NAT- und Eisteilchen bei 1 bis 15  $\mu m$ . Die möglichen Anzahldichten dieser Teilchen variieren stark. So können vom flüssigen Aerosol über 5000000  $\frac{particles}{m^3}$  im Modell vorkommen, wohingegen die Eisteilchen maximal 25000  $\frac{particles}{m^3}$  und die NAT-Teilchen nur bis zu 230  $\frac{particles}{m^3}$  erreichen.

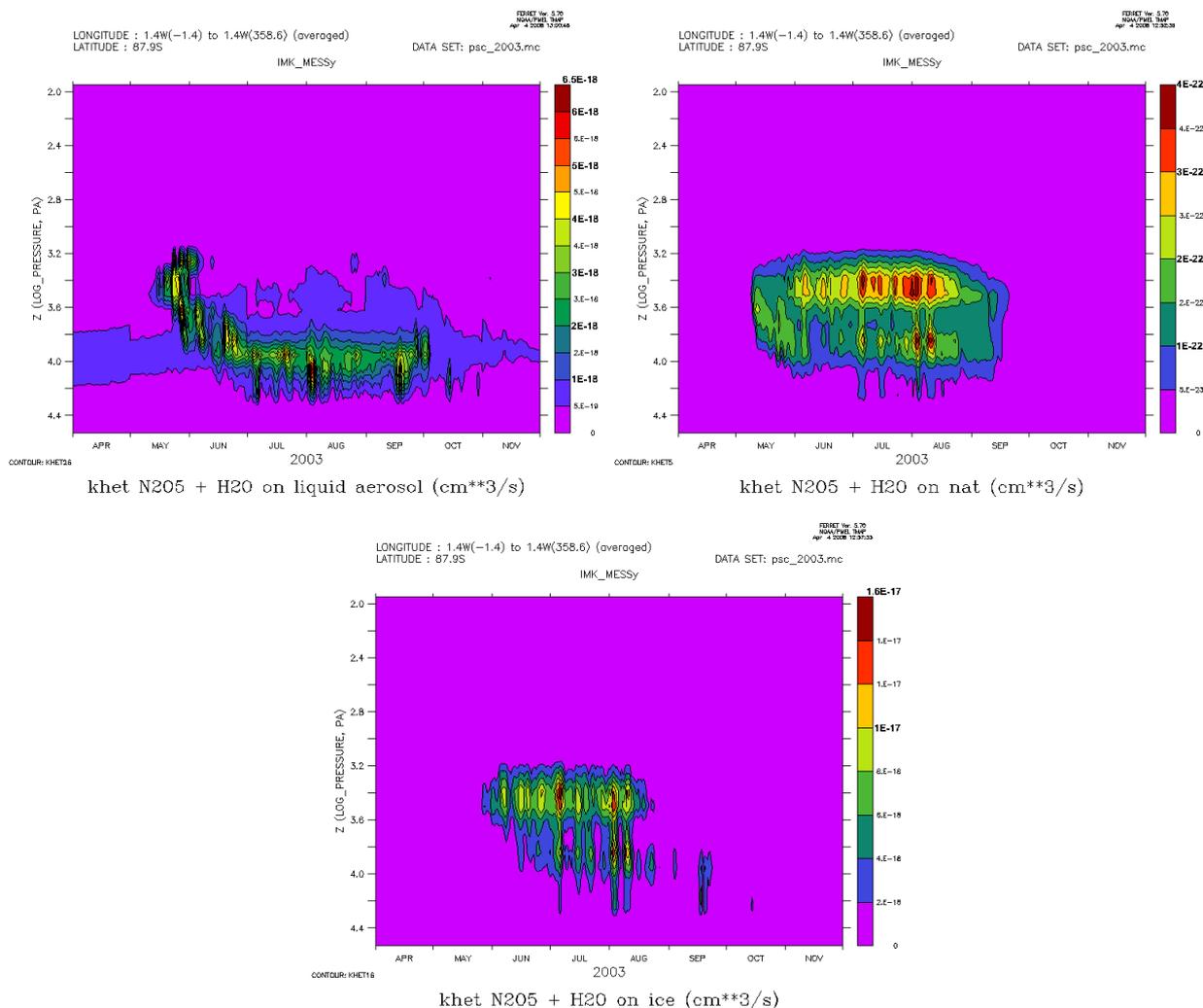


Abbildung 4.9: Geschwindigkeitskonstanten ( $\kappa$ , hier als *khet* bezeichnet, in  $\frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$ ) der Reaktion  $N_2O_5 + H_2O$  (Gleichung 1.49) berechnet für die Oberflächen der flüssigen Aerosole (oben links), NAT-Teilchen (oben rechts) und Eisteilchen (unten). Zeitserie des antarktischen Winter 2003 am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) in der Stratosphäre (1 hPa ( $10^{2.0}$  Pa) bis 250 hPa ( $10^{4.4}$  Pa)). Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung. Bitte die unterschiedlichen Farbskalen beachten.

Dementsprechend sind die grössten Oberflächen beim PSC-Typ 2 (Eis) zu erkennen (Abbildung 4.8). Im antarktischen Winter 2003 werden bei diesem Oberflächendichten von bis zu  $8 \cdot 10^{-7} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  erreicht. Die Oberflächendichte von PSC-Typ 1b (STS) ist mit bis zu  $1 \cdot 10^{-7} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  noch in einem ähnlichen Grössenbereich, wohingegen die Oberflächendichte von PSC-Typ 1a (NAT) mit maximal  $1 \cdot 10^{-9} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  deutlich kleiner ist.

Die modellierten Geschwindigkeitskonstanten für die heterogene Reaktion  $N_2O_5 + H_2O$  (Gleichung 1.49) sind entsprechend der Oberflächen der PSC-Teilchen ebenfalls unterschiedlich (Abbildung 4.9). Es ist zu erkennen, dass die grössten Werte von  $\kappa$  mit  $1 \cdot 10^{-17} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$ , entsprechend den grössten Oberflächen, bei den Eisteilchen auftreten. Die Geschwindigkeitskonstanten der Reaktion an flüssigem Aerosol sind mit bis zu  $5 \cdot 10^{-18} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$  etwas niedriger, wohingegen  $\kappa$  an NAT mit maximal  $4 \cdot 10^{-22} \frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$  um einige Zehnerpotenzen kleiner ist.

Dies entspricht der Tatsache, dass die heterogenen Reaktionen bei Vorhandensein sowohl des PSC-Typs 1a als auch 1b primär an STS bzw. flüssigen stratosphärischem Aerosol stattfindet [Peter et al., 1999]. Bilden sich PSCs des Typs 2, so finden hier die grössten Reaktionsraten der heterogenen Reaktionen statt<sup>5</sup>. Je nach Höhenbereich ist die Verteilung der PSCs aber unterschiedlich, so dass je nach Höhe und auch Zeitpunkt ein anderer PSC-Typ der wichtigste Träger der Umsetzung der heterogenen Reaktionen sein kann.

### 4.3.3 Die Sedimentation der PSC-Teilchen im PSC-Modul

Im neuen PSC-Modul wird die Sedimentation der festen Teilchen nicht wie im alten Modul für nur eine feste Phase berechnet, sondern es wird nach NAT- und Eisteilchen unterschieden. Durch die Ermittlung der Sedimentation, über die Kalkulation der Sedimentationsgeschwindigkeit und die Veränderung von  $HNO_3$  sowie auch  $H_2O$  in den jeweiligen Gitterboxen, kann die Denitrifizierung und Dehydratation der unteren Stratosphäre berechnet werden.

#### Die Sedimentationsgeschwindigkeit

Die Berechnung der Sedimentationsgeschwindigkeit der festen Teilchen ( $v_{sed(solid)}$  in  $\frac{m}{s}$ ) wird im alten PSC-Modul nach einer Parameterisierung von Waibel [1997] durchgeführt.  $v_{sed(solid)}$  ist dabei abhängig von der Temperatur, dem Druck und dem mittleren Radius der festen Teilchen ( $r_{solid}$ , siehe Gleichung 4.11).

Im neuen PSC-Modul wird die Sedimentationsgeschwindigkeit für die Eisteilchen ( $v_{sed(ICE)}$ ) und die NAT-Teilchen ( $v_{sed(NAT)}$ ) separat berechnet. Die Berechnung von  $v_{sed(ICE)}$  erfolgt dabei mit Hilfe von  $r_{ICE}$  entsprechend den Kalkulationen von  $v_{sed(solid)}$  im alten Modul (Parameterisierung von Waibel [1997]).

Die Berechnung von  $v_{sed(NAT)}$  wurde dagegen neu ins PSC-Modul eingebaut und basiert auf Carslaw et al. [2002]. Bei der Sedimentationsgeschwindigkeit der NAT-Teilchen wird unterschieden nach der Grösse der Teilchen, d.h. die Sedimentationsgeschwindigkeit wird für jede Grössenklasse berechnet ( $v_{sed(NAT)bin}$ ).  $v_{sed(NAT)bin}$  ist somit abhängig vom Radius des jeweiligen NAT-Partikel in der entsprechenden Grössenklasse ( $r_{NATbin}$ ) sowie von einem sogenannten Sedimentationsfaktor ( $S$  in  $\frac{1}{ms}$ ) und wird wie folgt berechnet:

$$v_{sed(NAT)bin} = S r_{NATbin}^2 \quad (4.26)$$

Die Berechnung des Sedimentationsfaktors erfolgt nach Gleichung 4.27:

$$S = \frac{2g\rho_{NAT}C_c}{9\eta_a} \quad (4.27)$$

mit  $g$ =Erdbeschleunigung ( $9.81\frac{m}{s^2}$ ),  $\rho_{NAT}$ =kristalline Massendichte von NAT ( $1626\frac{kg}{m^3}$ ),  $C_c$ = „Cunningham slip flow correction factor“ (dimensionslos) und  $\eta_a$ =Viskosität der Luft (in  $\frac{g}{ms}$ ).

<sup>5</sup>Vorausgesetzt die Reaktionswahrscheinlichkeiten für die drei PSC-Typen weichen bei der jeweiligen heterogenen Reaktion nicht zu stark voneinander ab.

Der „Cunningham slip flow correction factor“ wird dabei noch einmal separat berechnet:

$$C_c = 1 + \frac{l_{HNO_3}}{r_{NAT_{bin}}} \left[ 1.257 + 0.4e^{\left( \frac{-1.1r_{NAT_{bin}}}{l_{HNO_3}} \right)} \right] \quad (4.28)$$

mit  $l_{HNO_3}$ =mittlere freie Weglänge der  $HNO_3$ -Partikel (in m).

Die berechneten Sedimentationsgeschwindigkeiten der NAT-Teilchen, eingeteilt in 7 Grössenklassen wie in van den Broek et al. [2004] und in 8 Grössenklassen wie im neuen PSC-Modul, sind in Abbildung 4.10 dargestellt. Hier wird noch einmal deutlich, warum die 7. Grössenklasse in zwei Unterklassen geteilt wurde.

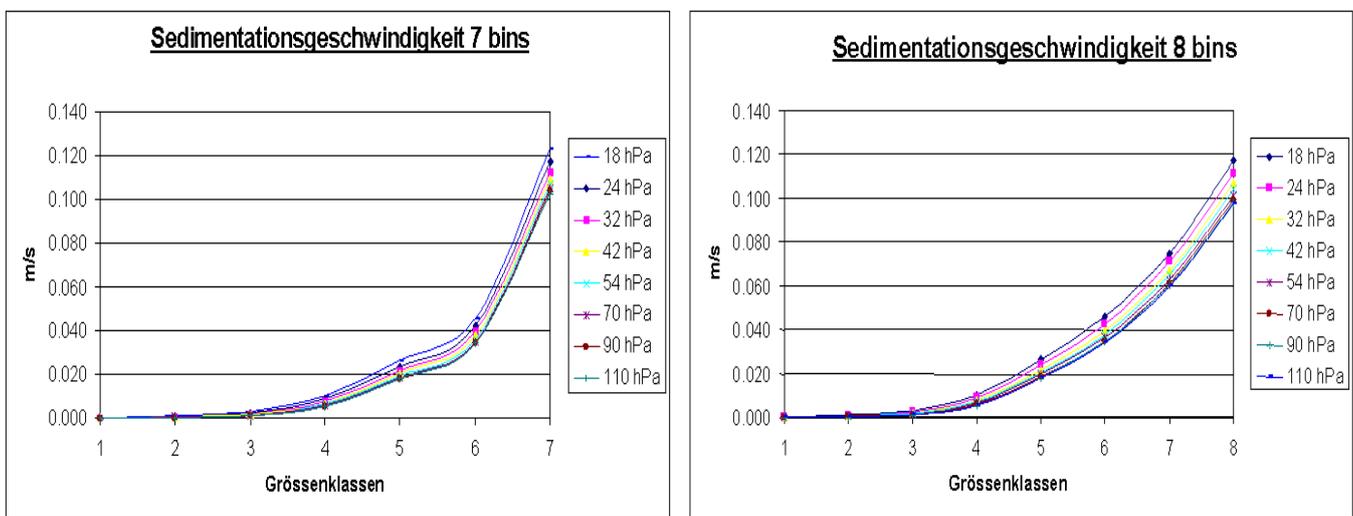


Abbildung 4.10: Mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit ( $v_{sed}$  in  $\frac{m}{s}$ ) der NAT-Partikel bei Einteilung in 7 Grössenklassen (links) und 8 Grössenklassen (rechts)

## Der Sedimentationsweg

Die Sedimentation selbst wird über einen Sedimentationsweg ( $SedStep$  in Pa) berechnet, der angibt, wie gross die vertikale Distanz des fallenden Partikels in einem Zeitschritt ist. Da die vertikale Koordinate der Druck ist, ist  $SedStep$  in Pascal angegeben:

$$SedStep = \frac{gM_{AIR}pv_{sed}\Delta t}{R_{gas}T} \quad (4.29)$$

mit  $g$ =Erdbeschleunigung ( $9.81 \frac{m^2}{s}$ ),  $M_{AIR}=0.02897 \frac{kg}{mol}$ ,  $p$ =Druck (in Pa),  $R_{gas}$ =universelle Gaskonstante ( $8.31 \frac{J}{Kmol}$ ) und  $T$ =Temperatur (in K).

$SedStep$  wird im alten PSC-Modul für die festen Teilchen ( $SedStep_{solid}$ ) und im neuen Modul für die Eisteilchen ( $SedStep_{ICE}$ ) sowie für die NAT-Teilchen der entsprechenden Grössenklassen ( $SedStep_{NAT_{bin}}$ ) berechnet.

## Die Denitrifizierung und Dehydratation

Mit Hilfe des Sedimentationswegs wird die Denitrifizierung von  $HNO_3$  in der Stratosphäre berechnet. Im alten PSC-Modul wird dabei  $SedStep_{solid}$  verwendet, im neuen Modul wird die Berechnung für jede Grössenklasse durchgeführt ( $SedStep_{NAT_{bin}}$ ). Es wird dabei für jede Gitterbox die Veränderung von  $HNO_3$  ( $HNO_{3(change)_{bin}}$  in  $\frac{mol}{mol}$ ) kalkuliert:

$$HNO_{3(change)_{(i,j,k)}} = \frac{HNO_{3(i,j,k-1)} \cdot SedStep_{NAT(i,j,k-1)}}{p_{bottom(i,j,k-1)} - p_{top(i,j,k-1)}} - \frac{HNO_{3(i,j,k)} \cdot SedStep_{NAT(i,j,k)}}{p_{bottom(i,j,k)} - p_{top(i,j,k)}} \quad (4.30)$$

$p_{bottom(i,j,k)}$  und  $p_{top(i,j,k)}$  sind dabei der Druck am unteren und oberen Rand der entsprechenden Gitterbox (des Längenkreis  $i$ , Breitenkreis  $j$  und in der Höhenschicht  $k$ ) und  $HNO_{3(i,j,k)}$  das  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnis in dieser Gitterbox. Im neuen PSC-Modul ist dabei zu beachten, dass

$$HNO_{3(change)} = \sum_{bin=1}^8 HNO_{3(change)_{bin}} \quad (4.31)$$

ist. Das neue  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnis berechnet sich dann wie folgt:

$$HNO_{3(new)} = HNO_{3(old)} + HNO_{3(change)} \quad (4.32)$$

Für die Veränderung des  $H_2O$ -Volumenmischungsverhältnis ( $H_2O_{(change)}$ ) werden für jede Gitterbox die gleichen Berechnungen durchgeführt, wobei im neuen PSC-Modul  $SedStep_{ICE}$  und im alten PSC-Modul  $SedStep_{solid}$  verwendet wird. Die Dehydratation kann so ebenfalls berechnet werden.

## 4.4 Beschreibung der Modellsimulationen

Mit ECHAM5/MESy1 (Version 1.4) wurden zwei Simulationen, eine mit alter und eine mit neuer PSC-Parameterisierung für den Zeitraum von November 2002 bis Ende 2007 durchgeführt.

Für die Simulationen wurden dabei die horizontale Auflösung T42 ( $2.8^\circ$ ) und eine vertikale Auflösung von 39-Modellschichten gewählt. Das Modell wurde während der durchgeführten Simulationen mit Analysen des ECMWF genutzt. Das Nudging wurde dabei bis zu einer Höhe von 13 hPa (ca. 30.2 km) durchgeführt.

Bei beiden Modellsimulationen wurden die Module CLOUD, CONVECT, CVTRANS, DRYDEP,  $H_2O$ , HETCHEM, JVAL, LNOX, MECCA, OFFLEM, ONLEM, PSC, PTRAC, QBO, RAD4ALL, SCAV, SEDI, TNUDGE und TROPOP verwendet.

Mit Hilfe des Moduls MECCA [Sander et al., 2005] wurde für die Modellsimulationen die sogenannte „EVAL“-Chemie verwendet. Sie umfasst für die Troposphäre die Ozon-relevante Chemie inklusive der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHCs) bis zu Isopren, sowie die bekannte stratosphärische Chemie inklusive der hauptsächlichlichen Chlor- [Steil et al., 1998] und Bromreaktionen [Meilinger, 2000].

Bei der Modellsimulation mit der bisherigen thermodynamischen NAT-Parametrisierung wurden die Standardeinstellungen verwendet. Diese beinhalten nicht die homogene Nukleation von NAD und deren Umwandlung zu NAT [Tabazadeh et al., 2002] sondern nur die Bildung von NAT über Eisteilchen [Carslaw et al., 1998].

Bei der Bildung von Eispartikeln wurde im Modell eine Unterkühlung von 1.5 K (siehe Namelist in Anhang E) bezüglich der Eiskondensationstemperatur ( $T_{ICE}$ ) festgelegt, um so die nötige Übersättigung zur Bildung von Eispartikeln zu berücksichtigen. Die 1.5 K sind dabei ein Kompromiss zwischen der Annahme der homogenen Nukleation von Eis aus flüssigem stratosphärischen Aerosol (SSA,STS) [Tabazadeh et al., 1997; Carslaw et al., 1998; Koop et al., 2000], welche höhere, und der heterogenen Nukleation von Eis an SAT-Teilchen, welche niedrigere Unterkühlungen benötigt [Fortin et al., 2003].

Der minimale Radius ( $r_{min}$ ), mit dessen Hilfe die Anzahldichte der festen Teilchen berechnet wird, ist in der Simulation mit alter NAT-Parameterisierung auf  $0.1 \mu m$  festgelegt, die maximale Anzahldichte  $N_{max}$  für die festen Teilchen liegt bei  $10000 \frac{1}{m^3}$ .

Die Modellsimulation mit der neuen NAT-Parameterisierung versucht der homogenen Nukleation von NAD und dessen Umwandlung zu NAT zu entsprechen, in dem zur Bildung von NAT eine notwendige Unterkühlung von 3 K angenommen wird. Diese Unterkühlung entspricht zum einen der NAD-Kondensationstemperatur [Carslaw et al., 2002] und ist zum anderen durch arktische Messungen [Schlager et al., 1990; Dye et al., 1992] begründet, in welchen die NAT-Bildung erst bei ca. 3 K unter der NAT-Kondensationstemperatur beobachtet wurde.

Für die Bildung von Eis wurde im neuen PSC-Modul die gleiche Unterkühlung von 1.5 K wie im alten PSC-Modul gewählt. Ebenfalls ist  $r_{min}$  gleich gesetzt. Es wird allerdings eine andere maximale Anzahldichte ( $N_{max}$ ) mit  $25000 \frac{1}{m^3}$  festgelegt, welche hier den oberen Wert für die Anzahldichte von  $N_{ICE}$  darstellt. Die Notwendigkeit dieses höheren Betrages ist darin begründet, dass in der neuen Simulation nicht mehr  $N_{solid}$  und  $r_{solid}$  für die Berechnung der heterogenen Reaktionsraten auf NAT verwendet werden, sondern  $N_{NAT}$  und  $r_{NAT}$ , wobei  $N_{NAT}$  mit simulierten Werten im Bereich von  $10^2 \frac{1}{m^3}$  (siehe unten) deutlich geringer ist als  $N_{solid}$  mit Werten im Bereich  $10^4 \frac{1}{m^3}$ .

Die in dieser Simulation (im Vergleich zur Simulation mit der thermodynamischen NAT-Parameterisierung) entstehenden geringeren heterogenen Reaktionsraten auf NAT während des antarktischen Winters werden so durch höhere heterogene Reaktionsraten auf Eis ausgeglichen. Die Anzahldichte von  $25000 \frac{1}{m^3}$  liegt dabei im Bereich der beobachteten Anzahldichten, welche je nach Autor im Bereich von  $10^2 \frac{1}{m^3}$  bis  $5 \cdot 10^5 \frac{1}{m^3}$  liegen (Hofmann et al., 1989; Dye et al., 1992; Voigt et al., 2000; Fahey et al., 2001; Newman et al., 2003; Brooks et al., 2004).

## 4.5 Ergebnisse der Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung

Mit Hilfe der neuen PSC-Parameterisierung werden die NAT-Partikel, wie in Abschnitt 4.1 beschrieben, in verschiedene Grössenklassen eingeteilt. Um das Wachstum über die 8 Grössenklassen darzustellen, wird hier die Entwicklung der NAT-Verteilung im Mai 2004 während des Anfangs des südhemisphärischen Winters gezeigt.

Zunächst werden die Temperaturverteilungen im Mai 2004 (Abbildung 4.11) betrachtet. In allen Abbildungen ist die Temperatur von 194.2 K und 191.2 K gekennzeichnet. 194.2 K charakterisiert dabei die NAT-Kondensationstemperatur. Diese ist gültig für die angegebene Druckhöhe von 54 hPa und für ein  $H_2O$ -Mischungsverhältniss von 4.2 ppmv und ein  $HNO_3$ -Mischungsverhältnis von 5.2 ppbv. Mit höheren [tieferen] Mischungsverhältnissen von  $H_2O$  und/oder  $HNO_3$  steigt [sinkt] die NAT-Kondensationstemperatur über [unter] 194.2 K (siehe Anhang F).

Unterschreitet die lokale Temperatur die NAT-Kondensationstemperatur, so wird der Wachstumsfaktor für die NAT-Teilchen ( $G$  in Gleichung 4.19) positiv. Sind allerdings an dem lokalen Gitterpunkt noch keine NAT-Teilchen vorhanden, so muss zuerst die Initialisierungstemperatur von 191.2 K unterschritten werden, welche die in dieser Simulation festgelegte notwendige Unterkühlung von 3 K berücksichtigt.

Wird an einem Gitterpunkt die Initialisierungstemperatur unterschritten, so findet an diesem ein relativ schnelles Wachstum der NAT-Teilchen statt, da nach Auftreten der ersten NAT-Teilchen die notwendige Unterkühlung nicht mehr nötig ist. Diese NAT-Teilchen werden in den darauffolgenden Zeitschritten in angrenzende Gitterboxen transportiert, so dass in diesen die Unterkühlung ebenfalls nicht mehr notwendig ist und dort, soweit die lokale Temperatur unter der NAT-Kondensationstemperatur liegt, ebenfalls ein NAT-Wachstum stattfindet.

In Abbildung 4.11 (oben links) ist in den zonalen Mitteln der Temperatur zu erkennen, dass die Temperatur in Richtung Südpol kontinuierlich von Anfang Mai an absinkt. Es ist ersichtlich, dass die Temperatur auf 87.9°S am 16. Mai 2004 die Initialisierungstemperatur von 191.2 K erreicht. Auf 85.1°S wird diese einen Tag später erreicht. Betrachtet man die zonal abhängigen Zeitserien

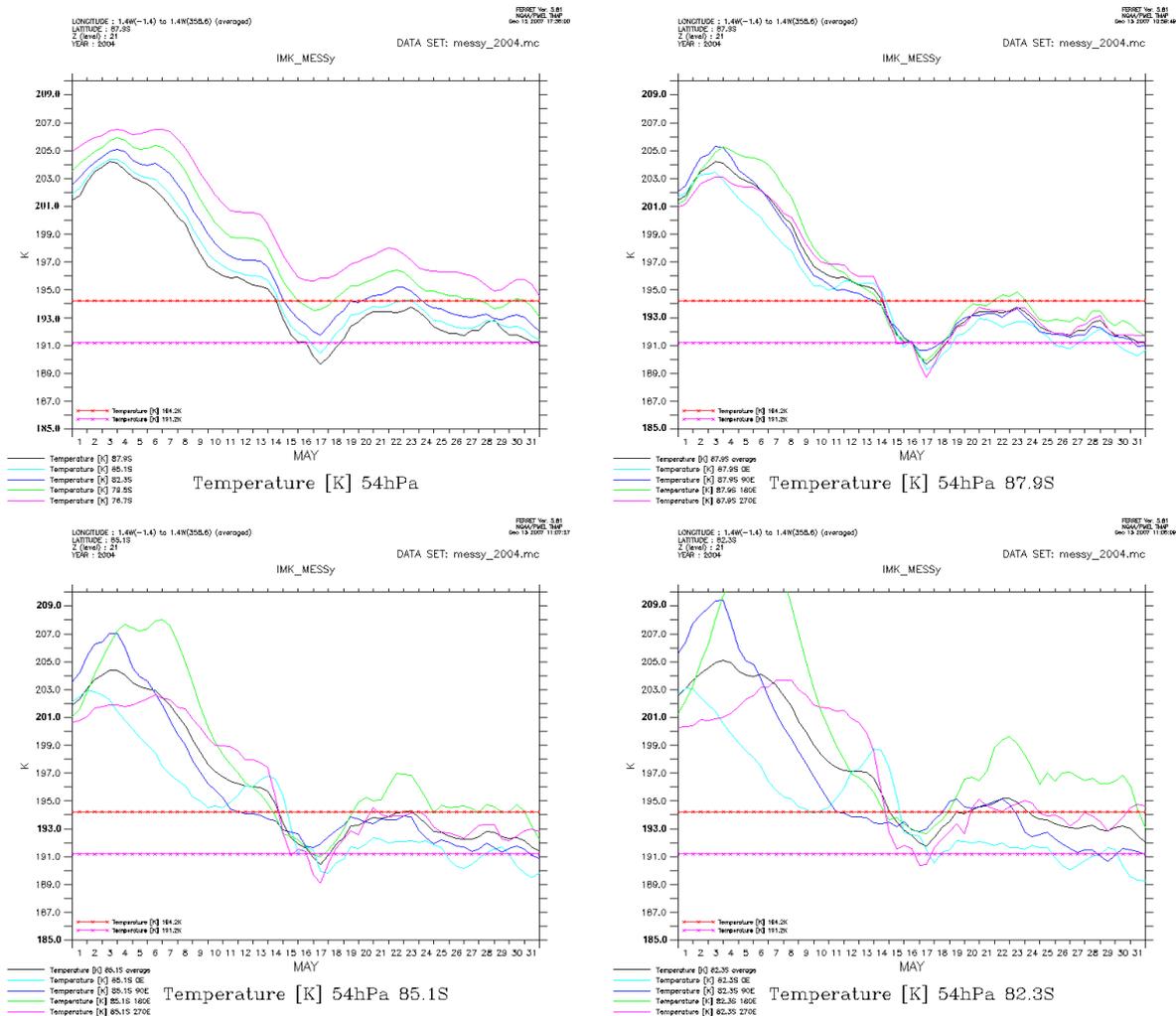


Abbildung 4.11: Zeitserie der Temperatur (in K) auf 54 hPa (ca. 20.5 km) für den Mai 2004 in den südhemisphärischen hohen Breiten. Links oben: zonal gemittelte Temperaturen für die Breitenkreise: 87.9°S (schwarz), 85.1°S (hellblau), 82.3°S (blau), 79.5°S (grün) und 76.7°S (violett). Die anderen drei Abbildungen zeigen die Temperaturen zonal abhängig von bestimmten Längengraden. Dabei werden die Breitenkreise 87.9°S (rechts oben), 85.1°S (links unten) und 82.3°S (rechts unten) betrachtet. Es sind die Längengrade 0°O (hellblau), 90°O (blau), 180°O (grün) und 90°W bzw. 270°O (violett), sowie das zonale Mittel (schwarz) dargestellt. Bei allen Abbildungen sind die Temperaturen 194.2 K (rote Gerade) und 191.2 K (rosa Gerade) gekennzeichnet.

der Temperaturen (Abbildung 4.11 (oben rechts bis unten rechts)), so ist zu erkennen, dass die Temperaturen auf einem Breitenkreis nicht homogen sind. Die zonale Abhängigkeit der Temperatur nimmt dabei mit abnehmender Breite zu. Auf  $87.9^\circ\text{S}$  und  $270^\circ\text{O}$  und  $85.1^\circ\text{S}$  und  $270^\circ\text{O}$  wird dabei am frühesten, nämlich am 15. Mai 2004 (12 Uhr), die Initialisierungstemperatur erreicht. Die ersten NAT-Teilchen werden so in dieser Region gebildet. Durch Transport in umliegende Gitterboxen wird ein Wachstum der NAT-Teilchen initiiert.

Um das Wachstum der NAT-Teilchen im Modell nachzuvollziehen, ist, wie erwähnt, neben der Betrachtung der lokalen Temperatur auch die Betrachtung der  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Mischungsverhältnisse nötig, da die NAT-Kondensationstemperatur von diesen abhängt. In Abbildung 4.12 sind daher diese drei Größen und in Abbildung 4.13, um das Wachstum der NAT-Teilchen über die verschiedenen Größenklassen zu verdeutlichen, das in NAT gebundene  $\text{HNO}_3$  für verschiedene Größenklassen für den Zeitraum vom 15.5.2004 bis zum 18.5.2004 dargestellt. Es wurden dabei die Größenklassen 1 ( $0 \mu\text{m}$  bis  $0.2 \mu\text{m}$ ), 4 ( $2.0 \mu\text{m}$  bis  $6.0 \mu\text{m}$ ) und 5 ( $6.0 \mu\text{m}$  bis  $9.0 \mu\text{m}$ ) zur Verdeutlichung ausgewählt.

Am 15. Mai 2004 00:00 Uhr ist die Temperatur nirgends innerhalb der südlichen, hohen Breiten unter die Initialisierungstemperatur von  $191.2 \text{ K}$  gefallen. Die Region, in welcher Mischungsverhältnisse von  $\text{H}_2\text{O}$  über  $4.2 \text{ ppmv}$  und von  $\text{HNO}_3$  über  $5.2 \text{ ppbv}$  vorkommen, umfasst noch fast, mit Ausnahmen in der Region um  $70^\circ\text{S}$ ,  $270^\circ\text{O}$ , den ganzen Bereich südlich von  $70^\circ\text{S}$  und darüber hinaus. Am 16. Mai 2004 00:00 Uhr ist die Temperatur in einer Region von  $90^\circ\text{S}$  bis ca.  $82^\circ\text{S}$  um den Längengrad von  $315^\circ\text{O}$  unter  $191.2 \text{ K}$  gesunken.

Das Unterschreiten der Initialisierungstemperatur und somit die erste Bildung von NAT-Teilchen in der Größenklasse 1 fand so im Laufe des 15. Mai 2004 statt. Aufgrund des Transports und der Diffusion dieser NAT-Teilchen in den nach der Initialisierung folgenden Zeitschritten ist in der Darstellung von  $\text{HNO}_{3(\text{NAT})}$  in Größenklasse 1 schon die gesamte Region, in der die Temperatur unter die gegebene NAT-Kondensationstemperatur von  $194.2 \text{ K}$  gefallen ist, mit NAT-Teilchen bedeckt. Es sind sogar schon erste NAT-Teilchen über  $2 \mu\text{m}$  gewachsen, so dass diese in Größenklasse 4 ersichtlich sind. Nach Initialisierung findet so im Modell ein recht starkes Wachstum statt. Vor allem horizontal findet, aufgrund des sehr schnellen Ausbreitens durch Diffusion und Transport, eine erste Bildung auch in Regionen statt, in welchen die Initialisierungstemperatur von  $191.2 \text{ K}$  nicht unterschritten ist.

In den zwei folgenden Tagen findet in den Gebieten, in denen die Temperatur unter der NAT-Kondensationstemperatur liegt, ein Wachstum der NAT-Teilchen statt, so dass auch in der 5. Größenklasse ab dem 17. Mai NAT-Anzahldichten ersichtlich sind. In der 4. Größenklasse breitet sich das Gebiet mit PSCs (Typ 1a) vom 16. Mai bis 18. Mai nach Norden, Nordosten, Osten und Südosten aus. Vom Pol aus Richtung Westen und Südwesten findet keine Ausbreitung statt. Dies ist verursacht durch ein Vordringen von westlichen Luftmassen mit niedrigeren Mischungsverhältnissen von  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$  Richtung Pol. Niedrigere Werte von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3$  führen zu einem geringeren Wachstumsfaktor, so dass sich das Wachstum der NAT-Teilchen nur noch langsam fortsetzt oder gar nicht mehr stattfindet.

Am 17. Mai 2004 und 18. Mai 2004 sind so in Gebieten unterhalb  $194.2 \text{ K}$  überall NAT-Teilchen mit sehr kleinen Radien vorhanden (Größenklasse 1), das Wachstum zu grösseren Teilchen mit Radien über  $2 \mu\text{m}$  (Größenklasse 4 und 5) hat aber nur dort stattgefunden, wo zusätzlich zu der tiefen Temperatur auch höhere Mischungsverhältnisse von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3$  vorhanden sind.

Durch die Darstellung des Wachstums der NAT-Teilchen von der Größenklasse 1 über die Größenklasse 4 bis hin zur Größenklasse 5 ist ersichtlich, dass die neue PSC-Parameterisierung erfolgreich implementiert wurde. Die Größenklasse 2 (nicht gezeigt) verhält sich dabei fast identisch mit Größenklasse 1, Größenklasse 3 (nicht gezeigt) hat eine ähnliche Verteilung wie Größenklasse 4.

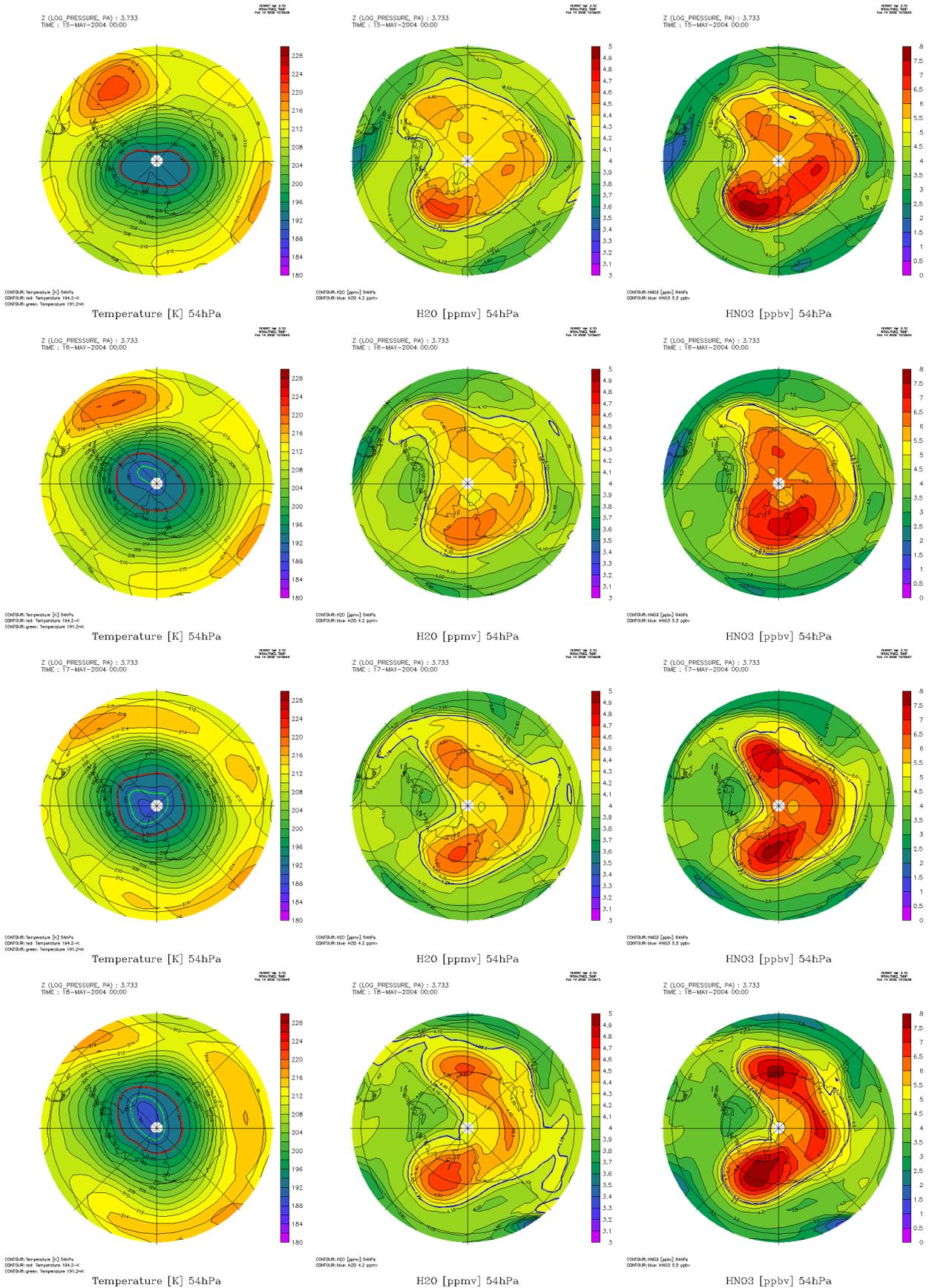


Abbildung 4.12: Entwicklung der Temperatur (in K) (links), H<sub>2</sub>O in ppmv (Mitte) und HNO<sub>3</sub> in ppbv (rechts) auf 54 hPa (ca. 20.5 km) für die südpolaren Breiten südlich von 50° und die Zeitperiode 15.05.04 bis 18.05.04 jeweils 0 UT (von oben nach unten). Bei der Temperatur sind 194.2 K (rote Linie) und 191.2 K (grüne Linie), bei H<sub>2</sub>O 4.2 ppmv (blaue Linie) und bei HNO<sub>3</sub> 5.2 ppbv (blaue Linie) gekennzeichnet. Gitterabstände: Breitenkreise 20°, Längengrade 45°

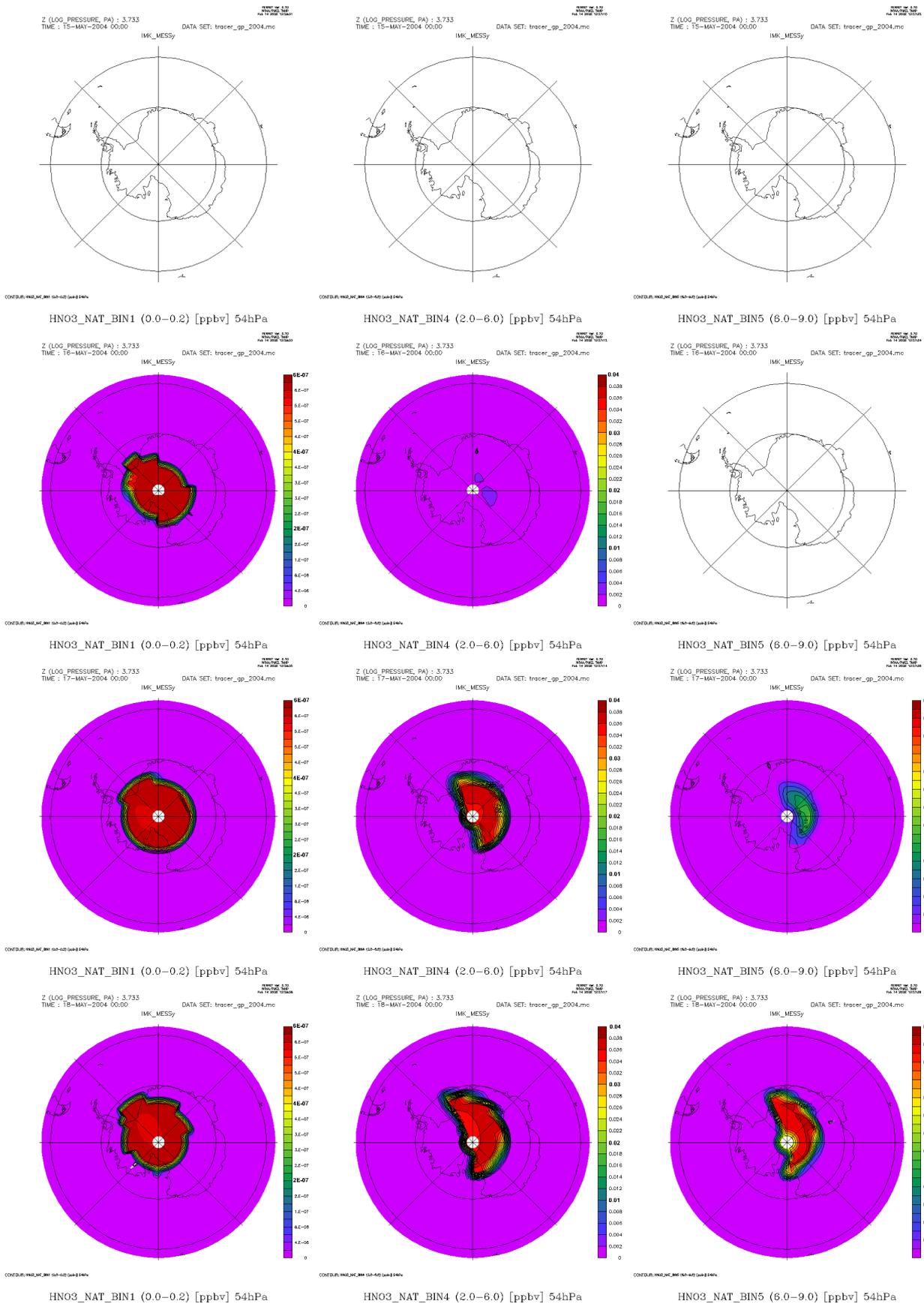


Abbildung 4.13: Wachstum der NAT-Teilchen über verschiedene Grössenklassen dargestellt als  $HNO_3$  in NAT mit den Grössenklassen 1 (0.0 bis 0.2  $\mu m$ ) (links), 4 (2.0 bis 6.0  $\mu m$ ) (Mitte) und 5 (6.0 bis 9.0  $\mu m$ ) (rechts) auf 54 hPa (ca. 20.5 km) für die südpolaren Breiten und die Zeitperiode 15.05.04 bis 18.05.04 jeweils 0 UT (von oben nach unten). Gitterabstände: Breitenkreise 20°, Längengrade 45°

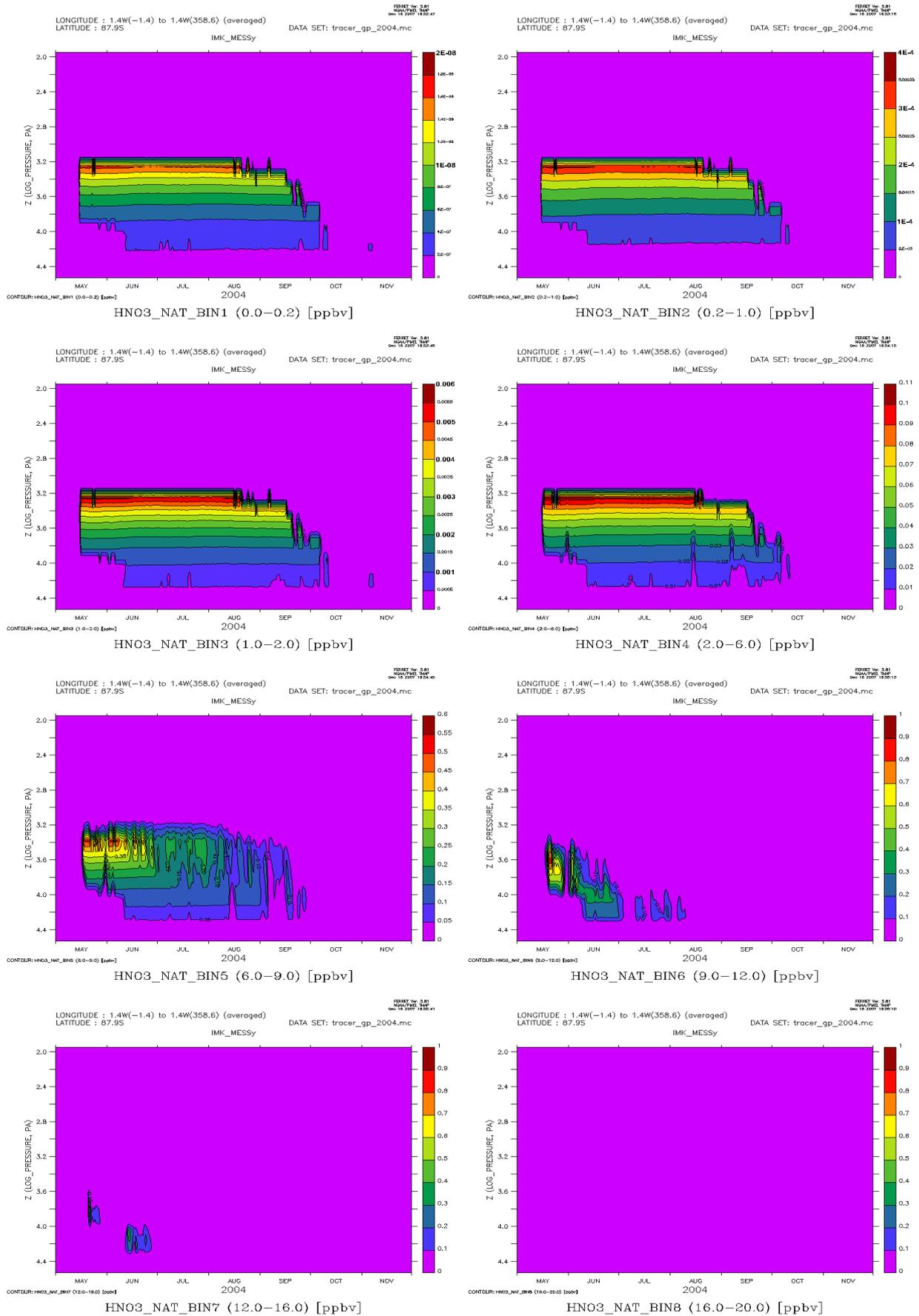


Abbildung 4.14: Zonal gemittelte Zeitserien der NAT-Teilchen, dargestellt als  $HNO_3$  in NAT (in ppbv) in den Grössenklassen 1 bis 8 am Südpol für die Stratosphäre (von 1 hPa (ca. 48.5 km) bis 250 hPa (ca. 9.8 km)) von April bis November 2004

Um die zeitliche Entwicklung der verschiedenen NAT-Größenklassen zu verdeutlichen, sind in Abbildung 4.14 die Größenklassen 1 bis 8 dargestellt. Es sind dabei 8 Zeitserien des  $HNO_3_{(NAT)}$  am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) für den Höhenbereich der Stratosphäre gezeigt. Es werden so NAT-Radien bis  $20 \mu m$  berücksichtigt, wobei Radien über  $16 \mu m$  am Südpol in diesem Zeitraum nicht simuliert werden. Da in der Abbildung Volumemischungsverhältnisse von  $HNO_3_{(NAT)}$  verwendet werden, die Berechnung der NAT-Teilchen aber in Anzahldichten stattfindet (maximal  $230 \frac{1}{m^3}$ ), welche die Grundlage für die Berechnung von  $HNO_3$  in NAT sind, sind die dargestellten Werte höhen- bzw. dichteabhängig. Bei gleichbleibender Anzahldichte der NAT-Teilchen erhöht sich das Mischungsverhältnis von  $HNO_3$ , welches in NAT gebunden ist, mit abnehmender Dichte.

