

# **Modellstudien zur Untersuchung des Einflusses solarer Prozesse auf die mittlere Atmosphäre**

Zur Erlangung des akademischen Grades eines  
Doktors der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

bei der Fakultät für Physik  
des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte

DISSERTATION

von

**Dipl.-Phys. Holger Nieder**

aus Karlsruhe

Datum der mündlichen Prüfung: 8.5.2015  
Referent: Prof. Dr. Johannes Orphal  
Korreferent: Priv.-Doz. Dr. Michael Höpfner

Datum der Druckgenehmigung: 25.9.2015



# Kurzfassung

Ziel dieser Arbeit ist es, einen Beitrag zur Untersuchung des Einflusses der solaren Variabilität auf die Atmosphäre zu leisten. Übergeordnete Fragestellung ist der Einfluss solarer Variabilität auf Ozon, da Ozon aufgrund der Absorption von Strahlung von großer Bedeutung für das thermische Gleichgewicht und damit auch für die Dynamik der Atmosphäre ist.

In bisherigen Studien (Zusammenfassung z.B. in Sinnhuber *et al.* (2012)) wurde gezeigt, dass Teilchenniederschlag und kurzwellige Sonnenstrahlung ( $\lambda \lesssim 105 \text{ nm}$ ) die Bildung von Stickstoffoxiden ( $\text{NO}_x = \text{NO}, \text{NO}_2$ ) und Wasserstoffoxiden ( $\text{HO}_x = \text{OH}, \text{HO}_2$ ) in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre (dort v. A.  $\text{NO}_x$ ) verursachen. Diese Stoffe können Ozon katalytisch abbauen. Insbesondere kann  $\text{NO}_x$  in polaren Breiten bis in die Stratosphäre heruntertransportiert werden, wo sich die größten Ozonvorkommen befinden.

In dieser Arbeit wird die Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Teilchenniederschlag und Photoionisation quantifiziert und eine Verbesserung gegenüber bisherigen einfachen Parametrisierungen der Produktion entwickelt (Kapitel 3). Diese Neuentwicklung wird in ein bestehendes dreidimensionales Chemietransportmodell integriert und ausführlich getestet sowie zu Untersuchungen der Einzelbeiträge verschiedener Quellen zur  $\text{NO}_x$ -Produktion genutzt (Kapitel 4). Ein Vergleich der Ergebnisse des so weiterentwickelten Chemietransportmodells mit Messergebnissen zeigt generell gute Übereinstimmung von  $\text{NO}_x$  und  $\text{CO}$ , mit begrenzten  $\text{NO}_x$ -Defiziten in der unteren Thermosphäre und  $\text{CO}$ -Überschuss im Sommer (Kapitel 5). Auf dieser Grundlage wird Ozonabbau durch  $\text{NO}_x$  und  $\text{HO}_x$  in weiterführenden Modellstudien quantitativ untersucht (Kapitel 6). Dabei werden Beiträge von Teilcheneinfluss und kurzweiliger Sonnenstrahlung sowohl gemeinsam als auch getrennt betrachtet. Mit großen solaren Protonenereignissen wird lokaler, temporärer Ozonabbau von über 80% in der Mesosphäre und ein anhaltender Ozonabbau von bis zu 5% in der südlichen polaren Stratosphäre assoziiert. Mit absinkendem  $\text{NO}_x$  in der Südhemisphäre sind mesosphärische Ozonverluste von bis zu 30% und stratosphärische Ozonverluste von bis zu 20% verknüpft, wovon noch etwa 1% Reduktion in der mittleren Stratosphäre dauerhaft bestehen bleibt. Die Variation auf langen Zeitskalen zeigt eine Modulation der Ozonvorkommen mit dem solaren Zyklus, wobei 2% bis 4% Veränderung durch die UV-Variation isoliert werden können.

Die im Rahmen dieser Arbeit erzielten Ergebnisse konnten zu mehreren Veröffentlichungen beitragen. Studien zur Bildung von  $\text{NO}_x$  sind in Nieder *et al.* (2014) ausführlich beschrieben. Untersuchungen der Ionenchemie sind bereits in Sinnhuber *et al.* (2012) eingeflossen. Darüberhinaus konnten Ergebnisse des dreidimensionalen Chemietransportmodells bereits für Vergleiche in Fytterer *et al.* (2015) herangezogen werden und einige Ergebnisse des eindimensionalen Chemiemodells in Friederich *et al.* (2013) verwendet werden.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Sonne und Erde</b>	<b>1</b>
1.1	Die Sonne . . . . .	1
1.2	Erde und erdnaheer Weltraum . . . . .	8
1.3	Wechselwirkung von Teilchen und Strahlung mit Materie . . . . .	14
<b>2</b>	<b>Modellbeschreibung</b>	<b>19</b>
2.1	Ionenchemiemodell . . . . .	19
2.2	Eindimensionales Chemiemodell . . . . .	21
2.3	Dreidimensionales Chemietransportmodell . . . . .	22
2.4	Numerische Integration . . . . .	31
2.5	AIMOS Ionisationsraten . . . . .	32
<b>3</b>	<b>Produktion von NO<sub>x</sub> durch Teilchen- und Strahlungseinfluss</b>	<b>35</b>
3.1	Produktion von NO <sub>x</sub> und Ionenchemie . . . . .	35
3.2	Berücksichtigung von Photoionisation . . . . .	45
3.3	1d-Modellstudien zur parametrisierten Produktion von NO <sub>x</sub> . . . . .	49
<b>4</b>	<b>Modellstudien mit dem dreidimensionalen Chemietransportmodell</b>	<b>55</b>
4.1	Einzelbeiträge zur Produktion von NO <sub>x</sub> . . . . .	57
4.2	Quantifizierung des Einflusses von Photoionisation . . . . .	59
4.3	Photolyseraten aus variablem Sonnenspektrum . . . . .	62
4.4	Ozon im 3dCTM . . . . .	64
<b>5</b>	<b>Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen</b>	<b>67</b>
5.1	Fallstudie: HEPPA Winter 2003/2004 . . . . .	67
5.2	Fallstudie: HEPPA II Winter 2008/2009 . . . . .	71
5.3	Langzeitvergleich Modell/Messungen . . . . .	73
<b>6</b>	<b>Modellstudien zur Untersuchung des Einflusses solarer Variabilität auf die Erdatmosphäre</b>	<b>79</b>
6.1	Ozonabbau durch NO <sub>x</sub> und HO <sub>x</sub> . . . . .	79
6.2	Einzelbeiträge zum Ozonabbau . . . . .	90
6.3	Variation von Teilchen- und Strahlungseinfluss auf langen Zeitskalen . . . . .	93
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>101</b>



# 1 Sonne und Erde

Die Sonne ist als Zentralgestirn unseres Sonnensystems der Energielieferant für nahezu alle Prozesse, die sich auf der Erde ereignen. Photosynthese und Pflanzenwachstum, welches die Grundlage für menschliches Leben bildet, wird genauso von der Sonne angetrieben wie atmosphärische Prozesse und viele Vorgänge in den Ozeanen. Erwärmung von Luft in verschiedenen Höhenbereichen, Erwärmung des Bodens, Verdunstung und daraus resultierende Strömungen und Kreisläufe werden durch den Energieeintrag der Sonnenstrahlung ermöglicht.

Die von der Sonnenstrahlung angetriebenen atmosphärischen Prozesse unterliegen Veränderungen durch natürliche Schwankungen der einfallenden Sonnenstrahlung. Diese sind auf sehr unterschiedlichen Zeitskalen zu beobachten und reichen von täglichen Tag-Nacht-Wechseln über jahreszeitliche Veränderungen und mehrjährige Zyklen der Sonnenaktivität bis zu den Milankovich-Zyklen, die die aufgrund periodischer Veränderungen der Erdbahn und der Erdrotationsachse auf Zeitskalen von mehreren tausend Jahren veränderliche Sonneneinstrahlung beschreiben. Neben der solaren Strahlungsleistung, die die Erde erreicht, sind auch die Zusammensetzung des Sonnenspektrums und der Sonnenwind von Bedeutung für die Atmosphäre. Im Ultraviolettbereich sind die Veränderungen der Sonnenstrahlung mit dem solaren Zyklus bedeutend größer als die der Gesamtstrahlungsleistung (Gray *et al.*, 2010), und mit dem Sonnenwind ändert sich der Fluss energetischer Teilchen, die die Atmosphäre erreichen. Diese beiden Einflüsse werden in dieser Arbeit genauer untersucht.