Die Bildung von NAT beginnt, wie erwähnt, während des 15. Mai 2004. Mit Beginn des 16. Mai sind NAT-Teilchen in den Größenklassen 1 bis 3 auf  $87.9^\circ S$  vorhanden, d.h. die grössten Teilchen sind zu diesem Zeitpunkt maximal  $2 \mu m$  gross. In den folgenden Tagen wachsen die NAT-Teilchen, so dass auch in den Größenklassen 4 bis 7 NAT-Partikel vorhanden sind. Die ersten Teilchen mit Radien über  $12 \mu m$  treten dabei am 19. Mai 2004 in den Höhen von 40 hPa bis 90 hPa auf. Diese sehr grossen Teilchen („NAT-Rocks“) sind allerdings nicht sehr lange vorhanden. Sie entstehen nur unter optimalsten Bedingungen für NAT, d.h. sehr tiefen Temperaturen und hohen Mischungsverhältnissen von  $HNO_3$ . Dem entsprechend sind sie in der Stratosphäre auch nicht sehr lange vorhanden. Sie werden sehr schnell sedimentiert oder schrumpfen wieder.

So sedimentieren zuerst die grössten NAT-Partikel mit Radien über  $9 \mu m$  und darauffolgend Partikel mit Größen über  $6 \mu m$ . Anfang September befinden sich z.B. nur noch wenige Partikel der Größenklasse 5 in der Stratosphäre, wohingegen die kleineren Partikel der Größenklassen 1 bis 4 in den Druckhöhen von 20 hPa bis 150 hPa noch zahlreich vorhanden sind. NAT-Partikel der Größenklassen 6 und 7 sind zu diesem Zeitpunkt nicht mehr existent.

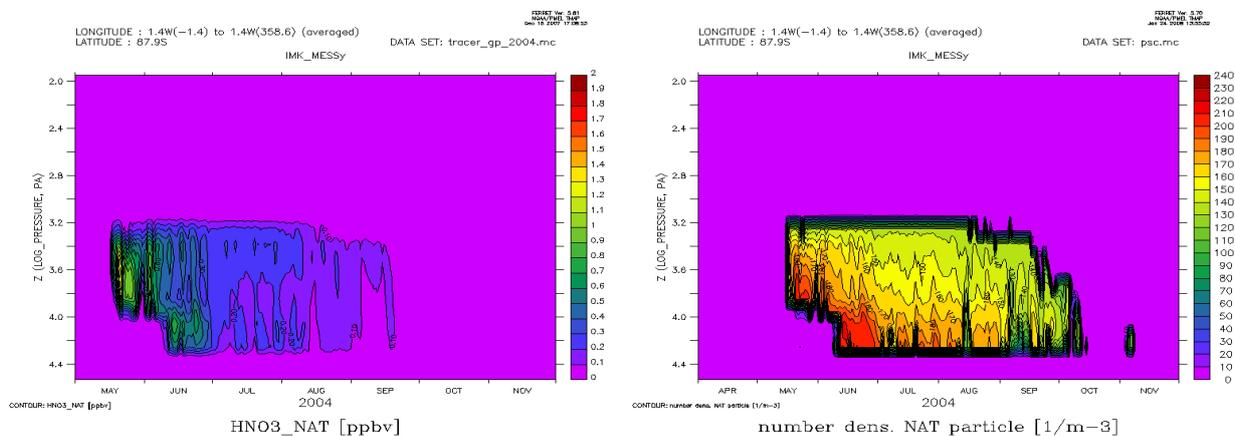


Abbildung 4.15: Zonal gemittelte Zeitserien des  $HNO_3$  in NAT (in ppbv) (links) und der NAT-Anzahldichte (in  $\frac{1}{m^3}$ ) (rechts) für die Stratosphäre (von 1 hPa (ca. 48.5 km) bis 250 hPa (ca. 9.8 km)) von April bis November 2004

In Abbildung 4.15 (links) ist das gesamte  $HNO_3$  aller Größenklassen, welches in NAT gebunden ist, dargestellt, in Abbildung 4.15 (rechts) die Anzahldichte von NAT. Es ist zu erkennen, dass im Laufe des südhemisphärischen Winters die Anzahldichte von NAT und damit gekoppelt das Mischungsverhältnis von  $HNO_3_{NAT}$  abnimmt. Dies ist verursacht durch die Entfernung der grösseren NAT-Partikel aus der Stratosphäre durch Sedimentation und der damit verbundenen Denitrifizierung, welche zu niedrigeren  $HNO_3$ -Mischungsverhältnissen führt, welche kein neues Wachstum von mittleren zu grösseren NAT-Partikeln zulassen.

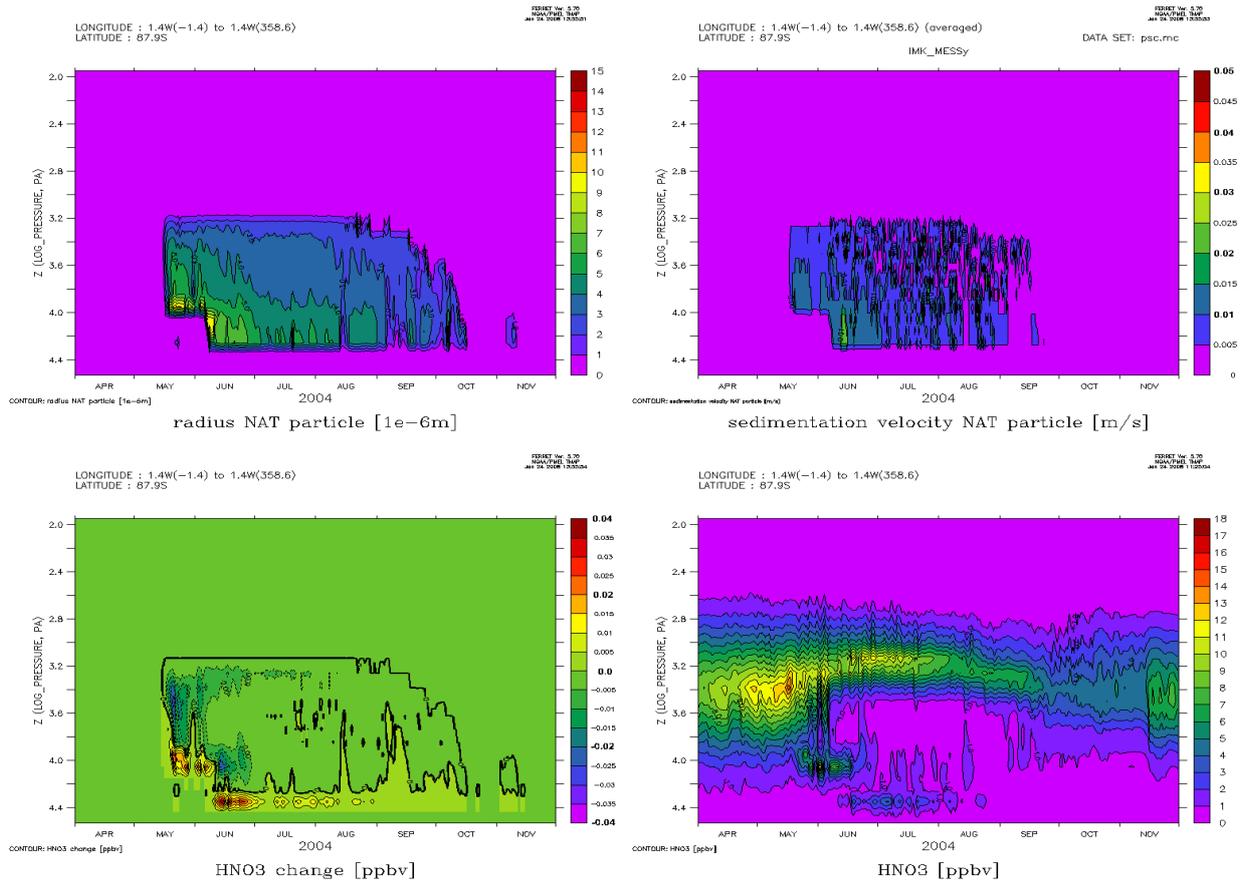


Abbildung 4.16: Zeitserie der NAT-Radien (in  $\mu m$ ) (oben links), der Sedimentationsgeschwindigkeit (in  $\frac{m}{s}$ ) (oben rechts), der  $HNO_3$ -Änderung nach einem Zeitschritt (in ppbv) (unten links) und des  $HNO_3$ -Mischungsverhältnisses (unten rechts) am Südpol für die Stratosphäre (von 1 hPa (ca. 48.5 km) bis 250 hPa (ca. 9.8 km)) von April bis November 2004

In Folge dessen ist in Abbildung 4.16 (oben links) erkennbar, dass der mittlere Radius der NAT-Partikel von Mitte Mai bis Anfang Oktober in der PSC-Region kontinuierlich abnimmt. Dies führt zu ebenfalls abnehmenden Sedimentationsgeschwindigkeiten, dargestellt in Abbildung 4.16 (oben rechts). Der mittlere Radius erreicht sein Maximum über dem Südpol kurz nach der Entstehung von NAT Mitte Mai 2004. Zu diesem Zeitpunkt ist noch soviel  $HNO_3$  vorhanden, dass noch grosse Partikel entstehen können. Der zonal gemittelte mittlere Radius nimmt zwischen 10 hPa ( $10^{3.2}$  Pa) und 60 hPa ( $10^{3.8}$  Pa) von ca. 2  $\mu m$  auf ca. 5  $\mu m$  zu. Im Höhenbereich von 80 hPa ( $10^{3.9}$  Pa) bis 100 hPa ( $10^{4.0}$  Pa) erreicht er sein Maximum von über 10  $\mu m$ .

Die Ursache des zunehmenden Radius liegt dabei wieder in der Sedimentation. In tieferen Schichten befinden sich grössere NAT-Partikel, welche aus höheren Schichten sedimentiert sind. Das Maximum von über 10  $\mu m$  ist allerdings nur dadurch zu erklären, dass an diesen Gitterpunkten ausschliesslich grössere NAT-Partikel vorhanden sind, welche durch Sedimentation eingebracht sind und aufgrund der Umgebungsvariablen keine kleinere NAT-Partikel entstehen können.

Im Laufe des weiteren zeitlichen Verlaufes von Juni bis Oktober 2004 sinkt der zonal gemittelte mittlere Radius aufgrund der immer kleineren NAT-Partikeln, was sich auch in einer immer kleiner werdenden Sedimentationsgeschwindigkeit ausdrückt.

Durch die Sedimentation der grösseren NAT-Partikel ändert sich die Verteilung von  $HNO_3$  in der Stratosphäre. Die Änderung von  $HNO_3$  innerhalb einer Gitterbox und eines Zeitschritts ist dabei in Abbildung 4.16 (unten links), sowie das Volumenmischungsverhältnisses von  $HNO_3$  in Abbildung 4.16 (unten rechts) dargestellt. In den Höhenschichten von 10 hPa bis 60 hPa ab Mitte Mai und 10 hPa bis 100 hPa ab Anfang Juni findet durch Sedimentation der NAT-Partikel eine Abnahme von  $HNO_3$  statt. In den Regionen, in denen die eingetragenen sedimentierten Partikel verdampfen, ab Mitte Mai bis Ende Mai von 80 hPa bis 100 hPa, ab Anfang Juni unter 100 hPa, wird  $HNO_3$  eingetragen.

Dies wird auch verdeutlicht durch die  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnisse. So sind die Regionen mit Eintrag der NAT-Teilchen aus höheren Schichten deutlich mit lokalen Maxima zu erkennen. In den Regionen, in denen  $HNO_3$  entfernt wird, sinken die Mischungsverhältnisse unter 1 ppbv, was im polaren Frühling zu einer Verzögerung der Ozonerholung führt (siehe Abschnitt 1.3).

Die Ausführungen in diesem Unterkapitel haben verdeutlicht, dass die Implementierung der neuen PSC-Parameterisierung im PSC-Modul von ECHAM5/MESy1 erfolgreich durchgeführt wurde. Sowohl das Wachstum und das Schrumpfen bzw. Verdampfen der NAT-Teilchen sowie deren Einordnung in die verschiedenen Grössenklassen ist erfolgreich nachzuvollziehen. Die charakteristische Bildung der PSC-Wolken des Typs 1a sowie auch die Sedimentation der NAT-Teilchen und die damit verbundenen Denitrifizierung der Stratosphäre ist im Modell ersichtlich.

## 4.6 Ein Vergleich der Simulationen mit neuer und bisheriger PSC-Parameterisierung

In diesem Unterkapitel findet ein Vergleich zwischen einer Simulation mit bisheriger thermodynamischer PSC-Parameterisierung („alte Simulation“), wie in Abschnitt 4.3.1 beschrieben, und einer Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung („neue Simulation“), basierend auf Wachstum und Verdunstung der NAT-Teilchen, beschrieben in Abschnitt 4.3.2, statt. Die Modellkonfiguration der beiden Simulationen, welche den Zeitraum von November 2002 bis Ende 2007 umfassen, sind in Abschnitt 4.4 beschrieben.

Zur Verdeutlichung der Unterschiede zwischen den beiden PSC-Parameterisierungen werden jeweils zwei Zeiträume der polaren Winter und Frühlinge der Nordhemisphäre und der Südhemisphäre diskutiert. Für die nördlichen polaren Breiten sind dabei die beiden Zeiträume November 2002 bis April 2003 und November 2006 bis April 2007 gewählt (Abschnitt 4.6.2), für die südlichen polaren Breiten die beiden Zeiträume April bis November 2003 und April bis November 2006 (Abschnitt 4.6.3).

### 4.6.1 Anzahl- und Oberflächendichte der PSC-Teilchen

Neben der unterschiedlichen PSC-Parameterisierung ist der Hauptunterschied zwischen den beiden durchgeführten Simulationen die vorgegebene maximale Anzahldichte ( $N_{max}$ , siehe PSC-Namelist, Anhang E) für feste Teilchen in der alten Parameterisierung bzw. Eisteilchen in der neuen Parameterisierung (siehe Abschnitt 4.4)<sup>6</sup>. In der alten Simulation beträgt  $N_{max}$  für feste Teilchen  $10000 \frac{1}{m^3}$ , in der neuen Simulation beträgt  $N_{max}$  für Eisteilchen  $25000 \frac{1}{m^3}$ . Dies hat Folgen für die mittleren Radien und Oberflächendichten der Teilchen.

<sup>6</sup>Feste Teilchen in der alten Simulation (siehe Gleichung 4.8 bis 4.10) und Eisteilchen in der neuen Simulation (siehe Gleichung 4.9 bis 4.10) werden dabei nach dem gleichen thermodynamischen Prinzip gebildet.

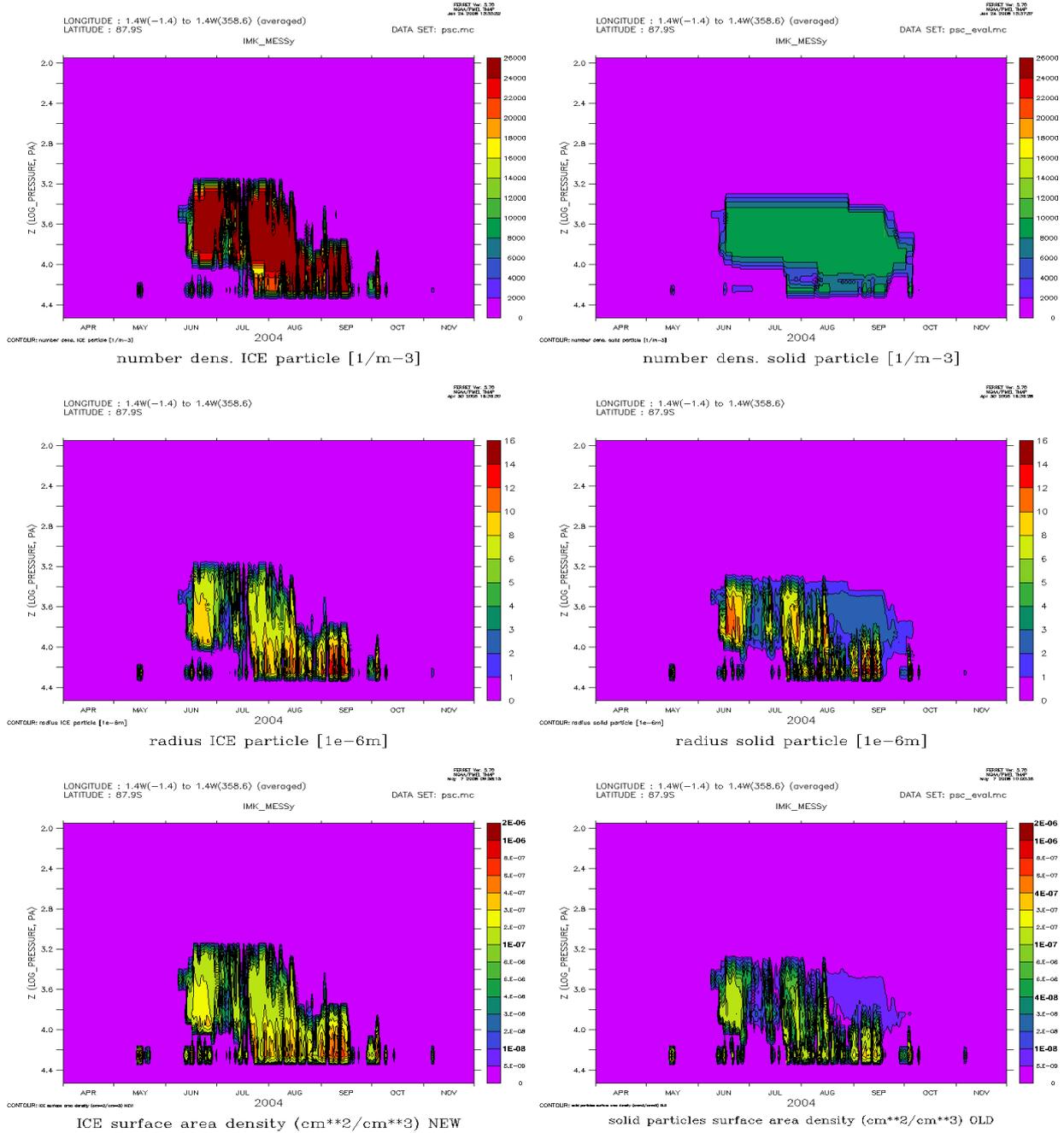


Abbildung 4.17: Zonal gemittelte Zeitserien der Anzahldichten (in  $\frac{1}{m^3}$ ) (oben), mittleren Radien (in  $\mu m$ ) (Mitte) und Oberflächendichte (in  $\frac{cm^2}{cm^3}$ ) (unten) der Eisteilchen (neue Simulation) (links) und festen Teilchen (alte Simulation) (rechts) am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) für die Stratosphäre ( $250 \text{ hPa}$  ( $10^{4.4} \text{ Pa}$ ) bis  $1 \text{ hPa}$  ( $10^{2.0} \text{ Pa}$ )) und den Zeitraum April bis November 2004

In Abbildung 4.17 (oben) werden die Unterschiede verdeutlicht. So ist hier zu erkennen, dass für den antarktischen Winter und Frühling 2004 am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) die Anzahldichten der Eisteilchen ( $N_{ICE}$ ) in der neuen Simulation zwischen Juni und September über mehrere Höhenschichten und längere Zeitperioden  $25000 \frac{1}{m^3}$  betragen. In der alten Simulation finden sich hingegen Anzahldichten der festen Teilchen ( $N_{solid}$ ) von  $10000 \frac{1}{m^3}$ . Entsprechend dieser Anzahldichten variieren die Radien und Oberflächen der Teilchen. Es gilt bei gleicher Masse, je höher die Anzahldichten desto kleiner die Radien und desto grösser die Oberflächen.

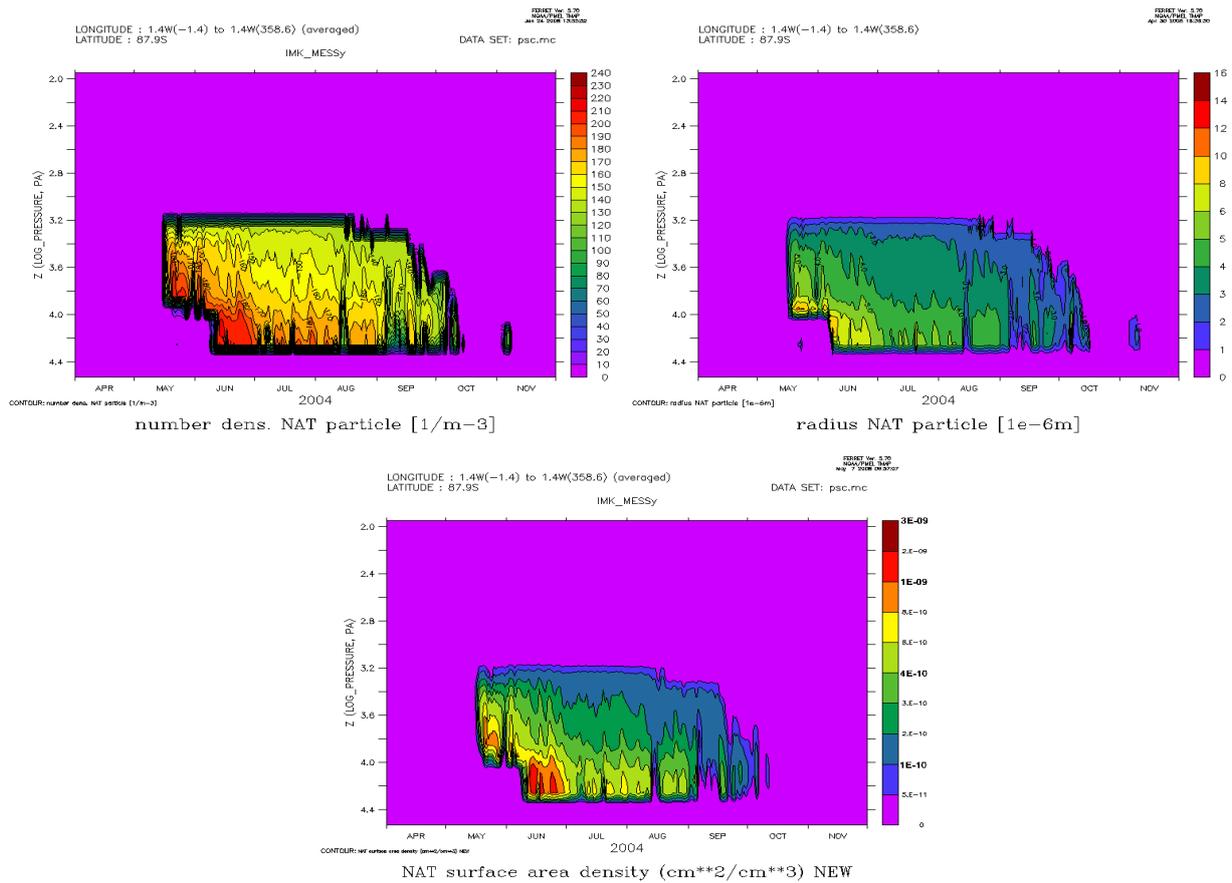


Abbildung 4.18: Zonal gemittelte Zeitserien der Anzahldichten (in  $\frac{1}{m^3}$ ) (oben links), mittleren Radien (in  $\mu m$ ) (oben rechts) und Oberflächendichte (in  $\frac{cm^2}{cm^3}$ ) (unten) der NAT-Teilchen in der neuen Simulation am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) für die Stratosphäre ( $250 \text{ hPa}$  ( $10^{4.4} \text{ Pa}$ ) bis  $1 \text{ hPa}$  ( $10^{2.0} \text{ Pa}$ )) und den Zeitraum April bis November 2004

So sind im zeitlichen und vertikalen Mittel die mittleren Radien der Eisteilchen ( $r_{ICE}$ ) in der neuen Simulation kleiner als die mittleren Radien der festen Teilchen ( $r_{solid}$ ) in der alten Simulation (Abbildung 4.17 (Mitte)). Gut zu erkennen ist dies z.B. Mitte bis Ende Juni und Mitte bis Ende Juli in den Höhenschichten von  $100 \text{ hPa}$  ( $10^{4.0} \text{ Pa}$ ) bis  $25 \text{ hPa}$  ( $10^{3.4} \text{ Pa}$ ). So ist z.B.  $r_{ICE}$  Mitte bis Ende Juni in diesen Höhen mit  $6$  bis  $9 \mu m$  deutlich kleiner als im Vergleich  $r_{solid}$  mit  $8$  bis  $11 \mu m$ . In den Höhenschichten unterhalb  $25 \text{ hPa}$  ( $10^{3.4} \text{ Pa}$ ) ist ein Vergleich aufgrund unterschiedlicher Sedimentation schwierig.

Die Oberflächendichten von Eis ( $A_{ICE}$ ) sind entsprechend der kleineren Radien und der höheren Anzahldichten in der neuen Simulation im zeitlichen und vertikalen Mittel grösser als die Oberflächendichten der festen Teilchen ( $A_{solid}$ ) in der alten Simulation (Abbildung 4.17 (unten)).

In Abbildung 4.18 sind die Anzahldichten ( $N_{NAT}$ ), die mittleren Radien ( $r_{NAT}$ ) und die Oberflächendichten ( $A_{NAT}$ ) der NAT-Teilchen in der neuen Simulation für den antarktischen Winter 2004 am Südpol ( $87.9^\circ S$ ) dargestellt. Im Vergleich zu  $N_{ICE}$  und  $N_{solid}$  (Abbildung 4.17) ist  $N_{NAT}$  mit Werten von maximal  $230 \frac{1}{m^3}$  relativ klein. Dementsprechend ist auch  $A_{NAT}$  mit Werten im Bereich von  $10^{-10} \frac{cm^2}{cm^3}$  bis  $10^{-9} \frac{cm^2}{cm^3}$  deutlich kleiner als  $A_{ICE}$  und  $A_{solid}$ , deren Werte im Bereich von  $10^{-7} \frac{cm^2}{cm^3}$  bis  $10^{-6} \frac{cm^2}{cm^3}$  liegen.

In der neuen Simulation ist von daher für die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten  $\kappa$  der heterogenen Reaktionen, sobald Eispartikel mit  $N_{max}$  simuliert sind,  $A_{NAT}$  gegenüber  $A_{ICE}$  in erster Näherung zu vernachlässigen. Die relevanten PSC-Oberflächendichten für  $\kappa$  sind dann  $A_{ICE}$  und die Oberflächendichte der flüssigen Aerosole ( $A_{LIQ}$ ) (hier nicht gezeigt).

In der alten Simulation ist dies anders. Hier wird für die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten der heterogenen Reaktionen auf NAT und ICE  $A_{solid}$  verwendet. Die berechneten Geschwindigkeitskonstanten auf den NAT-Teilchen werden somit in der alten Simulation bei der Berechnung deutlich grösser als in der neuen, die auf den Eisteilchen dahingegen kleiner. Die relevanten PSC-Oberflächendichten für eine heterogene Reaktion in der alten Simulation sind  $A_{solid}$  und  $A_{LIQ}$ .

Bei einer groben Betrachtung der relevanten PSC-Oberflächendichten, im Bezug auf die Berechnung der Geschwindigkeitskonstanten der heterogenen Reaktionen, müssen so in der neuen Simulation  $A_{ICE}$  und  $A_{NAT}$  addiert und in der alten Simulation  $A_{solid}$  mit zwei multipliziert werden. Da  $A_{NAT}$  im antarktischen Winter und Frühling gegenüber  $A_{ICE}$  in der neuen Simulation vernachlässigbar ist, kann in diesem Zeitraum  $A_{ICE}$  auch alleine betrachtet werden. Dies wird in Abschnitt 4.6.3 bei der Betrachtung der südhemisphärischen PSC-Bildung und dem resultierenden Ozonabbau von Bedeutung sein.

## 4.6.2 PSCs und Ozonabbau im nordpolaren Winter und Frühling

### Betrachtung des nordpolaren Winter 2002/2003

Mit Hilfe der dargestellten Zeitserien in den Abbildungen 4.19 bis 4.21 werden zunächst die Bildung und Existenz der PSCs und deren Folgen auf die Atmosphärenchemie in Bezug auf den Ozonabbau während des nordhemisphärischen Winters und Frühlings von November 2002 bis April 2003 diskutiert.

In Abbildung 4.19 sind die simulierten Oberflächendichten der verschiedenen PSC-Teilchen dargestellt. Es werden dabei in der Simulation mit der neuen PSC-Parameterisierung das flüssige Stratosphärenaerosol, die NAT- und die Eisteilchen berücksichtigt, in der Simulation mit der bisherigen PSC-Parameterisierung das flüssige Stratosphärenaerosol und die festen Teilchen.

Es ist zu erkennen, dass im Zeitraum von November 2002 bis April 2003 am Nordpol ( $87.9^\circ\text{N}$ ) sowohl in der alten als auch in der neuen Simulation in der Höhenschicht von 50 hPa ( $10^{3.7} \text{ Pa}$ ) bis 200 hPa ( $10^{4.3} \text{ Pa}$ ) durchgehend flüssige Stratosphärenaerosole vorkommen. Die Grössenordnung der flüssigen Oberflächendichten liegt dabei zwischen  $5 \cdot 10^{-9} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  bis  $2 \cdot 10^{-8} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$ . In den Schichten über 50 hPa sind nur während des Dezembers Oberflächendichten von flüssigen Teilchen erkennbar. Dabei handelt es sich um STS-Teilchen, die sich bei niedrigeren Temperaturen bilden und zu einer starken Volumen- und Oberflächenzunahme des flüssigen Aerosols führen.

Es werden dabei relativ hohe Oberflächendichten von bis zu  $4 \cdot 10^{-8} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  in der neuen Simulation und maximal  $1 \cdot 10^{-7} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  in der alten Simulation im Höhenbereich von 15 hPa ( $10^{3.2} \text{ Pa}$ ) bis 50 hPa erreicht. Zwischen 50 hPa und 200 hPa erkennt man Ende Dezember ebenfalls in beiden Simulationen eine Oberflächenzunahme auf Werte über  $2 \cdot 10^{-8} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$ . Es ist davon auszugehen, dass es auch hier zu einer Bildung von STS gekommen ist.

Feste Teilchen werden in der alten Simulation, bis auf eine kurze Episode Ende Dezember in der Höhenschicht von 150 hPa ( $10^{4.2} \text{ Pa}$ ), nicht simuliert. In der neuen Simulation werden dementsprechend Eisteilchen ebenfalls nur einmal sehr kurz Ende Dezember in der gleichen Höhenschicht gebildet.

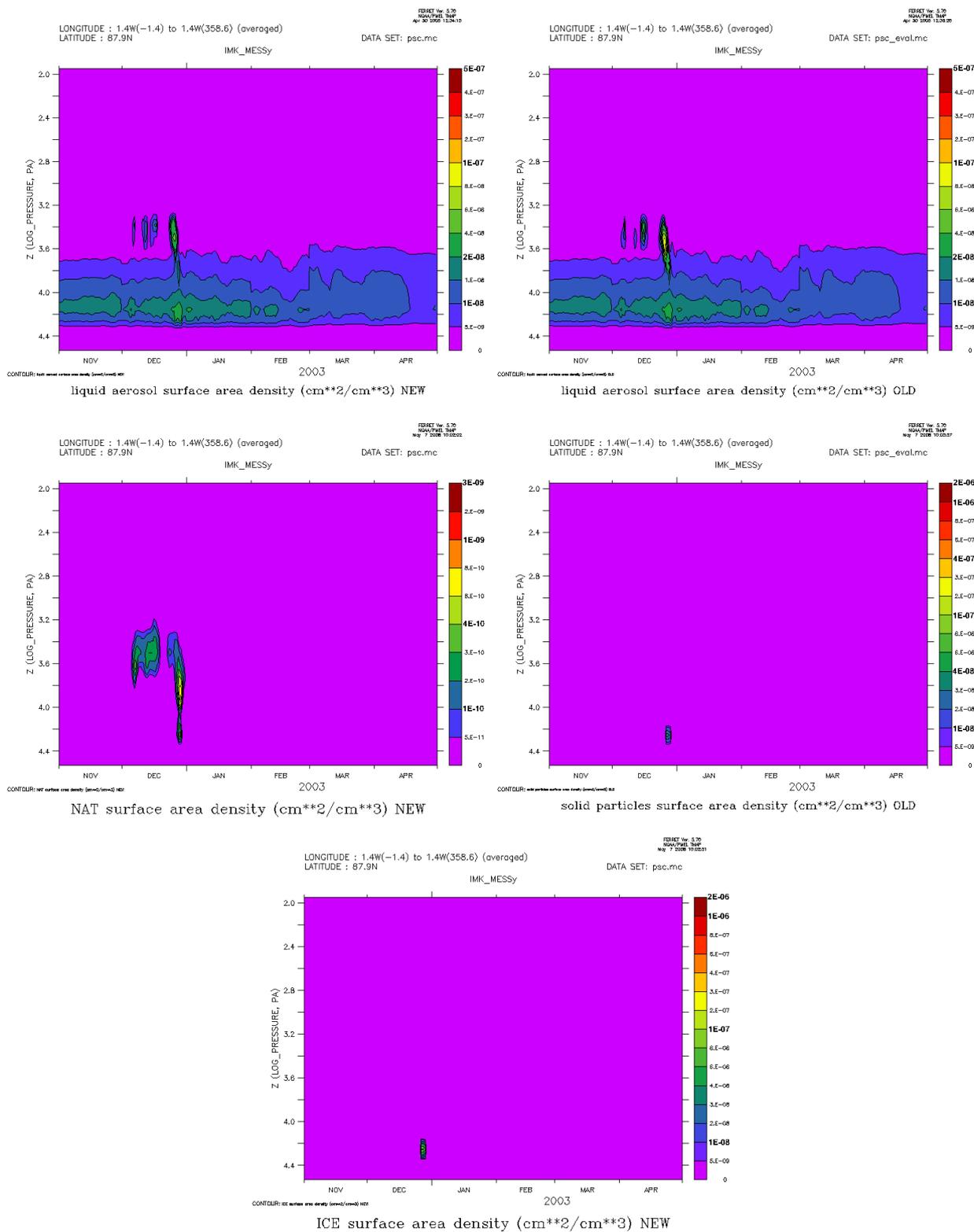


Abbildung 4.19: Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte (in  $\frac{cm^2}{cm^3}$ ) der unterschiedlichen PSC-Typen am Nordpol (87.9°N) für die Stratosphäre (250 hPa ( $10^{4.4}$  Pa) bis 1 hPa ( $10^{2.0}$  Pa)) und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2002/2003. Links: neue Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphären aerosole (oben), des PSC-Typs 1b (NAT) (Mitte) und des PSC-Typs 2 (Eis) (unten). Rechts: alte Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphären aerosole (oben) und der festen Teilchen (Mitte)

NAT-Teilchen hingegen werden in der neuen Simulation im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3} Pa$ ) bis 60 hPa ( $10^{3.8} Pa$ ) ab Anfang Dezember gebildet. Diese treten Ende Dezember verstärkt auf und kommen hier auch in Höhenbereichen von 60 hPa bis 200 hPa ( $10^{4.3} Pa$ ) vor. Die Oberflächendichten der NAT-Teilchen erreichen hier mit Werten über  $8 \cdot 10^{-10} \frac{cm^2}{cm^3}$  ihr Maximum.

Das simulierte Vorkommen von NAT-Teilchen im Dezember 2002 entspricht dabei den Beobachtungen von MIPAS auf ENVISAT, welches in diesem Zeitraum ebenfalls NAT-Teilchen detektiert hat [Höpfner et al., 2006a, 2006b]. Ein Vergleich mit MIPAS auf ENVISAT wird im nächsten Unterkapitel 4.7 gezeigt.

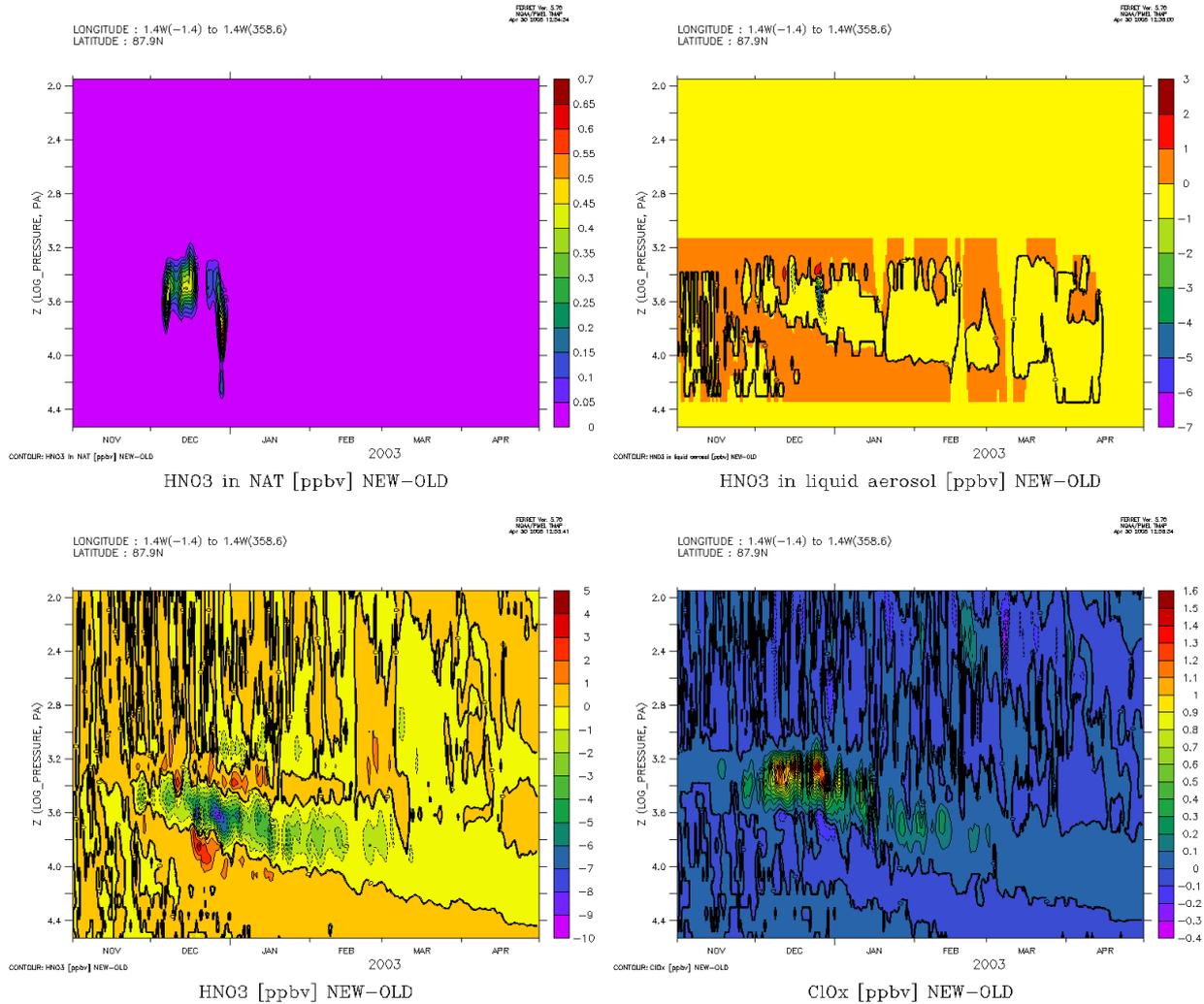


Abbildung 4.20: Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von  $HNO_3(NAT)$  (oben links),  $HNO_3(LIQ)$  (oben rechts),  $HNO_3$  (unten links) und  $ClO_x$  (unten rechts) (alle in ppbv) am Nordpol ( $87.9^\circ N$ ) für die Stratosphäre (250 hPa ( $10^{4.4} Pa$ ) bis 1 hPa ( $10^{2.0} Pa$ )) und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2002/2003

In Abbildung 4.20 (oben) ist die Differenz des gebundenen  $HNO_3$  in NAT ( $HNO_3(NAT)$ ) und die Differenz des  $HNO_3$  in stratosphärischen Aerosol ( $HNO_3(LIQ)$ )<sup>7</sup> zwischen neuer und alter Simulation

<sup>7</sup>Aufgrund des Bildungsmechanismus der STS-Teilchen (siehe Abschnitt 4.2.2) handelt es sich bei  $HNO_3(LIQ)$  hauptsächlich um  $HNO_3$ , das in STS gebunden ist.

dargestellt. Da in der alten Simulation der PSC-Typ 1a (NAT) nicht gebildet wird (Abbildung 4.19) ist die Differenz von  $HNO_3(NAT)$  in den Regionen und Zeiträumen positiv, in denen NAT in der neuen Simulation vorhanden ist. Die Differenz von  $HNO_3(NAT)$  erreicht dabei maximal 0.45 ppbv.

Bei  $HNO_3(LIQ)$  sind nur sehr kleine Differenzen zwischen der neuen und alten Simulation zu erkennen. Ein etwas grösserer Peak ist Ende Dezember mit Werten von kleiner -6 ppbv um die von Höhengschicht 40 hPa ( $10^{3.6} Pa$ ) ersichtlich. In diesem Bereich wird in der alten Simulation mehr STS gebildet. Dies ist begründet durch die NAT-Bildung in der neuen Simulation, welche  $HNO_3$  in NAT bindet und dieses  $HNO_3$  so nicht zur Bildung von STS zur Verfügung steht.

Abbildung 4.20 (unten) zeigt die Differenzen von  $HNO_3$  und  $ClO_x$  zwischen neuer und alter Simulation. In der Verteilung der Differenz von  $HNO_3$  ist die Denitrifizierung in der neuen Simulation zu erkennen. So wird ab Dezember in den Höhenbereichen 20 hPa ( $10^{3.3} Pa$ ) bis 60 hPa ( $10^{3.8} Pa$ ), in denen in der neuen Simulation NAT zu finden ist,  $HNO_3$  aus der Gasphase entfernt und zum Teil durch Sedimentation nach unten transportiert. Die Sedimentation wird dabei auch durch das Verdunsten der nach unten transportierten Teilchen verdeutlicht. So befindet sich unterhalb dem Bereich mit negativen ein Bereich mit positiven  $HNO_3$ -Differenzen (Renitrifizierung).

Die Chloraktivierung, die das Resultat der heterogenen Reaktionen an den Oberflächen der PSC-Teilchen ist, tritt aufgrund der NAT-Bildung in der neuen Simulation verstärkt auf. So finden sich im Dezember in den Höhenbereichen von 20 hPa ( $10^{3.3} Pa$ ) bis 60 hPa ( $10^{3.8} Pa$ ) bis zu 1.5 ppbv mehr  $ClO_x$  in der neuen gegenüber der alten Simulation.

In den beiden Abbildungen der Differenzen von  $HNO_3$  und  $ClO_x$  ist, insbesondere in der oberen Atmosphäre oberhalb 10 hPa, ein Art Hintergrundrauschen zu erkennen. Dies wird durch eine geringfügig andere Dynamik in den beiden Simulationen verursacht.

Die Dynamik varriert dabei in Bereichen stärker, in denen nicht genudgt wird. In diesen Bereichen werden geringfügige Änderungen in der Dynamik, verursacht z.B. durch unterschiedliche Erwärmungsraten durch die Absorption von Strahlung durch verschiedene Ozonkonzentrationen, nicht durch vorgegebene ECMWF-Analysen ausgeglichen.

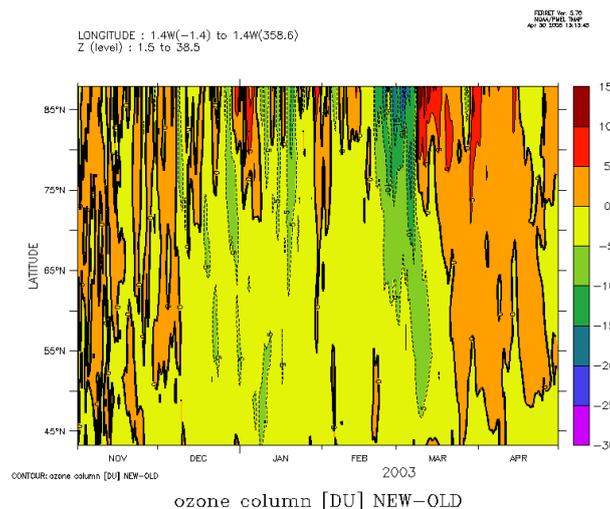


Abbildung 4.21: Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule in DU (neue - alte Simulation) des nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2002/2003 nördlich von 45°N

Die stärkere Denitrifizierung und Chloraktivierung in der neuen Simulation führt zu einem stärkeren Ozonabbau in der Stratosphäre. Im Vergleich der Ozonsäulen zwischen neuer und alter Simulation in Abbildung 4.21 ist in den hohen nördlichen Breiten mit Beginn des arktischen Frühlings Ende Februar/Anfang März ein verstärkter Ozonabbau ersichtlich. In der neuen Simulation finden sich in diesem Zeitraum Ozonsäulen welche bis zu 25 DU niedriger sind als in der alten Simulation.

Danach kommt es allerdings zu einer Umkehr der Ozonsäulen. So existieren ab Mitte März nördlich von 80°N in der neuen Simulation höhere Ozonwerte. Diese sind auf eine etwas andere Dynamik in der neuen Simulationen zurückzuführen. So ist ab Mitte März in der neuen Simulation ein „sudden warming“ simuliert, der in der alten Simulation nicht vorhanden ist und der in der neuen Simulation zu einem instabileren Polarwirbel und damit zu höheren Ozonkonzentrationen im Bereich des Südpols führt.

### Betrachtung des nordpolaren Winter 2006/2007

Der arktische Winter 2006/2007 ist im Modell im Mittel etwas kälter simuliert als der arktische Winter 2002/2003. Es treten von daher in diesem Winter häufiger PSCs auf.

In Abbildung 4.22 sind die Oberflächendichten der verschiedenen PSC-Arten am Nordpol (87.9°N) für den Zeitraum von November 2006 bis April 2007 dargestellt.

Feste Teilchen werden in der alten Simulation nur in 150 hPa ( $10^{4.2}$ ) simuliert, mit einer Ausnahme Mitte Januar in 30 hPa ( $10^{3.5}$ ) mit geringer Oberflächendichte. Auf 150 hPa tritt der PSC-Typ 2 immer wieder kurzzeitig im Januar und Februar 2007 auf. Die Bildung des PSC-Typs 2 (Eis) in der neuen Simulation entspricht auf 150 hPa diesem zeitlichen und räumlichen Muster. Das Vorkommen in 30 hPa ist jedoch nicht simuliert.

Insbesondere Mitte Januar, aber auch schon Anfang Dezember und noch bis Ende Februar, sind sowohl in der neuen als auch in alten Simulation STS-Teilchen durch eine Zunahme der Oberflächendichte erkennbar. Mitte Januar werden dabei in beiden Simulationen im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3}$ ) bis 200 hPa ( $10^{4.3}$ ) die grössten Werte von  $A_{LIQ}$  erreicht. Zu diesem Zeitpunkt treten in der Höhe um 40 hPa die maximalen Oberflächendichten mit über  $8 \cdot 10^{-8} \frac{cm^2}{cm^3}$  in der neuen Simulation und über  $1 \cdot 10^{-7} \frac{cm^2}{cm^3}$  in der alten Simulation auf. Die höheren Oberflächendichten der STS-Teilchen in der alten Simulation sind dabei auf die, im Gegensatz zu der neuen Simulation, nicht existenten NAT-Teilchen im Bildungsgebiet der STS-Teilchen zurückzuführen.

Diese NAT-Teilchen finden sich am Nordpol in der neuen Simulation relativ grossflächig ab Ende November 2006. Sie bilden sich dabei zunächst im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3}$ ) bis 50 hPa ( $10^{3.7}$ ) und breiten sich bis Mitte Dezember nach unten bis 80 hPa ( $10^{3.9}$ ) aus, bevor sie wieder verschwinden. Ein weiteres Auftreten ist mit grösseren Oberflächendichten Mitte Januar im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3}$ ) bis 200 hPa ( $10^{3.7}$ ) simuliert. Hier sind NAT-Oberflächendichten bis maximal über  $1 \cdot 10^{-9} \frac{cm^2}{cm^3}$  vorhanden. Später im Januar und bis Mitte Februar sind noch weitere zeitlich getrennte NAT-Aufkommen ersichtlich. Es sind so bis Mitte Februar PSC-Wolken des Typs 1a mit Unterbrechungen in der Stratosphäre simuliert.

Die Simulation von NAT-Teilchen im arktischen Winter 2006/2007 wird bestätigt durch die Messungen von MIPAS auf ENVISAT (siehe Unterkapitel 4.7). Der alleinige Ansatz der heterogenen Nukleation an Eisteilchen, wie er in der alten PSC-Parameterisierung implementiert ist, scheint somit nicht ausreichend zu sein, um die arktischen PSCs richtig zu simulieren.

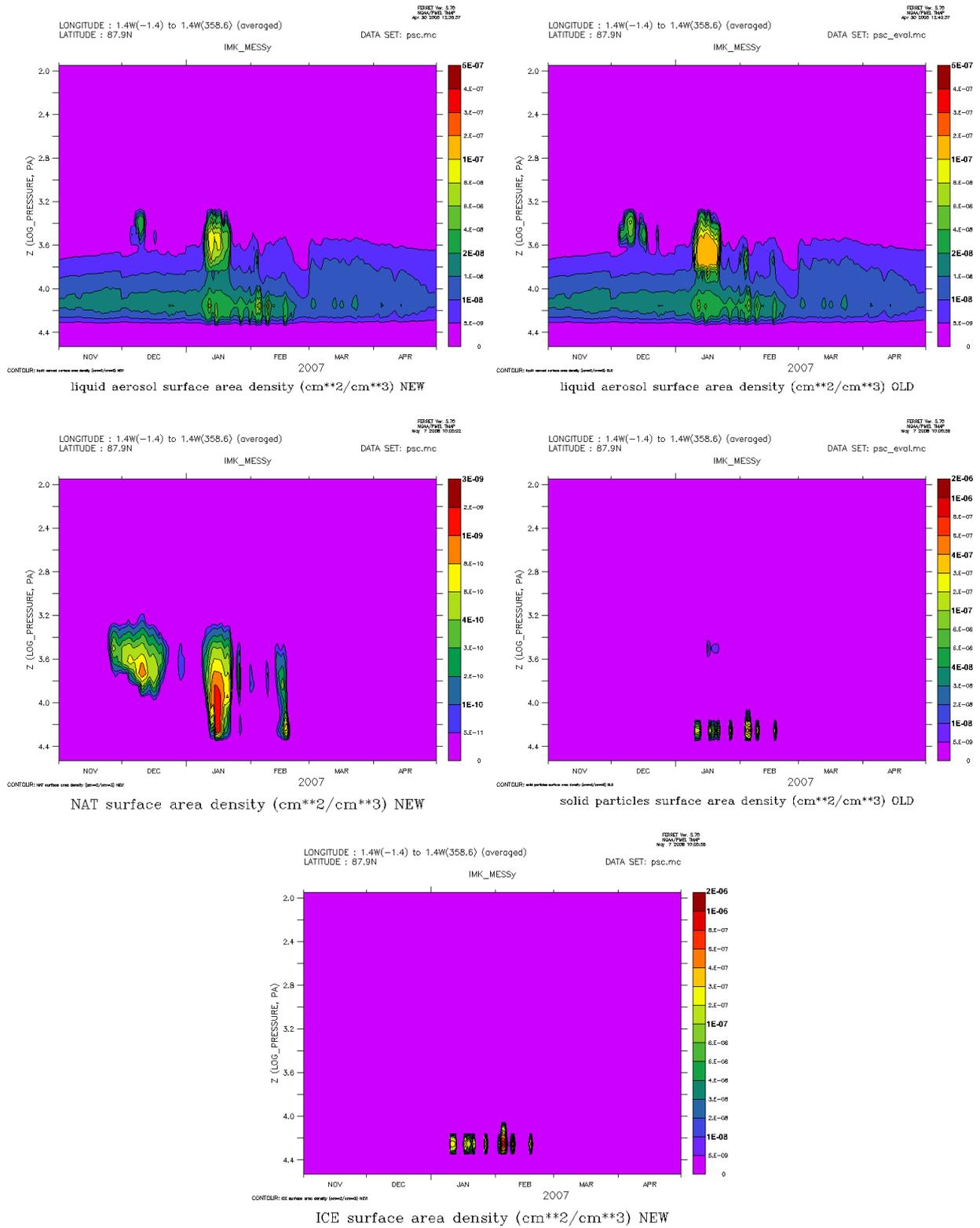


Abbildung 4.22: Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte (in  $\frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$ ) der unterschiedlichen PSC-Typen am Nordpol ( $87.9^\circ\text{N}$ ) für die Stratosphäre ( $250 \text{ hPa}$  ( $10^{4.4} \text{ Pa}$ ) bis  $1 \text{ hPa}$  ( $10^{2.0} \text{ Pa}$ )) und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2006/2007. Links: neue Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphärenaerosole (oben), des PSC-Typs 1b (NAT) (Mitte) und des PSC-Typs 2 (Eis) (unten). Rechts: alte Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphärenaerosole (oben) und der festen Teilchen (Mitte)

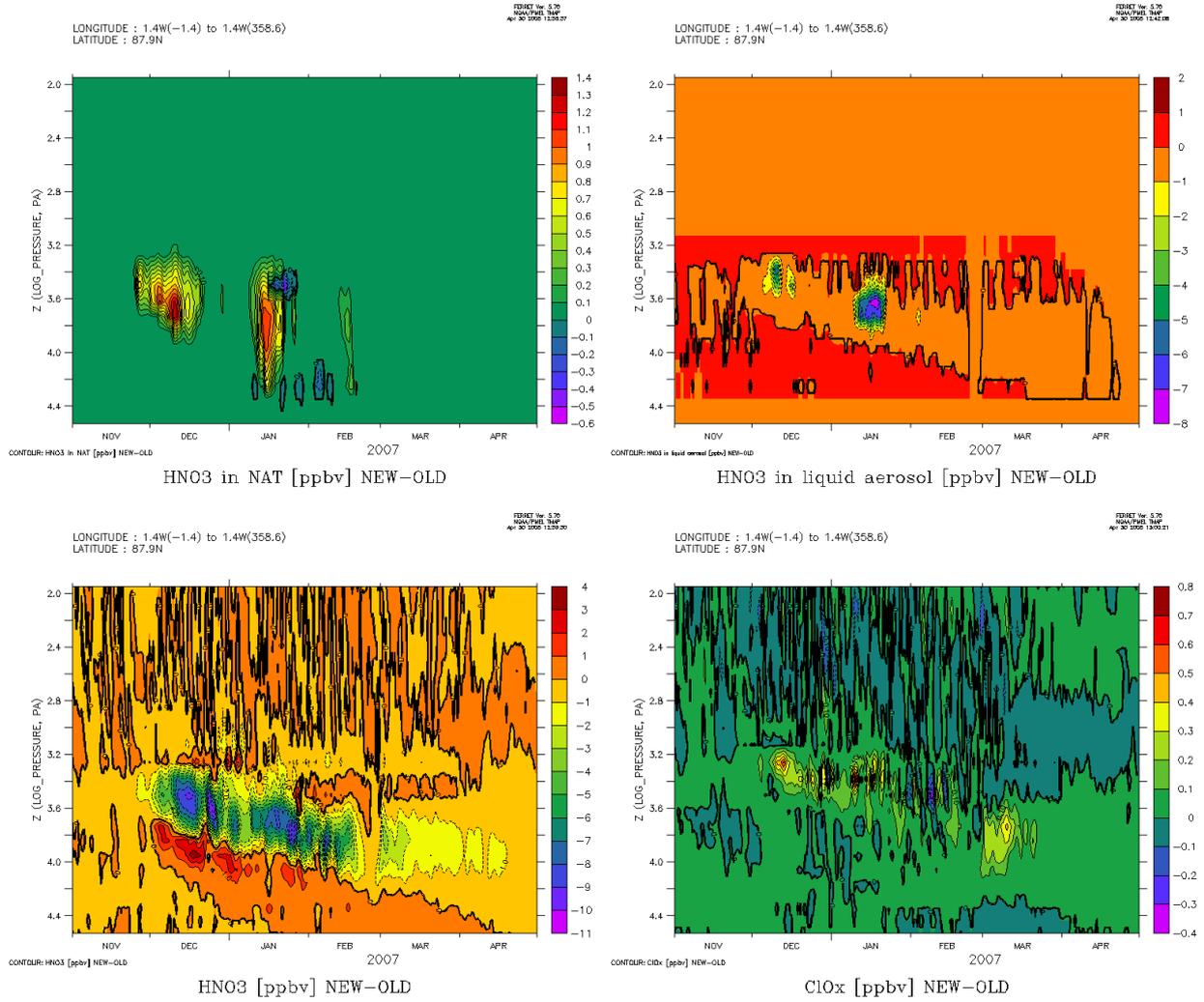


Abbildung 4.23: Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von  $HNO_3(NAT)$  (oben links),  $HNO_3(LIQ)$  (oben rechts),  $HNO_3$  (unten links) und  $ClO_x$  (unten rechts) (alle in ppbv) am Nordpol ( $87.9^\circ N$ ) für die Stratosphäre (250 hPa ( $10^{4.4} Pa$ ) bis 1 hPa ( $10^{2.0} Pa$ )) und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2006/2007

Die Struktur der positiven Differenz von  $HNO_3(NAT)$  zwischen neuer und alter Simulation (Abbildung 4.23) entspricht der Struktur der simulierten NAT-Teilchen. Hier werden noch einmal die unterschiedlichen Anzahldichten von NAT in den beiden Simulationen ersichtlich. Solange die PSC-Typ 1a nur in der neuen Simulation vorkommen, wie z.B. Ende November bis Mitte Dezember im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3}$ ) bis 80 hPa ( $10^{3.9}$ ), ist die Differenz positiv. Sobald aber in der alten Simulation feste Teilchen simuliert sind, mit  $N_{solid}$  (alte Simulation) grösser als  $N_{NAT}$  (neue Simulation), wird die Differenz negativ, d.h. es ist in der alten Simulation mehr  $HNO_3$  in NAT gebunden.

Dies wird z.B. deutlich an dem kleinen und kurzzeitigen Aufkommen der festen Teilchen Mitte Januar in 30 hPa ( $10^{3.5} Pa$ ). Trotz den für feste Teilchen geringen Oberflächendichten von maximal ca.  $5 \cdot 10^{-9} \frac{cm^2}{cm^3}$  (Abbildung 4.22), überschreiten diese deutlich die Oberflächendichten der NAT-Teilchen in der neuen Simulation und die Differenz von  $HNO_3(NAT)$  wird negativ.

Bei der Differenz von  $HNO_3(LIQ)$  zwischen neuer und alter Simulation (Abbildung 4.23) sind negative Werte Anfang Dezember in einer Höhe um 25 hPa ( $10^{3.4}$ ) und Mitte Januar in einer Höhe

um 50 hPa ( $10^{3.7}$ ) erkennbar. Hier wird das vermehrte Vorkommen von STS zu diesen Zeitpunkten und Höhenbereichen in der alten Simulation deutlich. So sind in der alten Simulation Mitte Januar bis zu 7 ppbv mehr  $HNO_3$  in den STS-Teilchen gebunden.

Aufgrund der häufigeren und grösserflächigen Simulation von NAT im arktischen Winter 06/07 gegenüber dem arktischen Winter 02/03 ist hier auch eine stärkere Denitrifizierung in der Stratosphäre zu beobachten. Diese schlägt sich in den Differenzen von  $HNO_3$  gegenüber der alten Simulation nieder, in welcher aufgrund des nur sehr vereinzelt NAT-Vorkommens quasi keine Denitrifizierung in der Stratosphäre stattfand.

So wird  $HNO_3$  ab Dezember mit Aufkommen des PSC-Typs 1a im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3}$ ) bis 50 hPa ( $10^{3.7}$ ) in NAT gebunden. Durch weiteres Vorkommen dieses PSC-Typs und beginnender Denitrifizierung bleibt die negative Differenz in diesem Höhenbereich mit leicht sinkender Tendenz und ab Mitte Februar abschwächend bis Mitte April vorhanden. Die Denitrifizierung ist auch durch das zeitliche Band der positive Differenz unterhalb der negativen Differenz von  $HNO_3$  erkennbar. In diesem Bereich verdampfen die sedimentierten NAT-Teilchen wieder (Renitrifizierung).

Bei der Differenz in der Chloraktivierung zeigt sich ein unterschiedliches Bild. Wie beschrieben wird in der neuen Simulation im zeitlichen und räumlichen Mittel mehr NAT simuliert. Zu den Zeitpunkten, an denen NAT vorkommt, gibt es aber oft eine vermehrte STS-Bildung in der alten Simulation. Dabei wird  $HNO_3$  welches nicht in NAT gebunden ist, zu einer verstärkten STS-Bildung verwendet. So scheint die Chloraktivierung in der neuen Simulation zwar gerade im Höhenbereich um 20 hPa ( $10^{3.3}$ ) ab Mitte Dezember etwas stärker zu sein, es finden sich aber auch viele Bereiche mit schwächerer Chloraktivierung.

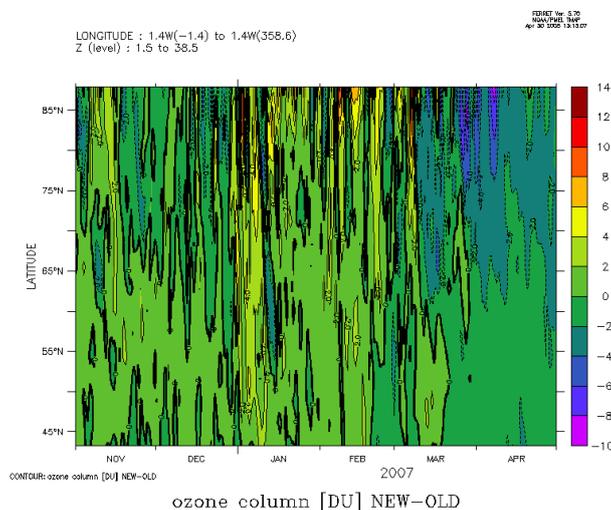


Abbildung 4.24: Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule in DU (neue - alte Simulation) des nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2006/2007 nördlich von 45°N

In der Differenz der Ozonsäule (Abbildung 4.24) zwischen der neuen und alten Simulation ist bis Ende Februar eine hohe Variation zu erkennen. Ab März mit Beginn des arktischen Frühlings sind in der neuen Simulation nördlich von 60°N aber niedrigere Ozonsäulen zu erkennen. Dies ist auf die beschriebene stärkere Denitrifizierung zurückzuführen, die zu einer verzögerten Ozoneerholung führt. Es sind dabei in der neuen Simulation insbesondere in den hohen polaren Breiten nördlich von 75°N um bis zu 8 bis 10 DU kleinere Ozonsäulen simuliert.

### 4.6.3 PSCs und Ozonabbau im südpolaren Winter und Frühling

Im folgenden wird die PSC-Bildung und -Existenz im südpolaren Winter und Frühling vergleichend in der alten und neuen Simulation betrachtet. Dafür werden die beiden Simulationszeiträume von April bis November 2003 und von April bis November 2006 verwendet.

#### Betrachtung des südpolaren Winter 2003

Mit Hilfe der dargestellten Zeitserien in den Abbildungen 4.25 bis 4.27 soll zunächst der südhemisphärische Winter und Frühling von April bis November 2003 diskutiert werden.

Wie leicht zu erkennen ist, kommt es im Vergleich zu den arktischen, in den antarktischen Breiten zu grösserflächigeren zeitlich länger anhaltenden PSC-Wolken, sowohl vom Typ 1 als auch vom Typ 2. Dieses gegenüber den arktischen Breiten häufigere Auftreten der PSCs wird sowohl mit dem alten als auch mit dem neuen Modelllauf simuliert und ist verursacht durch deutlich tiefere Temperaturen während des antarktischen Winters. Aufgrund des stabileren antarktischen Wirbels kommt es während der Wintermonate nur äusserst selten zu „sudden warmings“, welche in arktischen Regionen hingegen sehr häufig auftreten. Die Luftmassen können so „ungestört“ abkühlen und es sind in den südhemisphärischen Wintern in der unteren Stratosphäre Temperaturen unterhalb des Eiskondensationspunkts über längere Zeiträume vorhanden.

In der alten Simulation (Abbildung 4.25 (Mitte rechts)) sind feste Teilchen in der Zeitserie am Südpol (87.9°S) ab Ende Mai 2003 im Höhenintervall von 20 hPa ( $10^{3.3} Pa$ ) bis 60 hPa ( $10^{3.6} Pa$ ) simuliert, welche in den darauffolgenden Tagen in die darunterliegenden Höhenschichten bis 200 hPa ( $10^{4.3} Pa$ ) sedimentieren. Diese festen Teilchen sind dabei mit zeitlichen Unterbrechungen je nach Höhenschicht bis Anfang Oktober erkennbar. Die Oberflächendichten steigen insbesondere in den tieferen Höhenschichten bis auf  $3$  bis  $4 \cdot 10^{-7} \frac{cm^2}{cm^3}$  an.

In der neuen Simulation sind Eisteilchen (Abbildung 4.25 (unten)) ebenfalls Ende Mai in 20 hPa bis 60 hPa ersichtlich. Diese breiten sich in den darauffolgenden Tagen, ähnlich wie die festen Teilchen in der alten Simulation, vertikal nach unten bis 200 hPa aus. Nach oben gibt es ebenfalls eine Ausdehnung in die Höhenschicht von 15 hPa ( $10^{3.2} Pa$ ) hinein. In dieser Höhenschicht sind in der alten Simulation keine festen Teilchen ersichtlich, was durch im Vergleich zur neuen Simulation etwas höhere Temperaturen verursacht ist. Während des antarktischen Winters und Frühlings werden am Südpol (87.9°S) in der neuen Simulation grössere maximale Oberflächendichten ( $> 1 \cdot 10^{-6} \frac{cm^2}{cm^3}$ ) als in der alten Simulation erreicht.

Es ist ersichtlich, dass die Anzahldichten von Eis und NAT in der neuen Simulation getrennt behandelt werden. So wird ab Ende August im Höhenintervall von 15 hPa bis 50 hPa kein Eis mehr simuliert, wohingegen in der alten Simulation, aufgrund der Mitberücksichtigung von NAT in diesem Höhenbereich noch bis Ende September/Anfang Oktober feste Teilchen vorhanden sind.

NAT-Teilchen sind in der neuen Simulation im südhemisphärischen Winter 2003 (Abbildung 4.25 (Mitte links)) ab Anfang Mai vorhanden und somit deutlich früher als feste Teilchen in der alten Simulation, welche dort erst Ende Mai auftauchen. Die NAT-Teilchen bilden sich in der neuen Simulation in den Höhenschichten von 15 hPa ( $10^{3.2} Pa$ ) bis 100 hPa ( $10^{4.0} Pa$ ) und dehnen sich im folgenden zeitlichen Verlauf vertikal durch Sedimentation nach unten aus, so dass sie ab Ende Mai in den Höhenschichten zwischen 15 hPa und 200 hPa ( $10^{4.3} Pa$ ) zu finden sind. Es sind dabei Anfang Juni maximale Oberflächendichten von über  $1 \cdot 10^{-9} \frac{cm^2}{cm^3}$  simuliert. Die Oberflächendichten nehmen in den darauffolgenden Wochen ab, da durch die Sedimentation der grösseren NAT-Teilchen  $HNO_3$  aus der Gasphase entfernt wird und dieses nicht mehr zur NAT-Bildung zur Verfügung steht. Die PSC-Wolken des Typs 1a existieren am Südpol in 150 hPa ( $10^{4.2} Pa$ ) bis Ende Oktober.

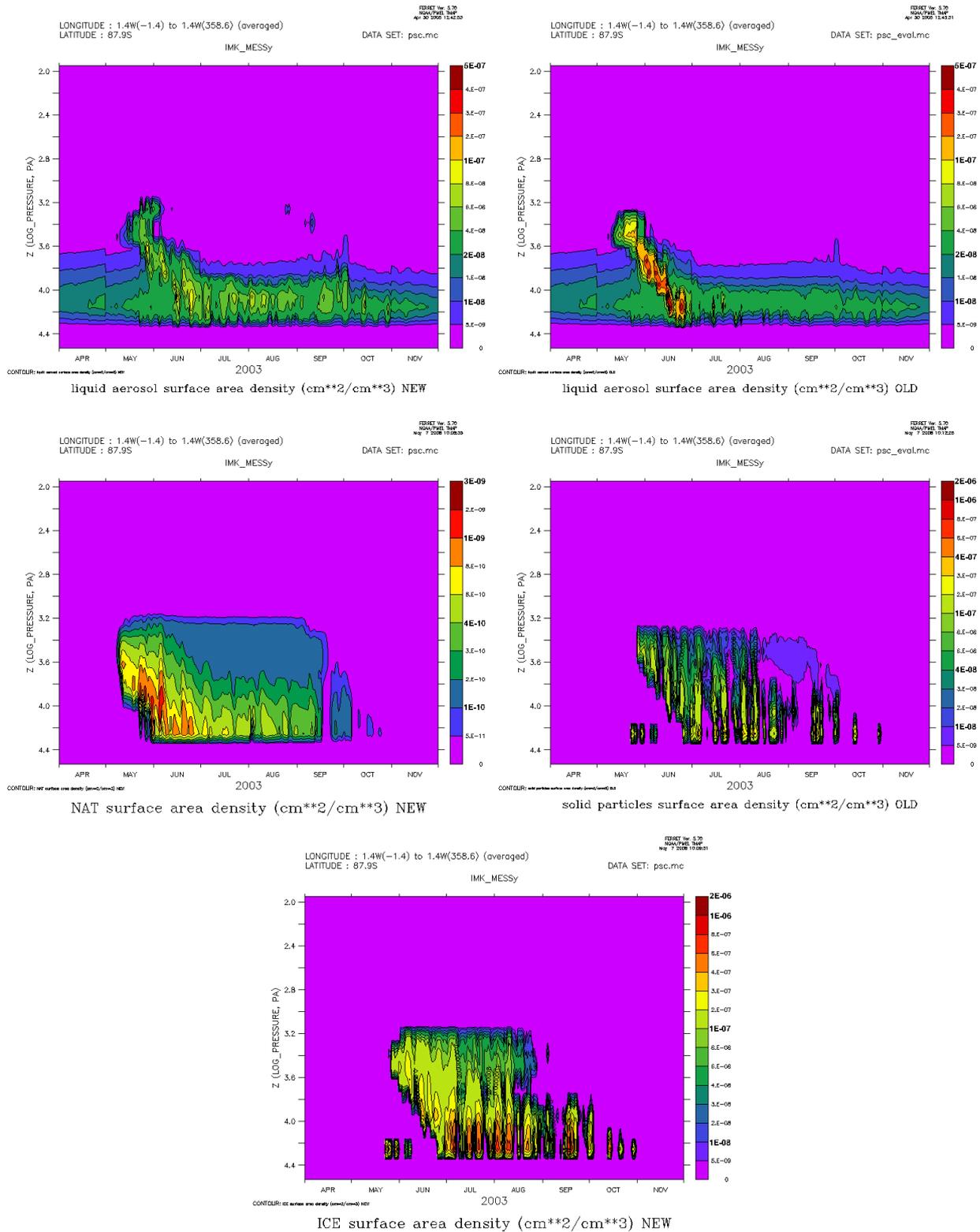


Abbildung 4.25: Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte (in  $\frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$ ) der unterschiedlichen PSC-Typen am Südpol (87.9°S) für die Stratosphäre (250 hPa ( $10^{4.4}$  Pa) bis 1 hPa ( $10^{2.0}$  Pa)) und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2003. Links: neue Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphärenaerosole (oben), des PSC-Typs 1b (NAT) (Mitte) und des PSC-Typs 2 (Eis) (unten). Rechts: alte Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphärenaerosole (oben) und der festen Teilchen (Mitte)

Das stratosphärische flüssige Aerosol (Abbildung 4.25 (oben)) ist in beiden Modellläufen im gesamten Zeitraum im Höhenbereich von 50 hPa ( $10^{3.7} Pa$ ) bis 200 hPa ( $10^{4.3} Pa$ ) durchgehend simuliert. Ab Anfang Mai bilden sich zusätzlich, vom Schwefelsäureaerosol ausgehend, STS-Teilchen, welche sich vom Höhenbereich 15 hPa ( $10^{3.2} Pa$ ) bis 50 hPa ( $10^{3.6} Pa$ ) in dem sie zuerst auftreten und in dem sie ab Ende Mai als erstes auch wieder verschwunden sind, nach unten in tiefere Höhenschichten ausbreiten.

Die STS-Teilchen verursachen eine Volumen- und Oberflächenzunahme, so dass die Oberflächendichten deutlich ansteigen. In der alten Simulation werden dabei bis zu  $4 \cdot 10^{-7} \frac{cm^2}{cm^3}$ , in der neuen Simulation bis  $1 \cdot 10^{-7} \frac{cm^2}{cm^3}$  erreicht. Die niedrigeren Oberflächendichten des PSC-Typ 1b in der neuen Simulation sind dabei durch die dort stattfindende frühere NAT-Bildung verursacht. Die Bildung von NAT bindet  $HNO_3$ , das im folgenden nicht mehr für die Bildung von STS zur Verfügung steht.

Die frühere NAT-Bildung in der neuen Simulation wird auch in Abbildung 4.26 (oben links) in der Zeitserie der Differenz des  $HNO_{3(NAT)}$  zwischen neuer und alter Simulation am Südpol (87.9°S) in der Zeitserie der Differenz des  $HNO_{3(NAT)}$  zwischen neuer und alter Simulation am Südpol (87.9°S)

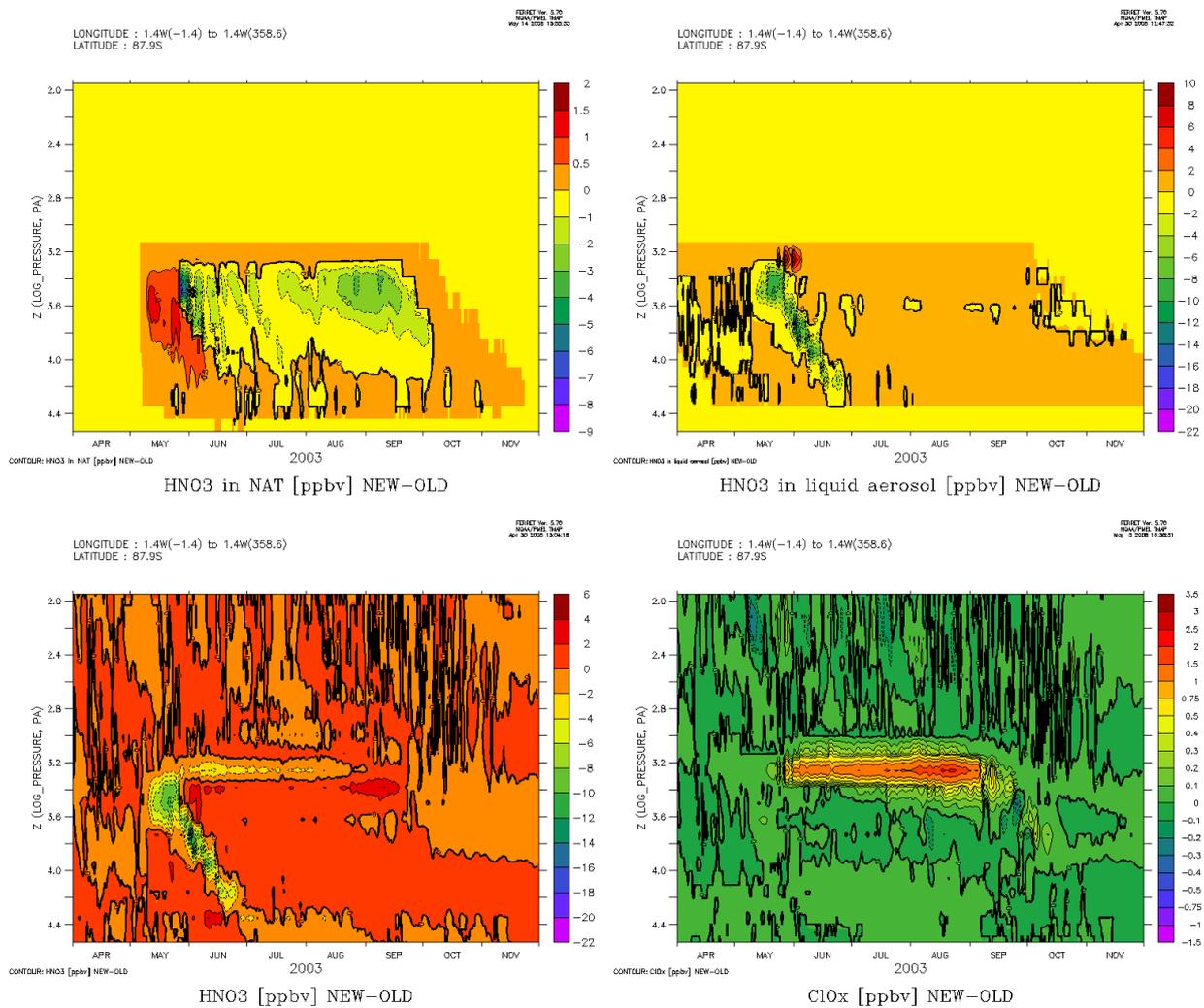


Abbildung 4.26: Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von  $HNO_{3(NAT)}$  (oben links),  $HNO_{3(LIQ)}$  (oben rechts),  $HNO_3$  (unten links) und  $ClO_x$  (unten rechts) (alle in ppbv) am Südpol (87.9°S) für die Stratosphäre (250 hPa ( $10^{4.4} Pa$ ) bis 1 hPa ( $10^{2.0} Pa$ )) und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2003

ersichtlich. So sind im Mai in der alten Simulation keine NAT-Teilchen simuliert, was zur Folge hat, dass in den Bereichen, in denen in der neuen Simulation PSCs des Typs 1a vorkommen, positive Differenzen des gebundenen  $HNO_3$  in NAT von bis zu über 1.0 ppbv ersichtlich sind. Mit Auftreten der festen Teilchen in der alten Simulation kehrt sich dieses Bild um, da die Anzahldichten der festen Teilchen in dieser Simulation deutlich höher sind als die Anzahldichten der NAT-Teilchen in der neuen Simulation. Die Anzahldichte der festen Teilchen wird dabei in der alten Simulation für die Berechnung des  $HNO_{3(NAT)}$  verwendet und es entstehen negative Differenzen von bis zu 8.5 ppbv, da in dieser mehr  $HNO_3$  in NAT gebunden ist.

Die unterschiedlich starke Bildung von STS in den beiden Simulationen ist in der Verteilung von  $HNO_{3(LIQ)}$  wiedergegeben (Abbildung 4.26 (oben rechts)). So ist während der STS-Bildung fast durchgehend in der alten Simulation mehr  $HNO_3$  im flüssigen stratosphärischen Aerosol gebunden, was zu negativen Differenzen führt. Verursacht ist dies durch die oben schon erwähnte gleichzeitige Simulation von NAT-Teilchen in der neuen Simulation, welche zu geringerem Volumenzuwachs der STS-Teilchen führt. In der Höhe von 15 hPa ( $10^{3.2}$  Pa) ist Ende Mai/Anfang Juni eine Ausnahme in Form positiver Differenzen im  $HNO_{3(LIQ)}$  zu erkennen. Hier werden in der neuen Simulation, verursacht durch etwas tiefere Temperaturen, STS-Teilchen gebildet, welche in der alten Simulation nicht auftreten.

In der Differenz des  $HNO_3$  zwischen neuer und alter Simulation (Abbildung 4.26 (unten links)) sind im Mai und Juni noch einmal die Gebiete zu erkennen, in denen in der neuen Simulation NAT-Teilchen und in der alten Simulation keine festen Teilchen vorhanden sind. In diesen Bereichen sind, verursacht durch die Aufnahme von  $HNO_3$  in NAT aus der Gasphase und die beginnende Sedimentation der NAT-Teilchen, negative  $HNO_3$ -Differenzen bis zu über 10 ppbv ersichtlich. Die negativen  $HNO_3$ -Differenzen verschwinden mit Entstehung der festen Teilchen in der alten Simulation.

Aufgrund der niedrigen Oberflächendichten der NAT-Teilchen ist deren frühere Entstehung für die Denitrifizierung, nicht aber für die Chloraktivierung von Bedeutung. In der Zeitserie der Differenzen von  $ClO_x$  zwischen den beiden Simulationen (Abbildung 4.26 (unten rechts)) dominieren von daher die Gebiete in denen in der neuen Simulation Eisteilchen und in der alten Simulation keine feste Teilchen simuliert sind. Dies ist primär im Bereich der Höhenschicht von 15 hPa ( $10^{3.2}$  Pa) der Fall. Hier werden von Ende Mai bis Mitte September positive  $ClO_x$ -Differenzen bis zu über 3.0 ppbv simuliert.

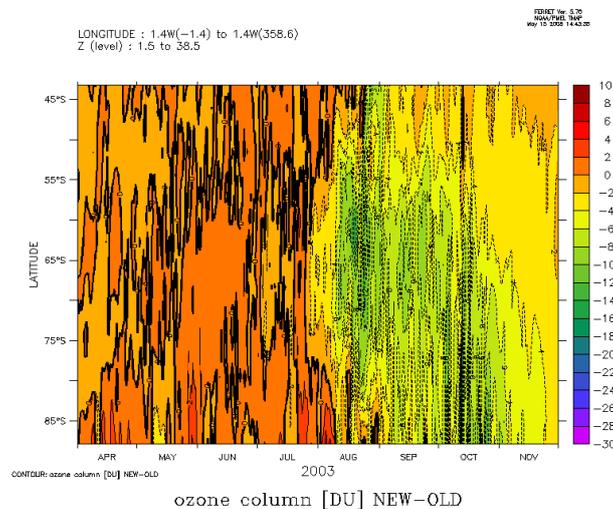


Abbildung 4.27: Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule in DU (neue - alte Simulation) des südhemisphärischen Winters und Frühlings 2003 südlich von 45°S

Der Vergleich der antarktischen Ozonsäulen zwischen neuer und alter Simulation (Abbildung 4.27) zeigt, dass in der Simulation mit der neuen PSC-Parameterisierung ab August 2003 südlich von 45.0°S die Ozonsäulen niedriger sind. Maximal erreichen die Differenzen dabei Mitte Oktober um 80.0°S 20 bis 25 DU. Aufgrund der in der alten Simulation im Vergleich zu TOMS zu hohen Ozonsäulen (siehe Kapitel 3) führt dieser Effekt in den südhemisphärischen Polargebieten im Frühling zu einer Verbesserung.

Der höhere Ozonabbau ist hauptsächlich verursacht durch die erhöhte maximalen Anzahldichte  $N_{max}$  von  $25000 \frac{1}{m^3}$ , welche in der neuen Simulation für  $N_{ICE}$  gilt. In der alten Simulation lag dieser Wert bei  $10000 \frac{1}{m^3}$  für die Anzahldichte der festen Teilchen. Obwohl in der neuen Simulation  $N_{NAT}$  maximal nur  $230 \frac{1}{m^3}$  beträgt und obwohl die Erhöhung von  $N_{ICE}$  auch eine Erniedrigung von  $r_{ICE}$  nach sich zieht (siehe Gleichung 4.10 und 4.11), kommt es, verursacht durch die heterogenen Reaktionen an den Oberflächen der Eis- und NAT-Teilchen, bei länger anhaltender Existenz von Eisteilchen zu etwas höheren Ozonabbauraten in der neuen Simulation.

### Betrachtung des südpolaren Winters 2006

Zu einer weiteren Betrachtung der Unterschiede zwischen neuer und alter Simulation in den südpolaren hohen Breiten wird im Folgenden noch der antarktische Winter und Frühling des Jahres 2006 diskutiert (Abbildung 4.28 bis 4.30).

Bei der Simulation der unterschiedlichen PSC-Typen in den beiden Simulationen sind dabei ähnliche Muster wie im antarktischen Winter und Frühling 2003 zu erkennen.

So sind die festen Teilchen in der alten Simulation am Südpol (87.9°S) (Abbildung 4.28 (Mitte rechts)) im Zeitraum von Anfang Juni bis Ende September teilweise zeitlich über Wochen anhaltend, wiederholt in den Höhenschichten von 20 hPa ( $10^{3.3} Pa$ ) bis 200 hPa ( $10^{4.3} Pa$ ) simuliert. Im Vergleich zum antarktischen Frühling 2003 (Abbildung 4.25) sind dabei vor allem die höheren Oberflächendichten von Mitte August bis Mitte September in 20 hPa bis 60 hPa ( $10^{3.8} Pa$ ) von Anfang bis Mitte September in 60 hPa bis 200 hPa, Anfang November in 100 hPa ( $10^{4.0} Pa$ ) und Ende November in 150 hPa ( $10^{4.2} Pa$ ) bis 200 hPa auffällig. In diesen Bereichen sind im antarktischen Winter und Frühling 2006 im Vergleich zu 2003 niedrigere Temperaturen simuliert worden.

Diese Gebiete mit niedrigeren Temperaturen sind auch in der neuen Simulation bei der Oberflächendichte der Eisteilchen im antarktischen Winter und Frühling 2006 am Südpol (87.9°S) (Abbildung 4.28 (unten)) ersichtlich. Hier kommt es zu höheren Oberflächendichten als im entsprechenden Zeitraum des Jahres 2003. Im Vergleich zwischen alter und neuer Simulation ist erneut wie 2003 die höhere Ausdehnung der Eisteilchen im Vergleich zu den festen Teilchen auffällig. So erreicht der PSC-Typ 2 in der neuen Simulation die Höhenschicht von 15 hPa ( $10^{3.2} Pa$ ), wohingegen in der alten Simulation in dieser Modellschicht keine festen Teilchen vorhanden sind. Verursacht ist dies durch etwas tiefere Temperaturen in dieser Höhenschicht in der neuen Simulation.

NAT-Teilchen sind im südhemisphärischen Winter 2006 in der neuen Simulation am Südpol wieder früher zu finden als feste Teilchen in der alten Simulation (Abbildung 4.28 (Mitte links)). Sie sind in der neuen Simulation von Anfang Mai bis Anfang November vorhanden. Der PSC-Typ 1a entsteht dabei in der ersten Hälfte des Mai in den Höhenschichten von 20 hPa ( $10^{3.3} Pa$ ) bis 60 hPa ( $10^{4.8} Pa$ ). Im folgenden zeitlichen Verlauf dehnen sich diese PSC-Wolken nach oben und unten vertikal aus, so dass sie Ende Mai in den Höhenschichten von 15 hPa ( $10^{3.2} Pa$ ) bis 200 hPa ( $10^{4.3} Pa$ ) existieren.