## 1.1 Die Sonne

Die Sonne ist der uns am nächsten gelegene Stern und nicht nur für das menschliche Leben unverzichtbar, sondern außerdem für Astronomen und Astrophysiker von großem wissenschaftlichen Interesse. Um die in dieser Arbeit vorgestellten Einflüsse der solaren Variabilität auf die Erdatmosphäre möglichst umfassend kausal zu verstehen, sollen in diesem Kapitel zunächst wichtige Merkmale der Sonne erläutert werden. Ausgehend vom Aufbau der Sonne (Abschnitt 1.1.1) können die Kernfusion im Inneren (Abschnitt 1.1.2) und die Abgabe der dadurch freiwerdenden Energie durch Strahlung, Masseneruptionen (Abschnitt 1.1.3) und Sonnenwind (Abschnitt 1.1.4) in Zusammenhänge eingeordnet werden.

Die Sonne besteht zu etwa drei Vierteln aus Wasserstoff und einem Viertel aus Helium. Durch deren Stoffmasse wird Gravitation in Richtung des Zentrums hervorgerufen. Erreicht eine solche Materieansammlung eine kritische Masse von mindestens etwa

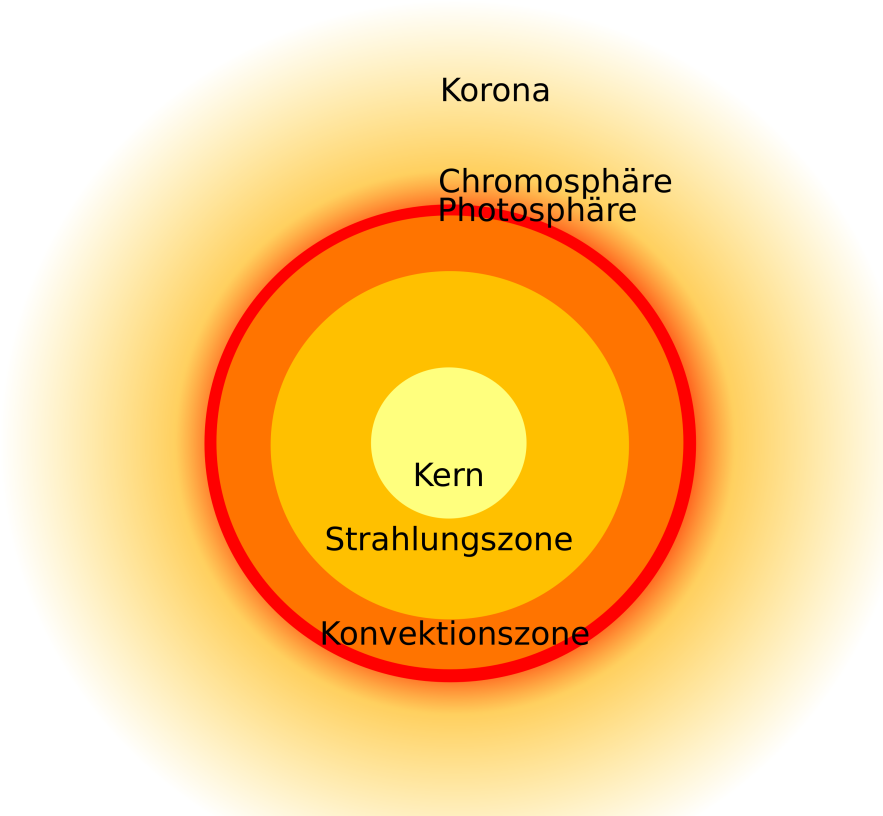


Abbildung 1.1: Schematisch dargestellter Aufbau der Sonne. Die Farbgebung der Bereiche ist an die dort vorherrschenden Temperaturen angelehnt und die Ausdehnung der Bereiche ist qualitativ dargestellt. Die Konvektionszone umfasst auch die Photosphäre. Beschreibung im Text.

0,07 Sonnenmassen, so wird durch den Gravitationsdruck und die durch die Kontraktion freiwerdende potentielle Energie Wasserstofffusion aktiviert. Hierdurch unterscheiden sich die Sonne und andere Sterne von weniger massereichen Gasplaneten. Der durch die Temperaturzunahme entstehende Gasdruck bildet dann ein Gleichgewicht mit dem Gravitationsdruck und stabilisiert den Stern für die Dauer der Wasserstofffusion. Die Sonne befindet sich gerade in diesem Abschnitt ihrer Entwicklung. Die Dauer der Wasserstofffusion beträgt für Sterne mit einer Sonnenmasse etwa 10 Milliarden Jahre (von denen sich die Sonne bereits 4,6 Milliarden Jahre in diesem Zustand befindet). Masseärmere Hauptreihensterne haben eine längere Lebensdauer, massereichere eine kürzere Lebensdauer.

### 1.1.1 Aufbau der Sonne

Bei der Entstehung eines Sterns, so auch bei der Sonne, wird die Masse durch ihre eigene Gravitation zu einem Zentrum hin verdichtet, wo es zur Fusion von Wasserstoff kommt.



Es wird ein Gleichgewicht erreicht zwischen der nach innen gerichteten Gravitationskraft und dem nach außen gerichteten Gasdruck der heißen Materie. Der Strahlungsdruck trägt zu einem geringen Teil zu den nach außen wirkenden Kräften bei. Die thermonuklear aktive Region wird als Kern bezeichnet. Ihre Größe ergibt sich aus der Gesamtmasse des Sterns so, dass ein Gleichgewicht zwischen Kontraktion und Expansion erreicht wird. Durch die aus der Fusion frei werdende Energie werden im Kern der Sonne Temperaturen von mehreren Millionen Kelvin erreicht.

Eine schematische Abbildung des Aufbaus der Sonne ist in Abbildung 1.1 gezeigt.

Im Gleichgewichtszustand ist die Temperatur des Kerns stabil. Die frei werdende Energie wird als Strahlung abgegeben und durch ständige Absorption und Reemission auch in weiter außen liegende Schichten der Sonne transportiert. Aufgrund der Dichte haben die Strahlungsquanten eine geringe freie Weglänge in der Größenordnung von einigen Atomdurchmessern; die Zeit, die der Energietransport vom Kern bis zur Oberfläche benötigt, beträgt deshalb mehrere Millionen Jahre (Stix, 2002). Der Bereich der Sonne, in dem keine Kernfusion mit nennenswerter Leistung mehr abläuft, und in dem Energie ausschließlich durch Strahlung transportiert wird, wird als Strahlungszone bezeichnet.

Mit abnehmender Dichte wird in weiter außen liegenden Bereichen Konvektion möglich. Der Transport von Energie durch Konvektion ist erheblich schneller als jener durch Strahlung und die Konvektionszone gleicht Temperaturschwankungen an ihrem äußeren Rand, beispielsweise durch wechselnde Magnetfelder, innerhalb von wenigen Tagen aus. Die Konvektionszone transportiert Energie also nahezu instantan, zumindest verglichen mit den zeitlichen Maßstäben des Strahlungstransports (Foukal, 2013).

Noch zur Konvektionszone gehört die Photosphäre mit einer Dicke von einigen hundert Kilometern. Sie ist die innerste Schicht der Sonne, von der aus Licht entweichen kann, wodurch sie zur beobachteten Oberfläche der Sonne wird. Darüber liegt die Chromosphäre, die nur zu einem kleinen Teil noch zur Konvektionszone gehört; in ihr liegt das Temperaturminimum der Sonne mit etwa 4100 K. Die sich daran anschließende Korona zeichnet sich durch weiter abnehmende Dichte aus, sie reicht ein bis zwei Sonnenradien (definiert über die Photosphäre als sichtbare Oberfläche) weit in den Raum und kann während einer Sonnenfinsternis beobachtet werden.