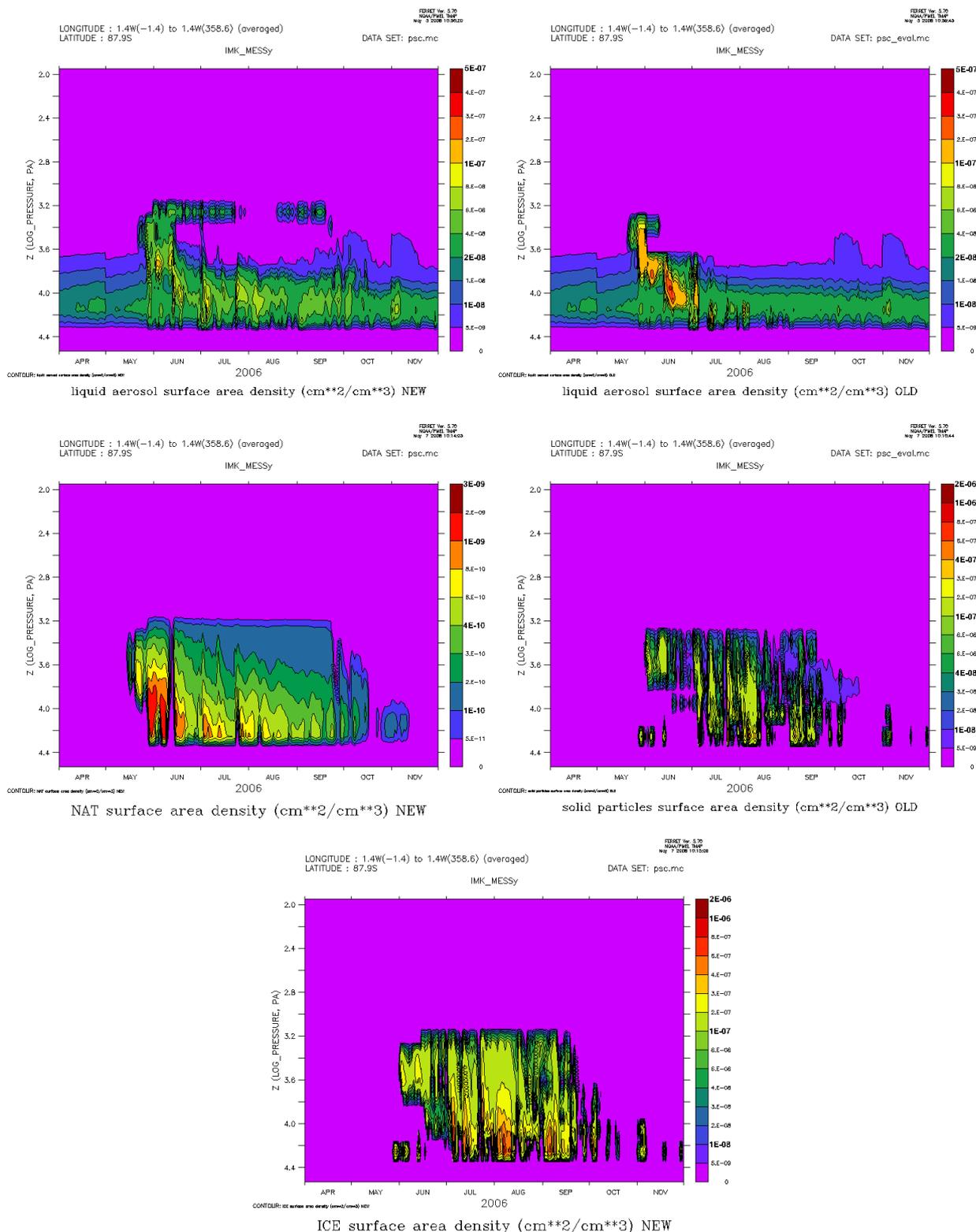


Abbildung 4.28: Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte (in  $\frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$ ) der unterschiedlichen PSC-Typen am Südpol ( $87.9^\circ\text{S}$ ) für die Stratosphäre ( $250 \text{ hPa}$  ( $10^{4.4} \text{ Pa}$ ) bis  $1 \text{ hPa}$  ( $10^{2.0} \text{ Pa}$ )) und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2006. Links: neue Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphärenaerosole (oben), des PSC-Typs 1b (NAT) (Mitte) und des PSC-Typs 2 (Eis) (unten). Rechts: alte Simulation mit Oberflächendichte der flüssigen Stratosphärenaerosole (oben) und der festen Teilchen (Mitte)

Von 60 hPa ( $10^{3.8}$  Pa) bis 200 hPa sind dabei Ende Mai bis Anfang Juni relativ hohe Oberflächendichten der NAT-Teilchen von über  $2 \cdot 10^{-9} \frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3}$  simuliert. Die zeitlich und vertikal gemittelte Oberflächendichte ist dabei etwas höher als im antarktischen Frühling und Winter 2003, was ebenfalls durch die tieferen Temperaturen verursacht ist. Die NAT-Teilchen werden in der neuen Simulation am Südpol im Vergleich zu 2003 auch länger simuliert, was an den NAT-Vorkommen Ende Oktober bis Anfang November zwischen 80 hPa ( $10^{3.9}$  Pa) und 200 hPa erkennbar ist.

Die Verteilungen des flüssigen Aerosols am Südpol ( $87.9^\circ\text{S}$ ) (Abbildung 4.28 (oben)) im antarktischen Frühling und Winter 2006 beinhaltet im Vergleich zum entsprechenden Zeitraum 2003 bezüglich der bisher beschriebenen Unterschiede zwischen den beiden Simulationen sehr ähnliche Merkmale. So ist wieder eine verstärkte STS-Bildung Ende Mai bis Ende Juni 2006 in der alten Simulation zu erkennen, da in diesem Zeitraum in der neuen Simulation schon NAT-Teilchen gebildet sind. Darüber hinaus verursachen die in der neuen Simulation im Vergleich zur alten Simulation

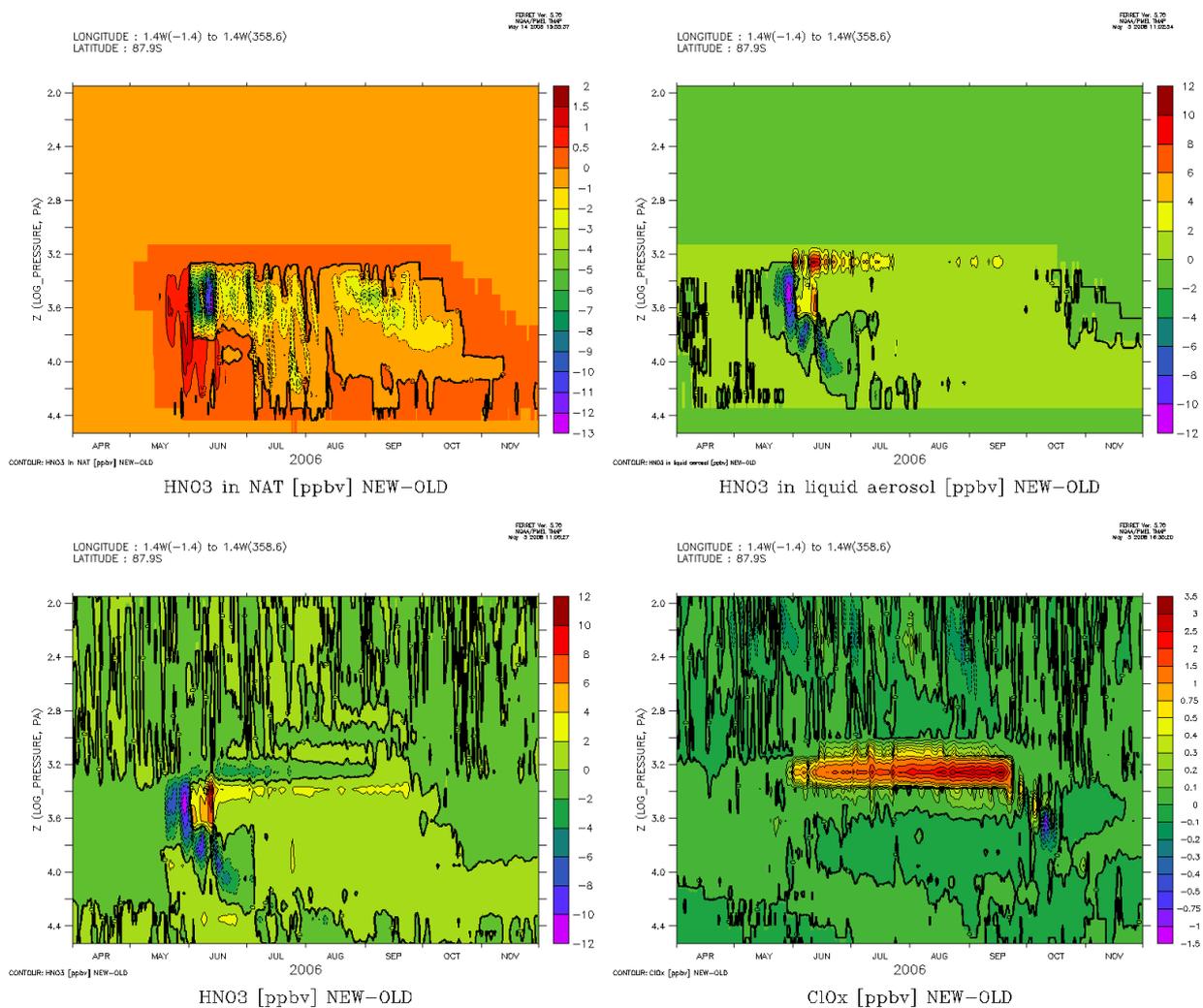


Abbildung 4.29: Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von  $\text{HNO}_3(\text{NAT})$  (oben links),  $\text{HNO}_3(\text{LIQ})$  (oben rechts),  $\text{HNO}_3$  (unten links) und  $\text{ClO}_x$  (unten rechts) (alle in ppbv) am Südpol ( $87.9^\circ\text{S}$ ) für die Stratosphäre (250 hPa ( $10^{4.4}$  Pa) bis 1 hPa ( $10^{2.0}$  Pa)) und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2006

etwas tieferen Temperaturen in 15 hPa ( $10^{3.2}$  Pa) eine STS-Bildung in dieser Höhe zwischen Mitte Juni bis Ende September, unterbrochen zwischen Ende Juli und Mitte August, welche in der alten Simulation nicht erkennbar ist.

Entsprechend der Verteilung der PSCs am Südpol ( $87.9^\circ\text{S}$ ) verhält sich die  $\text{HNO}_3$ -Verteilung in der Gasphase, in den NAT-Teilchen und in den flüssigem Stratosphärenaerosolen. So ist mehr  $\text{HNO}_{3(\text{NAT})}$  in der neuen Simulation (Abbildung 4.29 (oben links)) vorhanden, solange dort NAT-Teilchen existieren und in der alten Simulation noch keine festen Teilchen vorhanden sind. Während dieses Zeitraums kommt es zu positiven  $\text{HNO}_{3(\text{NAT})}$ -Differenzen von über 1 ppbv. Nach Bildung der festen Teilchen in der alten Simulation verändert sich das Vorzeichen.

Bei  $\text{HNO}_{3(\text{LIQ})}$  (Abbildung 4.29 (oben rechts)) sind negative Differenzen zwischen neuer und alter Simulation aufgrund der höheren Oberflächendichten der STS-Teilchen in der alten Simulation, zwischen Mitte bis Ende Mai im Höhenbereich von 20 hPa ( $10^{3.3}$  Pa) bis 100 hPa ( $10^{4.0}$  Pa) und während des Junis im Höhenbereich von 50 hPa ( $10^{3.7}$  Pa) bis 150 hPa ( $10^{4.2}$  Pa), ersichtlich. Hier ist in der alten Simulation bis zu 10 ppbv mehr  $\text{HNO}_{3(\text{LIQ})}$  vorhanden. Es gibt aber auch positive Differenzen von  $\text{HNO}_{3(\text{LIQ})}$  (bis zu 10 ppbv Differenz) in Bereichen, in denen in der neuen Simulation aufgrund der etwas kühleren Temperatur STS-Teilchen simuliert werden, während in der alten Simulation kein oder weniger STS vorhanden ist. Vor allem in 15 hPa sind solche Gebiete erkennbar.

Die  $\text{HNO}_3$ -Differenzen am Südpol (Abbildung 4.29 (unten links)) sind in den Regionen, in denen NAT-Teilchen in der neuen Simulation gebildet werden, negativ, falls gleichzeitig noch keine festen Teilchen in der alten Simulation vorhanden sind. In der dargestellten Zeitserie sind dabei auch negative Differenzen in der Höhe von 15 hPa erkennbar. Sobald in der alten Simulation feste Teilchen gebildet werden, wechselt wieder das Vorzeichen der  $\text{HNO}_3$ -Differenzen zwischen neuer und alter Simulation.

Bei  $\text{ClO}_x$  (Abbildung 4.29 (unten rechts)) ist in der Zeitserie des antarktischen Winters und Frühlings 2006 eine ähnliche Charakteristik wie 2003 zu erkennen. So wird die Differenz mit Werten von bis zu über 3.0 ppbv im Höhenbereich um 15 hPa dominiert, in dem in der neuen Simulation im Gegensatz zur alten Simulation noch NAT-Teilchen gebildet werden.

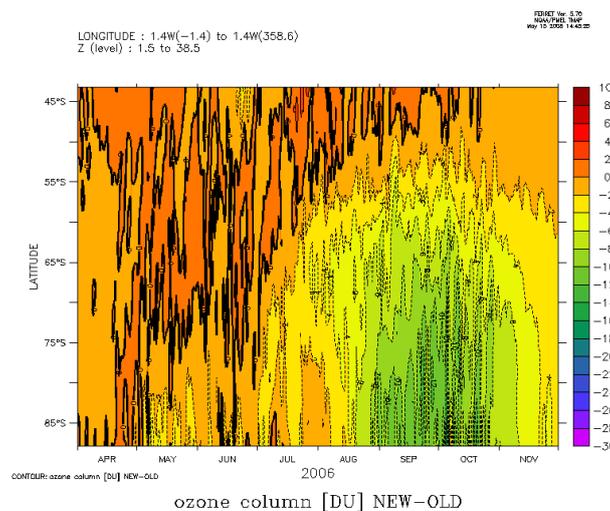


Abbildung 4.30: Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule in DU (neue - alte Simulation) des südhemisphärischen Winters und Frühlings 2006 südlich von  $45^\circ\text{S}$

Die Ozonsäulen der hohen Breiten sind südlich von ca.  $50^{\circ}\text{S}$  im antarktischen Frühling 2006 in der neuen Simulation wie 2003 niedriger als in der alten Simulation. Es sind dabei in der Differenz Maxima von über 10 DU im September und Oktober südlich von ca.  $70^{\circ}\text{S}$  zu erkennen. Der Effekt des stärkeren Ozonabbaus ist dabei hauptsächlich auf die grössere maximale Anzahldichte der Eisteilchen in der neuen Simulation gegenüber den festen Teilchen in der alten Simulation zurückzuführen.

#### 4.6.4 Vergleich der Ozonsäulen des südhemisphärischen Winters 2003 und 2006 der neuen und alten Simulation mit Satellitendaten von TOMS und OMI

Um die unterschiedlichen Ozonsäulen der beiden Simulation im antarktischen Winter und Frühling der Jahre 2003 und 2006 mit Satellitendaten von TOMS zu vergleichen, sind in Abbildung 4.31 die absoluten  $O_3$ -Säulenwerte der alten und neuen Simulation sowie die Messungen der Satelliteninstrumente TOMS (2003) bzw. OMI (2006) dargestellt.

Der Ozonabbau ist dabei im antarktischen Frühling 2006 im Vergleich zu 2003 aufgrund des simulierten kälteren Winters, der damit zusammenhängenden ausgeprägteren Bildung von PSCs und der somit stärkeren Chloraktivierung und Denitrifizierung, stärker ausgeprägt. So sind Ozonsäulenwerte von unter 200 DU im antarktischen Frühling 2003 sowohl in der alten als auch in der neuen Simulation nur von Mitte September bis Ende Oktober simuliert, wohingegen im antarktischen Frühling 2006 diese von Mitte September bis Ende November ersichtlich sind. Es ist so vor allem die zeitlich längere Dauer des Ozonlochs auffällig.

Ebenfalls stärker sind die Ozonabbauraten. So sind die kleinsten Ozonsäulen im antarktischen Frühling 2003 in der alten Simulation unterhalb 190 DU und in der neuen Simulation unterhalb 180 DU (jeweils Mitte und Ende September südlich von ca.  $85^{\circ}\text{S}$ ). Im antarktischen Frühling 2006 hingegen werden kleinere Ozonsäulen simuliert. So finden sich in der alten Simulation Ozonsäulen von unter 150 DU, in der neuen Simulation sogar unter 140 DU (jeweils Mitte Oktober südlich von ca.  $85^{\circ}\text{S}$ ).

Im Vergleich zu TOMS und OMI sind die simulierten Ozonsäulen sowohl in der alten, als auch in der neuen Simulation immer noch zu gross. So erreichen die Ozonsäulen bei TOMS im antarktischen Frühling 2003 Werte von unter 120 DU (Ende September bis Anfang Oktober südlich von ca.  $75^{\circ}\text{S}$ ) und bei OMI im antarktischen Frühling 2006 ebenfalls 120 DU (Anfang Oktober südlich von ca.  $75^{\circ}\text{S}$ ).

Werte von unter 200 DU findet man 2003 bis Ende September, wobei solche niedrigen Werte noch deutlich nördlicher (bis ca.  $65^{\circ}\text{S}$ ), als im ECHAM5/MESSy1-Modell (bis ca.  $75^{\circ}\text{S}$ ) simuliert, gemessen wurden. Im antarktischen Frühling 2006 wurden Ozonsäulen von unter 200 DU bis Ende November gemessen. Auch hier kommen solche niedrige Werte deutlich nördlicher (bis ca.  $65^{\circ}\text{S}$ ) als im ECHAM5/MESSy1-Modell (bis ca.  $75^{\circ}\text{S}$ ) vor.

Beim Vergleich von Simulation und Messung sind damit die etwas kleineren Ozonsäulen der neuen Simulation näher an den Messungen von TOMS und OMI.

Zusammengefasst liefert die Simulation mit der neuen PSC-Parameterisierung inklusive der Trennung der Bildung der Eis- und NAT-Teilchen und der neuen Festlegung der maximalen Anzahldichte ( $N_{MAX}$ ) die realistischeren Ergebnisse im Vergleich zu TOMS und OMI.

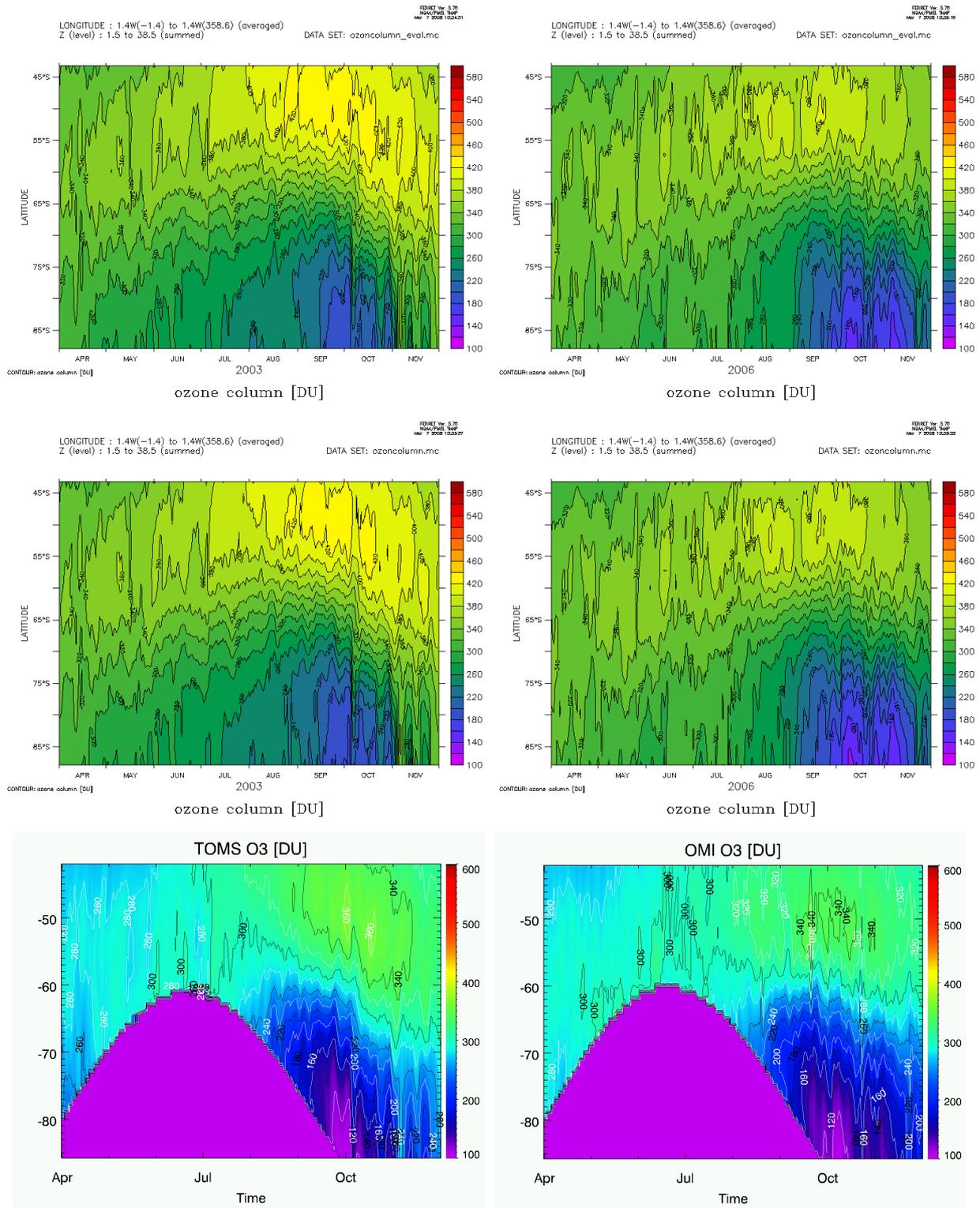


Abbildung 4.31: Zeitserien der simulierten Ozonsäulen (in DU) für den Zeitraum der antarktischen südhemisphärischen Winter und Frühlinge 2003 und 2006 im Vergleich mit TOMS/OMI. Alle Abbildungen für das Breitenintervall südlich von 45°S bis südlich von 90°S: Oben: Ozonsäulen der alten PSC-Parameterisierung für 2003 (links) und 2006 (rechts); Mitte: Ozonsäulen der neuen PSC-Parameterisierung für 2003 (links) und 2006 (rechts); unten: Ozonsäulen gemessen mit TOMS für 2003 (links) und mit OMI für 2006 (rechts)

## 4.7 Vergleich der Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung mit Messungen von MIPAS auf ENVISAT

Nach Einführung und Implementierung der neuen PSC-Parameterisierung in ECHAM5/MESy1 und der Darstellung ihrer Funktionalität (Abschnitt 4.5) sowie dem Vergleich mit einer Simulation mit bisheriger thermodynamischer Parameterisierung (Abschnitt 4.6) findet in diesem Abschnitt ein Vergleich der Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung mit von MIPAS auf ENVISAT [Fischer, 1992, Fischer et al., 2008; von Clarmann et al., 2003] gemessenen STS-, NAT- und Eisteilchen statt.

Eine genaue Beschreibung des Auswerteverfahrens der MIPAS-Spektren befindet sich dabei in Höpfner et al. [2006a].

### 4.7.1 Vergleich der antarktischen PSCs im Mai und Juni 2003

Es wird zunächst das antarktische Auftreten der PSCs in der durchgeführten neuen PSC-Simulation (Abschnitt 4.4) mit Messungen von MIPAS auf ENVISAT für den Zeitraum vom 23. Mai 2003 bis 15. Juni 2003 [Höpfner et al., 2006b] verglichen (Abbildung 4.32 bis 4.35).

Mit MIPAS auf ENVISAT werden keine Mischungsverhältnisse der PSC-Teilchen detektiert, sondern es findet eine Fallunterscheidung zwischen STS-, NAT- und Eisteilchen für jede Messung an einer Geolokation statt. In Abbildung 4.32 (oben links) sind die von MIPAS gemessenen PSC-Teilchen sowie die Isolinien der Kondensationstemperaturen in der mittleren Höhe von ca. 21.0 km für die antarktischen Breiten am 23. Mai 2003 dargestellt. Die für die Abbildung ausgewerteten MIPAS-Spektren stammen dabei aus einem Höhenbereich von ca. 19.5 km bis 22.5 km, was einer mittleren Höhe von 21.0 km entspricht. Die Isolinien der Kondensationstemperaturen sind aus ECMWF-Analysen abgeleitet [Höpfner et al., 2006b].

Zum Vergleich sind in Abbildung 4.32 die mit ECHAM5/MESy1 simulierten Temperaturen und die Isolinien der Kondensationstemperaturen (oben Mitte), das  $HNO_3$  (oben rechts), die Anzahl-dichten von NAT (unten links) und Eis (unten Mitte) sowie das Volumenmischungsverhältnis von  $HNO_{3(LIQ)}$  (unten rechts) für die entsprechenden Breiten in 54 hPa aufgetragen. 54 hPa entspricht dabei einer Höhe von ca. 20.5 km und ist damit vertikal die nächste Modellschicht der durchgeführten Modellsimulation in Bezug auf die mittlere detektierte Höhe von 21 km bei MIPAS auf ENVISAT.

Die Temperaturen der ECHAM5/MESy1-Simulation ähneln am 23. Mai den aus ECMWF-Analysen abgeleiteten Temperaturen. So sind sich die Isolinien der NAT-Kondensationstemperatur sehr ähnlich. Die Fläche in welcher die Luftmassen eine Temperatur unterhalb der STS-Kondensationstemperatur ( $T_{STS}$ ) besitzen, ist bei den Temperaturen welche aus den ECMWF-Analysen abgeleitet sind etwas grösser als bei der Simulation von ECHAM5/MESy1. Die Eiskondensationstemperatur ist in der ECHAM5/MESy1-Simulation an diesem Tag in dieser Höhe noch nicht, in der MIPAS-Darstellung in einem kleinen Gebiet, unterschritten.

Entsprechend den Isolinien der Kondensationstemperaturen befinden sich in ECHAM5/MESy1 die unterschiedlichen PSC-Flächen mit NAT-Teilchen innerhalb der  $T_{NAT}$ -Isolinie und die der STS-Teilchen innerhalb der  $T_{STS}$ -Isolinie. Bei der Bildung der NAT-Teilchen muss allerdings die notwendige Unterkühlung von 3 K, welche im Modell angenommen wird, beachtet werden. Nach initialer NAT-Bildung an einem Gitterpunkt gilt aber im folgenden  $T_{NAT}$  als Bildungstemperatur in diesem Bereich (siehe Abschnitt 4.5).

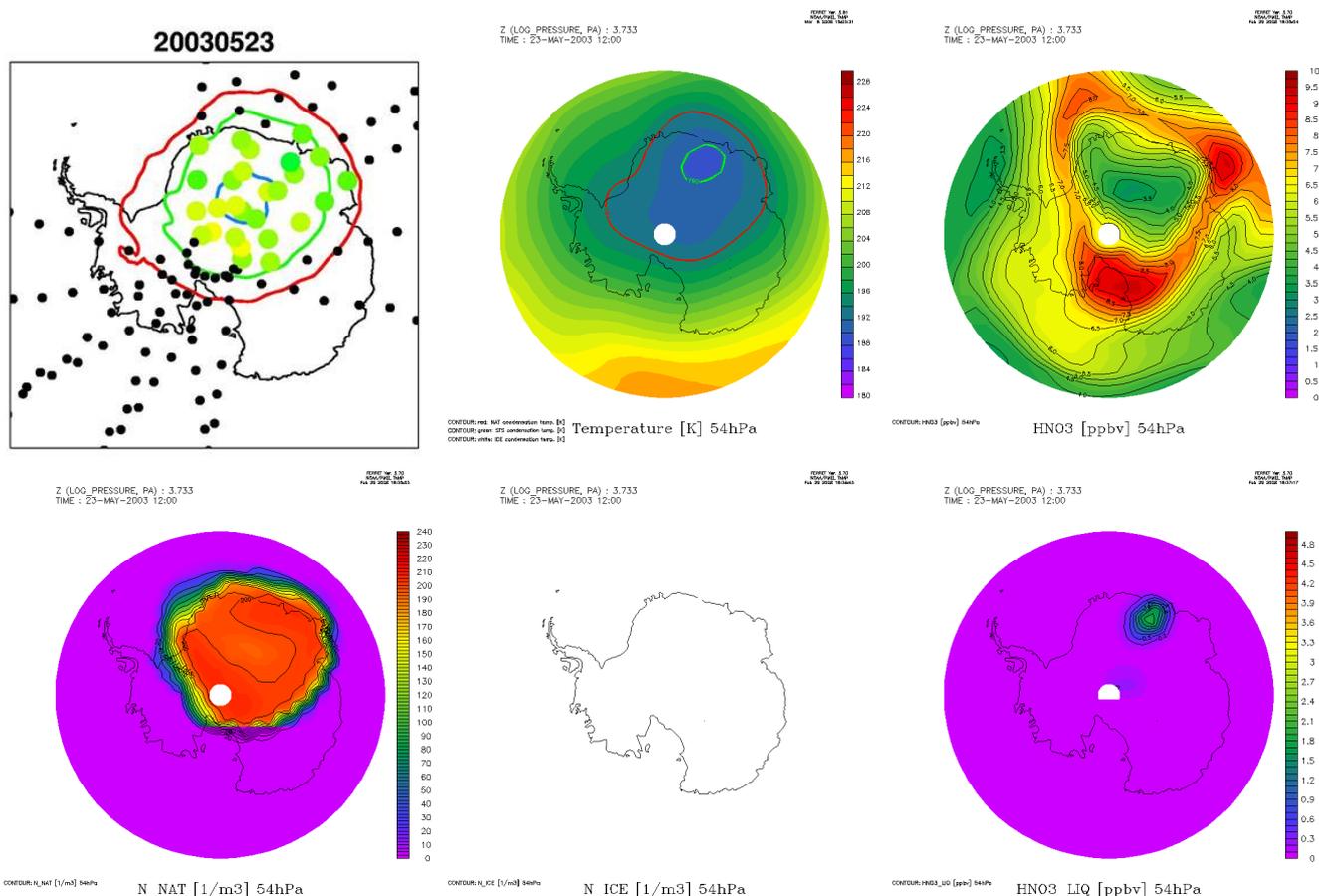


Abbildung 4.32: Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 23. Mai 2003. Messung mit MIPAS auf ENVISAT für die mittlere Höhe 21 km (oben links): Rot/orange Quadrate sind NAT-Partikel mit Radien  $< 3 \mu m$ , blaue Dreiecke sind Eispartikel und grüne bis blaue Kreise sind mit hoher Wahrscheinlichkeit STS-Partikel oder aber NAT-Partikel mit Radien  $> 3 \mu m$ . Rote Linien entsprechen der Temperaturisolinie der NAT-Kondensationstemperatur (194.2 K), grüne Linien der STS-Bildungstemperatur (190.2 K) und blaue Linien der Eiskondensationstemperatur (188 K). ECHAM5/MESy1-Simulation auf 54 hPa: Temperatur (in K) (Temperaturlinien entsprechend der Linien der MIPAS-Abbildung, Eiskondensationstemperatur allerdings als weisse Linie) (oben Mitte),  $HNO_3$  (in ppbv) (oben rechts), Anzahldichte von NAT-Partikeln (in  $\frac{1}{m^3}$ ) (unten links), Anzahldichte von Eispartikeln (in  $\frac{1}{m^3}$ ) (unten Mitte) und  $HNO_3$  in STS-Partikel (in ppbv) (unten rechts). MIPAS auf ENVISAT-Abbildung aus Höpfner et al. [2006b]

Am 23. Mai sind im Modell in einem grösseren Gebiet PSCs des Typ 1a (NAT) und in einem kleineren Gebiet bei ca.  $70^\circ S$ ,  $20^\circ E$  der PSC-Typ 1b (STS) vorhanden. Der PSC-Typ 2 (Eis) ist noch nicht simuliert. Entsprechend dem vorhandenen grossflächigen Auftreten von NAT-Teilchen ist bei  $HNO_3$  in der Gasphase eine Abnahme im simulierten PSC-Gebiet erkennbar.

Bei den Messungen von MIPAS auf ENVISAT sind noch keine NAT-Teilchen sondern zunächst im Bereich der  $T_{STS}$ -Isolinie nur der PSC-Typ 1b erkennbar, obwohl  $T_{NAT}$  grösser als  $T_{STS}$  ist.

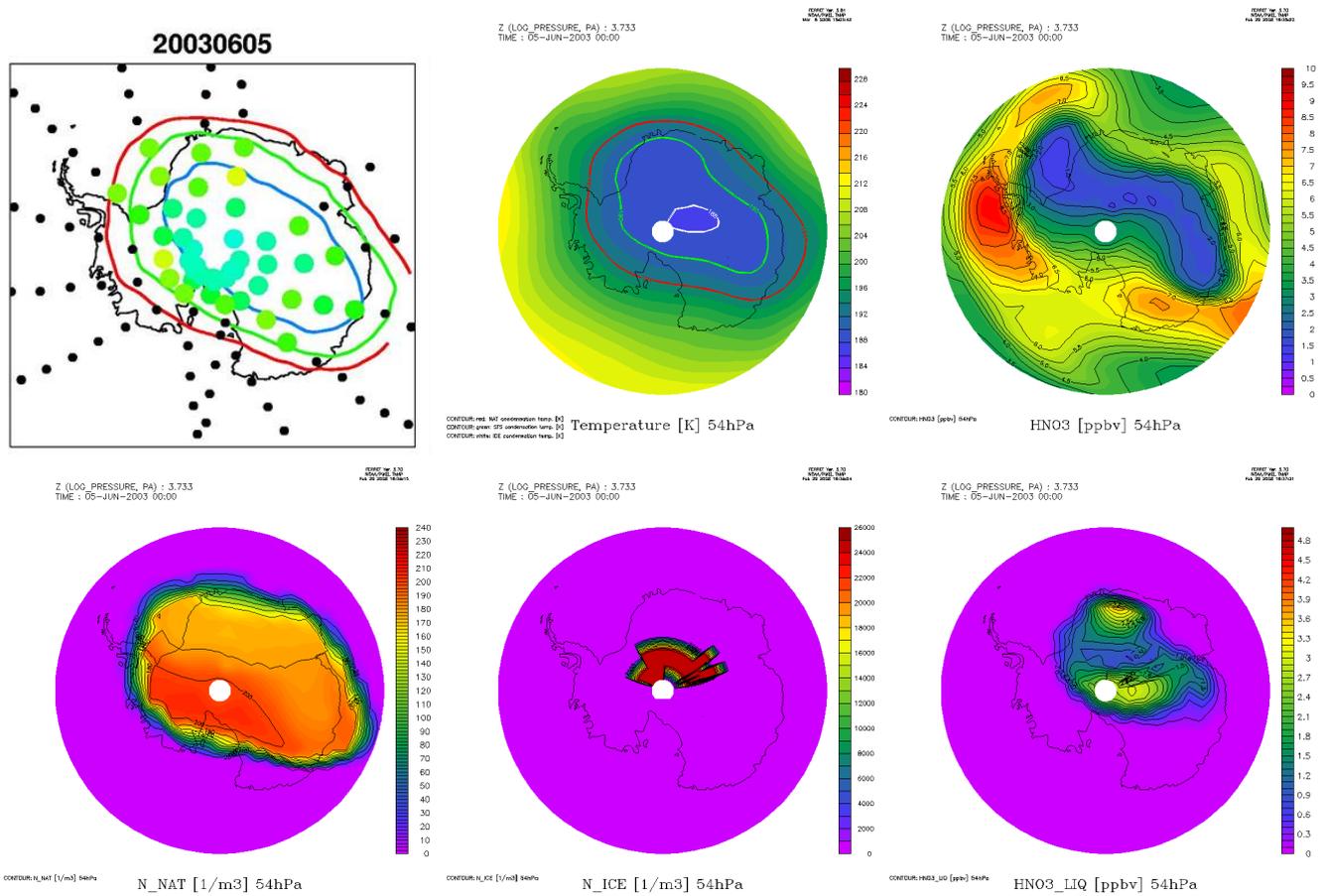


Abbildung 4.33: Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 5. Juni 2003 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1. Beschreibung siehe Abbildung 4.32

Am 5. Juni 2003 (Abbildung 4.33) haben sich die PSCs des Typ 1a im Modell weiter in Richtung Süden, Westen und Osten ausgedehnt. Die Überdeckung umfasst dabei fast die gesamte Antarktis und geht teilweise darüber hinaus. Trotz dieses grossen Gebietes, in welchem die NAT-Teilchen simuliert werden, detektiert MIPAS auf ENVISAT nach wie vor keine NAT-Teilchen, obwohl die Temperaturen grossflächig unterhalb  $T_{NAT}$  liegen. Die simulierte Fläche des PSC-Typs 1b, welcher am 5. Juni im Modell ebenfalls in einem grösseren Gebiet über der nördlichen, nordöstlichen und östlichen Antarktis als am 23. Mai vorkommt, deckt sich aber recht gut mit den MIPAS-Messungen.

In der Nähe des Südpols werden am 5. Juni im Modell zum ersten Mal Eisteilchen simuliert. Zu diesem Zeitpunkt ist in einem kleineren Gebiet die Temperatur unter  $T_{ICE}$  gefallen. Der PSC-Typ 2 ist allerdings bei den Messungen zu diesem Zeitpunkt noch nicht detektiert.

Am 12. Juni 2003, eine Woche später als zum ersten Mal simuliert, werden von MIPAS auf ENVISAT Eisteilchen detektiert. Sie treten dabei aber nur in einem kleineren Gebiet über dem

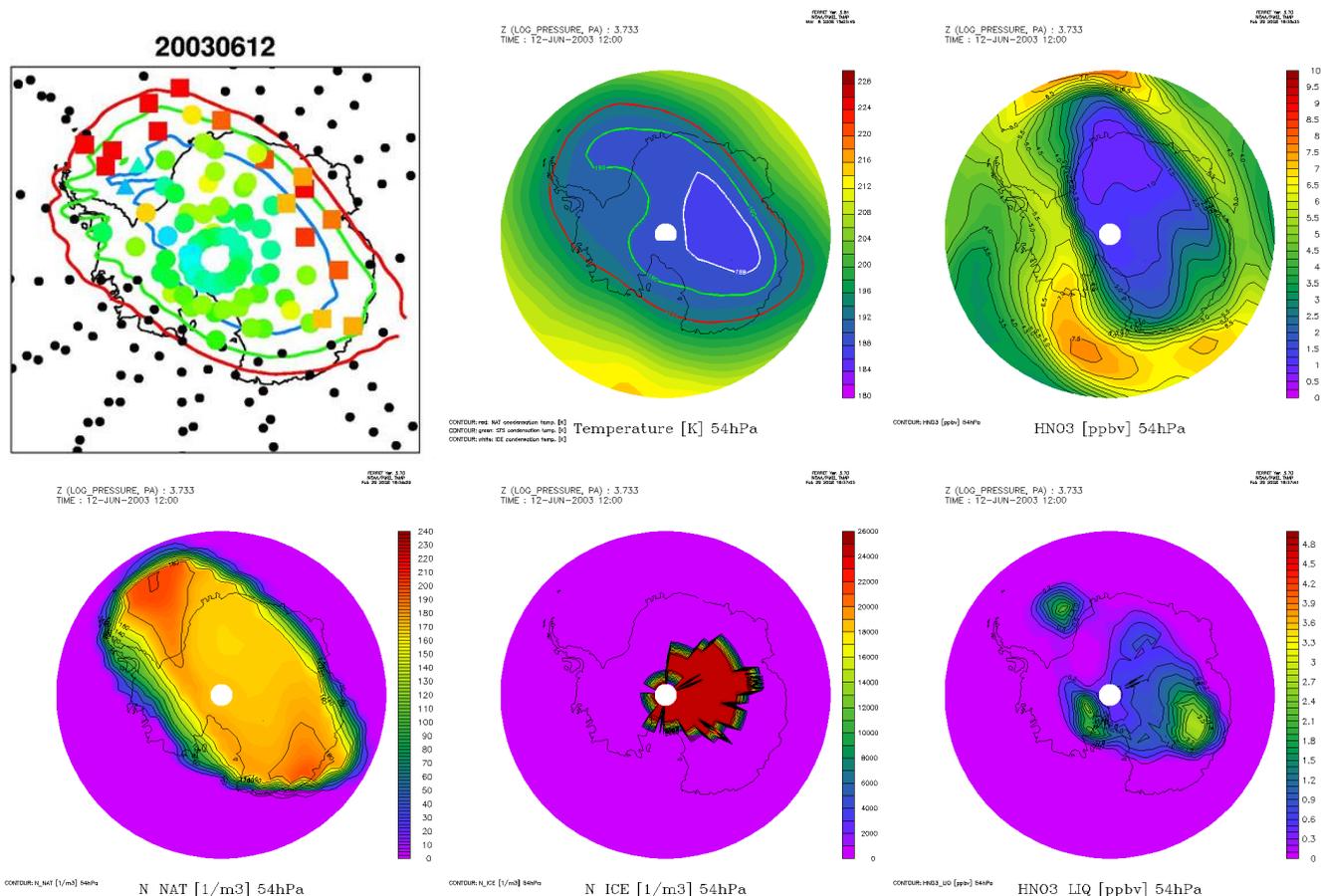


Abbildung 4.34: Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 12. Juni 2003 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1. Beschreibung siehe Abbildung 4.32

nordwestlichen Schelf der Antarktis auf, wohingegen der simulierte PSC-Typ 2 ein im Vergleich grösseres Gebiet östlich des Südpols überdeckt. Zu diesem Zeitpunkt wird von MIPAS auf ENVISAT ein Gürtel von NAT-Teilchen am äusseren Rand der Antarktis von Nordost nach West gemessen.

Die Bildung der detektierten NAT-Teilchen ist dabei nach Höpfner et al. [2006b] eine Folge von aufsteigende Luftmassen, welche durch Gravitationswellen rückseitig eines Gebirgszuges verursacht sind. Im Modell ist die horizontale NAT-Ausbreitung im Vergleich zu hoch. Das Gebiet der simulierten und gemessenen STS-Teilchen stimmt dagegen wieder recht gut überein.

Durch die im Modell stattfindende Aufnahme von  $HNO_3$  in den NAT-Teilchen und die Sedimentation von grösseren Partikeln in tiefere Modellschichten hat das  $HNO_3$  am simulierten 12. Juni 2003 schon deutlich abgenommen. So ist die Denitrifizierung in einem grösseren Gebiet über den nördlichen und östlichen Bereichen der Antarktis gut zu erkennen. Hier sind nur noch  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnisse von 3 ppbv und kleiner erkennbar.

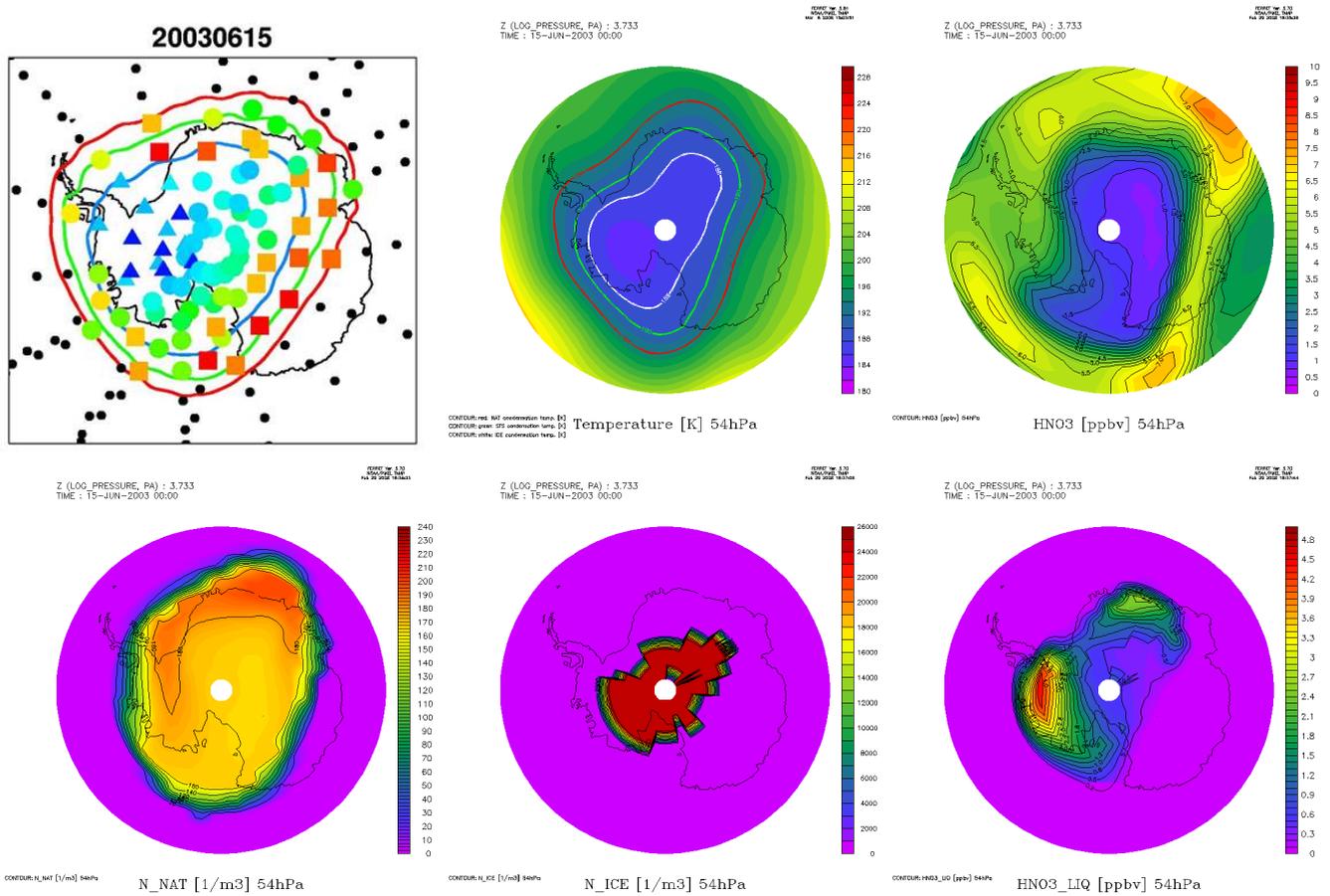


Abbildung 4.35: Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 15. Juni 2003 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1. Beschreibung siehe Abbildung 4.32

Am 15. Juni 2003 (Abbildung 4.35) hat sich das detektierte Gebiet des PSC-Typs 1a zyklonal Richtung Süden ausgebreitet. Die gemessene Gesamtüberdeckung der NAT-Teilchen hat dabei zugenommen. Ausser am westlichen Rand sind NAT-Teilchen in einem äusseren Gürtel in einem Gebiet, in denen die Temperaturen unterhalb von  $T_{NAT}$  liegen, vorhanden. Dieser äussere Gürtel entspricht auch der Begrenzung des simulierten NAT-Gebietes. Die Überschneidung der simulierten und detektierten PSC-Typ 1a Fläche ist also besser geworden, wenn auch die NAT-Teilchen nach wie vor im Modell grossflächiger als gemessen vorkommen.

Die Überschneidung der simulierten und detektierten Fläche des PSC-Typs 2 ist am 15. Juni ebenfalls besser als zuvor. So kommen Eisteilchen bei den MIPAS-Messungen zu diesem Zeitpunkt in einem grösseren Gebiet als vorher westlich des Südpols vor, wobei diese im Modell in etwa südlich von 80°S simuliert sind. Der Vergleich zwischen simuliertem und detektiertem PSC-Typ 1b-Gebiet ist hingegen schlechter geworden. So finden sich in dem simulierten Gebiet der STS-Teilchen jetzt grössere Flächen, in denen Eisteilchen detektiert werden.

Zusammengefasst zeigt der Vergleich zwischen den ECHAM5/MESSy1-Simulations- und MIPAS-Messdaten im Zeitraum vom 23. Mai bis 15. Juni einige Übereinstimmungen bezüglich der Bildung und Existenz der unterschiedlichen PSC-Typen. So haben die simulierten und gemessenen horizonta-

len Flächen des PSC-Typs 1b auf 54 hPa bzw. 20.5 km recht grosse Überschneidungen. Unterschiede gibt es jedoch vor allem, wenn MIPAS Eis- oder NAT-Teilchen detektiert, da durch die Fallunterscheidung so keine STS-Teilchen mehr angezeigt werden, diese aber im Modell noch vorhanden sind. Die Bildung und Existenz der STS-Teilchen ist aber nach diesem ersten Vergleich im Modell realitätsnah implementiert.

Etwas anders verhält es sich mit den PSC-Typen 1a und 2. Deren simulierte Flächen scheinen beide überschätzt zu sein. So finden sich im Modell deutlich früher und grossflächiger NAT-Teilchen als mit MIPAS auf ENVISAT gemessen werden. Ähnlich verhält sich dies mit Eisteilchen, obwohl hier die Unterschiede nicht so deutlich sind. Im zeitlichen Verlauf nähern sich die Flächen der Eisteilchen zwischen Simulation und Messung einander an.

#### 4.7.2 Vergleich der Flächenanteile der PSC-Typen

Zur Verdeutlichung der Unterschiede zwischen den Daten von ECHAM5/MESSy1 und MIPAS auf ENVISAT befinden sich in den Abbildungen 4.36 bis 4.39 Vergleiche der prozentualen Flächenüberdeckung polwärts von  $55^\circ$  der einzelnen PSC-Bestandteile. Die Flächenüberdeckung ist dabei für die Druckfläche von 54 hPa von ECHAM5/MESSy1 und eine mittlere Höhe von 20.5 km bei den Messungen von MIPAS/ENVISAT dargestellt, wobei diese mittlere Höhe ausgewertete Satellitenspektren des Höhenbereichs von 19.0 km bis 22.0 km umfasst. Die ausgewählten Zeiträume entsprechen dabei denen des Abschnitts 4.6, d.h. es sind die nordhemisphärischen Winter und Frühlinge von November 2002 bis April 2003 und November 2006 bis April 2007 für die nordpolaren Breiten (Abbildung 4.36 und 4.37) und die südhemisphärischen Winter und Frühlinge von Mai bis Oktober 2003 bzw. 2006 für die südpolaren Breiten (Abbildung 4.38 und 4.39) dargestellt.

Der wesentliche Unterschied zwischen ECHAM5/MESSy1 in Bezug auf die Charakterisierung der PSC-Teilchen an den jeweiligen Geolokationen, die Fallunterscheidung der PSC-Teilchen bei der Messung von MIPAS auf ENVISAT und die Möglichkeit des parallelen Vorkommens aller PSC-Typen im Modell wird in den Abbildungen berücksichtigt. So werden die prozentualen Flächenanteile von NAT, STS und Eis bei den Messdaten additiv dargestellt, bei den Modelldaten dagegen absolut. Die am oberen und unteren Rand dargestellten Dreiecke geben bei der MIPAS-Zeitserie an, dass an diesem Tag eine Messung vorlag.

#### Betrachtung der nordpolaren Winter und Frühlinge 2002/2003 und 2006/2007

Im nordhemisphärischen Winter 2002/2003 (Abbildung 4.36) treten die PSC in der Höhe von 54 hPa zum ersten Mal im Modell Ende November und bei den Messungen Anfang Dezember auf. Diese PSC-Flächen existieren zunächst bei beiden Zeitserien bis Mitte Januar. ECHAM5/MESSy1 simuliert jedoch noch Mitte Februar und Anfang März einige Tage in Folge PSCs, was durch die Messung nicht bestätigt wird. Die Unterschiede zwischen Messung und Simulation liegen vor allem in den Flächengrößen sowie in der Art der PSC-Teilchen.

So werden in ECHAM5/MESSy1 grosse Flächen mit NAT-Partikeln simuliert, welche früher als die STS-Partikel ab 20. November 2002 existieren und deren Flächenanteile zwischen 4. Dezember 2002 und 12. Januar 2003 zwischen 20% und 35% einnehmen. Der PSC-Typ 1b ist in ECHAM5/MESSy1 zum ersten Mal am 4. Dezember 2002 ersichtlich. Er tritt kontinuierlich zwischen dem 19. Dezember 2002 und dem 12. Januar 2003 auf, allerdings mit relativ kleinen Flächenanteilen von maximal 10%.

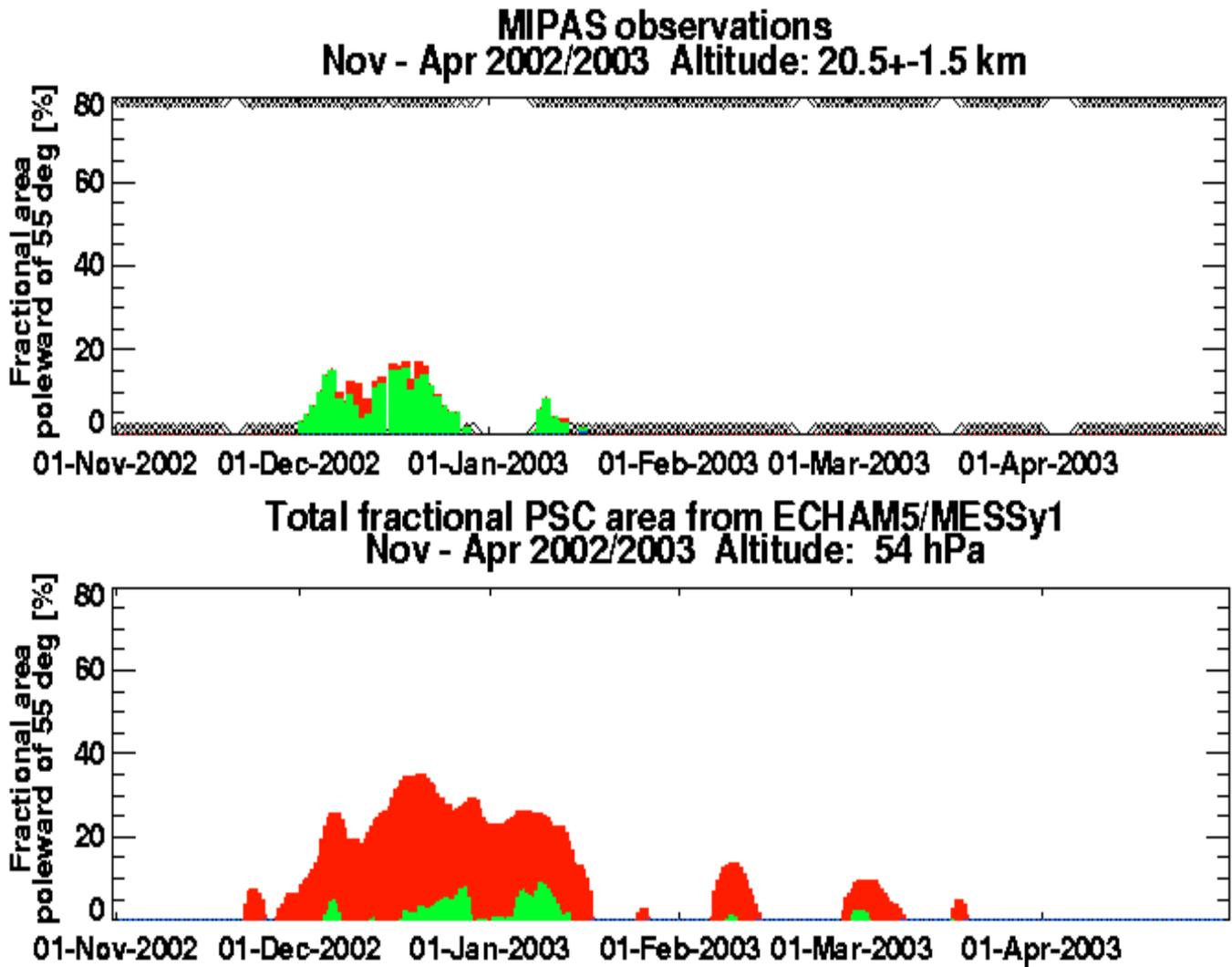


Abbildung 4.36: Vergleich der PSC-Bestandteile in den nördlichen polaren Breiten im Zeitraum von November 2002 bis April 2003 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT (oben) und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (unten) mit neuer PSC-Parameterisierung. Prozentuales Aufkommen der Eispartikel (blau), NAT-Partikel (rot) und STS-Partikel (grün) im Bereich nördlich von 55° N in 20.5 km (MIPAS) und 54 hPa (ECHAM5/MESSy1) Höhe. Die Werte sind bei MIPAS additiv, bei ECHAM5/MESSy1 absolut dargestellt.

Mit MIPAS auf ENVISAT werden hauptsächlich STS-Teilchen detektiert, deren Flächen deutlich kleiner als die NAT-Flächen aber grösser als die STS-Flächen von ECHAM5/MESSy1 sind.

So finden sich im Dezember 2002 maximale STS-Flächenanteile von 15%. Der PSC-Typ 1a tritt bei den Messungen zum ersten Mal am 7. Dezember 2002 auf und verschwindet wieder Ende Dezember. Am 12. Januar 2003 wird noch einmal ein PSC-Typ 1a detektiert. Die horizontale Überdeckung dieser stratosphärischen Wolken ist nur sehr klein. So liegt der Flächenanteil bei nur maximal 5%. Eisteilchen sind in der Periode von November 2002 bis April 2003 weder simuliert noch detektiert.

Im nordhemisphärischen Winter und Frühling 2006/2007 (Abbildung 4.37) ist eine kontinuierliche horizontale Überdeckung der simulierten PSCs nördlich von 55°N in 54 hPa vom 25. November 2006 bis 12. März 2007 (mit einer kurzen Unterbrechung am 5. März 2007) gegeben. Es sind dabei wieder zunächst PSC des Typs 1a simuliert, welche im genannten Zeitraum im Vergleich zu den anderen

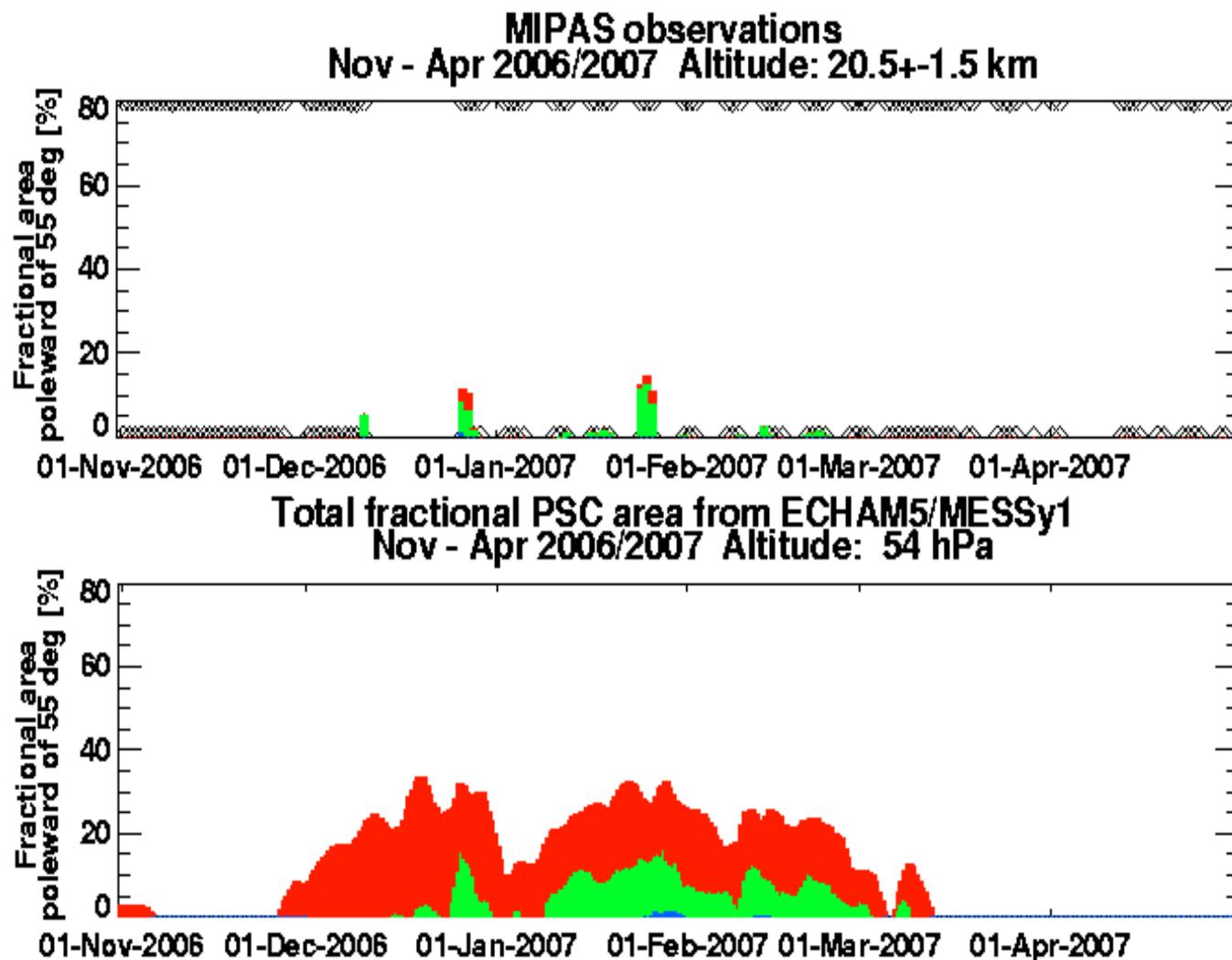


Abbildung 4.37: Vergleich der PSC-Bestandteile in den nördlichen polaren Breiten im Zeitraum von November 2006 bis April 2007 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT (oben) und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (unten) mit neuer PSC-Parameterisierung. Prozentuales Aufkommen der Eispartikel (blau), NAT-Partikel (rot) und STS-Partikel (grün) im Bereich nördlich von 55°N in 20.5 km (MIPAS) und 54 hPa (ECHAM5/MESSy1) Höhe. Die Werte sind bei MIPAS additiv, bei ECHAM5/MESSy1 absolut dargestellt.

PSC-Typen auch immer die grössten Flächenanteile (maximal bis zu 35%) einnehmen. STS-Teilchen sind vom 15. Dezember mit zeitlichen Unterbrechungen bis Anfang März simuliert. Dieser PSC-Typ nimmt dabei maximale Flächenanteile von 15% ein. In einem kurzen zeitlichen Intervall von 6 Tagen Ende Januar und noch einmal zeitlich kürzer Mitte Februar ist im Modell der PSC-Typ-2 simuliert, allerdings nur mit Flächenanteilen von bis zu 2%.

Die Messungen von MIPAS auf ENVISAT zeigen während dieser Zeitperiode nur vereinzelte PSC-Vorkommen. Es ist aber zu beachten, dass nicht kontinuierlich gemessen wurde. So liegen z.B. in der Periode vom 12. bis 25. Dezember 2006, in welcher die Existenz von PSCs recht wahrscheinlich ist, keine Messungen vor. Die ersten PSCs werden deutlich später detektiert als im Modell simuliert, nämlich am 11. Dezember 2006. Im Januar und Februar sind PSCs nur an einzelnen Tagen mit sehr kleinen Flächenanteilen von 2-3% mit Ausnahme dreier Tage Ende Januar, an denen die Flächenanteile auf bis zu 15% ansteigen, ersichtlich.

Der Anteil des PSC-Typs 1b ist bei den Messungen wieder dominant. So wird dieser schon am 11. Dezember deutlich früher als das erste Auftreten des PSC-Typs 1a am 26. Dezember 2006 detektiert. Beim PSC-Typ 1a ist allerdings die Messlücke wieder zu beachten. Die Flächenanteile des PSC-Typs 1a sind mit maximal 4% deutlich kleiner als im Modell und auch immer kleiner als die Flächenanteile des PSC-Typs 1b mit maximal 12%. Der PSC-Typ 2 findet sich bei den Messungen nur am 26. Dezember mit einem sehr kleinen Flächenanteil von 1%.

Zusammengefasst ist festzustellen, dass ECHAM5/MESSy1 die von MIPAS auf ENVISAT gemessenen PSCs im nordpolaren Winter und Frühling 2002/2003 bzw. 2006/2007 ebenfalls simuliert. Im Vergleich ist dabei das zeitliche Vorkommen und die Flächengröße des PSC-Typs 1b bei der Messung und im Modell recht ähnlich. Es werden jedoch tendenziell zu grosse Flächen der PSC-Typen 1a simuliert, die im Vergleich zu den Daten von MIPAS auf ENVISAT auch zu früh und zu lang existieren.

### Betrachtung der südpolaren Winter und Frühlinge 2003 und 2006

Zur abschliessenden Betrachtung der simulierten PSC-Flächen im ECHAM5/MESSy1-Modell findet mit Hilfe der beiden Abbildungen 4.38 und 4.39 ein Vergleich mit den Daten von MIPAS auf ENVISAT für die beiden Perioden des südhemisphärischen Winters und Frühlings in den Jahren 2003 bzw. 2006 statt.

Es werden hierbei zusätzlich Zeitserien der Flächenanteile der unterschiedlichen PSC-Typen südlich von 55°S dargestellt, die mit einem Box-Modell mit thermodynamischer PSC-Parameterisierung und ECMWF-Temperaturen simuliert wurden. Im Box-Modell wurden dabei zunächst die drei Kondensationstemperaturen  $T_{ICE}$ ,  $T_{NAT}$  und  $T_{STS}$  bestimmt. Es wurden für  $T_{ICE}$  die Parameterisierung von Marti und Mauersberger [1993] und für  $T_{NAT}$  die Parameterisierung von Hanson und Mauersberger [1988] verwendet.  $T_{STS}$  wurde für die Temperatur bestimmt, bei der die Bildung von STS positiv wurde (nach Carslaw et al. [1995b], Luo et al. [1995], siehe auch Abschnitt 4.3.1).

Die Berechnung der genannten Kondensationstemperaturen erfolgte für jeden Gitterpunkt eines vorgegebenen Gitters, wobei die von MIPAS auf ENVISAT gemessenen  $H_2O$  und  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnisse des 17. Mai 2003 verwendet wurden. Die Mischungsverhältnisse sind so für jeden berechneten Tag konstant.

Mit Hilfe der ECMWF-Temperaturen wurde im folgenden für jeden Gitterpunkt bestimmt, ob die Temperaturen unterhalb von  $T_{ICE}$ ,  $T_{NAT}$  oder  $T_{STS}$  lagen. War die Temperatur kleiner als die Kondensationstemperatur, wurde die Existenz des entsprechenden PSC-Typs für diesen Gitterpunkt angenommen. Entsprechend der beschriebenen Parameterisierung ist im Box-Modell eine gleichzeitige Existenz mehrerer PSC-Typen möglich. Dies wurde entsprechend der Behandlung der PSC-Daten von ECHAM5/MESSy1 in Form einer absoluten Darstellung der Flächenanteile berücksichtigt.

Im südhemisphärischen Winter 2003 (Abbildung 4.38) finden sich in der ECHAM5/MESSy1-Simulation und bei den Messungen von MIPAS auf ENVISAT grössere Flächen mit PSC-Überdeckung als in den beiden untersuchten nordhemisphärischen Wintern. Auch das ECMWF-Boxmodell zeigt entsprechende Flächenanteile der PSC-Typen.

Beim Vergleich der Gesamtflächen der PSCs zwischen den Messungen von MIPAS auf ENVISAT und den Daten von ECHAM5/MESSy1 ist eine gute Übereinstimmung erkennbar. So sind PSCs bei den Messungen vom 20. Mai bis Mitte Oktober detektiert und vom 8. Mai bis Mitte Oktober simuliert. Es ergibt sich so mit Ausnahmen der frühen PSC-Flächen von 8. bis 19. Mai bei ECHAM5/MESSy1 eine ungefähre zeitliche Übereinstimmung zwischen Modell und Messung in denen PSCs vorkommen.

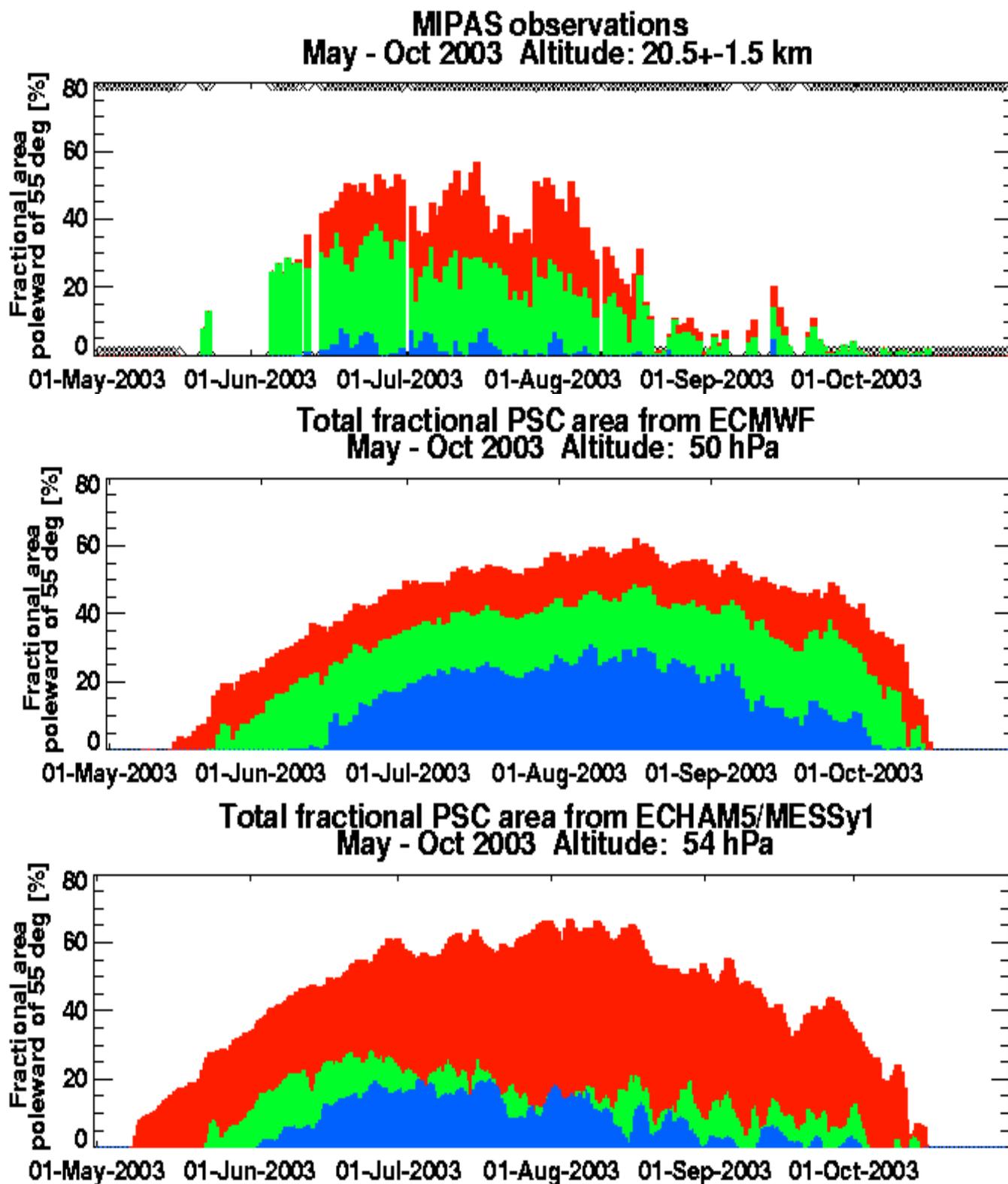


Abbildung 4.38: Vergleich der PSC-Bestandteile in den südlichen polaren Breiten im Zeitraum von Mai bis Oktober 2003 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT (oben), thermodynamisch simuliert mit ECMWF-Temperaturen (Mitte) und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 (unten) mit neuer PSC-Parameterisierung. Prozentuales Aufkommen der Eispartikel (blau), NAT-Partikel (rot) und STS-Partikel (grün) im Bereich südlich von 55°S in 20.5 km (MIPAS), 50 hPa (ECMWF) und 54 hPa (ECHAM5/MESSy1) Höhe. Die Werte bei MIPAS sind additiv, bei ECMWF und ECHAM5/MESSy1 absolut dargestellt.

Die gemessenen Flächenanteile der PSCs liegen von Mitte Juni bis Anfang August bei 35% bis 55%, die simulierten in diesem Zeitraum bei 47% bis 67%. Die simulierten Flächenanteile sind so von Mitte Juni bis Anfang August im Modell im zeitlichen Mittel um ca. 12% grösser. Ab Mitte August nimmt dieser Unterschied aber deutlich zu, da ab hier die Flächenanteile in der Messung stark abnehmen, im Modell aber noch relativ lange recht hohe Flächenanteile simuliert sind.

Beim Vergleich der einzelnen PSC-Typen sind unterschiedliche Übereinstimmungen zwischen Modell und Messung erkennbar. So sind die STS-Teilchen im Modell ähnlich simuliert, wie sie mit MIPAS gemessen wurden. Sie treten dabei ungefähr im gleichen Zeitraum vom 20. Juni bis Mitte Oktober auf und überdecken zu vielen Zeitpunkten ähnlich grosse Flächen südlich von 55°S in 54 hPa bzw. 20.5 km. Maximale Flächenanteile finden sich sowohl im Modell als auch in den Messungen Mitte bis Ende Juni. Hier werden Maxima von 35% in der Messung und 30% im Modell erreicht. Aufgrund der Denitrifizierung und dem somit geringeren Angebot an  $HNO_3$ , welches somit für die STS-Bildung vorhanden ist, gehen die STS-Flächenanteile sowohl im Modell als auch in der Messung von Juli bis Mitte Oktober langsam zurück.

Beim Vergleich des PSC-Typs 1a ist die Übereinstimmung zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS auf ENVISAT nicht so gut. So ist eine deutliche Überschätzung der NAT-Flächenanteile ersichtlich. Der PSC-Typ 1a wird dabei im Modell deutlich früher und auch länger simuliert. Er bildet sich im Modell vor den STS-Teilchen schon am 8. Mai 2003, wohingegen er durch MIPAS auf ENVISAT nach Auftreten der STS-Teilchen erst am 8. Juni 2003 detektiert wird. Die Flächenanteile des PSC-Typs 1a erreichen im Modell bis zu 67%, wohingegen mit MIPAS nur bis zu 30% Überdeckung gemessen wird.

Es ist zu beachten, dass bei der Festlegung eines STS-Teilchens aus den MIPAS-Strahlungsspektren, es sich unter bestimmten Bedingungen auch um ein NAT-Teilchen mit einem Radius grösser als  $3\mu m$  handeln kann [Höpfner, 2006b]. Trotz dieser kleineren Unsicherheit in der Bestimmung von STS und NAT aus MIPAS-Messungen ist eine Überschätzung der NAT-Teilchen im Modell aber signifikant. Dies wird besonders im Zeitraum von Mitte August bis Ende Oktober deutlich, in dem die simulierten Flächenanteile des PSC-Typs 1a ein Vielfaches der gemessenen darstellen.

Von Anfang Juni bis Ende September 2003 werden mit ECHAM5/MESSy1 auch PSCs des Typs 2 (Eisteilchen) simuliert. Die Flächenanteile dieses PSC-Typs liegen dabei bei bis zu ca. 20%. Mit MIPAS auf ENVISAT werden ebenfalls Eisteilchen detektiert, sie sind aber weniger häufig und die maximale Flächenüberdeckung liegt bei 7%. Es ist also auch bei der Bildung und Existenz der Eisteilchen im Modell eine Überschätzung vorhanden.

Bei Betrachtung der Zeitserie der prozentualen Flächenanteile der jeweiligen PSC-Typen, deren Berechnung im Boxmodell mit ECMWF-Temperaturen durchgeführt wurde, ergibt sich ein ähnliches Bild wie bei der ECHAM5/MESSy1-Simulation. Es werden zwar NAT-Teilchen einige Tage später als bei ECHAM5/MESSy1 gebildet, sie sind aber ungefähr gleich lang im Boxmodell wie bei ECHAM5/MESSy1 vorhanden und die Flächenanteile sind ähnlich gross, d.h. deutlich grösser als in der Messung.

Der Vergleich der STS-Teilchen mit den Daten von MIPAS auf ENVISAT ist bei den im Boxmodell simulierten PSCs des Typ 1b deutlich schlechter als bei ECHAM5/MESSy1. Es ist die zeitliche Überdeckung mit den Messungen zwar recht gut, aber es findet ab Anfang Juli kein Rückgang der horizontalen STS-Flächen auf 50 hPa statt, sondern sogar noch eine Zunahme bis Ende August. Dies ist verursacht durch die festgehaltenen Konzentrationen von  $HNO_3$  und  $H_2O$ . Es findet im Boxmodell so keine Denitrifizierung statt und das  $HNO_3$  in der Gasphase kann weiterhin für die STS-Bildung verwendet werden. Ähnlich ist dies bei der Simulation der Eisteilchen. Auch hier ist die  $H_2O$ -Konzentration konstant und es findet keine Dehydratation statt, was zu noch grösserer Überschätzung des PSC-Typs 2 gegenüber der Messung von MIPAS auf ENVISAT führt.

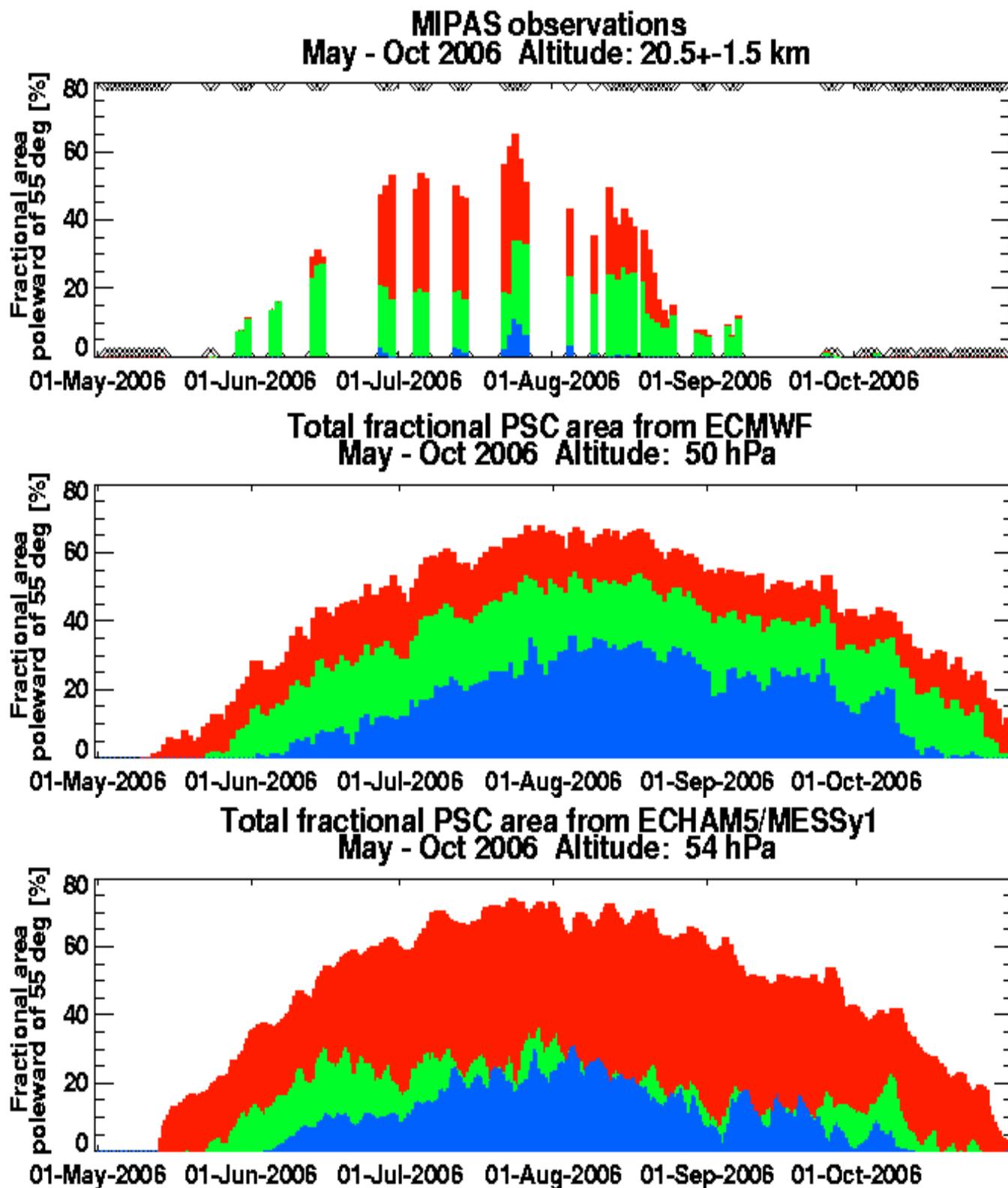


Abbildung 4.39: Vergleich der PSC-Bestandteile in den südlichen polaren Breiten im Zeitraum von Mai bis Oktober 2006 gemessen mit MIPAS auf ENVISAT (oben), thermodynamisch simuliert mit ECMWF-Temperaturen (Mitte) und simuliert mit ECHAM5/MESy1 (unten) mit neuer PSC-Parameterisierung. Prozentuales Aufkommen der Eispartikel (blau), NAT-Partikel (rot) und STS-Partikel (grün) im Bereich südlich von 55°S in 20.5 km (MIPAS), 50 hPa (ECMWF) und 54 hPa (ECHAM5/MESy1) Höhe. Die Werte bei MIPAS sind additiv, bei ECMWF und ECHAM5/MESy1 absolut dargestellt.

Bei dem Vergleich der PSC-Simulationsdaten von ECHAM5/MESSy1 mit den Messungen von MIPAS auf ENVISAT des südhemipshärischen Winters und Frühlings 2006 (Abbildung 4.39) ergeben sich ähnliche Charakteristika wie beim Vergleich des entsprechenden Zeitraums des Jahres 2003. So sind im Vergleich zu den Messungen von MIPAS auf ENVISAT wieder die simulierten PSCs des Typs 1a und Typs 2 bezüglich ihrer Flächenanteile überschätzt.

Es finden sich dabei in ECHAM5/MESSy1 maximale Flächenanteile des PSC-Typs 1a von bis zu 75%, wohingegen in den Messdaten nur Anteile von bis zu 40% vorkommen. Die NAT-Teilchen werden auch wieder deutlich früher simuliert. So sind im Modell schon Mitte Mai erste NAT-Flächen ersichtlich, wohingegen diese mit MIPAS auf ENVISAT erst Mitte Juni detektiert werden. Die PSCs des Typ 1a sind auch deutlich länger im Modell simuliert, als sie gemessen werden. So sind bei der Messung nur bis Ende September NAT-Teilchen ersichtlich, wobei im September nur noch sehr kleine Flächenanteile mit maximal 2% vorkommen, wohingegen diese im Modell bis Ende Oktober mit Flächenanteilen im September von noch  $\geq 40\%$  simuliert sind.

Bei der Simulation des PSC-Typs 2 in ECHAM5/MESSy1 existieren die Eisteilchen von Anfang Juni bis Mitte Oktober und haben maximale Flächenanteile von bis zu 30%, wohingegen diese mit MIPAS auf ENVISAT nur von Ende Juni bis Anfang August, zeitlich unterbrochen, gemessen werden und deutlich kleinere Flächenanteile mit maximal 10% aufweisen.

Bei den MIPAS-Messungen ist wieder auffällig, dass die ersten STS-Teilchen vor den ersten NAT-Teilchen detektiert werden. Im Vergleich zu den STS-Teilchen in ECHAM5/MESSy1, welche am 21. Mai zum ersten Mal simuliert werden, tritt der PSC-Typ 1b in der Messung nur wenige Tage später am 27. Mai zum ersten Mal auf. Die STS-Flächenanteile in ECHAM5/MESSy und in den MIPAS-Messungen sind bis 5. Oktober ungefähr gleich, wobei sie im Modell mit Maxima bis zu 35% gegenüber Maxima bis zu 30% in der Messung etwas grösser sind.

Vom 6. Oktober bis 22. Oktober wurde mit MIPAS nicht gemessen. Nach diesem Zeitraum sind nur noch 3 bis 4 STS-Aufkommen mit maximalen Flächenanteilen von 2% Ende September und Anfang Oktober ersichtlich. Die simulierten STS-Teilchen hingegen kommen bis Ende Oktober vor und haben im Oktober sogar noch einen maximalen Flächenanteil von 20%. In diesem Zeitraum liegt demnach in ECHAM5/MESSy eine deutliche Überschätzung des STS-Aufkommens vor.

Die simulierten PSC-Flächen des Box-Modells zeigen die gleichen Charakteristika wie im antarktischen Sommer 2003. Im Vergleich zu ECHAM5/MESSy1 sind die Flächenanteile der NAT-Teilchen in etwa gleich simuliert. Bei den STS-Teilchen findet spätestens ab Juli wieder eine starke Überschätzung statt, was wie schon erwähnt, hauptsächlich an der fehlenden Denitrifizierung liegt. Bei den Eisteilchen ist aufgrund der nicht simulierten Dehydratation ebenfalls eine gegenüber den Messungen von MIPAS auf ENVISAT noch stärkere Überschätzung vorhanden.

Zusammengefasst sind die mit ECHAM5/MESSy1 simulierten und mit MIPAS auf ENVISAT gemessenen PSCs bezüglich des gesamten Flächenanteils und des zeitlichen Auftretens teilweise vergleichbar. Bei Unterscheidung nach den einzelnen PSC-Typen sind aber unterschiedliche Ergebnisse vorhanden. So stimmen die simulierten STS-Flächen sehr gut mit den Messungen überein, wohingegen bei den Flächen der Eisteilchen eine sehr deutliche Überschätzung im Modell vorhanden ist. Diese PSCs des Typs 2 werden im Modell zu früh, zu lang und zu grossflächig simuliert. Ebenso ist eine Überschätzung der NAT-Teilchen ersichtlich.

Mit der neuen NAT-Parameterisierung werden die NAT-Teilchen im Modell früher simuliert als zuvor. Diese frühere Simulation scheint aber nach dem Vergleich mit Messungen von MIPAS auf ENVISAT nicht richtig zu sein. Entgegen der Annahme, dass die NAT-Teilchen sich vor den STS-Teilchen bilden, zeigen die Messungen das Gegenteil. Dies ist zunächst verwunderlich da  $T_{NAT} > T_{STS}$

ist. Berücksichtigt man aber den in Abschnitt 4.2 beschriebenen Bildungsmechanismus, der Bildung von NAT aus NAD, welches sich aus STS gebildet hat, so scheint es folgerichtig, dass sich die STS vor den NAT-Teilchen bilden.

Die Simulation der PSC-Typen mit Hilfe eines Box-Modells mit thermodynamischen Parameterisierungen zeigt bei den NAT-Flächen die gleiche Überschätzung wie in der ECHAM5/MESSy1-Simulation. Gleichzeitig werden aber auch die STS- und Eisflächen deutlich überschätzt, was vor allem durch die nicht simulierte Denitrifizierung und Dehydratation verursacht ist. Zum Vergleich mit den Messungen von MIPAS auf ENVISAT ist das Boxmodell von daher nur bedingt verwendbar. Es zeigt aber, dass mit der thermodynamischen Parameterisierung die gleiche zeitliche Aufeinanderfolge mit Typ 1a, Typ 1b und Typ 2 simuliert wird, wie mit der neuen PSC-Parameterisierung. Ebenfalls zeigt es zu jedem Zeitpunkt, dass die NAT-Flächen grösser sind als die Flächen der beiden anderen PSC-Teilchen, was bei der ECHAM5/MESSy1-Simulation ebenfalls der Fall ist.

Die Behandlung der NAT-Bildung in Form einer Initialisierungstemperatur von 3 K unter  $T_{NAT}$  scheint nicht ausreichend zu sein, um eine realitätsnahe Übereinstimmung mit den gemessenen NAT-Verteilungen von MIPAS auf ENVISAT zu erzielen. Genauso scheint die angenommene notwendige Unterkühlung von 1.5 K bezüglich von  $T_{ICE}$  nicht zu genügen. Bei der Unterkühlung bezüglich der Eisteilchen ist eventuell ein grösserer Wert anzunehmen, bei der NAT-Bildung könnte eine generell tieferes  $T_{NAT}$  zu einem besseren Vergleich mit den Daten von MIPAS auf ENVISAT führen oder es sollte eventuell die NAT-Bildung an die STS-Bildung gekoppelt werden. Mit diesen Änderungen wäre es sinnvoll, weitere Sensitivitätsstudien mit ECHAM5/MESSy1 durchzuführen.

## 4.8 Vergleich der Simulation mit neuer PSC-Parameterisierung mit Messungen von MLS auf Aura

Nach Validierung der simulierten PSCs von ECHAM5/MESSy1 mit den PSC-Daten des Satelliteninstrument MIPAS auf ENVISAT (Abschnitt 4.7) wurde festgestellt, dass bezüglich des PSC-Typs 1 im Vergleich zu den MIPAS Messdaten das simulierte NAT-Vorkommen überschätzt ist, die simulierten STS-Flächen hingegen gute Übereinstimmungen besitzen. Da das Volumenmischungsverhältnis von  $HNO_3$  durch die Bildung von STS- und NAT-Teilchen sowie durch die Sedimentation von grösseren NAT-Teilchen (Denitrifizierung) beeinflusst wird, kann die Betrachtung von  $HNO_3$  weitere Rückschlüsse auf die Bildung und Existenz von STS und NAT liefern.

Da die  $HNO_3$ -Messungen von MIPAS auf ENVISAT durch die Existenz von PSCs negativ beeinträchtigt werden [Wang et al., 2007] und darüber hinaus eine Validierung mit einem weiteren unabhängigen Satelliteninstrument sinnvoll ist, werden in diesem Abschnitt die  $HNO_3$ -Daten des Satelliteninstruments „Microwave Limb Sounder“ (MLS) zu einem Vergleich mit den Daten von MIPAS und ECHAM5/MESSy1 herangezogen.

### 4.8.1 Das Satelliteninstrument MLS auf Aura

Aura, der letzte Satellit der „Earth Observing System“ (EOS) Reihe [Schoeberl et al., 2004], umrundet seit 15. Juli 2004 in einer sonnensynchronen, polarnahen Umlaufbahn in einer Höhe von 705 km die Erde. MLS auf Aura [Santee et al., 2005] ist dabei eines der dort installierten vier Satelliteninstrumente und überdeckt die Erde von 82°S bis 82°N. Es ist dabei eine Weiterentwicklung des MLS-Instruments auf dem Satellit „Upper Atmosphere Research Satellite“ (UARS) [Waters et al., 1999].

MLS misst neben den atmosphärischen Spurengasen *BrO* [Kovalenko et al., 2007], *ClO* [Santee et al., 2008], *CO* [Livesey et al., 2008], *H<sub>2</sub>O* [Lambert et al., 2007], *HCl* [Froidevaux et al., 2008b], *HNO<sub>3</sub>* [Santee et al., 2007], *N<sub>2</sub>O* [Lambert et al., 2007], *O<sub>3</sub>* [Froidevaux et al., 2008a; Liversey et al., 2008], *OH*, *HO<sub>2</sub>* [Pickett et al., 2008; Read et al., 2007] und *SO<sub>2</sub>*, auch die relative Feuchte [Read et al., 2007], die Temperatur und das Wolkeneis [Wu et al., 2008].

Die Messungen von *HNO<sub>3</sub>* mit MLS auf Aura sind unabhängig von der Existenz von PSCs und können so für die Validierung des simulierten *HNO<sub>3</sub>* von ECHAM5/MESSy1 verwendet werden.