### 1.1.2 Kernfusion in der Sonne

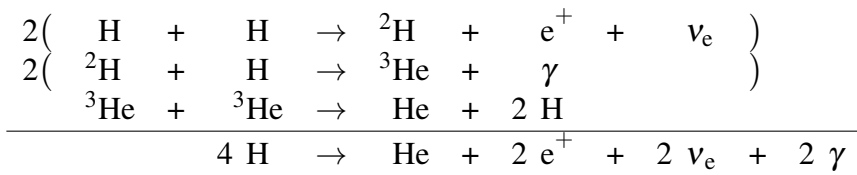
Die von der Sonne abgegebene Strahlungsleistung  $P$  kann in guter Näherung aus ihrer Oberfläche  $A$  und der Oberflächentemperatur  $T$  mit Hilfe des Stefan-Boltzmann-Gesetzes

$$P = \sigma \cdot A \cdot T^4 \quad (1.1)$$

bestimmt werden, wobei  $\sigma = 5,670 \cdot 10^{-8} \frac{\text{W}}{\text{m}^2\text{K}^4}$  die Stefan-Boltzmann-Konstante bezeichnet. Nimmt man an, dass die Sonne einem perfekten schwarzen Strahler entspricht und das Gesetz damit gilt, erhält man mit einer Oberfläche von etwa  $6,09 \cdot 10^{18} \text{ m}^2$  und einer mittleren Oberflächentemperatur von etwa 5778 K (Williams, 2013) eine Strahlungsleistung von etwa

$$P = 3,85 \cdot 10^{26} \frac{\text{J}}{\text{s}}. \quad (1.2)$$

Tabelle 1.1: Proton-Proton-Kette der Wasserstofffusion in der Sonne



Um eine Abstrahlung dieser Größenordnung über eine Zeit von mehreren Milliarden Jahren, etwa von der Entstehung des Sonnensystems bis heute, aufrecht zu erhalten, müssen in der Sonne große Mengen an Energie zur Verfügung stehen und kontinuierlich in Wärme umgewandelt werden. Versuche, diese freiwerdende Energie allein durch den Gravitationskollaps der Sonne zu beschreiben, scheitern. Es gilt heute vielmehr als unstrittig, dass diese Energie durch Fusionsprozesse des in der Sonne hauptsächlich (ca. 72% der Masse) enthaltenen Wasserstoffs zur Verfügung gestellt wird (Foukal, 2013; Kallenrode, 2010). Den größten Anteil an der freiwerdenden Energie hat die sogenannte Proton-Proton-Reaktionskette, die in Tabelle 1.1 zusammengefasst ist. Die Startreaktion, die gleichzeitig auch den langsamsten Teil der Reaktionskette darstellt, ist die Kollision zweier Protonen mit gleichzeitigem Beta-plus-Zerfall; durch Protoneneinfang reagiert das Deuterium weiter zu  ${}^3\text{He}$ . Abgeschlossen wird die Reaktionskette durch Verschmelzen zweier  ${}^3\text{He}$ -Kerne zu  ${}^4\text{He}$  und zwei Protonen. Effektiv werden in dieser Reaktionskette also vier Protonen zu  ${}^4\text{He}$  verschmolzen, wobei außerdem zwei Positronen, zwei Elektronenneutrinos und zusätzliche Gammaquanten entstehen. Insgesamt werden für jeden Formelumsatz 26,2 MeV an Wärmeenergie frei, da die Masse des  ${}^4\text{He}$ -Kerns geringer ist als die vierfache Masse des Protons.

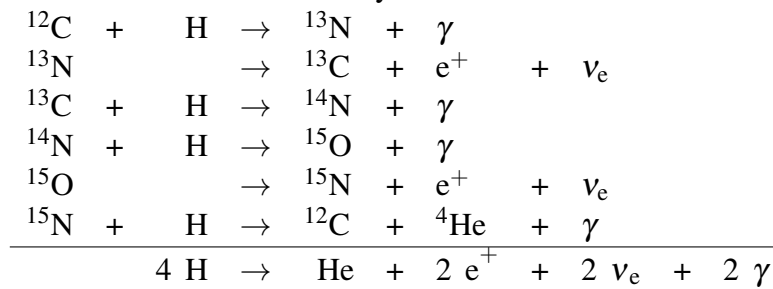
Es ist möglich, dass die Proton-Proton-Reaktionskette nicht mit der Reaktion zweier  ${}^3\text{He}$ -Kerne endet, sondern  ${}^3\text{He}$  mit  ${}^4\text{He}$  zu Beryllium weiterreagiert, welches entweder durch Elektroneneinfang mit Lithium ( ${}^7\text{Li}$ ) als Zwischenprodukt zu zwei  ${}^4\text{He}$  weiterreagiert, oder durch Protoneneinfang mit Bor ( ${}^8\text{B}$ ) als Zwischenprodukt ebenfalls zu zwei  ${}^4\text{He}$ . Diese möglichen Schlussreaktionen sind zwar für die Energiebilanz nur wenig wichtig, es entstehen beim Zerfall von Bor jedoch Neutrinos mit kinetischer Energie bis zu über 10 MeV, die schon durch frühe Neutrinoexperimente wie Homestake nachgewiesen werden konnten (Foukal, 2013; Davis *et al.*, 1968).

Die Proton-Proton-Reaktionskette liefert nahezu die gesamte der Fusionsleistung der Sonne. Zu einem geringen Teil wird Wasserstoff in einem katalytischen Zyklus mit  ${}^{12}\text{C}$  als Katalysator zu Helium umgesetzt (Bethe, 1939). Durch mehrmaligen Protoneneinfang und zwei Beta-Plus-Zerfälle geht aus dem Reaktionskreislauf ein Heliumkern hervor. Die Einzelreaktionen sind in Tabelle 1.2 aufgeführt.

### 1.1.3 Protuberanzen, Massenauswürfe

Die durch die Fusionsprozesse bereitgestellte Energie wird über Strahlungstransport und Konvektion vom thermonuklear aktiven Kern in die äußeren Schichten der Sonne transportiert (siehe Abschnitt 1.1.1). In der Korona können Strukturen, die durch das Magnet-

Tabelle 1.2: Kohlenstoff-Stickstoff-Zyklus der Wasserstofffusion in der Sonne



feld der Sonne geformt werden, beobachtet werden. Hierzu zählen insbesondere Protuberanzen, die als in der Chromosphäre verankerte Plasmabögen erscheinen, sofern bei der Beobachtung die wesentlich hellere Photosphäre ausgeblendet werden kann (z.B. mit einem Koronografen). Die Plasmabögen werden durch Magnetfelder in ihrer Form gehalten, die die Plasmabögen einschließen oder stützen (siehe Abbildung 1.2).

Es ist möglich, dass die im die Protuberanzen umgebenden Magnetfeld gespeicherte Energie durch Rekonnexion von gegensätzlich verlaufenden Feldlinien plötzlich freigegeben wird (Abbildung 1.2, rechts). Welche Mechanismen diesen Vorgang auslösen, wird noch diskutiert, jedoch scheinen externe Ursachen, die nicht direkt in der Protuberanz bzw. dem damit assoziierten Magnetfeld liegen, wahrscheinlich (Foukal, 2013). Bei einer solchen Energiefreisetzung können Flares entstehen, bei denen das Plasma im Protuberanzbogen aufgeheizt wird und meßbare Mengen an kurzweiliger elektromagnetischer Strahlung abgibt (Extrem UV und Röntgenstrahlen). Es ist dabei zusätzlich möglich, dass ein Teil des magnetischen Flussschlauchs mit dem darin enthaltenen Plasma abgetrennt wird und durch die freiwerdende Energie in den Weltraum geschossen wird. In diesem Fall wird das Ereignis als Koronaler Massenauswurf bezeichnet.

Für die Form des Magnetfeldes, welches die Form von Protuberanzen gegenüber der Schwerkraft erhält, werden zwei Modelle diskutiert (Foukal, 2013). Im K-S-Modell (Kippenhahn und Schlüter, 1957) wird davon ausgegangen, dass alle Magnetfeldlinien als einfache Bögen über die Photosphäre herausragen; das Plasma der Protuberanz bildet einen hierzu orthogonalen Bogen und biegt die Magnetfeldlinien durch die Gravitationskraft in Richtung der Sonne, es stellt sich ein Gleichgewicht ein. Im R-K-Modell (Raadu und Kuperus, 1973; Kuperus und Raadu, 1974) wird ein magnetischer Flussschlauch mit oberhalb der Chromosphäre in sich geschlossenen magnetischen Feldlinien angenommen. Hierbei befindet sich direkt unter der Protuberanz ein Kreuzungspunkt, an dem Magnetfeldlinien entgegengesetzter Richtung räumlich beieinanderliegen. Dieser Kreuzungspunkt kann schon durch geringe Störungen Ausgangspunkt von Rekonnexionen werden, die zur Freisetzung der im Magnetfeld gespeicherten Energie und damit zu Flares oder Koronalen Massenauswürfen führen können. Die Freisetzung von Energie ist im R-K-Modell mit dem bereits bestehenden Rekonnexionspunkt erklärbar; im K-S-Modell muss sich ein solcher Ort erst durch äußere Einflüsse bilden, bevor eine Flare entstehen kann. Die Konfigurationen sind in Abbildung 1.2 schematisch dargestellt.

Aufgrund der sich nur langsam entwickelnden Modelle der Entstehung von Flares werden diese Phänomene über die beobachtbare emittierte Strahlung charakterisiert. Die in Flares

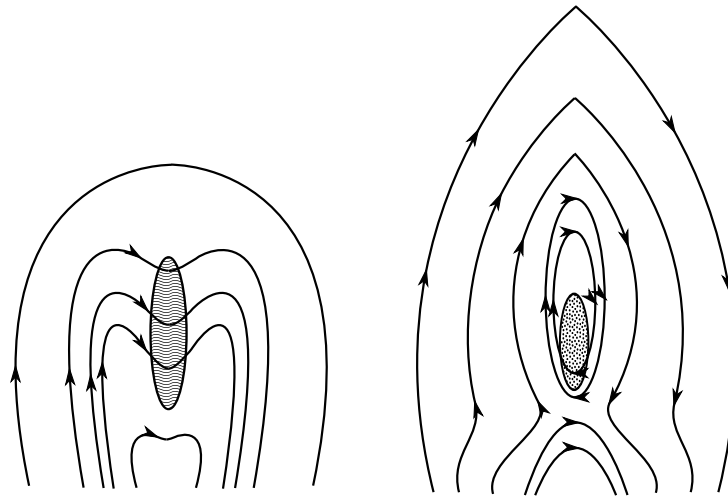


Abbildung 1.2: Mögliche Konfigurationen von Magnetfeldlinien und Plasma vor dem Auslösen von Flares. Links K-S-Modell, rechts R-K-Modell. Die Magnetfeldlinien sind mit Richtungspfeilen versehen, um den Kreuzungspunkt in der R-K-Konfiguration deutlich zu machen. Die eingefärbten Bereiche enthalten das durch die Magnetfeldlinien geformte Plasma. Abbildung nach Kallenrode (2010).

erreichten Temperaturen haben besonders leicht zu beobachtende Emission im extremen UV sowie im Röntgen- und Gammabereich zur Folge. Im Wellenlängenbereich sichtbaren Lichts erreichen Flares typischerweise nur Strahlungsleistungen von weniger als einem Prozent der dauerhaften photosphärischen Abstrahlung, was ihre Beobachtung in diesem Wellenlängenbereich erschwert. Typischerweise können Flares für einige Minuten im harten Röntgen- und im Gammabereich beobachtet werden; bei größeren Ereignissen schließt sich daran eine längere Abklingphase an, in der weiterhin erhöhte Emission im Wellenlängenbereich zwischen normalem UV und harten Röntgenstrahlen beobachtet werden kann (Kallenrode, 2010).

Koronale Massenauswürfe sind besonders interessant, weil die in ihnen beschleunigten Teilchen unter Umständen die Erdatmosphäre erreichen können. Dies wird in Abschnitt 1.2.1 genauer diskutiert.

### 1.1.4 Sonnenwind

Auch ohne große Koronale Massenauswürfe beschleunigt die Sonne beständig Teilchen, die die Heliosphäre bilden und das interstellare Medium in diesem Bereich verdrängen. Die Existenz dieses Sonnenwindes wurde zuerst anhand der Form von Kometenschweifern vermutet. Da diese nicht radial von der Sonne weg gerichtet sind, kommt der Strahlungsdruck der elektromagnetischen Strahlung allein nicht in Betracht, den Kometenschweif zu erzeugen. Geladene Teilchen wie Protonen oder Elektronen können auch in großer Entfernung von der Sonne durch Magnetfelder abgelenkt werden. Kommt also der Kometenschweif durch deren Einfluss zustande, kann seine gebogene Form mit dem Magnetfeld

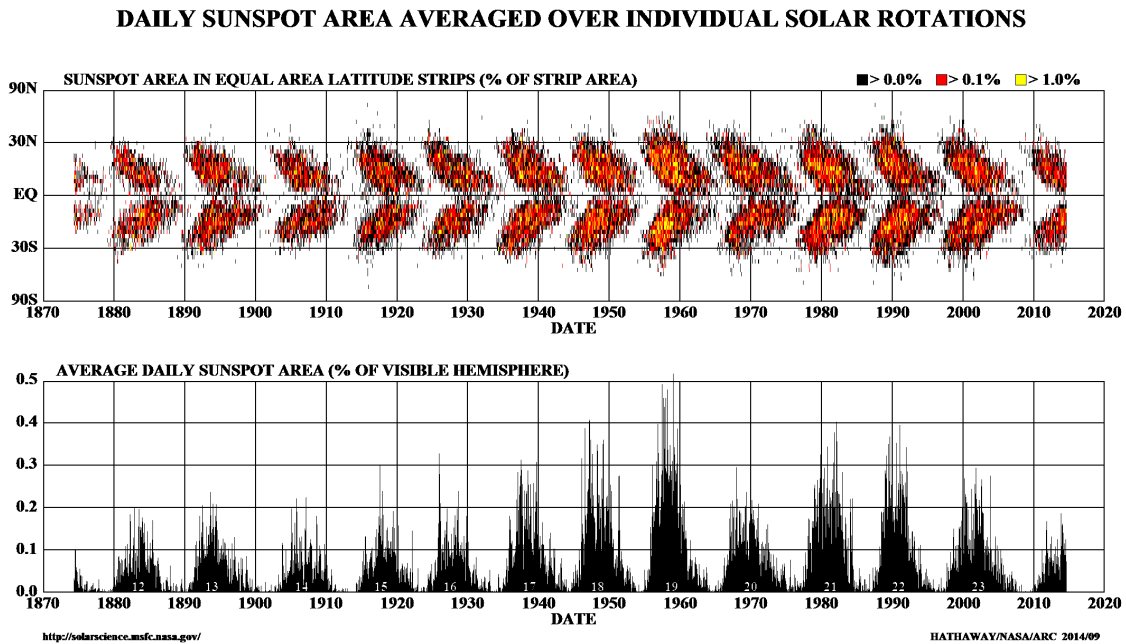


Abbildung 1.3: Verlauf des Auftretens von Sonnenflecken als Funktion der Zeit. Oben: Darstellung als Funktion des Breitengrades auf der Sonne und der Größe der einzelnen Sonnenflecken. Unten: Darstellung als Gesamtfläche der Sonnenflecken. Bild erstellt durch die NASA.

der Sonne verglichen und dadurch erklärt werden.

Das von der Sonne beständig emittierte Plasma enthält das solare Magnetfeld. Während sich das Plasma radial von der Sonnenoberfläche wegbewegt, dreht sich gleichzeitig die Sonne darunter weg (siehe Abschnitt 1.1.5) und mit ihr die Verankerungspunkte der Magnetfeldlinien. Das in der auswärts transportierten Materie eingefrorene Magnetfeld entwickelt dadurch eine Spiralstruktur. An dieser Spiralstruktur werden geladene Teilchen entlanggeführt und dementsprechend auch Kometenschweife mit charakteristisch gebogener Form erzeugt (Kallenrode, 2010).