### 4.8.2 Vergleich der *HNO<sub>3</sub>*-Daten

Für den Vergleich der *HNO<sub>3</sub>*-Daten von ECHAM5/MESSy1 mit MLS auf Aura werden in diesem Unterkapitel simulierte und gemessene Daten des südhemisphärischen Winters 2006 herangezogen. Es werden dabei die vier Tage 16. Mai, 24. Mai, 29. Mai und 24. Juli exemplarisch für den zeitlichen Verlauf des *HNO<sub>3</sub>* dargestellt.

## PSCs detektiert von MIPAS auf ENVISAT

Zunächst wird in Abbildung 4.40 die Verteilung der STS-, NAT- und Eisteilchen gemessen von MIPAS auf ENVISAT für die genannten vier Tage für die mittlere Höhe von 20.5 km dargestellt. Diese Höhe umfasst dabei alle Messungen von 19.0 km bis 22.0 km.

Am 16. Mai 2006 werden mit MIPAS noch keine PSCs detektiert. Die ersten PSC-Teilchen in Form von STS werden am 24. Mai 2006 in einem kleineren Bereich östlich des Südpols bei ca. 80°S, 90°E gemessen. Vom 25. Mai bis 28. Mai 2006 sind von MIPAS auf ENVISAT keine Daten vorhanden.

Am 29. Mai ist jedoch ersichtlich, dass sich der PSC-Typ 1b ausgebreitet hat, so dass er zu diesem Zeitpunkt in etwa die Fläche südlich von 80°S, teilweise auch etwas darüber hinaus und mit Ausnahme des Bereich 180°E bis 270°E, in welchem er 80°S nicht erreicht, einnimmt. Bis zum 29. Mai finden sich bei den Messungen noch kein PSC-Typ 1a. Dieser wird erst zum ersten Mal am 13. Juni detektiert (nicht gezeigt).

Am 24. Juni 2006 werden bei den Messungen von MIPAS auf ENVISAT alle Arten von PSC-Teilchen detektiert. Im inneren Bereich der PSCs um den Südpol herum und nördlich bis westlich über 80°S erstreckend befindet sich der PSC-Typ 2. Um diesen inneren Bereich herum haben sich STS-Teilchen angeordnet und am äusseren Rand, mit Ausnahme des Orbits welcher auf 120°E und 150°E verläuft, befinden sich die NAT-Teilchen. Die horizontale Erstreckung reicht dabei bis maximal 60°S.

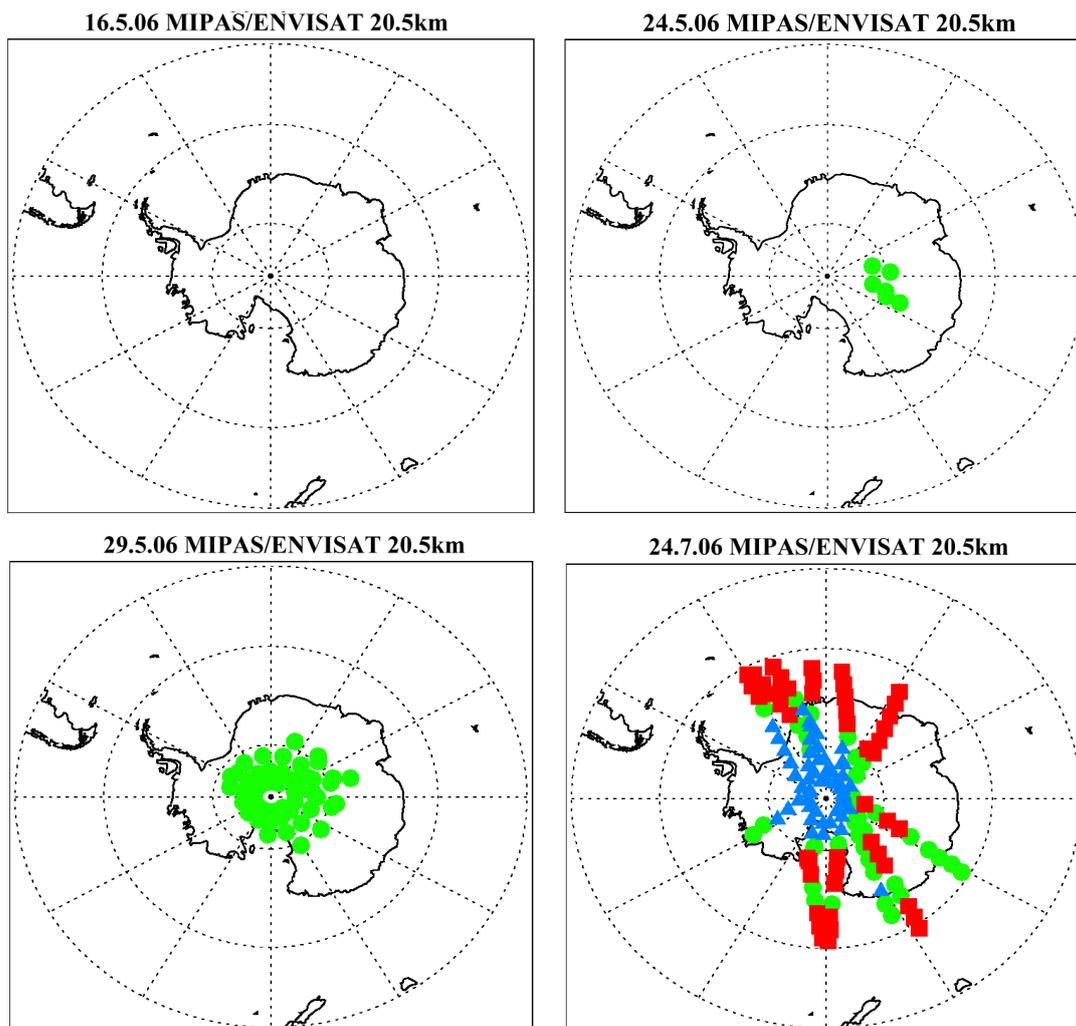


Abbildung 4.40: Verteilung der PSC-Bestandteile in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 20.5 km für die Tage 16. Mai (oben links), 24. Mai (oben rechts), 29. Mai (unten links) und 24. Juli 2006 (unten rechts) gemessen mit MIPAS/ENVISAT. Rot/orange Quadrate sind NAT-Partikel mit Radien  $< 3 \mu\text{m}$ , blaue Dreiecke sind Eispartikel und grüne bis blaue Kreise sind mit hoher Wahrscheinlichkeit STS-Partikel oder aber NAT-Partikel mit Radien  $> 3 \mu\text{m}$ .

#### NAT, STS und $\text{HNO}_3$ im antarktischen Winter 2006 simuliert durch ECHAM5/MESSy im Vergleich mit $\text{HNO}_3$ -Messdaten von MLS auf Aura

In den Abbildungen 4.41 bis 4.44 sind die Volumenmischungsverhältnisse des  $\text{HNO}_3$  gebunden in den STS-Teilchen ( $\text{HNO}_{3(\text{LIQ})}$ ) und in NAT-Teilchen ( $\text{HNO}_{3(\text{NAT})}$ ) sowie in der Gasphase in 21.6 km für die oben genannten Tage dargestellt. Die  $\text{HNO}_3$ -Werte von ECHAM5/MESSy1 werden in einer zusätzlichen Abbildung mit den  $\text{HNO}_3$ -Daten der Orbits von MLS auf Aura verglichen. Die  $\text{HNO}_3$ -Werte von ECHAM5/MESSy1 wurden dabei vertikal auf die Höhe des Messgitters von MLS interpoliert.

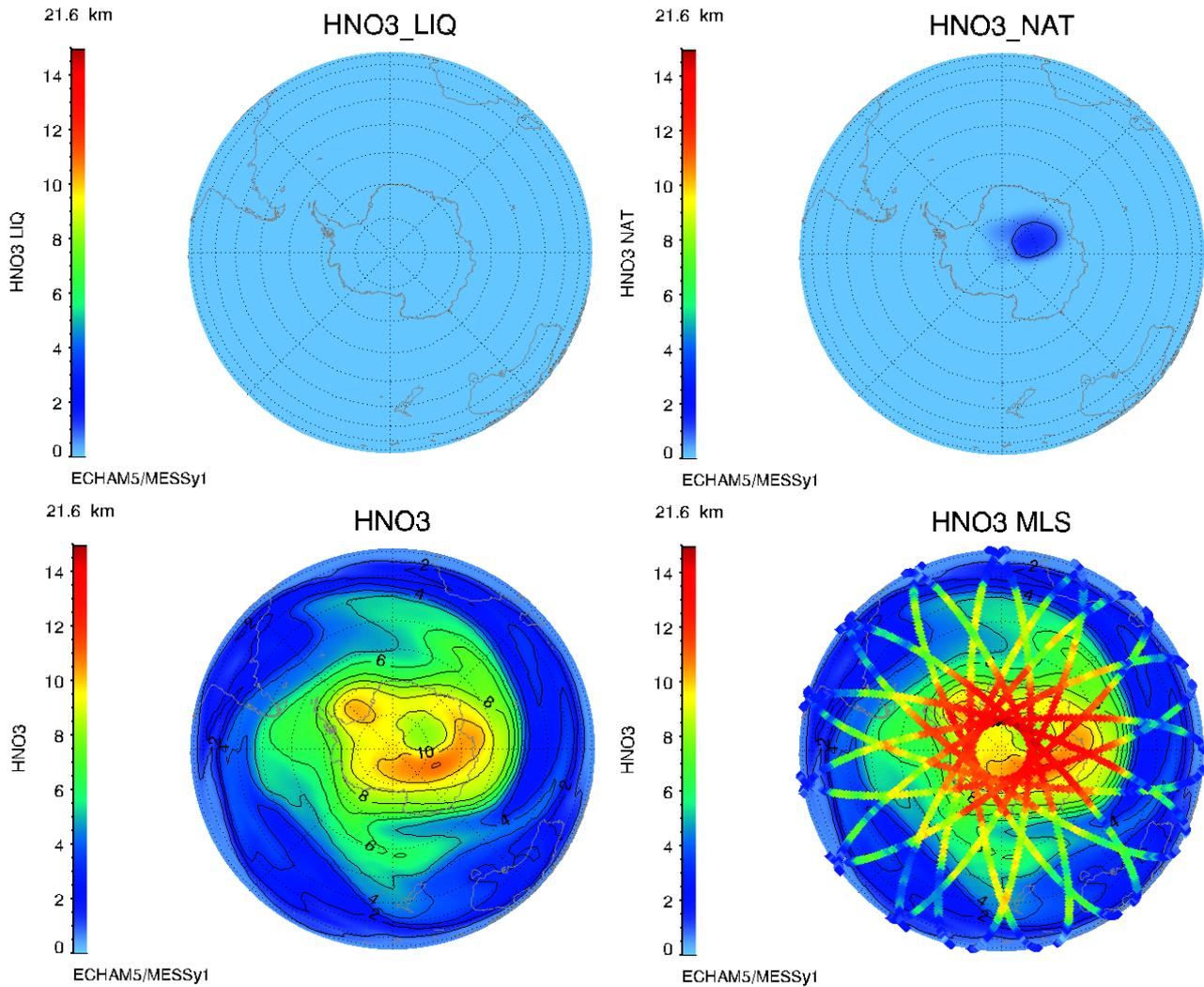


Abbildung 4.41: Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$  (oben links),  $HNO_3(NAT)$  (oben rechts) und  $HNO_3$  (unten links) in ppbv am 16. Mai 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura (unten rechts)

Am 16. Mai 2006 (Abbildung 4.41) haben sich in der Höhe von 21.6 km in ECHAM5/MESSy1 noch keine STS-Teilchen gebildet, d.h. es ist noch kein  $HNO_3(LIQ)$  vorhanden. Es existieren aber schon NAT-Teilchen welche im Bereich östlich und nordöstlich vom Südpol zwischen 75°S und 85°S erkennbar sind.

Diese NAT-Teilchen haben sich in ECHAM5/MESSy1 am 14. Mai gebildet und verursachen durch die Aufnahme von  $HNO_3$  in die feste Phase eine Abnahme von  $HNO_3$  bis zu ca. 2 ppbv (entsprechend  $HNO_3(NAT)$ ). In den MLS-Messungen ist diese Abnahme von  $HNO_3$  am 14. Mai nicht ersichtlich, was darauf schliessen lässt, dass an diesem Tag in der Realität noch keine NAT- oder STS-Teilchen vorhanden waren. Dies deckt sich mit den Aussagen der Messungen von MIPAS auf ENVISAT.

Am 24. Mai 2006 werden in ECHAM5/MESSy zum ersten Mal STS-Teilchen in 21.6 km simuliert (Abbildung 4.42). Dies stimmt mit dem ersten Auftreten von STS-Teilchen in den MIPAS/ENVISAT-Messungen überein (Abbildung 4.40). Das simulierte bzw. mit MIPAS detektierte Gebiet des

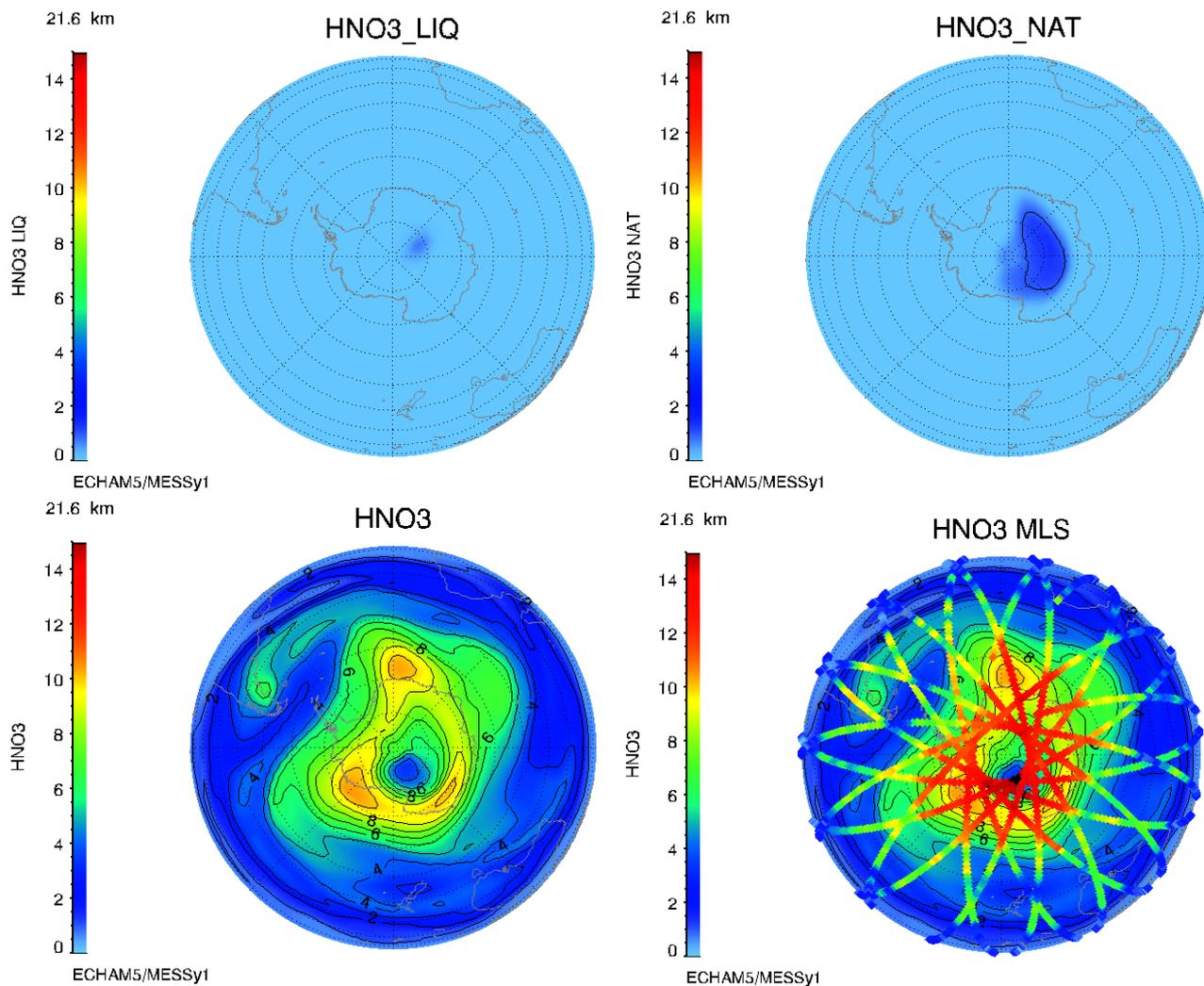


Abbildung 4.42: Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$  (oben links),  $HNO_3(NAT)$  (oben rechts) und  $HNO_3$  (unten links) in ppbv am 24. Mai 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura (unten rechts)

PSC-Typs 1b zeigt an diesem Tag grosse Übereinstimmungen.

Es finden sich aber in den Daten von MIPAS/ENVISAT nach wie vor keine NAT-Teilchen. Deren horizontale Erstreckung hat sich hingegen in ECHAM5/MESSy1, insbesondere in zyklonale Richtung, erweitert. Im  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnis der ECHAM5/MESSy1-Simulation ist entsprechend des Gebietes, in dem PSCs des Typs 1a existieren, eine starke Abnahme zu erkennen. So sind an diesem Tag in dieser Höhe minimale  $HNO_3$ -Werte von unter 4 ppbv simuliert. Das  $HNO_3$  hat daher schon bis zu 6 ppbv abgenommen. Da das in NAT gebundene  $HNO_3$  maximal nur etwas über 2 ppbv liegt, muss demnach zu diesem Zeitpunkt im Modell schon eine Denitrifizierung durch Sedimentation grösserer NAT-Partikel stattgefunden haben.

Diese  $HNO_3$ -Abnahme ist bei den MLS-Messungen noch nicht erkennbar. Die STS-Bildung welche in MIPAS auf ENVISAT zu erkennen ist, hat entsprechend den MLS-Messungen von  $HNO_3$  zu diesem Zeitpunkt noch nicht stattgefunden.

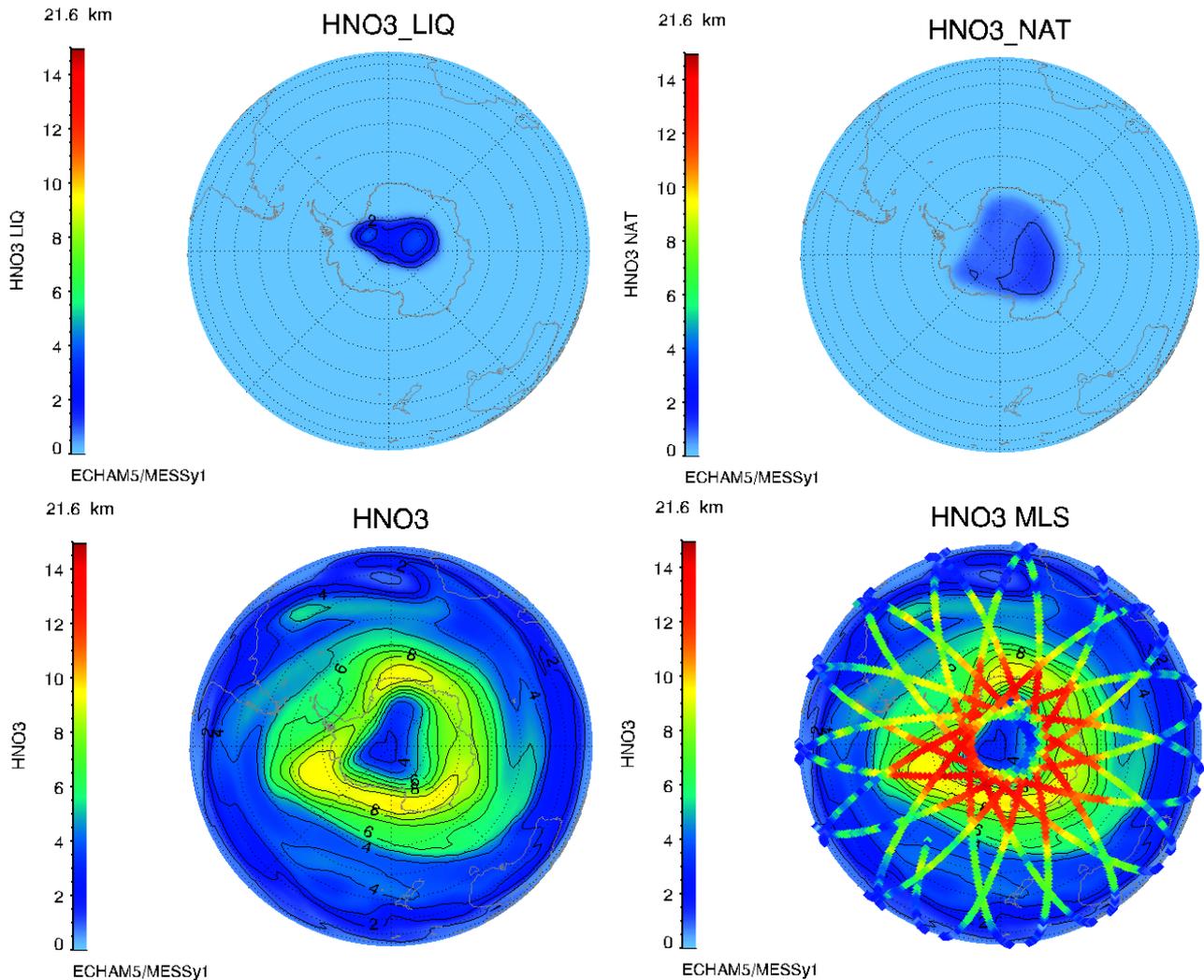


Abbildung 4.43: Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$  (oben links),  $HNO_3(NAT)$  (oben rechts) und  $HNO_3$  (unten links) in ppbv am 29. Mai 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura (unten rechts)

Am 29. Mai 2006 (Abbildung 4.43) haben sich weitere STS-Teilchen im Modell gebildet. Die Fläche des PSC-Typs 1b hat sich, erkennbar im  $HNO_3(LIQ)$  mit Werten von bis zu grösser 4 ppbv, über den Südpol hinaus ausgebildet und entspricht in etwa der STS-Fläche, welche mit MIPAS auf ENVISAT an diesem Tag detektiert wird (Abbildung 4.40). Das Gebiet der NAT-Teilchen hat sich ebenfalls noch etwas ausgebreitet, wobei bei den MIPAS-Messungen nach wie vor kein NAT vorhanden ist.

Die Abnahme im  $HNO_3$  hat sich, u.a. durch die Aufnahme von  $HNO_3$  aus der Gasphase in die flüssige Phase, fortgesetzt. So finden sich am 29. Mai am Südpol minimale  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnisse von unter 2 ppbv im Modell. Beim  $HNO_3$  der MLS-Messung ist diese starke Abnahme nach wie vor nicht ersichtlich. Es ist aber eine Reduzierung im Bereich von 80°S zu erkennen. Hier sinken die  $HNO_3$ -Werte auf 6 bis 9 ppbv ab. Dies ist wahrscheinlich durch die gemessenen STS-Teilchen verursacht. Die MLS-Daten bestätigen so die durchgeführte Detektierung der STS-Teilchen von MIPAS auf ENVISAT, wobei mit den MLS-Daten nicht auszuschliessen ist, dass sich in der Realität auch schon NAT-Teilchen gebildet haben könnten.

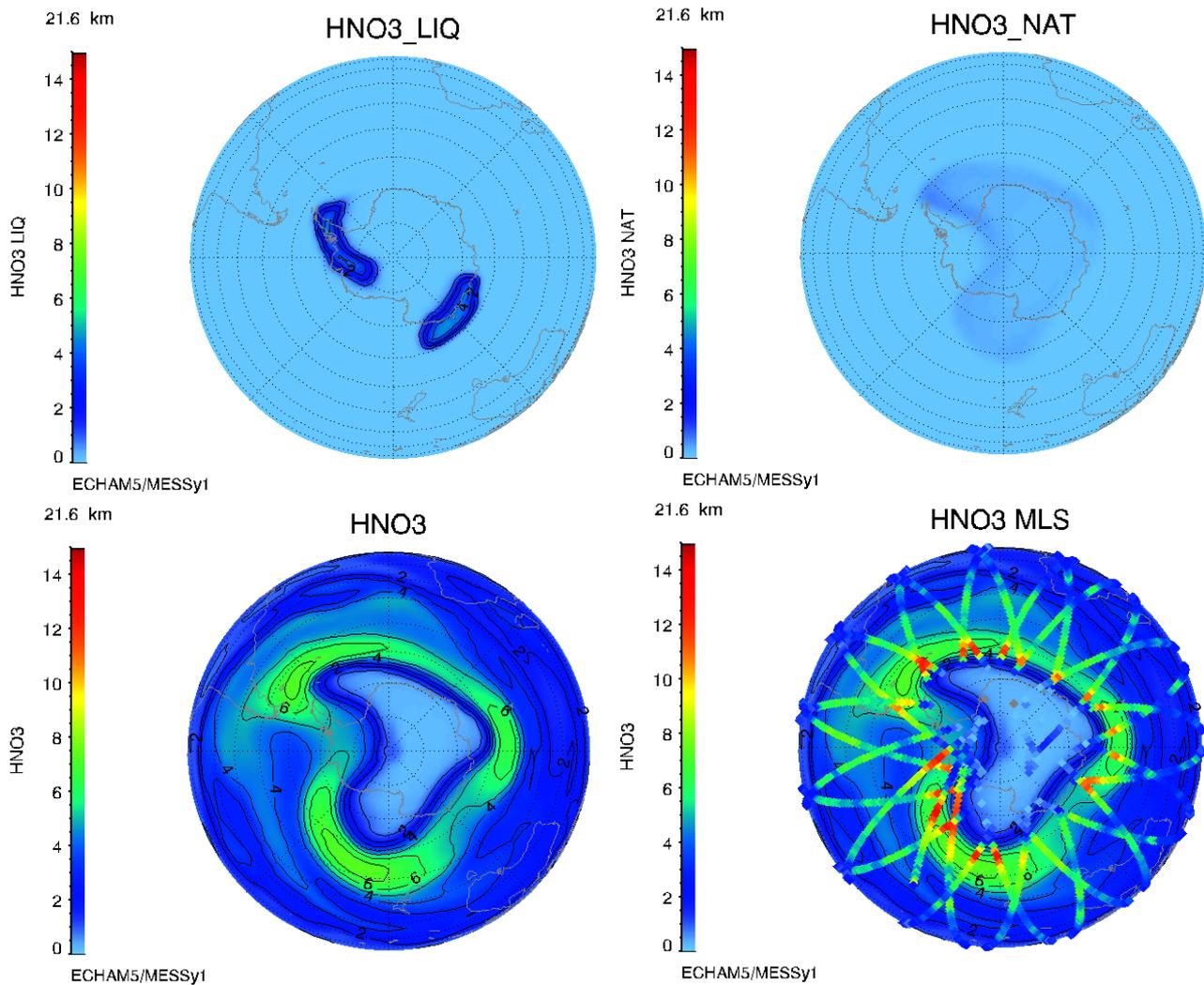


Abbildung 4.44: Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$  (oben links),  $HNO_3(NAT)$  (oben rechts) und  $HNO_3$  (unten links) in ppbv am 24. Juli 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura (unten rechts)

Am 24. Juli (Abbildung 4.44) sind in ECHAM5/MESSy1 sowie auch bei den MIPAS-Messungen (Abbildung 4.40) in der Höhe von 21.6 km alle Arten von PSC-Typen vorhanden. Das  $HNO_3(LIQ)$  ist im Modell in 21.6 km dabei in den Gebieten noch stark ausgeprägt, in denen neben Temperaturen unter  $T_{STS}$ , auch genügend grosse  $HNO_3$ -Werte vorhanden sind. Am 24. Juli ist dies zwischen  $60^\circ S$  und  $70^\circ S$  südöstlich und zwischen  $65^\circ S$  und  $85^\circ S$  westlich des Südpols der Fall.

Das  $HNO_3(NAT)$  ist mit Werten um 1 ppbv in einem grösseren Gebiet noch vorhanden. Dieses Gebiet liegt innerhalb von  $55^\circ S$ , wobei die Ränder je nach Himmelsrichtung  $85^\circ S$  (westlicher Rand) bis  $55^\circ S$  (südlicher Rand) erreichen. Das Gebiet des simulierten NAT-Vorkommen stimmt dabei in etwa mit dem Gebiet, in welchem mit MIPAS PSCs detektiert werden, überein. Die kleinen  $HNO_3(NAT)$ -Werte sind ein Indiz dafür, dass nur noch kleine NAT-Teilchen auf 21.6 km vorhanden sind. Die grösseren NAT-Teilchen sind zu diesem Zeitpunkt alle schon aus dieser Fläche heraus sedimentiert und die  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnisse zu klein, um noch Wachstum zu grösseren NAT-Teilchen zu generieren.

Dies bestätigen auch die  $HNO_3$ -Werte in der Gasphase. Hier sind in einem Gebiet, welches südlich, östlich und nördlich bei ca.  $65^\circ S$  sowie westlich bei  $90^\circ S$  begrenzt ist, nur noch  $HNO_3$ -Werte unter 1 ppbv simuliert. Dies ist die Folge der Denitrifizierung. Diese Denitrifizierung wird durch die  $HNO_3$ -Daten von MLS bestätigt. Es sind in dem Gebiet mit den niedrigen simulierten  $HNO_3$ -Werten vergleichbare  $HNO_3$ -Volumenmischungsverhältnisse von MLS detektiert.

Zusammengefasst bestätigen die  $HNO_3$ -Messungen die Ergebnisse des Vergleiches der PSC-Simulationsdaten von ECHAM5/MESSy1 mit den Messdaten von MIPAS auf ENVISAT. So wird die zu frühe Bildung von NAT im Modell sowie auch die grosse Übereinstimmung zwischen modellierten und gemessenen STS-Teilchen bestätigt. Der Vergleich zwischen Simulation und den Messdaten von MLS zeigt aber auch, dass die Denitrifizierung im Modell entsprechend der simulierten PSC-Bildung richtig berechnet worden ist und zu einem späteren Zeitpunkt, an dem sich sowohl im Modell als auch bei der Messung alle PSC-Teilchen gebildet haben, die  $HNO_3$ -Daten der Simulation mit der Messung vergleichbar sind.

## 4.9 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kapitels

Es ist gelungen, im ECHAM5/MESSy1-Modul PSC eine neue Parameterisierung einzubauen, welche das Wachstum und das Schrumpfen einzelner NAT-Partikel sowie deren Sedimentation berücksichtigt.

Im Vergleich zwischen bisheriger und neuer PSC-Parameterisierung im Modell ist festzustellen, dass die neue Parameterisierung in nördlichen polaren Breiten deutliche Verbesserungen in Verteilung und Anzahl der PSC-Partikel sowie auch bezüglich der simulierten Ozonchemie aufweist. In südlichen polaren Breiten sind ebenfalls durch die geänderten maximalen Anzahldichte für Eisteilchen höherer Ozonabbauraten simuliert, welche aufgrund der bisherigen zu hohen Ozonsäulen in dieser Region zu einer Verbesserung beitragen.

Im Vergleich mit MIPAS auf ENVISAT sind Übereinstimmungen zwischen Modell und Simulation zu finden. Es sind aber auch noch qualitative Unterschiede ersichtlich. Recht gute Übereinstimmungen bezüglich des zeitlichen Verlaufes des PSC-Vorkommens sowie dessen Gesamtfläche sind festzustellen. Ebenfalls vergleichbar wird die STS-Fläche simuliert und gemessen. Eine Überschätzung hingegen ist beim PSC-Typ 1a ersichtlich. Hier werden die NAT-Teilchen zu früh, zu lang und im Mittel mit zu grossen Flächen simuliert. Dies ist ebenfalls beim PSC-Typ 2 der Fall.

Diese Charakteristika bezüglich der STS- und NAT-Simulation wird im Vergleich mit den  $HNO_3$ -Daten von MLS auf Aura bestätigt. Auch hier werden die guten Übereinstimmungen im Auftreten der STS-Teilchen, sowie das zu frühe Auftreten der NAT-Teilchen offensichtlich.

Um die Simulation der PSC-Teilchen zu verbessern, sind einige Möglichkeiten schon am Ende des Kapitels 4.7.2 diskutiert worden. Die Bildung von NAT-Teilchen an das Vorkommen von STS zu koppeln bzw. eine generelle Unterkühlung bezüglich der NAT-Kondensationstemperatur durchzuführen, würde zu einem geringeren Auftreten des PSC-Typs 1a führen, was eventuell zu besseren Übereinstimmungen mit den PSC-Messungen von MIPAS auf ENVISAT führen könnte. Es müsste aber gleichzeitig eine zeitlich und räumlich richtige Denitrifizierung im Modell gewährleistet werden. Diesbezügliche Sensitivitätsstudien mit ECHAM5/MESSy1 wären sinnvoll.

Schwieriger ist es, die Validierung des simulierten PSC-Typs 2 durch Erhöhung der notwendigen Unterkühlung bezüglich der Eiskondensationstemperatur zu verbessern. Da die Eisteilchen in den südhemisphärischen hohen Breiten wichtige Träger für das Stattfinden der heterogenen Reaktionen sind, sind deren Anzahldichten und horizontale Flächen sehr relevant für die Chloraktivierung und den daraus folgenden Ozonabbau.

Die südhemisphärischen Winter 2003 und 2006 haben gezeigt, dass bei den Messungen von MIPAS im Mittel verhältnismässig sehr kleine Flächen von Eisteilchen vorkommen. Sollte man es schaffen, mit ECHAM5/MESSy1 ebenfalls nur solch kleine Flächen des PSC-Typs 2 zu simulieren, so wäre die Simulation des Ozonabbaus im antarktischen Frühling deutlich geringer als bisher. Im Vergleich zwischen neuer und alter Simulation (Abschnitt 4.6) hat es sich aber gerade gezeigt, dass durch einen stärkeren simulierten Ozonabbau eine Annäherung an die Ozonsäulen von TOMS und OMI stattfindet. Ein geringerer Ozonabbau im Modell würde in dieser Hinsicht zu schlechteren Ergebnissen führen.

Die realitätsnäheren Ozonsäulen in der neuen Simulation im antarktischen Winter und Frühling sowie die bessere Berücksichtigung der PSCs in den arktischen Breiten zeigen bezüglich der Modellergebnisse Verbesserungen. Insbesondere für durchzuführender Langzeitsimulationen sind diese realitätsnäheren Ergebnisse von Bedeutung.

Zusammengefasst ist es gelungen mit dem Einbau der neuen PSC-Parameterisierung eine detailliertere Beschreibung der PSCs zu realisieren. Die simulierten Resultate zeigen im Vergleich mit Messdaten von MIPAS auf ENVISAT, MLS auf Aura, TOMS und OMI relativ gute Übereinstimmungen. Durch mögliche weitere Verbesserungen könnten, insbesondere bezüglich der Bildung und Existenz der NAT-Teilchen, mit der neuen PSC-Parameterisierung noch realitätsnähere Simulationen erreicht werden.

Das Ziel der Doktorarbeit, eine genauere Beschreibung der PSCs des Typs 1a in ECHAM5/MESSy1 zu implementieren und so deren Mikrophysik besser zu berücksichtigen, ist erreicht worden. So findet mit dem neuem PSC-Algorithmus ein Wachstum und Verdunsten der NAT-Teilchen statt und die unterschiedlichen Eigenschaften der nach Grössen eingeteilten NAT-Partikel werden berücksichtigt.

Über die Kopplung von der stratosphärischen Chemie und dem Klima über die temperaturabhängige Bildung der PSCs können so mit der neuen PSC-Parameterisierung verbesserte Prognosen der zukünftigen Entwicklung der Ozonschicht durchgeführt werden.

## 5 Schlussfolgerungen und Ausblick

Das Ziel der Dissertation war, in ECHAM5/MESSy1 eine verbesserte Parameterisierung der Polaren Stratosphärischen Wolken (PSC) zu implementieren und deren Auswirkung auf die polare Ozonchemie zu untersuchen. Um dies zu erreichen, musste zunächst eine Validierung des Modells in der gewählten Modellkonfiguration durchgeführt werden.

Um eine realitätsnahe Temperatur und Dynamik in ECHAM5/MESSy1 zu erhalten und so Vergleiche mit Messdaten durchführen zu können, wurde das Modell mit meteorologischen Analysen genudgt. Um die beste Variante des Nudgings für ECHAM5/MESSy1 zu erhalten und so eine genudgte Modellversion herauszufiltern, mit welcher dann im folgenden eine Mehrjahressimulation zur Evaluierung des Modells ECHAM5/MESSy1 mit Messdaten erstellt werden konnte, wurden verschiedene Sensitivitätsstudien durchgeführt (Kapitel 2).

Es wurde dabei mit Hilfe der Newtonschen Relaxationstechnik in ECHAM5/MESSy1 bis zu verschiedenen Höhen (13 hPa/ca. 30.2 km, 110 hPa/ca. 15.3 km und 220 hPa/ca. 10.6 km) mit ECMWF-Analysen genudgt und die Ergebnisse der daraus resultierenden Modellsimulationen mit einer ungenudgten Simulation sowie mit TOMS-Messdaten verglichen. Es wurden so drei genudgte Modellläufe und ein ungenudgter Modelllauf für den Zeitraum von September 2002 bis Dezember 2003 durchgeführt.

Der antarktische Vortex-Split Ende September 2002 wird mit allen drei genudgten Simulationen nachgestellt. Die ungenudgte Simulation gibt dieses meteorologische Ereignis nicht wieder.

Da sich aufgrund des unterschiedlichen Nudgings die simulierte Dynamik und Temperaturverteilung unterscheiden, variiert die simulierte stratosphärische Atmosphärenchemie in den vier Modellläufen. Im Vergleich zu den Ozonmessungen mit TOMS ist der simulierte Ozonabbau des antarktischen Frühlings 2003 in der Simulation mit der Variante des Nudgings bis 13 hPa (ca. 30.2 km) in grösster Übereinstimmung mit den Satellitenmessungen. Ebenfalls sind in dieser Simulation die Ozonsäulen in den nördlichen polaren Breiten am Besten wiedergegeben.

Im Ergebnis stellte sich so eine Nudging-Variante am Sinnvollsten heraus, in welcher bis zu einer Höhe von 13 hPa (ca. 30.2 km) genudgt wird. Mit dieser wurde im folgenden eine Modellvalidierung durchgeführt (Kapitel 3).

Für diese Modellvalidierung wurde mit ECHAM5/MESSy1 eine genudgte Simulation über sechs Jahre von 1. Januar 2000 bis 31. Dezember 2005 mit der horizontalen Auflösung T42 (ca. 2.8°) in der 39-Schichtenversion durchgeführt.

Die Ergebnisse der Sechs-Jahres-Simulation wurden mit Messdaten der Satelliteninstrumente MIPAS auf ENVISAT [Fischer, 1992; Fischer et al., 2008; von Clarmann et al., 2003a] und TOMS auf Earth Probe [McPeters et al., 1993, 1998] validiert.

Die Vergleiche von Temperatur, Lachgas, Methan, Ozon und des „Tape Recorders“ zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS zeigen in der mittleren Atmosphäre relativ gute Übereinstimmungen. Es ist allerdings eine zu stark ausgeprägte „Brewer-Dobson-Zirkulation“ im Modell vorhanden, welche in manchen Regionen durch adiabatische Erwärmung [Abkühlung] zur Überschätzung [Unterschätzung] der Temperaturen führt und durch zu hohe Transportgeschwindigkeiten die Volumenmischungsverhältnisse der atmosphärischen Spurengase regional zu hoch bzw. zu tief simuliert. Die zu starken „Brewer-Dobson-Zirkulation“ ist aber in ECHAM5/MESSy nicht in allen Regionen richtig ausgebildet. So werden die Abwärtstransporte in den polaren Wintern innerhalb der Polarwirbel deutlich unterschätzt. In den mittleren Breiten der Winterhemisphäre sind dagegen zu starke vertikale Abwärtsbewegungen vorhanden.

Bei den Vergleichen der Ozonsäulen von ECHAM5/MESSy1 mit TOMS sind gute räumliche Übereinstimmungen zu finden. In den hohen Breiten sind jedoch in ECHAM5/MESSy1 zu hohe Ozonsäulen (ca. 40 bis 60 DU zu hoch) simuliert. Insbesondere im antarktischen Frühling wird in ECHAM5/MESSy1 zu wenig Ozon abgebaut, so dass die zu diesem Zeitpunkt niedrigen Ozonsäulen von TOMS nicht erreicht werden. Verursacht durch die zu schwachen Abwärtstransporte im polaren Wirbel während des polaren Winters und Frühling sind in der unteren Stratosphäre zu geringe  $Cl_y$ -Mischungsverhältnisse vorhanden, welche zu geringe Ozonabbauraten zur Folge haben.

Eine weitere Validierung fand für den Bereich der oberen Troposphäre und Tropopausenregion mit den Flugzeugmessungen von Ozon und Kohlenmonoxid des CARIBIC-Projekts [Brenninkmeijer et al., 1999, 2007; Zahn et al., 2002] statt. Die Vergleiche zwischen Modelldaten und Messungen brachten hier sehr gute Übereinstimmungen.

Nach erfolgreicher Validierung des Modells ECHAM5/MESSy1 in der gewählten Modellkonfiguration konnte im folgenden eine neue PSC-Parameterisierung in dessen Modul PSC eingebaut werden (Kapitel 4).

Dieser neue PSC-Algorithmus nach van den Broek et al. [2004], basierend auf Carslaw et al. [2002] berücksichtigt das Wachstum und die Sedimentation von NAT-Partikeln im polaren Wirbel. Das Wachstum der NAT-Partikel wird dabei mit Hilfe eines Wachstumsfaktors beschrieben, welcher abhängig von Temperatur, Partialdruck, Volumenmischungsverhältnis von Salpetersäure ( $HNO_3$ ) und Radius der jeweiligen Partikel ist.

Es wurden acht verschiedene Klassen mit Grössenverteilungen der Radien der NAT-Teilchen festgelegt, wobei für jede Klasse ein mittlerer Radius (von  $0.1 \mu m$  bis  $18 \mu m$ ) definiert wurde. Die Berechnung des Wachstums der Radien der Teilchen über ein Zeitintervall erfolgte mit Hilfe des Wachstumsfaktors. Bei der Sedimentation, welche zur Denitrifizierung der Stratosphäre führt, wurde jede Grössenklasse separat berücksichtigt. In der neuen PSC-Parameterisierung wurden zusätzlich NAT- und Eisteilchen, entgegen der bisherigen PSC-Parameterisierung, in welcher nur feste Teilchen berücksichtigt wurden, separat behandelt.

Mit Hilfe dieses neuen PSC-Schemas wurde eine Mehrjahressimulation mit ECHAM5/MESSy1 von November 2002 bis Ende 2007 durchgeführt. Die simulierten Resultate wurden bezüglich der Zusammensetzung der PSCs (Typ 1a, Typ 1b und Typ 2) und deren räumlicher und zeitlicher Verteilung im Modell analysiert und mit einer Standard-ECHAM5/MESSy1-Simulation mit bisherigem thermodynamischen PSC-Schema verglichen.

Im Gegensatz zu den Ergebnissen der Standard-Simulation wurden in den betrachteten nordhemisphärischen Wintern und Frühlingen 2002/2003 und 2006/2007 über längere Zeiträume NAT-Teilchen simuliert. Aufgrund dessen konnte in den nördlichen Breiten im Frühjahr ein bisher nicht vorhandener Ozonabbau festgestellt werden. In den betrachteten südpolaren Wintern und Frühlingen konnten mit der neuen PSC-Parameterisierung grössere Ozonabbauraten simuliert werden. Dies wurde durch eine zusätzliche Anpassung der Anzahldichten von Eisteilchen erzielt. Aufgrund der niedrigeren Ozonsäulen im antarktischen Frühling ist die Übereinstimmung der Simulationsergebnisse mit Messungen der beiden Satelliteninstrumente TOMS und OMI besser.

Ein weiterer Vergleich der Modelldaten fand mit PSC-Messungen des Satelliteninstrumentes MIPAS auf ENVISAT [Höpfner et al., 2006a] statt. Hier sind recht gute Übereinstimmungen bezüglich des zeitlichen Verlaufs des PSC-Vorkommens, sowie dessen Gesamtfläche festzustellen. Das zeitliche Vorkommen sowie die Fläche der simulierten und gemessenen STS-Teilchen stimmt ebenfalls sehr gut überein. Eine Überschätzung hingegen ist noch bei den NAT-Teilchen ersichtlich. Diese werden zu früh, zu lang und im Mittel mit noch zu grossen Flächen simuliert. Dies ist ebenfalls bei den Eisteilchen der Fall.

Diese Charakteristika der PSC-Bildung und Existenz im Modell im Vergleich zu MIPAS auf ENVISAT wird bezüglich der STS- und NAT-Teilchen durch einen Vergleich mit  $HNO_3$ -Daten von MLS auf Aura bestätigt. Hier werden ebenfalls die guten Übereinstimmungen im Auftreten der STS-Teilchen, sowie das zu frühe Auftreten der NAT-Teilchen erkannt. Darüber hinaus wird die simulierte Denitrifizierung mit diesem Vergleich bestätigt.

Zusammengefasst ist es gelungen mit dem Einbau der neuen PSC-Parameterisierung eine detailliertere Beschreibung der PSCs im Modell zu erhalten. Die simulierten Resultate zeigen im Vergleich mit Messdaten von MIPAS auf ENVISAT, MLS auf Aura, TOMS und OMI relativ gute Übereinstimmungen.