Der ständige Fluss von geladenen Teilchen von der Sonne in die Heliosphäre wird als Sonnenwind bezeichnet. Über 90% der Zeit breitet er sich mit Geschwindigkeiten zwischen  $350\text{kms}^{-1}$  und  $750\text{kms}^{-1}$  aus. Hierbei werden zwei Komponenten des Sonnenwindes unterschieden, wobei der langsame Sonnenwind etwa  $400\text{kms}^{-1}$  schnell ist und der schnelle Sonnenwind etwa  $750\text{kms}^{-1}$ . Sonnenwind hoher Geschwindigkeit kann dabei zu Orten geringer Dichte in der Korona zurückverfolgt werden, den sogenannten koronalen Löchern. Dort sind quasi-offene Magnetfeldlinien vorhanden, so dass Elektronen die Korona besonders schnell verlassen können (Feldman *et al.*, 2005).

### 1.1.5 Sonnenzyklus

Seit einigen Jahrhunderten (Arlt und Usoskin, 2011) werden gegenüber der restlichen Photosphäre dunkel erscheinende Flecken auf der Sonnenoberfläche beobachtet. Diese Sonnenflecken zeichnen sich durch eine gegenüber der übrigen Photosphäre verringerte Oberflächentemperatur aus, die durch fehlende Konvektion am Ort des Sonnenflecks herbeigeführt wird. Blockiert wird die Konvektion dabei durch besonders starke vertikale Magnetfelder in der Größenordnung von bis zu 0,4 Tesla. Die geringere Oberflächentemperatur bedeutet auch eine geringere Strahlungsleistung der Sonnenoberfläche am Ort des Sonnenflecks. Es wird außerdem beobachtet, dass unmittelbar beim Auftreten der Sonnenflecken die Gesamtluminosität der Sonnenoberfläche zunächst abnimmt. Die dadurch zurückgehaltene Energie wird innerhalb weniger Tage über die gesamte konvektive Zone verteilt, die in dieser Beziehung als Puffer fungiert. Die Strahlungsleistung der Sonne wird durch auftretende Sonnenflecken zwar vermindert, jedoch treten normalerweise gleichzeitig helle Flecken (Faculae) auf, deren vermehrte Strahlungsemission den Effekt der Sonnenflecken überkompensiert. Das wiederholte Auftreten der Sonnenflecken wurde von Samuel Heinrich Schwabe in einen periodischen Zusammenhang von etwa 11 Jahren Dauer eingeordnet (Schwabe, 1844), der als Sonnenfleckenzyklus oder Schwabe-Zyklus bezeichnet wird. Zu Beginn jedes Zyklus' treten Sonnenflecken zuerst in Breiten von etwa 25 Grad (Nord wie Süd) auf. Die Hauptvorkommen verlagern sich über den Zyklus in Richtung des Äquators. Diese Beobachtung ist in Abbildung 1.3 (oben) anhand von Daten aus den letzten 140 Jahren dargestellt.

Mit einer hohen Anzahl von Sonnenflecken wird eine hohe Aktivität der Sonne verbunden. Die magnetischen Flussschläuche, die zum Auftreten der Sonnenflecken führen, sind außerdem Ausdruck der höheren Sonnenaktivität. Flares und koronale Massenauswürfe sind mit der magnetischen Aktivität der Sonne verknüpft, so dass deren Häufigkeit mit dem Sonnenfleckenzyklus korreliert.

Der 11-jährige Zyklus wird höchstwahrscheinlich von weiteren Aktivitätsschwankungen mit unterschiedlichen Perioden überlagert. Aufgrund der zeitlich begrenzten Datenlage sind diese bisher nicht mit Sicherheit identifizierbar. Jedoch liefern deutliche Abweichungen vom momentan beobachteten Zyklus, wie beispielsweise das Maunder-Minimum von 1645 bis 1715 einen Hinweis auf die Überlagerung verschiedener Zyklen (Eddy, 1976). Auf kleineren Zeitskalen wird eine Rotation der Sonne beobachtet. Die Winkelgeschwindigkeit ist abhängig vom Breitengrad - im Mittel wird eine Rotationsdauer von 27 Tagen beobachtet, am Äquator beträgt sie dabei lokal etwa 25 Tage und in Breiten jenseits von 60 Grad mehr als 30 Tage.

## 1.2 Erde und erdnahe Weltraum

Um den Einfluss der Sonne auf die Erdatmosphäre zu untersuchen, genügt es nicht, ausschließlich die Atmosphäre zu betrachten. Insbesondere für die Propagation solarer Teilchen ist auch die Geosphäre inklusive des erdnahen Weltraums wichtig. Solare Teilchen folgen zunächst in der Heliosphäre den Magnetfeldlinien des interplanetaren Magnetfeldes, welches dem solaren Magnetfeld entspricht. Bei Emission im richtigen Winkel kön-

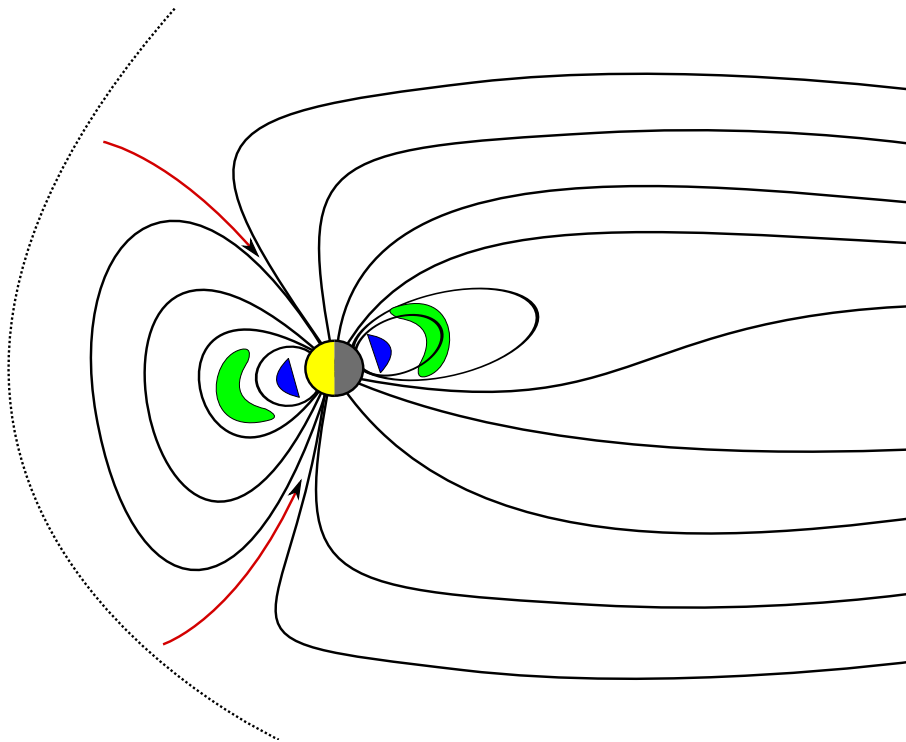


Abbildung 1.4: Durch den Sonnenwind geformte Magnetosphäre der Erde (Feldlinien, durchgezogen) und Schockfront (gestrichelt) im Übergangsbereich zur Heliosphäre. An den Scheitelpunkten des Erdmagnetfeldes können geladene Teilchen bis in die polare Atmosphäre vordringen (rote Pfeile). Strahlungsgürtelpopulationen, die die Erde nahezu ringförmig umgeben, sind farbig dargestellt: Blau eingefärbt ist die Hauptpopulation von Protonen mit einer Energie von mehr als 30 MeV, grün die Hauptpopulation von Elektronen mit einer Bewegungsenergie von mehr als 1,6 MeV. Abbildung auf Grundlage von (Kallenrode, 2010, und dortigen Referenzen).

nen solche Teilchen die Geosphäre erreichen. Dort sind lokale Effekte zu berücksichtigen, die den Einfluss solarer Teilchen auf die Erdatmosphäre bestimmen.

### 1.2.1 Magnetosphäre der Erde

Energetische Teilchen solaren Ursprungs erreichen auch dann nicht immer die Erdatmosphäre, wenn sie in einem geeigneten Winkel ausgestoßen werden und den solaren Magnetfeldlinien zur Erde folgen. Grund hierfür ist das von der Erde ausgehende Erdmagnetfeld, welches zur Ablenkung geladener Teilchen durch Lorentzkräfte führt. Vor allem niederenergetische Teilchen werden beim Auftreffen auf die Magnetosphäre in niedrigen Breiten reflektiert. Der Bereich um die Erde, in dem die Bahnen geladener Teilchen ausschließlich durch Magnetfelder bestimmt werden, wird als Magnetosphäre der Erde bezeichnet.

Das Magnetfeld der Erde wird durch den sogenannten Geodynamo erzeugt und aufrechterhalten. Aufgrund der Rotation elektrisch leitfähigen Materials im äußeren Erdkern kann eine Störung magnetischer Art als Keim fungieren. Durch die Rotation und Konvektion im äußeren Erdkern ist eine Verstärkung möglich, die im beobachteten Erdmagnetfeld resultiert. Die über geologische Zeitalter hinweg auftretenden Umkehrungen des Magnetfelds sind bislang nicht erklärbar (Kallenrode, 2010).

Die Magnetosphäre der Erde erreicht ihre charakteristische asymmetrische Form durch ein Druckgleichgewicht zwischen Erdmagnetfeld und Sonnenwind. Auf der der Sonne zugewandten Seite der Erde hat die Geosphäre daher nur eine Ausdehnung von etwa 10 Erdradien, auf der abgewandten Seite ist sie um ein Vielfaches größer. Das Aufeinandertreffen des Erdmagnetfeldes und des Sonnenwindes hat die Entstehung einer Schockfront zur Folge, an der der Sonnenwind von seiner Überschallgeschwindigkeit auf Geschwindigkeit unterhalb seiner Schallgeschwindigkeit abgebremst wird.

Am Übergang zwischen geschlossenen Magnetfeldlinien der Tagseite und den quasi-geöffneten Magnetfeldlinien der Nachtseite des Erdmagnetfelds können energetische Teilchen auch mit geringer Bewegungsenergie in die Magnetosphäre eindringen und bis zur Erdatmosphäre gelangen. Dieser Effekt betrifft aufgrund der Feldkonfiguration nur einen begrenzten Breitenbereich, der etwa an den geografischen Polarkreisen liegt. Die Aurora, ein Himmelsleuchten, ist ein durch diese Teilchen hervorgerufener Effekt (Kallenrode, 2010). Energetische Teilchen, die durch Flares und Koronale Massenauswürfe der Sonne beschleunigt werden, treffen bevorzugt ebenfalls in diesen durch die Magnetfeldkonfiguration festgelegten Bereichen auf die Erdatmosphäre. Nur bei sehr hoher Teilchenenergie, wie beispielweise in der kosmischen Strahlung (Schüssler *et al.*, 2010), wird das Erdmagnetfeld durchdrungen. Teilchenniederschlag dieser Energie zeigt keine charakteristische Verteilung aufgrund des Erdmagnetfeldes.

Eine weitere interessante Beobachtung sind die Strahlungsgürtel der Erde. Protonen und Elektronen, die vom Erdmagnetfeld abgelenkt werden, können in geschlossenen Bahnen in der Magnetosphäre driften. Die größten Konzentrationen der Teilchen befinden sich abhängig von deren Bewegungsenergie im Abstand von etwa einem Erdradius (Protonen) bzw. im Abstand von drei bis vier Erdradien (Elektronen). Ändert sich der Sonnenwind, so verformt sich das Erdmagnetfeld und die Bahnen der Teilchen in den Strahlungsgürteln verändern sich entsprechend. Es kann dabei vorkommen, dass die neuen Bahnen, abhängig von den Teilchenenergien, die Erdatmosphäre erreichen und dadurch Teilchenniederschlag auftritt. Bei bedeutenden Änderungen des Sonnenwindes können sich große Teile der Strahlungsgürtelpopulationen innerhalb weniger Stunden in die Erdatmosphäre entleeren. Ein solches Ereignis wird als geomagnetischer Sturm bezeichnet.

Eine schematische Darstellung der Magnetosphäre mit Magnetfeldlinien und polaren Teilchenbahnen, Schockfront sowie den Hauptpopulationen der Strahlungsgürtel ist in Abbildung 1.4 gezeigt.

### 1.2.2 Erdatmosphäre

Die gasförmige Hülle der Erde wird als Erdatmosphäre bezeichnet. Sie lässt sich anhand ihrer Eigenschaften charakterisieren und in verschiedene Schichten einteilen. Als wesent-



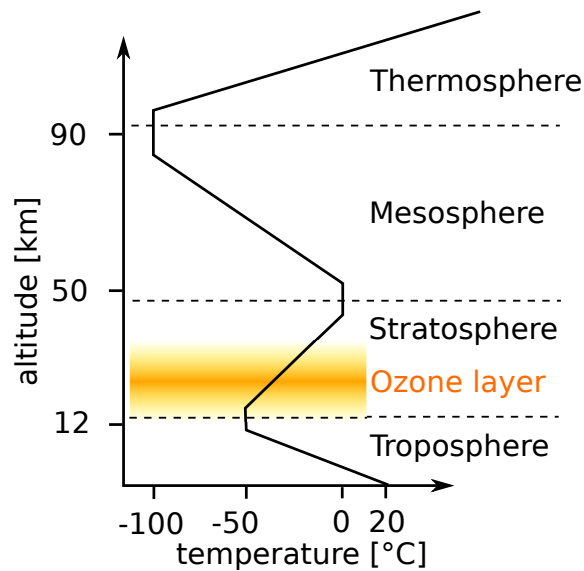


Abbildung 1.5: Schematisch dargestellte Unterteilung der Erdatmosphäre mit generalisiertem Temperaturprofil und angedeuteter Ozonschicht.

liche Eigenschaften können Dichte, Temperatur, Zusammensetzung, Strömung und Grad der Ionisation verstanden werden.

Anhand des Temperaturprofils der Erdatmosphäre (Abbildung 1.5) ist die gebräuchliche Einteilung in Troposphäre, Stratosphäre, Mesosphäre und Thermosphäre entstanden. Dabei zeichnet sich die Troposphäre durch einen negativen Temperaturgradienten aus, d.h. die Temperatur sinkt mit zunehmender Höhe. In der Troposphäre spielen sich alle Wetterereignisse ab. Je nach Breitengrad liegt der obere Rand, die Tropopause, bei etwa 10 km Höhe (Polarregionen) oder etwa 18 km Höhe (Tropen). Der Austausch von Stoffen über die Tropopause hinweg ist wegen der Umkehrung des Temperaturgradienten gehemmt. Modelle der darüberliegenden Atmosphäre wie das 3dCTM (siehe Abschnitt 2.3) können deswegen vereinfachend die Tropopause als unteren Modellrand annehmen und dort Randbedingungen verwenden.

Die Region oberhalb der Tropopause bis zur erneuten Umkehrung des Temperaturgradienten bei etwa 50 km Höhe wird als Stratosphäre bezeichnet. Die Temperaturzunahme gegenüber der Tropopause wird durch Absorption von Sonnenstrahlung durch Ozon und durch Sauerstoff hervorgerufen. Die Ozon- und Sauerstoffkonzentrationen befinden sich dabei in einem dynamischen Gleichgewicht. Absorption von Sonnenstrahlung hat in der Regel die Bildung von atomarem Sauerstoff zur Folge, der durch



Ozon bilden kann. Abbau von Ozon kommt durch die Reaktion



zustande. Außerdem können die photolytische Spaltung von Ozon in  $\text{O}_2 + \text{O}$  und Reaktion 1.3 einen Kreislauf bilden, in dem Ozon umgesetzt wird, ohne dass sich die effektive