Das Ziel der Doktorarbeit eine genauere Beschreibung der PSCs des Typs 1a in ECHAM5/-MESSy1 zu implementieren und so deren Mikrophysik besser zu berücksichtigen, ist erreicht worden. So findet mit dem neuen PSC-Algorithmus ein Wachstum und Schrumpfen der NAT-Teilchen statt und die unterschiedlichen Eigenschaften der nach Grössen eingeteilten NAT-Partikel werden berücksichtigt.

Über die Kopplung von stratosphärischer Chemie und Klima über die temperaturabhängige Bildung der PSCs, können so mit dieser neuen PSC-Parameterisierung verbesserte Prognosen der zukünftigen Entwicklung der Ozonschicht durchgeführt werden.

## 6 Literaturverzeichnis

- Abbatt, J.P.D., M.J. Molina (1992):** The heterogeneous reaction of  $HOCl + HCl \rightarrow Cl_2 + H_2O$  on ice and nitric-acid trihydrate - reaction probabilities and stratospheric implications, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 461-464
- Baldwin, M.P., L.J. Gray, T.J. Dunkerton, K. Hamilton, P.H. Haynes, W.J. Randel, J.R. Holton, M.J. Alexander, I. Hirota, T. Horinouchi, D.B.A. Jones, J.S. Kinnerson, C. Marquardt, K. Sato, and M. Takahashi (2001):** The quasi-biennial oscillation, *Rev. Geophys.*, 39, 179-229
- Baldwin, M.P., T. Hirooka, A. O'Neill, S. Yoden (2003):** Major stratospheric warming in the Southern Hemisphere in 2002: Dynamical aspects of the ozone hole split, in *SPARC Newsletter*, No. 20, 24-26
- Barone, S.B., M.A. Zondlo, M.A. Tolbert (1997):** A kinetic and product study of the hydrolysis of  $ClONO_2$  on Type Ia polar stratospheric cloud materials at 185 K, *J. Phys. Chem. A*, 101, 8643-8652
- Bertaux, J.L., G. Megie, T. Widemann, E. Chassefiere, R. Pellinen, E. Kyrölä, S. Korpele, P. Simon (1991):** Monitoring of ozone trend by stellar occultations: The GOMOS instrument, *Adv. Space Res.* 11, 237-242
- Bertram, A.K., D.D. Patterson, J.J. Sloan (1996):** Mechanisms and temperatures for the freezing of sulfuric acid aerosols measured by FTIR extinction spectroscopy, *J. Phys. Chem.*, 100, 2376-2383
- Beyer, K.D., S.W. Seago, H.Y. Chang, M.J. Molina (1994):** Composition and freezing of aqueous  $H_2SO_4-HNO_3$  solutions under polar stratospheric conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 871-874
- Biermann, U.M., J.N. Crowley, T. Huthwelker, G.K. Moortgat, P.J. Crutzen, T. Peter (1998):** FTIR studies on lifetime prolongation of stratospheric ice particles due to NAT coating, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 3939-3942
- Blom, C.E. T. Gulde, C. Keim, W. Kimmig, C. Piesch, C. Sartorius, H. Fischer (1999):** MIPAS-STR: A new instrument for stratospheric aircraft, *Proc. European Symposium on Atmospheric Measurements from Space, ESAMS 99*, 18-22 Jan 1999, Noordwijk. European Space Agency, ESTEC, Noordwijk, Niederlande, 693-694
- Bovensmann, H., J.P. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. Noël, V.V. Rozanov, K.V. Chance, A.P.H. Goede (1999):** SCIAMACHY: Mission objectives and measurement modes, *J. Atmos. Sci.* 56, 127-150
- Brasseur, G., S. Solomon (1984):** *Aeronomy of the Middle Atmosphere*. 1. Auflage, Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland
- Brasseur, G.P., J.J. Orlando, G.S. Tyndall (1999):** *Atmospheric Chemistry and Global Change*. 1. Auflage, Oxford University Press, Oxford, New York
- Brenninkmeijer, C.A.M., P.J. Crutzen, H. Fischer, H. Güsten, W. Hans, G. Heinrich, J. Heintzenberg, M. Hermann, T. Immelmann, D. Kersting, M. Maiss, M. Nolle, A. Pitts, H. Pohlkamp, D. Scharffe, K. Specht, A. Wiedensohler (1999):** CARIBIC - Civil Aircraft for Global Measurement of Trace Gases and Aerosols in the Tropopause Region, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 16, 1373-1383
- Brenninkmeijer, C.A.M., F. Slemr, C. Koepfel, D.S. Scharfe, M. Püschel, J. Lelieveld, P. Crutzen, A. Zahn, D. Sprung, H. Fischer, M. Hermann, M. Reichelt, J. Heintzenberg, H. Schlager, H. Ziereis, U. Schumann, B. Dix, U. Platt, R. Ebinghaus, B. Martinsson, P. Ciais, D. Filippi, M. Leuenberger, D. Oram, S. Penkett, P. van Velthoven, A. Waibel (2005):** Analyzing Atmospheric Trace Gases and Aerosols Using Passenger Aircraft, *EOS*, 86, 77-88

- Brenninkmeijer, C.A.M, P. Crutzen, F. Boumard, T. Dauer, B. Dix, R. Ebinghaus, D. Filippi, H. Fischer, H. Franke, U. Frie, J. Heintzenberg, F. Helleis, M. Hermann, H.H. Kock, C. Koepfel, J. Lelieveld, M. Leuenberger, B.G. Martinsson, S. Miemczyk, H.P. Moret, H.N. Nguyen, P. Nyfeler, D. Oram, D. O'Sullivan, S. Penkett, U. Platt, M. Pupek, M. Ramonet, B. Randa, M. Reichelt, T.S. Rhee, J. Rohwer, K. Rosenfeld, D. Scharffe, H. Schlager, U. Schumann, F. Slemr, D. Sprung, P. Stock, R. Thaler, F. Valentino, P. van Velthoven, A. Waibel, A. Wandel, K. Waschitschek, A. Wiedensohler, I. Xueref-Remy, A. Zahn, U. Zech, H. Ziereis (2007): Civil aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container: the new CARIBIC system, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 7, 5277-5339
- Brooks, S.D., O.B. Toon, M.A. Tolbert, D. Baumgardner, B.W. Gandrud, E.V. Browell, H. Flentje, J.C. Wilson (2004): Polar stratospheric clouds during SOLVE/THESEO: Comparison of lidar observations with in situ measurements, *Journal of Geophysical Research*, 109
- Buchholz J. (2005): Simulations of Physics and Chemistry of Polar Stratospheric Clouds with a General Circulation Model, Dissertation am Max Planck Institut für Chemie, Mainz
- Carli, B., D. Alpaslan, M. Carlotti, E. Castelli, S. Ceccherini, B. M. Dinelli, A. Dudhia, J.-M. Flaud, M. Höpfner, V. Jay, L. Magnani, H. Oelhaf, V. Payne, C. Piccolo, M. Prosperi, P. Raspollini, J. Remedios, M. Ridolfi, R. Spang (2004): First results of MIPAS/ENVISAT with operational Level 2 code, *Adv. Space Res.*, 33, 7, 1012-1019
- Carslaw, K.S. (1994): The Properties of Aqueous Stratospheric Aerosols and the Depletion of Ozone, Ph.D. thesis, University of East Anglia
- Carslaw, K.S., B.P. Luo, S.L. Clegg, T. Peter, P. Brimblecombe, P.J. Crutzen (1994): Stratospheric aerosol growth and  $HNO_3$  gas phase depletion from coupled  $HNO_3$  and water uptake by liquid particles, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2479-2482
- Carslaw, K.S., S.L. Clegg, P. Brimblecombe (1995a): A thermodynamic model of the system  $HCl - HNO_3 - H_2SO_4 - H_2O$  including solubilities of HBr, from <200K to 328K, *J. Phys. Chem.*, 99, 11557-11574
- Carslaw, K.S., B. Luo, T. Peter (1995b): An analytic expression for the composition of aqueous  $HNO_3 - H_2SO_4$  stratospheric aerosols including gas phase removal of  $HNO_3$ , *Geophys. Res. Lett.*, 22, 14, 1877-1880
- Carslaw, K.S., T. Peter, S.L. Clegg (1997): Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols. *Rev. Geophys.*, 35, 125-154.
- Carslaw, K.S. M. Wirth, A. Tsias, B.P. Luo, A. Dörnbrack, M. Leutbecher, H. Volkert, W. Renger, J.T. Bacmeister, T. Peter (1998): Particle microphysics and chemistry in remotely observed mountain polar stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, 103, 1998
- Carslaw, K.S., J.A. Kettleborough, M.J. Northway, S. Davies, R.S. Gao, D.W. Fahey, D.G. Baumgardner, M.P. Chipperfield, A. Kleinböhl (2002): A vortex-scale simulation of the growth and sedimentation of large nitric acid hydrate particles, *J. Geophys. Res.*, 107, 8300
- Chapman, S. (1930): On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere, *Philosophical Magazine*, 10, 369
- Cordero, E., P.A. Newman, C. Weaver, E. Fleming (2000): Stratospheric Dynamics and the Transport of Ozone and Other Trace Gases. In: R. M. Todaro: Stratospheric Ozone - An Electronic Textbook, NASA, Studying Earth's Environment From Space
- Crutzen, P.J. (1970): The influence of nitrogen oxide on the atmospheric ozone content, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96, 320-325

- Crutzen, P.J., R. Müller, C. Brühl, T. Peter (1992):** On the potential importance of the gas-phase reaction  $CH_3O_2 + ClO \rightarrow ClOO + CH_3O$  and the heterogeneous reaction  $HOCl + HCl \rightarrow H_2O + Cl_2$  in ozone hole chemistry, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 1113-1116
- Daerden, F., N. Larsen, S. Chabrillat, Q. Errera, S. Bonjean, D. Fonteyn, K. Hoppel, M. Fromm (2007):** A 3D-CTM with detailed online PSC-microphysics: analysis of the Antarctic winter 2003 by comparison with satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1755-1772
- DeMott, P., D. Rogers, S. Kreidenweis (1997):** The susceptibility of ice formation in upper tropospheric clouds to insoluble aerosol components, *J. Geophys. Res.*, 102, 19575-19584
- Drdla, K., A. Tabazadeh, R.P. Turco, M.Z. Jacobson, J.E. Dye, C. Twohy, D. Baumgardner, K.K. Kelly, R.P. Chan, M. Loewenstein (1994):** Analysis of the physical state of one Arctic polar stratospheric cloud based of observations, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2473-2478
- Dye, J. E., D. Baumgardner, B.W. Gandrud, S.A. Kawa, K.K. Kelly, M. Loewenstein, G.V. Ferry, K.R. Chan, B.L. Gary (1992):** Particle size distributions in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulphuric acid droplets, and implications for cloud formation. *J. Geophys. Res.* 97, 8015-8034.
- Eyring, V., N. Butchart, D. W. Waugh, H. Akiyoshi, J. Austin, S. Bekki, G.E. Bodeker, B.A. Boville, C. Brühl, M.P. Chipperfield, E. Cordero, M. Dameris, M. Deushi, V.E. Fioletov, S.M. Frith, R.R. Garcia, A. Gettelman, M.A. Giorgetta, V. Grewe, L. Jourdain, D.E. Kinnison, E. Mancini, E. Manzini, M. Marchand, D.R. Marsh, T. Nagashima, P.A. Newman, J.E. Nielsen, S. Pawson, G. Pitari, D.A. Plummer, E. Rozanov, M. Schraner, T.G. Shepherd, K. Shibata, R.S. Stolarski, H. Struthers, W. Tian, M. Yoshiki (2006):** Assessment of temperature, trace species and ozone in chemistry-climate model simulations of the recent past, *J. Geophys. Res.*, 111, D22308
- Fahey, D.W., R.S. Gao, K.S. Carslaw, J. Kettleborough, P.J. Popp, M.J. Northway, J.C. Holecek, S.C. Ciciora, R.J. McLaughlin, T.L. Thompson, R.H. Winkler, D.G. Baumgardner, B. Gandrud, P.O. Wennberg, S. Dhaniyala, K. McKinney, Th. Peter, R.J. Salawitch, T.P. Bui, J.W. Elkins, C.R. Webster, E.L. Atlas, H. Jost, J.C. Wilson, R.L. Herman, A. Kleinböhl, M. von König (2001):** The Detection of Large  $HNO_3$ -Containing Particles in the Winter Arctic Stratosphere, *Science*, 291, 1026-1031
- Fischer, H. (1992):** Remote sensing of atmospheric trace constituents using Fourier Transform Spectrometry, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, 96, 306-314
- Fischer, H., H. Oelhaf (1996):** Remote sensing of vertical profiles of atmospheric trace constituents with MIPAS limb-emission spectrometers, *Appl. Opt.* 35, 2787-2796
- Fischer, H., M. Birk, C. Blom, B. Carli, M. Carlotti, T. von Clarmann, L. Delbouille, A. Dudhia, D. Ehhalt, M. Endemann, J.M. Flaud, R. Gessner, A. Kleinert, R. Koopman, J. Langen, M. Lopez-Puertas, P. Mosner, H. Nett, H. Oelhaf, G. Perron, J. Remedios, M. Ridolfi, G. Stiller, R. Zander (2008):** MIPAS: an instrument for atmospheric and climate research, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2151-2188
- Fortin, T.J., K. Drdla, L.T. Iraci, M.A. Tolbert (2003):** Ice condensation on sulfuric acid tetrahydrate: Implications for polar stratospheric ice clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 987-997
- Froidevaux, L., Y.B. Jiang, A. Lambert, N.J. Livesey, W.G. Read, J.W. Waters, E.V. Browell, J.W. Hair, M.A. Avery, T.J. McGee, L.W. Twigg, G.K. Sunnicht, K.W. Jucks, J.J. Margitan, B. Sen, R.A. Stachnik, G.C. Toon, P.F. Bernath, C.D. Boone, K.A. Walker, M.J. Filipiak, R.S. Harwood, R.A. Fuller, G.L. Manney, M.J. Schwartz, W.H. Daffer, B.J. Drouin, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, R.F. Jarnot, B.W. Knosp, V.S. Perun, W.V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, P.A. Wagner (2008a) :** Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S20

- Froidevaux, L., Y.B. Jiang, A. Lambert, N.J. Livesey, W.G. Read, J.W. Waters, R.A. Fuller, T.P. Marcy, P.J. Popp, R.S. Gao, D.W. Fahey, K.W. Jucks, R.A. Stachnik, G.C. Toon, L.E. Christensen, C.R. Webster, P.F. Bernath, C.D. Boone, K.A. Walker, H.C. Pumphrey, R.S. Harwood, G.L. Manney, M.J. Schwartz, W.H. Daffer, B.J. Drouin, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, R.F. Jarnot, B.W. Knosp, V.S. Perun, W.V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, P.A. Wagner (2008b): Validation of Aura Microwave Limb Sounder HCl measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S25
- Funke, B., M. López-Puertas, T. von Clarmann, G.P. Stiller, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, D.-Y. Wang (2005) Retrieval of stratospheric  $NO_x$  from 5.3 and 6.2  $\mu m$  nonlocal thermodynamic equilibrium emissions measured by Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) on Envisat, *J. Geophys. Res.*, 110, D09302
- Gil-López, G., M. Kaufmann, B. Funke, M. Garca-Comas, M.E. Koukouli, M. López-Puertas, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, G.P. Stiller, T. von Clarmann (2005): Retrieval of stratospheric and mesospheric  $O_3$  from high resolution MIPAS spectra at 15 and 10  $\mu m$ , *Adv. Space Res.*, 36, 5, 943-951
- Giorgetta, M.A., L. Bengtsson (1999): The potential role of the quasi-biennial oscillation in stratosphere-troposphere exchange as found in water vapour in general circulation model experiments, *J. Geophys. Res.* 104, 6003-6019
- Giorgetta, M.A., E. Manzini, E. Roeckner (2002): Forcing of the Quasi-Biennial Oscillation from a broad spectrum of atmospheric waves, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 8, 1245
- Giorgetta, M.A., E. Manzini, E. Roeckner, M. Esch, L. Bengtsson (2006): Climatology and forcing of the quasi-biennial oscillation in the MAECHAM5 model, *J. Climate*, 19, 3882-3901
- Glatthor, N., T. von Clarmann, H. Fischer, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, G. Mengistu Tsidu, D.-Y. Wang, B. Funke (2004): Spaceborne ClO observations by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) before and during the Antarctic major warming in September/October 2002, *J. Geophys. Res.*, Vol. 109, D11307
- Glatthor, N., T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, T. Steck, G.P. Stiller, G. Mengistu Tsidu, D.-Y. Wang (2005): Mixing processes during the Antarctic vortex split in September/October 2002 as inferred from source gas and ozone distributions from MIPAS/ENVISAT, *J. Atmos. Sci.*, 62(3), 787-800
- Glatthor, N., T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, A. Linden, M. Milz, T. Steck, G.P. Stiller (2007): Global peroxyacetyl nitrate (PAN) retrieval in the upper troposphere from limb emission spectra of the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 7, 2775-2787
- Graedel, T. E., P. J. Crutzen (1994): *Chemie der Atmosphäre - Bedeutung für Klima und Umwelt*. 1. Auflage. Heidelberg, Berlin, Oxford: Spektrum, Akademischer Verlag
- Grainger R.G., A. Lambert, C.D. Rodgers, F.W. Taylor, T. Desher (1995): Stratospheric aerosol effective radius, surface area and volume estimated from infrared measurements, *J. Geophys. Res.*, 100, 16507-16518
- Guldborg, A., E. Kaas (2000): Danish Meteorological Institute Contribution to the Final Report, in: Project on Tendency Evaluations Using New Techniques to Improve Atmospheric Longterm Simulations (POTENTIALS) - Final Report, edited by: E. Kaas, Danish Meteorological Institute (DMI), Copenhagen, Denmark, 20-32

- Hanson, D., K. Mauersberger (1988):** Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 855-1988
- Hanson, D.R., A.R. Ravishankara (1991):** The reaction probabilities of  $ClONO_2$  and  $N_2O_5$  on polar stratospheric cloud materials, *J. Geophys. Res.*, 96, 5081-5090
- Hanson, D.R., A.R. Ravishankara (1993):** The reaction of  $ClONO_2$  with  $HCl$  on NAT, NAD, and frozen sulfuric acid and hydrolysis of  $N_2O_5$  and  $ClONO_2$  on frozen sulfuric acid, *J. Geophys. Res.*, 96, 22931-22936
- Hanson, D.R., A.R. Ravishankara (1994):** Reactive uptake of  $ClONO_2$  onto sulfuric acid due to reaction with  $HCl$  and  $H_2O$ , *J. Phys. Chem.*, 98, 5728-5735
- Hanson, D.R., A.R. Ravishankara (1995):** Heterogeneous chemistry of Bromine species in sulfuric acid under stratospheric conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 385-388
- Hanson, D.R., A.R. Raishankara, E.R. Lovejoy (1996):** Reaction of  $BrONO_2$  with  $H_2O$  on submicron sulfuric acid aerosol and the implications for the lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 101, 9063-9069
- Herman, J.R., R.K. Bhartia, A.J. Krueger, R.D. McPeters, C.G. Wellemeyer, C.J. Sef-  
tor, G. Jaross, B.M. Schlessinger, O. Torres, G. Labow, W. Byerly, S.L. Taylor, T. Swiss-  
ler, R.E. Cebula, X.-Y. Gu (1996):** Meteor-3 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data  
Products User's Guide, NASA Reference Publication 1393
- Hines, C.O. (1997a):** Doppler spread parameterization of gravity wave momentum deposition in  
the middle atmosphere. Part I: Basic formulation, *J. Atmos. Solar Terr. Phys.*, 59, 371-386
- Hines, C.O. (1997b):** Doppler spread parameterization of gravity wave momentum deposition  
in the middle atmosphere. Part II: Broad and quasi monochromatic spectra and implementation,  
*J. Atmos. Solar Terr. Phys.*, 59, 387-400
- Hofmann, D.J., J.M. Rosen, J.W. Harder, J.V. Hereford (1989):** Balloon- Borne Mea-  
surements of Aerosol, Condensation Nuclei, and Cloud Particles in the Stratosphere at McMurdo  
Station, Antarctica, During the Spring of 1987, *Journal of Geophysical Research*, 94, 11253-11269
- Holton, J. R. (1975):** The Dynamic Meteorology of the Stratosphere and Mesosphere, 1. Auflage,  
American Meteorological Society, Lancaster, USA
- Höpfner, M., T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann,  
M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G.P. Stiller, D.Y. Wang,  
B. Funke (2004):** First spaceborne observations of Antarctic stratospheric  $ClONO_2$  recovery: aus-  
tral spring 2002, *J. Geophys. Res.*, 109, D11308
- Höpfner, M., B.P. Luo, P. Massoli, F. Cairo, R. Spang, M. Snels, G. Di Donfrancesco,  
G. Stiller, T. von Clarmann, H. Fischer, U. Biermann (2006a):** Spectroscopic evidence for  
NAT, STS, and ice in MIPAS infrared limb emission measurements of polar stratospheric clouds,  
*Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1201-1219
- Höpfner, M., N. Larsen, R. Spang, B.P. Luo, J. Ma, S.H. Svendsen, S.D. Eckermann, B.  
Knudsen, P. Massoli, F. Cairo, G. Stiller, T. V. Clarmann, H. Fischer (2006b):** MIPAS  
detects Antarctic stratospheric belt of NAT PSCs caused by mountain waves, *Atmos. Chem. Phys.*,  
6, 1221-1230
- Huthwelker T., T. Peter, B.P. Luo, S.L. Clegg, K.S. Carslaw, P. Brimblecombe: (1995):**  
Solubility of  $HOCl$  in Water and aqueous  $H_2SO_4$  to stratospheric temperatures, *J. Atmosph. Chem.*,  
21, 81-95
- IPCC (2007):** Climate Change 2007: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and  
III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (Core  
Writing Team, Pachauri, R.K, A. Reisinger (eds.)), IPCC, Geneva, Switzerland

- Jensen, E.J., O.B. Toon (1997):** The potential impact of soot particles from aircraft exhaust on cirrus clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 249-252
- Jeuken, A., P. Siegmund, L. Heijboer (1996):** On the potential of assimilating meteorological analyses in a global climate model for purpose of model validation, *J. Geophys. Res.*, 101, 16939-16950
- Jöckel, P., R. Sander, J. Lelieveld (2005):** Technical Note: The Modular Earth Submodel System (MESSy)-a new approach towards Earth System Modeling, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 433-444
- Jöckel, P., H. Tost, A. Pozzer, C. Brühl, J. Buchholz, L. Ganzeveld, P. Hoor, A. Kerkweg, M.G. Lawrence, R. Sander, B. Steil, G. Stiller, M. Tanarhte, D. Taraborrelli, J. van Aardenne, J. Lelieveld (2006):** The atmospheric chemistry general circulation model ECHAM5/MESSy1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5067-5104
- Junge, C.E., C.W. Chagnon, J.E. Manson (1961):** Stratospheric aerosols, *J. Meteorol.*, 18, 81-108
- Kerkweg, A. (2005):** Global Modelling of Atmospheric Halogen Chemistry in the Marine Boundary Layer, Dissertation an der Universität Bonn
- Kerkweg, A., R. Sander, H. Tost, P. Jöckel (2006a):** Technical Note: Implementation of prescribed (OFFLEM), calculated (ONLEM) and pseudo-emissions (TNUDGE) of chemical species in the Modular Earth Submodel System (MESSy), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3603-3609
- Kerkweg, A., J. Buchholz, L. Ganzeveld, A. Pozzer, H. Tost, P. Jöckel (2006b):** Technical Note: An implementation of the dry removal processes DRY DEPosition and SEDimentation in the Modular Earth Submodel System (MESSy), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 4617-4632
- Kirchner, I. (2001):** The INTERA handbook, Max Planck Institut für Meteorologie, Hamburg
- Koop, T., B. Luo, A. Tsias, T. Peter (2000):** Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions, *Nature*, 406, 611-614
- Kovalenko, L.J., N.J. Livesey, R.J. Salawitch, C. Camy-Peyret, M.P. Chipperfield, R.E. Cofield, M. Dorf, B.J. Drouin, L. Froidevaux, R.A. Fuller, F. Goutail, R.F. Jarnot, K. Jucks, B.W. Knosp, A. Lambert, I.A. MacKenzie, K. Pfeilsticker, J-P. Pommereau, W.G. Read, M.L. Santee, M.J. Schwartz, W.V. Snyder, R. Stachnik, P.C. Stek, P.A. Wagner, J.W. Waters (2007):** Validation of the Aura Microwave Limb Sounder BrO observations in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S41
- Labitzke, K.G. (1999):** Die Stratosphäre - Phänomene, Geschichte, Relevanz. 1.Auflage, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York
- Lambert, A., W.G. Read, N.J. Livesey, M.L. Santee, G.L. Manney, L. Froidevaux, D.L. Wu, M.J. Schwartz, H.C. Pumphrey, C. Jimenez, G.E. Nedoluha, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, W.H. Daffer, B.J. Drouin, R.A. Fuller, R.F. Jarnot, B.W. Knosp, H.M. Pickett, V.S. Perun, W.V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, P.A. Wagner, J.W. Waters, K.W. Jucks, G.C. Toon, R.A. Stachnik, P.F. Bernath, C.D. Boone, K.A. Walker, J. Urban, D. Murtagh, J.W. Elkins, E. Atlas (2007):** Validation of the Aura Microwave Limb Sounder middle atmosphere water vapor and nitrous oxide measurements, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S36
- Lelieveld, J., C. Brühl, P. Jöckel, B. Steil, P.J. Crutzen, H. Fischer, M.A. Giorgetta, P. Hoor, M.G. Lawrence, R. Sausen, H. Tost (2007):** Stratospheric dryness: model simulations and satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1313-1332
- Levelt P.F., G.H.J. van den Oord, M.R. Dobber, A.Mälkki, H.Visser, J. de Vries, P. Stammes, J.O.V. Lundell, H. Saari (2006):** The Ozone Monitoring Instrument, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44, 5, 1093-1101

- Lin, S.J., R.B. Rood (1996):** Multidimensional flux form semi-Lagrangian transport, *Mon. Wea. Rev.*, 124, 2046-2068
- Livesey, N.J., M.J. Filipiak, L. Froidevaux, W.G. Read, A. Lambert, M.L. Santee, J.H. Jiang, H.C. Pumphrey, J.W. Waters, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, W.H. Daffer, B.J. Drouin, R.A. Fuller, R.F. Jarnot, Y.B. Jiang, B.W. Knosp, Q.B. Li, V.S. Perun, M.J. Schwartz, W.V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, P.A. Wagner, M. Avery, E.V. Browell, J-P. Cammas, L.E. Christensen, G.S. Diskin, R-S. Gao, H-J. Jost, M. Loewenstein, J.D. Lopez, P. Nedelec, G.B. Osterman, G.W. Sachse, C.R. Webster (2008):** Validation of Aura Microwave Limb Sounder  $O_3$  and CO observations in the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S02
- Luo, B.P., K.S. Carslaw, T. Peter, S.L. Clegg (1995):** Vapor pressures of  $H_2SO_4/HNO_3/HCl/HBr/H_2O$  solutions to low stratospheric temperatures, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 247-250
- Manzini, E., N.A. McFarlane, McLandress (1997):** Impact of the Doppler spread parameterization on the simulation of the middle atmosphere using the MA/ECHAM4 general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 102, 25751-25762
- Manzini, E., N.A. McFarlane (1998):** The effect of varying the source spectrum of a gravity wave parameterization in a middle atmosphere general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 103, 31523-31539
- Marquardt, C., B. Naujokat (1997):** An update of the equatorial QBO and its variability, 1st SPARC General Assembly, Melbourne Australia, WMO/TD-No. 814, Vol. 1, 87-90
- Marti, J., K. Mauersberger (1993):** A survey and new measurements of ice vapor pressure at temperatures between 170 and 250 K, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 363-366
- McElroy, M.B., R.J. Salawitch, S.C. Wolfsy, J.A. Logan (1986):** Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine, *Nature*, 321, 759-762
- McPeters, R.D., P.K. Bhartia, A.J. Krueger, J.R. Herman, B.M. Schlemmeyer, C.G. Wellemeyer, C.J. Seftor, G. Jaross, S.L. Taylor, T. Swissler, O. Torres, G. Labow, W. Byerly, R.P. Cebula (1993):** Nimbus-7 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data Products Users Guide, NASA Reference Publication 1323
- McPeters, R.D., P.K. Bhartia, A.J. Krueger, J.R. Herman, C.G. Wellemeyer, C.J. Seftor, G. Jaross, O. Torres, L. Moy, G. Labow, W. Byerly, S.L. Taylor, T. Swissler, R.P. Cebula (1998):** Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data Products Users Guide, NASA Technical Publication 1998-206895
- Meilinger, S.K (2000):** Heterogeneous Chemistry in the Tropopause Region: Impact of Aircraft Emissions, Ph.D. thesis No. 13819, ETH Zürich, Schweiz
- Mengistu Tsidu, G., T. von Clarmann, G. P. Stiller, M. Höpfner, H. Fischer, B. Funke, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, T. Steck, D.-Y. Wang (2004):** Stratospheric  $N_2O_5$  in the Austral Spring 2002 as retrieved from limb emission spectra recorded by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *J. Geophys. Res.*, 109, D18301
- Middlebrook, A.M., M.A. Tolbert, K. Drdla (1996):** Evaporation studies of model polar stratospheric cloud films, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2145-2148
- Milz, M., T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, T. Steck, G.P. Stiller, B. Funke, M. López-Puertas (2005):** Water vapour distributions measured with the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding on board Envisat (MIPAS/Envisat), *J. Geophys. Res.*, 110, D24307

- Molina, L.T., M.J. Molina (1987):** Production of  $Cl_2O_2$  from the Self-Reaction of the  $ClO$ -Radical, The Journal of Physical Chemistry, 91, 433-436
- Molina, M.J., F.S. Rowland (1974):** Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: Chlorine atoms catalysed destruction of ozone, Nature, 249, 810-812
- Monge-Sanz, B.M., M.P. Chipperfield, A.J. Simmons, S.M. Uppala (2007):** Mean age of air and transport in a CTM: Comparison of different ECMWF analyses, Geophys. Res. Lett., 34, L04801
- Morris, G., B. Gage, P. A. Newman, A. Aikin, W. Heaps (2000):** The Chemical, Thermal, and Dynamical Structure of Earth's Atmosphere In: R. M. Todaro: Stratospheric Ozone - An Electronic Textbook. NASA. Studying Earth's Environment From Space
- Mote, P.W., K.H. Rosenlof, M.E. McIntyre, E.S. Carr, J.C. Gille, J.R. Holton, J.S. Kinnerson, H.C. Pumphrey, J.M. Russell, J.W. Waters (1996):** An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor. J. Geophys. Res., 101, 3989-4006
- Müller R. (1994):** Die Chemie des Ozons in der polaren Stratosphäre. Dissertation an der freien Universität Berlin, Verlag Shaker, Aachen
- Naujokat, B. (1986):** An update of the observed quasi-biennial oscillation of the stratospheric winds over the tropics, J. Atmos. Sci., 43, 1873-1877
- Newman, P. A., J.A. Pyle, J. Austin, G.O. Braaten, P.O. Canziani, K.S. Carslaw, P.M. de F. Foster, S. Godin-Beekmann, B.M. Knudsen, K. Kreher, H. Nakane, S. Pawson, V. Ramaswamy, M. Rex, R.J. Salawitch, D.T. Shindell, A. Tabazadeh, D.W. Tooney (2003):** Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002, Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 47, Chap. 3, World Meteorological Organization, Geneva
- Olivier, J.G., J.A. Van Aardenne, F.J. Dentener, V. Pagliari, L.N. Ganzeveld, J.A. Peters (2005):** Recent trends in global greenhouse gas emissions: regional trends 1970-2000 and spatial distribution of key sources in 2000, Env. Sc., 2, 81-99
- Peter, T. (1999):** Mikrophysik stratosphärischer Aerosolteilchen. In: R. Zellner, T. Peter, K. Dämmer, L. Quintern: 10 Jahre Deutsche Ozonforschung. Worms: Verlag für Marketing und Kommunikation GmbH, 56-71
- Pickett, H.M., B.J. Drouin, T. Canty, R.J. Salawitch, R.A. Fuller, V.S. Perun, N.J. Livesey, J.W. Waters, R.A. Stachnik, S.P. Sander, W.A. Traub, K.W. Jucks, K. Minshwaner (2008):** Validation of Aura Microwave Limb Sounder OH and  $HO_2$  measurements, J. Geophys. Res., 113, D16S30
- Prinn, R. G., J. Huang, R.F. Weiss, D.M. Cunnold, P.J. Fraser, P.G. Simmonds, A. McCulloch, C. Harth, P. Salameh, S. O Doherty, R.H.J. Wang, L. Porter, B.R. Miller (2001):** Evidence for substantial variations of atmospheric hydroxyl radicals in the past two decades, Science, 292, 1882-1888
- Read, W.G., A. Lambert, J. Bacmeister, R.E. Cofield, L.E. Christensen, D.T. Cuddy, W.H. Daffer, B.J. Drouin, E. Fetzer, L. Froidevaux, R. Fuller, R. Herman, R.F. Jarnot, J.H. Jiang, Y.B. Jiang, K. Kelly, B.W. Knosp, H.C. Pumphrey, K.H. Rosenlof, X. Sabouchi, M.L. Santee, M.J. Schwartz, W.V. Snyder, P.C. Stek, H. Su, L.L. Takacs, R.P. Thurstans, H. Vomel, P.A. Wagner, J.W. Waters, C.R. Webster, E.M. Weinstock, D.L. Wu (2007):** Aura Microwave Limb Sounder upper tropospheric and lower stratospheric  $H_2O$  and relative humidity with respect to ice validation, J. Geophys. Res., 112, D24S35
- Roeckner, E., K. Arpe, L. Bengtsson, M. Christoph, M. Claussen, L. Dümenil, M. Esch, M. Giorgetta, U. Schlese, U. Schulzweida (1996):** The atmospheric general circulation model ECHAM4: Model description and simulation of present-day climate, MPI-Report 218, Hamburg

- Roeckner, E., G. Bäuml, L. Bonaventura, R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, I. Kirchner, L. Kornblueh, E. Manzini, A. Rhodin, U. Schlese, U. Schulzweida, A. Tompkins (2003a): The atmospheric general circulation model ECHAM5. PART I: Model description, MPI-Report 349, Hamburg, Germany
- Roeckner, E., R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, L. Kornblueh, E. Manzini, U. Schlese, U. Schulzweida, (2003b): The atmospheric general circulation model ECHAM5. PART II: Sensitivity of Simulated Climate to Horizontal and Vertical Resolution, MPI-Report 354, Hamburg, Germany
- Roeckner, E., R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, L. Kornblueh, E. Manzini, R. Schlese, U. Schulzweida (2006): Sensitivity of simulated climate to horizontal and vertical resolution in the ECHAM5 atmosphere model, *J. Climate*, 19, 3771-3791
- Sander, R., A. Kerkweg, P. Jöckel, J. Lelieveld (2005): Technical note: The new comprehensive atmospheric chemistry module MECCA, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 445-450
- Sander, S.P., R.R. Friedl, A.R. Ravishankara, D.M. Golden, C.E. Kolb, M.J. Kurylo, R.E. Huie, V.L. Orkin, M.J. Molina, G.K. Moortgat, B.J. Finlayson-Pitts (2003): Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies - Evaluation Number 14, JPL Publication 02-25, Jet Propulsion Laboratory, Pasadena
- Sander, S.P., B.J. Finlayson-Pitts, R.R. Friedl, D.M. Golden, R.E. Huie, H. Keller-Rudek, C.E. Kolb, M.J. Kurylo, M.J. Molina, G.K. Moortgat, V.L. Orkin, A.R. Ravishankara, P.W. Wine (2006): Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies - Evaluation Number 15, JPL Publication 06-2, Jet Propulsion Laboratory, Pasadena
- Sandu, A., R. Sander (2006): Technical note: Simulating chemical systems in Fortran90 and Matlab with the Kinetic PreProcessor KPP-2.1. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 187-195
- Santee, M.L., G.L. Manney, N.J. Livesey, L. Froidevaux, H.C. Pumphrey, W.G. Read, M.J. Schwartz, J.W. Waters (2005): Polar processing and development of the 2004 Antarctic ozone hole: First results from Aura MLS, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L12817
- Santee, M.L., A. Lambert, W.G. Read, N.J. Livesey, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, W.H. Daffer, B.J. Drouin, L. Froidevaux, R.A. Fuller, R.F. Jarnot, B.W. Knosp, G.L. Manney, V.S. Perun, W.V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, P.A. Wagner, J.W. Waters, G. Muscari, R.L. deZafra, J.E. Dibb, D.W. Fahey, P.J. Popp, T.P. Marcy, K.W. Jucks, G.C. Toon, R.A. Stachnik, P.F. Bernath, C.D. Boone, K.A. Walker, J. Urban, D. Murtagh (2007): Validation of Aura Microwave Limb Sounder  $HNO_3$  Measurements, *J. Geophys. Res.*, 112, D24S40, 2007
- Santee, M.L., A. Lambert, W.G. Read, N.J. Livesey, G.L. Manney, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, W.H. Daffer, B.J. Drouin, L. Froidevaux, R.A. Fuller, R.F. Jarnot, B.W. Knosp, V.S. Perun, W.V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, P.A. Wagner, J.W. Waters, B. Connor, J. Urban, D. Murtagh, P. Ricaud, B. Barrett, A. Kleinboehl, J. Kuttippurath, H. Kullmann, M. von Hobe, G.C. Toon, R.A. Stachnik (2008): Validation of the Aura Microwave Limb Sounder ClO Measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D15S22, 2008
- Schlager, H., F. Arnold (1990): Measurement of stratospheric gaseous nitric acid in the Winter arctic vortex using a novel rocket-borne mass spectrometer method, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 433-436
- Schmitt, A. B. Brunner (1997): Emissions from aviation and their development over time, in: Pollutants from air traffic - results of atmospheric research 1992-1997. Final Report on the BMBF Verbundprogramm Schadstoffe in der Luftfahrt, Tech. report, DLR - Mitteilung 97-04, 1-301
- Schoeberl, M.R., A.R. Douglass, E. Hilsenrath, P.K. Bhartia, J. Barnett, J. Gille, R. Beer, M. Gunson, J. Waters, P.F. Levelt, P. DeCola (2004): Earth Observing System Missions Benefit Atmospheric Research, *Eos Trans. AGU*, 85, 177

- Simmons A.J., D.M. Burridge, M. Jarraud, C. Girard, W. Wergen (1989a):** The ECMWF medium-range prediction models. Development of the numerical formulations and the impact of increased resolution, *Meteor. Atmos. Phys.*, 40, 28-60.
- Simmons A.J., D. Dent (1989b):** The ECMWF multi-tasking weather prediction model, *Computer Physics Reports*, 11, 165-194
- Solomon, S., R.R. Garcia, F.S. Rowland, D.J. Wuebbles (1986):** On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, 321, 755-758
- Steil B., M. Dameris, C. Brühl, P.J. Crutzen, V. Grewe, M. Ponater, R. Sausen (1998):** Development of a chemistry module for GCMs: First results of a multiannual integration, *Ann. Geophys.*, 16, 205-228
- Stiller, G.P., T. von Clarmann, C. Brühl, H. Fischer, B. Funke, N. Glatthor, U. Grabowski M. Höpfner, P. Jöckel, S. Kellmann, M. Kiefer A. Linden, M. Lopez-Puertas, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, B. Steil (2007):** Global distributions of  $HO_2NO_2$  as observed by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *J. Geophys. Res.*, 112, D09314
- Tabazadeh, A., R.P. Turco, K. Drdla, M.Z. Jacobson (1994a):** A study of type I polar stratospheric cloud formation, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 1619-1622
- Tabazadeh, A., R.P. Turco, K. Drdla, M.Z. Jacobson (1994b):** A model for studying the composition and chemical effects of stratospheric aerosols, *J. Geophys. Res.*, 99, 12897-12914
- Tabazadeh, A., O.B. Toon, E.J. Jensen (1997):** Formation and implications of ice particle nucleation in the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2007-2010
- Tabazadeh, A., Y.S. Djikaeve, P. Hamill, H. Reiss (2002):** Laboratory evidence for surface nucleation of solid polar stratospheric cloud particles, *J. Phys. Chem.*, 106, 10238-10246
- Tolbert, M.A., M.J. Rossi, R. Malhotra, D.M. Golden (1987):** Reaction of chlorine nitrate with hydrogen-chloride and water at Antarctic stratospheric temperatures, *Science*, 238, 1258-1260
- Tost, H., P. Jöckel, A. Kerkweg, R. Sander, J. Lelieveld (2006a):** Technical note: A new comprehensive SCAVenging submodel for global atmospheric chemistry modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 565-574
- Tost, H., P. Jöckel, J. Lelieveld (2006b):** Influence of different convection parameterisations in a GCM, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5475-5493
- Tost, H., P. Jöckel, A. Kerkweg, A. Pozzer, R. Sander, J. Lelieveld (2007):** Global cloud and precipitation chemistry and wet deposition: tropospheric model simulations with ECHAM5/MESSy1, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2733-2757
- Turco R.P., O.B. Toon, P. Hamill (1989):** Heterogeneous physicochemistry of the polar ozone hole, *J. Geophys. Res.*, 94, 16493-16510
- Turco R.P., K. Drdla, A. Tabazadeh, P. Hamill (1992):** Heterogeneous Chemistry of Polar Stratospheric Clouds and Volcanic Aerosols in: *The Role of the Stratosphere in Global Change*, edited by: Marie-Lise Chanin - NATO ASI series. Series I, Global environmental change, vol.8, 65-134. Springer Verlag, Berlin
- Van Aalst, M.K., M.M.P. van den Broek, A. Bregman, C. Brühl, B. Steil, G.C. Toon, S. Garcelon, G.M. Hansford, R.L. Jones, T.D. Gardiner, G.J. Roelofs, J. Lelieveld, P.J. Crutzen (2004):** Trace gas transport in the 1999/2000 Arctic winter: comparison of nudged GCM runs with observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 81-93
- Van Aalst, M.K. (2005):** Dynamics and Transport in the Stratosphere - simulations with a general circulation model, Dissertation, Institute for Marine and Atmospheric Research Utrecht, Netherlands

- Van den Broek, M.M.P., J.E. Williams, A. Bregman (2004):** Implementing growth and sedimentation of NAT particle in a global Eulerian model. *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 1869-1883
- Voigt, C., J. Schreiner, A. Kohlmann, P. Zink, K. Mauersberger, N. Larsen, T. Deshler, C. Kroger, J. Rosen, A. Adriani, F. Cairo, G.D. Donfrancesco, M. Viterbini, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. David, A. Dornbrack (2000):** Nitric Acid Trihydrate (NAT) in Polar Stratospheric Clouds, *Science*, 290, 1756-1758.
- Von Clarmann, T., T. Chidiezie Chineke, H. Fischer, B. Funke, M. García-Comas, S. Gil-López, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. López-Puertas, M.Á López-Valverde, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G.P. Stiller (2003a):** Remote Sensing of the Middle Atmosphere with MIPAS, in: *Remote Sensing of Clouds and 20 the Atmosphere VII*, Proceedings of SPIE Vol. 4882, SPIE, Bellingham, WA, USA, edited by: K. Schäfer, O. Lado-Bordowsky, A. Comeron, R.H. Picard, 172-183
- Von Clarmann, T., N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G.M. Tsidu, M. Milz, T. Steck, G.P. Stiller, D.Y. Wang, H. Fischer (2003b)** Retrieval of temperature and tangent altitude pointing from limb emission spectra recorded from space by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS), *J. Geophys. Res.*, 108, 4736
- Von Kuhlmann, R., M.G. Lawrence, P.J. Crutzen, P.J. Rasch (2003):** A model for studies of tropospheric ozone and nonmethane hydrocarbons: Model description and ozone results, *J. Geophys. Res.*, 108, 4294
- Waibel A. (1997):** Anomalien ozonchemisch relevanter Spurengase, Dissertation an der Universität Heidelberg, Shaker, Aachen
- Walcek, C.J. (2000):** Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection, *J. Geophys. Res.*, 105, 9335-9348
- Wang D.-Y., T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, S. Gil-López, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, M. Kaufmann, S. Kellmann, M. Kiefer, M.E. Koukouli, A. Linden, M. López-Puertas, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G.P. Stiller, A.J. Simmons, A. Dethof, R. Swinbank, C. Marquardt, J.H. Jiang, L.J. Romans, J. Wickert, T. Schmidt, J. Russell III, E. Remsberg (2005):** Validation of stratospheric temperatures measured by Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS) on ENVISAT, *J. Geophys. Res.*, 110, D08301
- Wang D.Y., M. Höpfner, C.E. Blom, W.E. Ward, H. Fischer, T. Blumenstock, F. Hase, C. Keim, G.Y. Liu, S. Mikuteit, H. Oelhaf, G. Wetzell, U. Cortesi, F. Mencaraglia, G. Bianchini, G. Redaelli, M. Pirre, V. Catoire, N. Huret, C. Vigouroux, M. De Mazière, E. Mahieu, P. Demoulin, S. Wood, D. Smale, N. Jones, H. Nakajima, T. Sugita, J. Urban, D. Murtagh, C.D. Boone, P.F. Bernath, K.A. Walker, J. Kuttippurath, A. Kleinböhl, G. Toon, C. Piccolo (2007):** Validation of MIPAS  $HNO_3$  operational data, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4905-4934
- Waters, J.W., W.G. Read, L. Froidevaux, R.F. Jarnot, R.E. Cofield, D.A. Flower, G.K. Lau, H.M. Pickett, M.L. Santee, D.L. Wu, M.A. Boyles, J.R. Burke, R.R. Lay, M.S. Loo, N.J. Livesey, T.A. Lungu, G.L. Manney, L.L. Nakamura, V.S. Perun, B.P. Ridenoure, Z. Shippony, P.H. Siegel, R.P. Thurstans, R.S. Harwood, and M.J. Filipiak (1999):** The UARS and EOS Microwave Limb Sounder Experiments, *J. Atmos. Sci.* 56, 194-218
- Wirth, M., A. Tsias, A. Föhnbrack, V. Wei, K.S. Carslaw, M. Leutbecher, W. Renber, H. Volkert, T. Peter (1999):** Model-guided Lagrangian observation and simulation of mountain polar stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, 104, 23971-23981