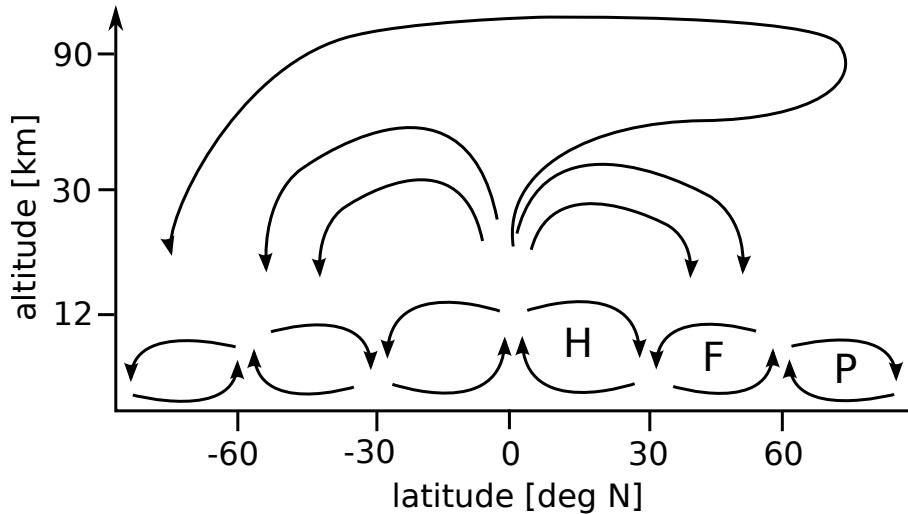


Abbildung 1.6: Schematisch dargestellte Meridionalzirkulation in der Erdatmosphäre zur Zeit der Sommersonnenwende auf der Nordhemisphäre. Dargestellt sind die troposphärischen Zirkulationen (H: Hadley-Zelle, F: Ferrel-Zelle, P: Polarzelle) sowie die Brewer-Dobson-Zirkulation in der Stratosphäre und die mesosphärische Zirkulation zwischen Sommer- und Winterpol, die für die Abkühlung der Sommer-Mesopause verantwortlich ist.

Menge ändert. Die zur Photolyse absorbierte Strahlung trägt dann zum Aufheizen der Stratosphäre bei.

Die Stratosphäre wird nach oben durch die Stratopause begrenzt, woran sich die Mesosphäre anschließt. Diese zeichnet sich durch abermals abnehmende Temperaturen aus, da die Absorption von Strahlung an Ozon mit der Höhe abnimmt, da die Ozonkonzentration mit der Höhe zurückgeht. Die obere Begrenzung der Mesosphäre ist die Mesopause bei etwa 90 km bis 100 km Höhe.

In der Thermosphäre oberhalb von etwa 100 km steigen die Temperaturen mit zunehmender Höhe wiederum an. Die Absorption von kurzwelliger Sonnenstrahlung ( $\lambda \lesssim 105 \text{ nm}$ ) ist dafür hauptsächlich ausschlaggebend. Ab der Thermosphäre sind außerdem die relativen Stoffmengen der Bestandteile der Atmosphäre nicht mehr im Allgemeinen konstant, sondern ändern sich maßgeblich mit der Höhe. Ein wichtiges Beispiel ist das Mischungsverhältnis von atomarem Sauerstoff, der durch die zunehmende Spaltung von  $\text{O}_2$  bei gleichzeitiger Abnahme der Rekombination aufgrund der geringen Dichte der Luft in der Thermosphäre ein größeres Mischungsverhältnis erreicht als molekularer Sauerstoff. Ein chemisch interessantes Produkt verschiedener Reaktionen in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre ist Kohlenstoffmonoxid. Es entsteht als Endprodukt der Methanoxidierung und durch Photolyse von Kohlenstoffdioxid (Brasseur und Solomon, 1986). Einzige Verlustreaktion von CO ist die Reaktion mit OH, woraus eine chemische Lebensdauer von vielen Jahren in der Thermosphäre entsteht (Brasseur und Solomon, 1986). CO eignet sich somit besonders zur Untersuchung von Transportprozessen.

Als ein weiteres Kriterium zur Unterteilung der Atmosphäre kann die Ionendichte herangezogen werden. Höhenbereiche, in denen einige Bestandteile der Atmosphäre (teilwei-

se) ionisiert auftreten, gehören zur Ionosphäre. Innerhalb der Ionosphäre wird zwischen der D- E- und F-Region unterschieden, die nach dem Zustandekommen der Ionisierung unterschieden werden. Insgesamt entsteht die Ionosphäre durch Absorption von Sonnenstrahlung, so dass dabei Atome oder Moleküle ionisiert werden. In der D-Region, die zwischen etwa 60km und etwa 90km liegt, absorbiert insbesondere NO Lyman-alpha-Strahlung (121,5 nm), so dass die Reaktion



abläuft. Die E-Region zwischen etwa 90km und etwa 150km zeichnet sich analog durch Ionisation von molekularem Sauerstoff aus. In der weiter darüberliegenden F-Region sind die dort vorhandenen Heliumatome und Wasserstoffatome ionisiert, außerdem treten Sauerstoffionen  $\text{O}^+$  auf.

Abgesehen von der Ionosphäre, die die komplette von Sonnenlicht erreichte Atmosphäre in den jeweiligen Höhenbereichen umfasst, findet Ionisation auch durch energetische Teilchen des Sonnenwindes und durch solare Protonen statt. Diese Teilchen erreichen aufgrund des Erdmagnetfeldes die Atmosphäre insbesondere in polaren Breiten. Der direkte Einfluss besteht aus Ionisation, Dissoziation oder dissoziativer Ionisation der Bestandteile:



Diese Reaktionen können für  $\text{O}_2$  entsprechend stattfinden, und Ionisation von atomarem Sauerstoff in der Thermosphäre ist ebenfalls möglich. An diese Ionisationsvorgänge schließen sich verschiedene Folgereaktionen an, in denen Umverteilung der Ladung stattfindet und die durch Rekombinationen positiver mit negativen Ladungsträgern auch die Zusammensetzung der neutralen Atmosphäre ändern können. Diese Sachverhalte werden in Kapitel 3 ausführlich diskutiert.

Durch die größere Strahlungsleistung einfallender Sonnenstrahlung in äquatorialen Breiten gegenüber polaren Breiten ergibt sich in der Erdatmosphäre eine Ungleichverteilung der Temperaturen. Diese Ungleichverteilung stellt einen Antrieb zu ausgleichender Dynamik dar, die durch meridionalen Massentransport ein dynamisches Gleichgewicht zwischen (vor allem) Einstrahlung und Abtransport von Wärme in äquatorialen Breiten sowie Hertransport von Wärme und Abstrahlung in polaren Breiten herstellt. Die sich ergebenden Strömungen sind für die Atmosphärenwissenschaft von großer Bedeutung. Sie sind schematisch in Abbildung 1.6 dargestellt.

Der hauptsächliche Transport findet in der Troposphäre statt (Holton und Hakim, 2013). Dort bilden sich je Hemisphäre drei Wirbelzellen aus. Am Äquator aufsteigende Luft wird polwärts transportiert und sinkt in der Nähe des 30. Breitengrades wieder ab, diese Zirkulation wird als Hadley-Zelle bezeichnet. Entgegenläufig zwischen dem 30. und 60. Breitengrad befindet sich die Ferrel-Zelle, die ebenfalls durch absinkende Luft am 30. Breitengrad charakterisiert ist, so dass die Zirkulation beider Zellen ineinander übergehen kann. Mit gleicher Orientierung wie die Hadley-Zelle befindet sich in polaren Breiten die Polarzelle, die sich mit geeigneter Orientierung ebenfalls an die Ferrel-Zelle anschließt.

Starke zonale Höhenwinde (Strahlströme) entstehen an den Berührungspunkten verschiedener Meridionalzellen durch die Ablenkung der Luftmassen aufgrund der Corioliskraft. In äquatorialen Breiten steigt Luft über die Tropopause hinweg auf und wird auch hier polwärts transportiert (Andrews *et al.*, 1987). Anhand von Modellstudien lässt sich ein einfaches Ein-Zellen-System als hinreichende Beschreibung identifizieren (Holton, 1983; Nastrom *et al.*, 1982), in dem die Luft von der tropischen Tropopause in die Stratosphäre übergeht, dort polwärts transportiert wird und in außertropischen Breiten wieder absinkt. Angetrieben wird diese Brewer-Dobson-Zirkulation durch Strahlung und planetare Wellen, die in der Stratosphäre brechen und dort Energie freisetzen. Dieses Zirkulationsmuster ist eine Erklärung, weshalb in der tropischen Stratosphäre geringere Ozonkonzentrationen vorzufinden sind als in der polaren Stratosphäre.