**Wofsy, S., R. Salawitch, J. Yatteau, M. McElroy, B. Gandrud, J. Dye, D. Baumgardner (1990):** Condensation of  $HNO_3$  on falling ice particles: Mechanism for denitrification of the polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 449-452

**Woyke, T. (1999):** In-situ Messung von Halogenoxiden in der polaren Stratosphäre: Untersuchungen zur Ozonchemie im Winter 1994/5, Dissertation, Publikation Jül-3559, Forschungszentrum Jülich

**Wu, D.L., J.H. Jiang, W.G. Read, R.T. Austin, C.P. Davis, A. Lambert, G.L. Stephens, D.G. Vane, J.W. Waters (2008):** Validation of the Aura MLS Cloud Ice Water Content (IWC) Measurements, *J. Geophys. Res.*, 113

**Zahn, A., C.A.M. Brenninkmeijer, W.A.H. Asman, P.J. Crutzen, G. Heinrich, H. Fischer, J.W.M. Cuijpers, P.F.J. van Velthoven (2002):** The budgets of O<sub>3</sub> and CO in the upper troposphere: CARIBIC passenger aircraft results 1997-2001, *J. Geophys. Res.*, 107, 4337

**Zhang, R., M.-T. Leu, M.J. Molina (1996):** Formation of polar stratospheric clouds on preactivated background aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 1669-1672

## A Abkürzungen und Symbole

### ECHAM5/MESSy1-Module

CLOUD	Cloud → Wolken-Modul
CONVECT	Convection → Konvektions-Modul
CVTRANS	Convective Tracer Transport → Modul für den konvektiven Transport
DRYDEP	Dry Deposition → Modul zur Berechnung der trockenen Deposition
H2O	Water vapour → Wasserdampf-Modul
HETCHEM	Heterogeneous chemistry → Modul zur Berechnung der heterogenen chemischen Reaktionsraten
JVAL	J-values (Photolyseraten) → Modul zur Berechnung der Photolyseraten
LNOX	Lightning Nitrogen Oxide Emission → Modul zur $NO_x$ -Berechnung aus Blitzen
MECCA	Module Efficiently Calculating the Chemistry of the Atmosphere → Chemie-Modul
OFFLEM	Offline Emissions → Modul zum Einlesen von Randbedingungen
ONLEM	Online Emissions → Modul mit Parametrisierungen von Randbedingungen
PSC	Polar Stratospheric Clouds → PSC-Modul
PTRAC	Passive Tracers → Modul zur Implementierung von passiven Tracern
QBO	Quasi Biennial Oscillation → QBO-Modul
RAD4ALL	Radiation for All → Strahlungs-Modul
SCAV	Scavenging → Modul zur Berechnung der feuchten Deposition
SEDI	Sedimentation → Modul zur Berechnung der Sedimentation von Aerosolen
TNUDGE	Tracer Nudg(e)ing → Modul zum Nudgen von chemischen Substanzen
TROPOP	Tropopause → Modul zur Analyse der Tropopause

### Abkürzungen

AOGCM	Atmosphere-Ocean General Circulation Model
CARIBIC	Civil Aircraft for the Regular Investigation of the Atmosphere Based on an Instrument Container
CCM	Chemistry Climate Model
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
ECHAM	EC für ECMWF operational forecast model; HAM für Hamburg
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ENVISAT	Environmental Satellite
EOS	Earth Observing System
ESA	European Space Agency
ESM	Earth System Model
FFSL	Flux-Form Semi-Lagrangian (Advektions Schema)
FZK	Forschungszentrum Karlsruhe
GCM	General Circulation Model
GOMOS	Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars
IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung, FZK
INTERA	Interpolation of ECMWF Reanalysis data
IFT	Institut für Troposphärenforschung in Leipzig
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
JPL	Jet Propulsion Laboratory des California Institute of Technology

MESSy	Modular Earth Submodel System
MIPAS	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding
MLS	Microwave Limb Sounder
MPI	Max Planck Institut
NMKWs	Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe
NUDG10	Simulation mit Nudging bis in eine Höhe von ca. 13 hPa
NUDG100	Simulation mit Nudging bis in eine Höhe von ca. 110 hPa
NUDG200	Simulation mit Nudging bis in eine Höhe von ca. 220 hPa
OMI	Ozone Monitoring Instrument
PSC	Polar Stratospheric Clouds, polare Stratosphärenwolken
QBO	Quasi Biennial Oscillation
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiments
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
UNG	Ungenudgte Simulation
UTLS	Upper Troposphere Lower Stratosphere
WMO	World Meteorological Organisation

## Symbole

$A, B$	Hybridkoeffizienten zur Berechnung von $p_k$
$A_{LIQ}$	Gesamtoberfläche der flüssigen Phase in einem Luftvolumne in $\frac{cm^2}{cm^3}$
$b_{H_2SO_4(binary)}$	Molarer Anteil von $H_2SO_4$ in binärer Lösung in $\frac{mol}{kg}$
$b_{HNO_3(binary)}$	Molarer Anteil von $HNO_3$ in binärer Lösung in $\frac{mol}{kg}$
$b_{H_2SO_4(ternary)}$	Molarer Anteil von $H_2SO_4$ in ternärer Lösung in $\frac{mol}{kg}$
$b_{HNO_3(ternary)}$	Molarer Anteil von $HNO_3$ in ternärer Lösung in $\frac{mol}{kg}$
$c_p$	spezifische Wärmekapazität trockener Luft = $1004.67 \frac{J}{Kkg}$
$C_c$	Cunningham slip flow correction factor, dimensionslos
$g$	Schwerebeschleunigung in $\frac{m}{s^2}$
$D_{HNO_3}^*, D_{HNO_3}$	Diffusionskoeffizienten von $HNO_3$ in Luft in $\frac{m^2}{s}$
$den_{sLIQ}$	Massendichte der flüssigen Phase in $\frac{g}{cm^3}$
$e_{H_2O(total)}$	Gleichgewichtsdampfdrucks von $H_2O_{(total)}$ in hPa
$E_{H_2O}^{ICE}$	temperaturabhängigen Sättigungsdampfdruck von $H_2O$ über Eis in hPa
$e_{HNO_3(total)}$	Gleichgewichtsdampfdrucks von $HNO_3_{(total)}$ in hPa
$E_{HNO_3}^{NAT}$	temperaturabhängigen Sättigungsdampfdruck von $HNO_3$ über NAT in hPa
$f$	Coriolisparameter in $s^{-1}$
$G$	Wachstumsfaktor in $\frac{m^2}{s}$
$G_N$	Nudging Parameter bzw. Relaxationskoeffizient in $s^{-1}$
$i$	laufende Nummer des Längengrades
$j$	laufende Nummer des Breitengrades
$k$	laufende Nummer der Flächen der Gitterboxen
$k_H$	Henry Konstante in $\frac{mol}{kg mol}$
$l_a$	freie mittlere Weglänge der Substanz A in m
$l_{HNO_3}$	freie mittlere Weglänge von $HNO_3$ in m
$L$	laufende Nummer der Modellflächen

$m_{total}$	gesamte Masse der flüssigen Phase für ein Luftvolumen in $\frac{g}{cm^3}$
$M_A$	Molmasse der Substanz A in $\frac{kg}{mol}$
$M_{AIR}$	Molmasse der trockenen Luft ( $= 0.02897 \frac{kg}{mol}$ )
$M_{H_2O}$	Molmasse von $H_2O$ ( $= 0.018 \frac{kg}{mol}$ )
$M_{H_2SO_4}$	Molmasse von $H_2SO_4$ ( $= 0.098 \frac{kg}{mol}$ )
$M_{NAT}$	Molmasse von $NAT$ ( $= 0.117 \frac{kg}{mol}$ )
$N_{max}$	maximale Anzahldichte für die Bildung von festen Teilchen oder Eisteilchen in $\frac{1}{m^3}$
$N_{solid}$	Anzahldichte aller fester Teilchen (Eis- und NAT-Teilchen) in $\frac{1}{m^3}$
$N_{ICE}$	Anzahldichte der Eisteilchen in $\frac{1}{m^3}$
$N_{NAT}$	Anzahldichte der NAT-Teilchen in $\frac{1}{m^3}$
$N_{NAT_{bin}}$	Anzahldichte der NAT-Teilchen in einer Grössenklasse in $\frac{1}{m^3}$
$p$	Druck in hPa
$p_0$	Normaldruck ( $= 1013.25$ hPa) in hPa
$p_{bot}$	lokaler Oberflächendruck in hPa
$p_{bottom}$	Druck am unteren Rand einer Gitterbox in hPa
$p_{top}$	Druck am oberen Rand einer Gitterbox in hPa
$p_k$	lokaler Druck auf den Gitterboxflächen k in hPa
$p_L$	lokaler Druck auf der Modellfläche L in hPa
$pV$	Potentielle Vorticity in $\frac{Km^2}{kgs}$
$q$	spezifische Feuchte in $\frac{kg}{kg}$
$r$	Partikelradius allgemein in m
$r_{min}$	minimaler Radius für die Bildung von festen Teilchen oder Eisteilchen in m
$r_{ICE}$	mittlerer Radius der Eisteilchen in $\mu m$
$r_{LIQ}$	mittlerer Radius der flüssigen Aerosole in $\mu m$
$r_{NAT}$	mittlerer Radius der NAT-Teilchen in $\mu m$
$r_{NAT_{bin}}$	mittlerer Radius der NAT-Teilchen in einer Grössenklasse in $\mu m$
$r_{solid}$	mittlerer Radius aller fester Teilchen (Eis- und NAT-Teilchen) in $\mu m$
$R_{gas}$	universelle Gaskonstante ( $= 8.314 \frac{J}{mol K}$ )
$R_L$	spezifische Gaskonstante trockener Luft $= 287.053 \frac{J}{Kkg}$
$T$	Temperatur in K
$T_{ICE}$	Eiskondensationstemperatur in K
$T_{NAT}$	NAT-Kondensationstemperatur in K
$T_{STS}$	STS-Kondensationstemperatur in K
$t$	Zeit in s
$S$	Sedimentationsfaktor in $\frac{1}{ms}$
$SedStep$	Sedimentationsweg in Pa
$SedStep_{solid}$	Sedimentationsweg der festen Teilchen in Pa
$SedStep_{ICE}$	Sedimentationsweg der Eisteilchen in Pa
$SedStep_{NAT_{bin}}$	Sedimentationsweg der NAT-Teilchen einer Grössenklasse in Pa
$\vec{v}$	Vektorielle Luftgeschwindigkeit in $\frac{m}{s}$
$v_{sed}$	Sedimentationsgeschwindigkeit in $\frac{m}{s}$
$v_{sed(NAT)}$	Sedimentationsgeschwindigkeit der NAT-Teilchen in $\frac{m}{s}$
$v_{sed(NAT)_{bin}}$	Sedimentationsgeschwindigkeit der NAT-Teilchen in einer Grössenklasse in $\frac{m}{s}$
$v_{HNO_3}$	mittlere molekulare Geschwindigkeit von $HNO_3$ in $\frac{m}{s}$
$v_{th}$	mittlere thermische Geschwindigkeit in $\frac{m}{s}$
$V_{LIQ}$	Gesamtvolumen der flüssigen Phase in einem Luftvolumen in $\frac{cm^3}{cm^3}$
$V_{solid}$	Gesamtvolumen der festen Teilchen in einem Luftvolumen in $\frac{cm^3}{cm^3}$

$wH_2O$	Massenanteil von $H_2O$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$wH_2SO_4$	Massenanteil von $H_2SO_4$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$wHNO_3$	Massenanteil von $HNO_3$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$wHCl$	Massenanteil von $HCl$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$wHOCl$	Massenanteil von $HOCl$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$wHBr$	Massenanteil von $HBr$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$wHOBr$	Massenanteil von $HOBr$ im flüssigen stratosphärischen Aerosol in $\frac{kg}{kg}$
$z$	vertikale Höhe in m
$\gamma$	Reaktionswahrscheinlichkeit für heterogene Reaktionen, dimensionslos
$\eta$	absolute Vorticity in $\frac{1}{s}$ ( $=\vec{\omega}_{rel} + 2\Omega$ )
$\eta_a$	Viskosität der Luft in $\frac{g}{ms}$
$\kappa$	Geschwindigkeitskonstante für bimolekulare Reaktionen in $\frac{cm^3}{s}$
$\kappa^I$	Geschwindigkeitskonstante für monomolekulare Reaktionen in $\frac{1}{s}$
$\rho$	Luftdichte in $\frac{kg}{m^3}$
$\rho_{NAT}$	kristalline Massendichte von NAT ( $=1626\frac{kg}{m^3}$ )
$\omega$	Vertikalgeschwindigkeit in $\frac{m}{s}$
$\omega_z$	Vertikalkomponente der relativen Vorticity in $\frac{1}{s}$
$\vec{\omega}_{rel}$	relative Vorticity in $\frac{1}{s}$ ( $=\nabla \times \vec{v}$ )
$\Theta$	potentielle Temperatur in K
$\Omega$	Winkelgeschwindigkeit der Erde in $\frac{1}{s}$

## Gebräuchliche Masseinheiten

DU	Dobson Unit, vertikal integrierter Gesamtsäulengehalt von Ozon über einem Ort, reduziert auf Normalbedingungen ( $T=273.15$ K; $p_0=1013$ hPa) 1 mm Ozonschichtdicke entsprechen 100 DU
ppbv	parts per billion (Volumenmischungsverhältnis ( $10^{-9}$ ))
ppmv	parts per million (Volumenmischungsverhältnis ( $10^{-6}$ ))
PVU	Potential Vorticity Units in $10^{-6}\frac{Km^2}{kgs}$

## Chemische Spezies

### Bromsubstanzen

$Br$	Brom-Radikal
$Br_2$	molekulares Brom
$BrCl$	Bromchlorid
$BrONO_2$	Bromnitrat (Reservoir der Brom-Familie)
$BrO$	Bromoxid-Radikal
$BrO_x$	Summe an aktivem Brom ( $BrO_x = Br + BrO + HOBr + BrCl + 2 * Br_2$ )
$CH_3Br$	Methylbromid
$CF_2ClBr$	Halon-1211
$CF_3Br$	Halon-1301
$HBr$	Bromsäuregas (Reservoir der Brom-Familie)
$HBr_{(LIQ)}$	flüssige Phase von $HBr$

$HOBr$	hypobromige Säure
$HOBr_{(LIQ)}$	flüssige Phase von $HOBr$

### Chlorsubstanzen

$CCl_4$	Tetrachlormethan (FCKW-10)
$CFCl_3$	Trichlorfluormethan (FCKW-11)
$CF_2Cl_2$	Dichlordifluormethan (FCKW-12)
$CF_2ClBr$	Halon-1211
$CH_3Cl$	Methylchlorid (natürliches Quellgas der Chlor-Familie)
$CH_3CCl_3$	Methylchloroform
$Cl$	Chlor-Radikal
$Cl_2$	molekulares Chlor
$Cl_2O_2$	Chlormonoxid-Dimer
$ClO$	Chlormonoxid-Radikal
$ClONO$	Chlornitrit
$ClONO_2$	Chlornitrat (Reservoir der Chlor-Familie)
$ClO_x$	Summe an aktivem Chlor ( $ClO_x = Cl + ClO + HOCl + OClO + 2 * Cl_2O_2 + 2 * Cl_2$ )
$Cl_y$	Summe an reaktivem (verfügbaren) Chlor ( $Cl_y = ClO_x + ClONO_2 + HCl$ )
$HCl$	Salzsäuregas (Reservoir der Chlor-Familie)
$HCl_{(LIQ)}$	flüssige Phase von $HCl$
$HOCl$	hypochlorige Säure
$HOCl_{(LIQ)}$	flüssige Phase von $HOCl$
$OClO$	Chlordioxid

### Kohlenstoff enthaltene Substanzen

$C_2H_4$	Ethen
$C_2H_6$	Ethan
$C_3H_6$	Propen
$C_3H_8$	Propan
$C_4H_{10}$	Butan
$CH_4$	Methan
$CH_3CHO$	Acetaldehyd (Ethanal)
$CH_3COCH_3$	Aceton (Propanon)
$CH_3COOH$	Essigsäure (Ethansäure)
$CH_3OH$	Methanol
$CO$	Kohlenmonoxid
$CO_2$	Kohlendioxid
$DMS$	Dimethylsulfid
$HCHO$	Formaldehyd (Methanal)
$HCOOH$	Ameisensäure (Methansäure)
$MEK$	Methyl-Ethyl-Ketone

**Sauerstoffsubstanzen**

$O$	atomarer Sauerstoff, zwei Formen mit unterschiedlicher elektronischer Anregung: $O(^1D)$ und $O(^3P)$
$O_2$	molekularer Sauerstoff
$O_3$	Ozon

**Schwefelfamilie**

$SO_2$	Schwefeldioxid
$H_2SO_4$	Schwefelsäure
$H_2SO_4(LIQ)$	flüssige Phase von $H_2SO_4$ , gebunden in SSA und SST
$SF_6$	Schwefelhexafluorid

**Stickstoffsubstanzen**

$HNO_3$	Salpetersäure (Reservoir der Stickstofffamilie)
$HNO_3(change)$	Veränderung des $HNO_3$ in einer Gitterbox
$HNO_3(change)_{bin}$	Veränderung des $HNO_3$ in einer Gitterbox für jede Grössenklasse
$HNO_3(total)$	Gesamtdampfdruck von $HNO_3$ aus Gas-, Flüssig- und Festphase
$HNO_3(LIQ)$	flüssige Phase von $HNO_3$ , gebunden in STS-Partikeln
$HNO_3(NAT)$	feste Phase von $HNO_3$ , gebunden in NAT-Partikeln
$HONO$	salpetrige Säure
$HO_2NO_2$	Peroxisalpetersäure
$N$	Stickstoff-Radikal
$N_2$	molekularer Stickstoff
$N_2O$	Lachgas, Distickstoffmonoxid (Quellgas der Stickstoff-Familie)
$N_2O_5$	Distickstoffpentoxid (Reservoir der Stickstofffamilie)
$NH_3$	Ammoniak
$NO$	Stickstoffmonoxid
$NO_2$	Stickstoffdioxid
$NO_3$	Stickstofftrioxid
$NO_x$	Summe an aktivem Stickstoff ( $NO_x = N + NO + NO_2 + NO_3 + 2 * N_2O_5$ )
$NO_y$	Summe an reaktivem (verfügbarem) Stickstoff ( $NO_y = NO_x + HNO_3 + ClONO_2$ )
$PAN$	Peroxyacetylnitrat

**Wasserstoffsubstanzen**

$H$	Wasserstoff-Radikal
$H_2O$	Wasserdampf (Hauptquellgas der Wasserstoff-Familie)
$H_2O(change)$	Veränderung von $H_2O$ in einer Gitterbox
$H_2O(ICE)$	Eisphase von $H_2O$
$H_2O(LIQ)$	flüssige Phase von $H_2O$
$H_2O(total)$	Gesamtdampfdruck von $H_2O$ aus Gas-, Flüssig und Festphase
$H_2O_2$	Wasserstoffperoxid
$HO_2$	Wasserstoffperoxy-Radikal

$HO_x$	Radikale der Wasserstofffamilie ( $HO_x = H + OH + HO_2$ )
$OH$	Hydroxyl-Radikal

### Stratosphärische Aerosole

$ICE$	Eispartikel (PSC Typ 2)
$NAD$	Nitric Acid Dihydrat → Salpetersäure-Dihydrat (PSC Typ 1a)
$NAT$	Nitric Acid Trihydrat → Salpetersäure-Trihydrat (PSC Typ 1a)
$SAT$	Sulphuric Acid Tetrahydrate → Schwefelsäure-Tetrahydrat
$SSA$	supercooled sulfuric acid → unterkühlte Schwefelsäure
$STS$	supercooled ternary solutions → ternäre Lösungen (PSC Typ 1b)

### Andere Substanzen

$Hg$	Quecksilber
------	-------------

## Anhang B

### Abbildungsverzeichnis

1.1	Druckverteilung in ECHAM5/MESSy1 in der 39 Schichten-Version, dargestellt für den 2.1.2000 . . . . .	3
2.1	Verwendete höhenabhängige Nudgingparameter der Simulationen NUDG10, NUDG100 und NUDG200 . . . . .	13
2.2	Vortex Split 2002: Südpolare Ozonsäulen am 24.9.02, 26.9.02 und 28.9.02, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen . . . . .	14
2.3	Südpolare Ozonsäule am 24.9.2002, 26.9.2002 u. 28.9.2002 gemessen mit TOMS . . . . .	15
2.4	Monatsmittel September 2003 für Temperatur und potentieller Temperatur . . . . .	17
2.5	Antarktischer Wirbel am 1. September 2003 auf 475 K, dargestellt mit Hilfe der potentiellen Vorticity . . . . .	18
2.6	Zeitserie der Fläche des antarktischen Wirbels 2003 auf 475 K und 500 K . . . . .	19
2.7	Zeitserien der Differenz der potentiellen Vorticity auf 475 K zwischen 40°S und dem Südpol (87.9°S) von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 zwischen den Simulation NUDG10 und NUDG100 sowie NUDG10 und NUDG200. . . . .	20
2.8	Zeitserie der zonal gemittelten Temperatur am Südpol von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen . . . . .	22
2.9	Zeitserie der Fläche mit einer Temperatur unter 193 K auf 475K und 500K von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 in den südpolaren Breiten . . . . .	23
2.10	Zeitserie der Fläche der PSCs (NAT und Eis) auf 475K und 500K von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 in den südpolaren Breiten . . . . .	24
2.11	Zeitserien von $HNO_3$ am Südpol in der Stratosphäre von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen . . . . .	25
2.12	Zeitserien des aktiven Chlor auf 475 K im Bereich 45°S bis 90°S von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen . . . . .	27
2.13	Zeitserie der Fläche des Ozonlochs auf 475K- und 500K- $\Theta$ -Fläche von Anfang Mai 2003 bis Ende November 2003 . . . . .	28
2.14	Ozonsäulen am 1.10.2003 aus unterschiedlich genudgten Modellläufen und gemessen mit TOMS . . . . .	30
2.15	Zeitserie der zonal gemittelten Ozonsäulen für das Jahr 2003, simuliert mit unterschiedlich genudgten Modellläufen und gemessen mit TOMS . . . . .	31
3.1	Zeitserien der zonal gemittelten Temperatur in der mittleren Atmosphäre am Südpol und am Nordpol für die Jahre 2000 bis 2005 in ECHAM5/MESSy1 . . . . .	36
3.2	Gemittelte Januar- und Juli-Temperatur des Jahres 2003 in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und als Differenz zu MIPAS/ENVISAT-Messdaten . . . . .	38
3.3	Zonal gemittelte Zeitserien des mittleren zonalen Windes für die mittlere Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1: Januar- und Julimittel der Jahre 2000 bis 2005 . . . . .	39
3.4	Zonal gemittelte Zeitserien der QBO am Äquator für die mittlere Atmosphäre simuliert mit ECHAM5/MESSy1 . . . . .	40

3.5	Stromlinien der Brewer-Dobson-Zirkulation nach einem Modell v. Garcia u. Solomon .	41
3.6	Zonal gemittelte Januar- und Julimittel des Jahres 2003 von $N_2O$ in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und als Differenz zu Messdaten von MIPAS/ENVISAT . . . . .	42
3.7	Zonal gemittelte Zeitserien am Äquator in der mittleren Atmosphäre für die Jahre 2000 bis 2005 simuliert mit ECHAM5/MESSy1: $CH_4$ , $H_2O$ und „Tape Recorder“ ( $H_2O + 2CH_4$ ) . . . . .	44
3.8	Januar- und Julimittel von $CH_4$ für das Jahre 2003 in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und als Differenz zu MIPAS/ENVISAT-Messdaten .	45
3.9	Januar- und Julimittel von $O_3$ des für das Jahr 2003 in der mittleren Atmosphäre, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und als Differenz zu MIPAS/ENVISAT-Messdaten .	47
3.10	Korrelation von $O_3$ zwischen ECHAM5/MESSy1 und MIPAS: Auswertung der Höhen 10 km bis 30 km, 30 km bis 50 km und 10 km bis 50 km . . . . .	48
3.11	Zeitserie der zonal gemittelten Ozonsäule von 2000 bis 2005 simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und gemessen mit TOMS . . . . .	49
3.12	Vergleich von $O_3$ und $CO$ von ECHAM5/MESSy1 und CARIBIC für den Lufthansaflug 121 . . . . .	52
3.13	Korrelation von $O_3$ mit $CO$ gemessen mit CARIBIC und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 für den Lufthansa-Flug 121 . . . . .	53
3.14	Vergleich von $O_3$ und $CO$ von ECHAM5/MESSy1 und CARIBIC für den Lufthansaflug 133 . . . . .	54
3.15	Korrelation von $O_3$ mit $CO$ gemessen mit CARIBIC und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 für den Lufthansa-Flug 133 . . . . .	55
4.1	Flugzeugmessung des Partikelvolumens für den 24. Januar 1989 im Vergleich mit Modellkalkulationen für das Wachstum verschiedener stratosphärischer Partikel . . . .	59
4.2	Massenanteile von $HNO_3$ und $H_2SO_4$ in flüssigen stratosphärischen Aerosolen in Abhängigkeit der Temperatur . . . . .	60
4.3	Massenanteile von $HNO_3$ , $H_2SO_4$ , $HCl$ , $HBr$ und $HOCl$ sowie Volumenänderung von flüssigen stratosphärischen Aerosolen in Abhängigkeit der Temperatur . . . . .	61
4.4	Stündliche Nukleationsraten von NAD in Abhängigkeit von der Temperatur bei Annahme einer Volumennukleation und einer Oberflächennukleation . . . . .	63
4.5	Auftreten von PSCs im Modell bei zwei unterschiedlichen Bildungsmechanismen in Abhängigkeit zur Temperatur . . . . .	64
4.6	Einteilung der NAT-Teilchen in 7 Grössenklassen nach Van den Broek, 2004 . . . . .	72
4.7	Programmablaufplan des überarbeiteten ECHAM5/MESSy1-Modul PSC . . . . .	74
4.8	Oberflächen der verschiedenen PSC-Typen pro Volumeneinheit im antarktischen Winter 2003 am Südpol in der Stratosphäre . . . . .	76
4.9	Geschwindigkeitskonstanten der Reaktion $N_2O_5 + H_2O$ berechnet für die Oberflächen der flüssigen Aerosole, NAT-Teilchen und Eisteilchen im antarktischen Winter 2003 in der Stratosphäre . . . . .	77
4.10	Mittlere Sedimentationsgeschwindigkeit der NAT-Partikel bei Einteilung in 7 Grössenklassen und 8 Grössenklassen . . . . .	79
4.11	Zeitserie der Temperatur auf 54 hPa (ca.20.5 km) für verschiedene Breitenkreise der hohen südhemisphärischen Breiten. . . . .	82

4.12	Entwicklung der Temperatur, $H_2O$ und $HNO_3$ auf 54 hPa (ca. 20.5 km) für die südpolaren Breiten südlich von $50^\circ$ und die Zeitperiode 15.05.04 bis 18.05.04 . . . . .	84
4.13	Wachstum der NAT-Teilchen über verschiedene Grössenklassen auf 54 hPa für die südpolaren Breiten und die Zeitperiode 15.05.2004 bis 18.05.2004 . . . . .	85
4.14	Zeitserien der NAT-Teilchen, dargestellt als $HNO_3$ in NAT in den Grössenklassen 1 bis 8 am Südpol für die Stratosphäre von April bis November 2004 . . . . .	86
4.15	Zeitserien des $HNO_3$ in NAT und der NAT-Anzahldichte für die Stratosphäre von April bis November 2004 . . . . .	87
4.16	Zeitserie der NAT-Radien, der Sedimentationsgeschwindigkeit, der $HNO_3$ -Änderung nach einem Zeitschritt und des $HNO_3$ -Mischungsverhältnisses am Südpol für die Stratosphäre von April bis November 2004 . . . . .	88
4.17	Zonal gemittelte Zeitserien der mittleren Anzahldichte, Radien und Oberflächendichte der Eisteilchen (neue Simulation) sowie festen Teilchen (alte Simulation) am Südpol für die Stratosphäre und den Zeitraum April bis November 2004 . . . . .	90
4.18	Zonal gemittelte Zeitserien der mittleren Anzahldichte, Radien und Oberflächendichte der NAT-Teilchen in der neuen Simulation am Südpol für die Stratosphäre und den Zeitraum April bis November 2004 . . . . .	91
4.19	Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte unterschiedlicher PSC-Typen am Nordpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2002/2003 . . . . .	93
4.20	Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von $HNO_{3(NAT)}$ , $HNO_{3(LIQ)}$ , $HNO_3$ und $ClO_x$ am Nordpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2002/2003 . . . . .	94
4.21	Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule (neue - alte Simulation) des nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2002/2003 nördlich von $45^\circ N$ . . . . .	95
4.22	Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte unterschiedlicher PSC-Typen am Nordpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2006/2007 . . . . .	97
4.23	Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von $HNO_{3(NAT)}$ , $HNO_{3(LIQ)}$ , $HNO_3$ und $ClO_x$ am Nordpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des arktischen nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2006/2007 . . . . .	98
4.24	Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule (neue - alte Simulation) des nordhemisphärischen Winters und Frühlings 2006/2007 nördlich von $45^\circ N$ . . . . .	99
4.25	Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte unterschiedlicher PSC-Typen am Südpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2003 . . . . .	101
4.26	Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von $HNO_{3(NAT)}$ , $HNO_{3(LIQ)}$ , $HNO_3$ und $ClO_x$ am Südpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2003 . . . . .	102
4.27	Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule (neue - alte Simulation) des südhemisphärischen Winters und Frühlings 2003 südlich von $45^\circ S$ . . . . .	103
4.28	Zonal gemittelte Zeitserien der Oberflächendichte unterschiedlicher PSC-Typen am Südpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2006 . . . . .	105

4.29 Zonal gemittelte Zeitserien der Differenzen (neue - alte Simulation) von  $HNO_3(NAT)$ ,  $HNO_3(LIQ)$ ,  $HNO_3$  und  $ClO_x$  am Südpol für die Stratosphäre und den Zeitraum des antarktischen südhemisphärischen Winters und Frühlings 2006 . . . . . 106

4.30 Differenz der zonal gemittelten Ozonsäule (neue - alte Simulation) des südhemisphärischen Winters und Frühlings 2006 südlich von 45°S . . . . . 107

4.31 Zeitserien der simulierten Ozonsäulen für den Zeitraum der antarktischen südhemisphärischen Winter und Frühlinge 2003 und 2006 im Vergleich mit TOMS/OMI . . . 109

4.32 Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 23.Mai 2003 gemessen mit MIPAS/ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 . . . . . 111

4.33 Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 5.Juni 2003 gemessen mit MIPAS/ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 . . . . . 112

4.34 Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 12.Juni 2003 gemessen mit MIPAS/ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 . . . . . 113

4.35 Verteilung der PSC-Kenngrößen in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 21 km bzw. 54 hPa für den 15.Juni 2003 gemessen mit MIPAS/ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 . . . . . 114

4.36 Vergleich der PSC-Bestandteile in den nördlichen polaren Breiten für ca. 20.5 km Höhe im Zeitraum von November 2002 bis April 2003 gemessen mit MIPAS/ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/ MESSy1 mit neuer PSC-Parameterisierung. . . . . 116

4.37 Vergleich der PSC-Bestandteile in den nördlichen polaren Breiten für ca. 20.5 km Höhe im Zeitraum von November 2006 bis April 2007 gemessen mit MIPAS/ENVISAT und simuliert mit ECHAM5/ MESSy1 mit neuer PSC-Parameterisierung. . . . . 117

4.38 Vergleich der PSC-Bestandteile in den südlichen polaren Breiten für ca. 20.5 km Höhe im Zeitraum von Mai bis Oktober 2003, gemessen mit MIPAS/ENVISAT, thermodynamisch simuliert mit ECMWF-Temperaturen und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 mit neuer PSC-Parameterisierung. . . . . 119

4.39 Vergleich der PSC-Bestandteile in den südlichen polaren Breiten für ca. 20.5 km Höhe im Zeitraum von Mai bis Oktober 2006, gemessen mit MIPAS/ENVISAT, thermodynamisch simuliert mit ECMWF-Temperaturen und simuliert mit ECHAM5/MESSy1 mit neuer PSC-Parameterisierung. . . . . 121

4.40 Verteilung der PSC-Bestandteile in den südlichen polaren Breiten in einer Höhe von 20.5 km für die Tage 16. Mai, 24. Mai, 29. Mai und 24. Juli 2006 gemessen mit MIPAS/ENVISAT . . . . . 125

4.41 Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$ ,  $HNO_3(NAT)$  und  $HNO_3$  am 16. Mai 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura . . . . . 126

4.42 Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$ ,  $HNO_3(NAT)$  und  $HNO_3$  am 24. Mai 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura . . . . . 127

4.43 Verteilung des  $HNO_3(LIQ)$ ,  $HNO_3(NAT)$  und  $HNO_3$  am 29. Mai 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des  $HNO_3$  mit Messdaten von MLS auf Aura . . . . . 128

---

4.44	Verteilung des $HNO_{3(LIQ)}$ , $HNO_{3(NAT)}$ und $HNO_3$ am 24. Juli 2006 in 21.6 km, simuliert mit ECHAM5/MESSy1 und Vergleich des $HNO_3$ mit Messdaten von MLS auf Aura . . . . .	129
F.1	NAT-Kondensationstemperatur auf 54 hPa in Abhängigkeit der Mischungsverhältnisse von $H_2O$ und $HNO_3$ . . . . .	162

## Anhang C

### Tabellenverzeichnis

2.1	Nudging-Parameter für die meteorologischen prognostischen Variablen . . . . .	13
2.2	Grenzen der potentiellen Vorticity zur Definition des antarktischen Wirbels nach Woyke [1999] . . . . .	19
4.1	Verwendete Reaktionswahrscheinlichkeiten ( $\gamma$ ) in ECHAM5/MESSy1 . . . . .	71
4.2	Einteilung der NAT-Teilchen in 8 Grössenklassen in ECHAM5/MESSy1 . . . . .	73
D.1	Hybridkoeffizienten $A, B$ und Druckverteilung auf Flächen $k=1$ bis 40 der Gitterboxen ( $p_k$ ) und auf Modellflächen $L=1$ bis 39 ( $p_L$ ), sowie entsprechende Druckhöhe ( $z$ ) für den Oberflächendruck $p_{bot}=1013.25$ hPa . . . . .	160

## D Hybridkoeffizienten und Druck bei 39 Modellschichten

k-1 bzw. L	A(k)	B(k)	$p_k$ in hPa	$p_L$ in hPa	z [m]
0	0.00	0	0.0000		
1	1.99	0	0.0199	0.0099	80721
2	5.10	0	0.0510	0.0354	71827
3	10.51	0	0.1051	0.0780	66300
4	18.75	0	0.1876	0.1463	61899
5	30.39	0	0.3039	0.2457	58271
6	47.13	0	0.4713	0.3876	55081
7	71.57	0	0.7157	0.5935	52099
8	106.54	0	1.0654	0.8905	49258
9	155.63	0	1.5563	1.3109	46552
10	223.27	0	2.2327	1.8945	43974
11	315.90	0	3.1590	2.6959	41504
12	442.45	0	4.4246	3.7918	39117
13	613.66	0	6.1366	5.2806	36798
14	843.05	0	8.4305	7.2836	34547
15	1147.51	0	11.4751	9.9528	32361
16	1547.97	0	15.4797	13.4774	30239
17	2070.05	0	20.7005	18.0901	28179
18	2744.88	0	27.4488	24.0747	26178
19	3609.92	0	36.0992	31.7740	24236
20	4709.83	0	47.0983	41.5987	22350
21	6097.46	0	60.9746	54.0364	20519
22	7834.77	0	78.3477	69.6611	18741
23	9959.49	0.00034	99.9383	89.1430	17015
24	12317.67	0.00336	126.5784	113.2584	15339
25	14597.68	0.01307	159.2200	142.8992	13711
26	16441.67	0.03408	198.9454	179.0827	12131
27	17538.87	0.07065	246.9746	222.9600	10597
28	17708.88	0.12592	304.6739	275.8243	9108
29	16970.06	0.20120	373.5618	339.1179	7662
30	15587.90	0.29552	455.3142	414.4380	6258
31	13621.46	0.40541	546.9955	501.1549	4928
32	11101.56	0.52493	642.9042	594.9498	3727
33	8127.16	0.64611	735.9405	689.4223	2695
34	5125.14	0.75970	821.0158	778.4782	1845
35	2549.97	0.85644	893.2851	857.1505	1171
36	783.20	0.92875	948.8847	921.0849	668
37	0.00	0.97299	985.8773	967.3810	324
38	0.00	0.99228	1005.4292	995.6532	123
39	0.00	1.00000	1013.2500	1009.3396	27

Tabelle D.1: Hybridkoeffizienten  $A, B$  und Druckverteilung auf Flächen  $k=1$  bis 40 der Gitterboxen ( $p_k$  in hPa) und auf Modellflächen  $L=1$  bis 39 ( $p_L$  in hPa), sowie entsprechende Druckhöhe ( $z$  in m) für den Oberflächendruck  $p_{bot}=1013.25$  hPa. Berechnung der Druckhöhe mit:  $z = -7000 \ln \left( \frac{p_L}{p_{bot}} \right)$ .

## E PSC Submodel Namelist

Die folgende Liste gibt die „PSC Submodel Namelist“ (psc.nml) für das ECHAM5/MESSy1-Modul PSC wieder. Die Einstellungen entsprechen der durchgeführten ECHAM5/MESSy1-Simulation mit neuer NAT-Parametrisierung, wie sie in Kapitel 4 beschrieben ist.

**psc.nml:**

### &CTRL

$KinPar = T$	! Schaltet neue NAT-Parametrisierung ein/aus (True/False)
$LAdvectIceNat = F$	! Einfluss der Advektion auf die Bildung von Eis/NAT? (T/F)
$LHomNucNAT = F$	! Homogene NAT-Nukleation? (T/F)
	! mit $KinPar = T$ nicht relevant
$NatFormThreshold = -3.0$	! Unterkühlung in K für Kondensation von NAT-Partikeln
$minKhet = 0.0$	! Minimale Reaktionsrate für heterogene Reaktionen in $\frac{cm^3}{s}$
$maxKhet = 1.0e^{-13}$	! Maximale Reaktionsrate für heterogene Reaktionen in $\frac{cm^3}{s}$
$SupSatIce = 1.5$	! Unterkühlung in K für Kondensation von Eispartikeln
$r_{min} = 1.0e^{-7}$	! mit $KinPar = F$ : minimaler Radius der festen Teilchen ( $r_{solid}$ ) in m
	! mit $KinPar = T$ : minimaler der Eispartikel ( $r_{ice}$ ) in m
	! (wird in Gleichung 4.10 (Abschnitt 4.3.1) verwendet)
$N_{max} = 25000$	! mit $KinPar = F$ : Maximale Anzahldichte der festen Teilchen in $\frac{1}{m^3}$
	! mit $KinPar = T$ : Maximale Anzahldichte der Eispartikel in $\frac{1}{m^3}$
	! (siehe Abschnitt 4.3.1)
$SedScheme = 1$	! Auswahl des Sedimentation Schemas:
	! 1 = Einfaches Aufwindschema
	! 2 = Advektionsschema nach Walcek [2000]
	! 3 = Trapezoid-Schema
	! else = keine Sedimentation

### &CPL

$LCalcChem = T$	! Sollen Reaktionsraten in PSC-Modul kalkuliert werden? (T/F)
$TempShift = 0$	! Interne Temperaturverschiebung im PSC-Modul in K

## F NAT-Kondensationstemperatur auf 54 hPa in Abhängigkeit der Mischungsverhältnisse von $HNO_3$ und $H_2O$

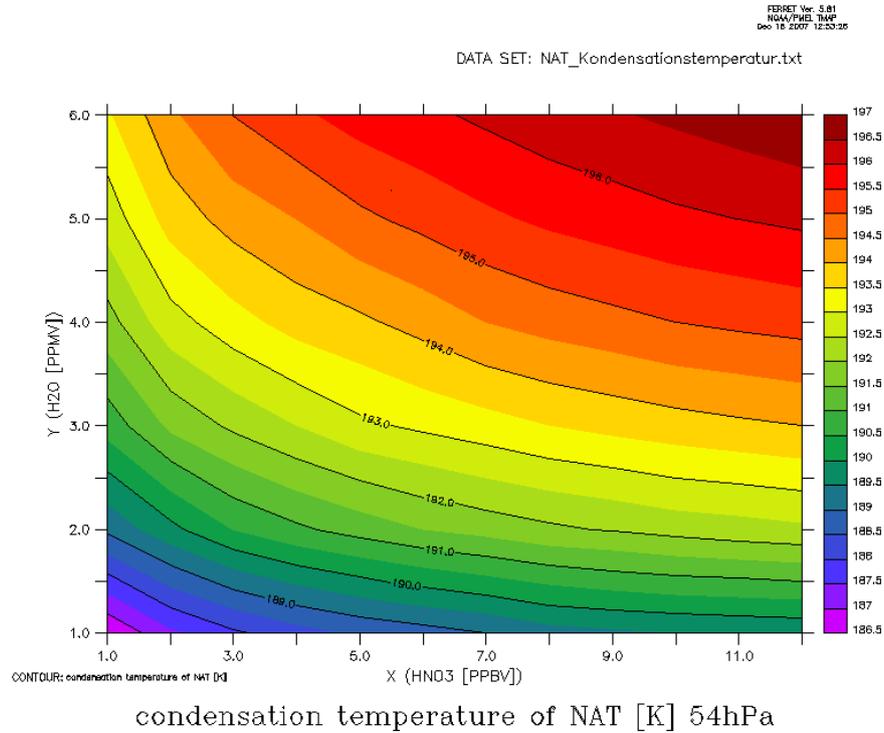


Abbildung F.1: NAT-Kondensationstemperatur auf 54 hPa in Abhängigkeit der Mischungsverhältnisse von  $H_2O$  (in ppmv) und  $HNO_3$  (in ppbv)

## Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei allen Personen bedanken, welche mir bei der Anfertigung dieser Doktorarbeit geholfen haben.

Prof. Dr. Herbert Fischer danke ich sehr herzlich für den Erhalt der Promotionsstelle und für die fortlaufende vor allem auch berufliche Unterstützung. Zusätzlich bedanke ich mich bei ihm für die durchgeführten Korrekturen, die inhaltlichen und formellen Ratschläge und die Bewertung dieser Doktorarbeit.

Priv.-Doz. Michael Höpfner danke ich für die freundliche Übernahme des Korreferates, die Bereitstellung der von ihm ausgewerteten MIPAS-Daten und seine Hilfe bezüglich derer Bearbeitung, sowie für die durchgeführten Korrekturen und die Bewertung dieser Doktorarbeit.

Bei Dr. Roland Ruhnke möchte ich mich bedanken für die sehr gute Betreuung, die durchgeführten Korrekturen, die konstruktive Kritik und die sonstige Hilfsbereitschaft. Zusätzlich möchte ich mich auch bei ihm für die berufliche Unterstützung bedanken.

Der ECHAM5/MESSy1-Arbeitsgruppe des Max Planck Institutes für Chemie in Mainz möchte ich sehr herzlich danken, dass ich das Modell ECHAM5/MESSy1 für die durchgeführten Studien dieser Doktorarbeit verwenden durfte. Insbesondere möchte ich dabei Dr. Patrick Jöckel für die inhaltlichen Ratschläge bezüglich des Modells und anderen Fragestellungen bedanken. Desweiteren bedanke ich mich bei Dr. Benedikt Steil für die Bereitstellung seiner privaten Auswerteroutinen bezüglich der Vergleiche zwischen MIPAS- und ECHAM5/MESSy1-Daten. Bei Dr. Christoph Brühl, Dr. Mark Lawrence, Dr. Andreas Baumgärtner und Dr. Peter Hoor bedanke ich mich für Ihre Hilfsbereitschaft.

Bedanken möchte ich mich auch bei den (teilweise ehemaligen) Mitgliedern der Modellierungsgruppe hier am Institut Dr. Thomas Reddman, Dr. Wolfgang Kouker, Stefan Versick, Dr. Sabine Mikuteit, Dr. Sven Gabriel, Prof. Dr. Roland Uhl und Michael Wiehle für die erhaltene Unterstützung.

Meinen Eltern Ursula Kirner und Willi Kirner, sowie meinem Bruder Carsten Kirner möchte ich für die ständige persönliche Unterstützung während meiner Promotionszeit danken.

Mein persönlicher Dank gilt natürlich auch meiner Frau Marianne Wisser und meine beiden Kindern Fynn Wisser und Yannuk Wisser, welche in meinem Leben einen besonderen Platz einnehmen.