Insbesondere zur Zeit der Sonnenwende lässt sich eine über die Stratosphäre hinaus reichende Zirkulation in der mittleren Atmosphäre beobachten, in der Luftmassen am Sommerpol nicht nach unten weitertransportiert werden, sondern am Sommerpol weiter aufsteigen. Dabei kühlen sie sich adiabatisch ab, wodurch die Sommer-Mesopause zur kältesten Region der Erdatmosphäre wird und insbesondere auch kälter als die Winter-Mesopause ist. Vom Sommerpol werden die entsprechenden Luftmassen in der Mesosphäre hinüber zum Winterpol transportiert, wo dann ein großskaliges Absinken der Luft stattfindet. Dort bildet sich der sogenannte Polarwirbel mit starken zonalen Strömungen, die den meridionalen Austausch von Luftmassen über die Wirbelgrenze hinweg hemmen. Die mesosphärische Zirkulation findet im Sommer (Aufsteigen) bzw. Winter (Absinken) der jeweiligen Hemisphäre statt, ist im Frühling bzw. Herbst nicht vorhanden und wechselt entsprechend des jeweiligen Sommerpols ihre Richtung. Der mesosphärische Anteil dieser Zirkulation wird wesentlich durch die Dissipation von Schwerewellen angetrieben.

Durch brechende planetare Wellen, besonders in der Nordhemisphäre, kann der zonale Transport im Polarwirbel zum Erliegen kommen. Durch die brechenden planetaren Wellen wird außerdem die Stratosphäre erwärmt (Sudden stratospheric warming, SSW) (Matsuno, 1971). Aufgrund des verschwundenen oder umgekehrten zonalen Transports wird die Ausbreitung der planetaren Wellen gehemmt, und diese erreichen keine größeren Höhen mehr. Der Polarwirbel formt sich ab diesem Moment in der oberen Mesosphäre neu, was gleichzeitig auch die Neubildung der Stratopause in dieser Höhe bedeutet. Wegen der erhöhten Stratopause spricht man vom "elevated stratopause event". Da der neu gebildete Polarwirbel nicht durch planetare Wellen gestört wird, deren Ausbreitung gehemmt ist, ist der neugebildete Polarwirbel in seiner Ausprägung verstärkt.

### 1.3 Wechselwirkung von Teilchen und Strahlung mit Materie

Energetische Teilchen und energiereiche Sonnenstrahlung können mit den Bestandteilen der Atmosphäre auf verschiedenen Arten wechselwirken. Im Folgenden sollen die wesentlichen physikalischen Prozesse aufgeführt und beschrieben werden, die bei den Wechselwirkungsprozessen ablaufen.

Teilchen, die die Erdatmosphäre erreichen, sind in der Regel geladen (Elektronen, Pro-

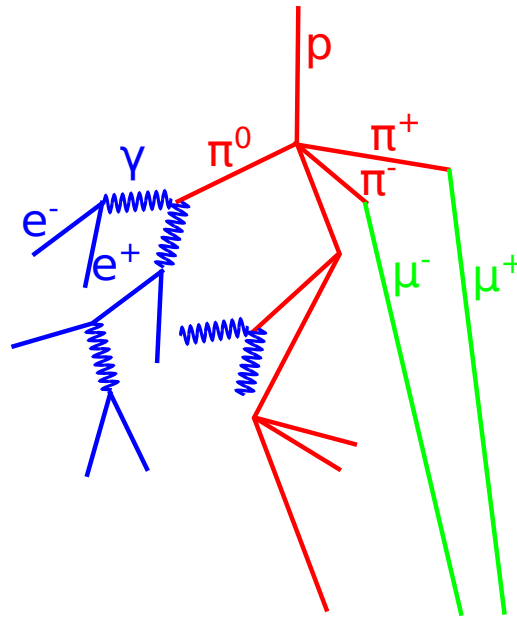


Abbildung 1.7: Schematische Darstellung eines Luftschauers, wie er beim Auftreffen hochenergetischer Teilchen, insbesondere Protonen der kosmischen Strahlung, auf die Erdatmosphäre entsteht. Blau dargestellt ist die elektromagnetische Komponente mit Elektronen, Positronen und Gammaquanten, rot die hadronische Komponente mit Protonen, Neutronen und div. Mesonen wie Pionen, sowie in grün die myonische Komponente. Neutrinos sind nicht dargestellt.

tonen, Ionen) oder Neutrinos. Für die geladenen Teilchen kommen verschiedene Wechselwirkungsmechanismen in Frage: elastische Streuung, vor allem an den Elektronen der Atome und Moleküle der Atmosphäre, inelastische Streuung an Elektronenhüllen sowie tiefinelastische Streuung an Atomkernen. Neutrinos können über die schwache Wechselwirkung einen inversen Betazerfall verursachen.

Bei der elastischen Streuung von geladenen Teilchen an den Elektronenhüllen von Atomen und Molekülen gehen beide Stoßpartner unverändert aus dem Prozess hervor. Es wird hierbei über die elektromagnetische Wechselwirkung Energie und Impuls übertragen. Die dadurch bedingte Beschleunigung der geladenen Teilchen führt zur Emission von Photonen, die in diesem Zusammenhang als Bremsstrahlung bezeichnet werden. Durch wiederholte elastische Stöße und dabei abgegebene Bremsstrahlung wird die kinetische Energie des einfallenden Teilchens nach und nach verringert. Aufgrund der Proportionalität der Bremsstrahlung mit dem Quotienten Ladung des Teilchens pro Ruhemasse des Teilchens in der vierten Potenz ist dieser Prozess insbesondere für Elektronen wichtig (Povh *et al.*, 2009; Demtröder, 2005).

Bei der inelastischen Streuung geladener Teilchen an Hüllenelektronen von Atomen oder Molekülen wird Energie auf eines oder mehrere Hüllenelektronen übertragen. Diese können dadurch in ein anderes Energieniveau wechseln, wodurch ein angeregtes Atom oder Molekül entsteht, oder die Bindung an den Atomkern vollständig verlieren, wodurch das Atom (oder Molekül) ionisiert wird. Der mittlere Energieverlust durch Ionisation je zu-

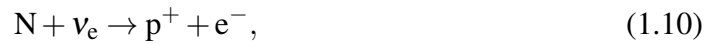
rückgelegter Wegstrecke kann mit der Bethe-Bloch-Formel angegeben werden:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi n z^2}{m_e v^2} \cdot \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \cdot \left[ \ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right] \quad (1.9)$$

Hierbei bezeichnet  $n$  die Elektronendichte des Absorbermaterials,  $z$  die Ladungszahl des einfallenden Teilchens,  $I$  das mittlere Anregungspotential des absorbierenden Materials und  $v$  die Geschwindigkeit des einfallenden Teilchens.  $\beta = \frac{v}{c}$  ist der relativistische Geschwindigkeitskoeffizient des einfallenden Teilchens (Povh *et al.*, 2009; Demtröder, 2005). Aufgrund der Veränderung des absorbierenden Materials durch die Ionisation ist diese Art der Wechselwirkung für die in dieser Arbeit gezeigten Studien von besonderer Bedeutung.

Inelastische Streuung ist außerdem an Atomkernen möglich. Hierbei können weitere Hadronische Produkte entstehen, z.B. aus dem Kern herausgeschlagene Neutronen und Protonen, sowie bei tiefinelastischer Streuung (die die Quarkstruktur der Nukleonen erreicht) auch Mesonen wie beispielsweise Pionen und Kaonen.

Neutrinos können ausschließlich über die schwache Wechselwirkung mit Materie interagieren. In diesem Fall kann ein inverser Betazerfall stattfinden



wobei der Nachweis von Neutrinos durch die Beobachtung des Elektrons gelingt. Aufgrund des geringen Wirkungsquerschnitts von Neutrinos sind diese Prozesse in der Atmosphärenwissenschaft nicht von Bedeutung.

Strahlungsquanten wechselwirken über die elektromagnetische Wechselwirkung insbesondere mit Elektronen der Materie. Hierbei kann analog der Teilchenwechselwirkung zwischen elastischer und inelastischer Streuung unterschieden werden. Bei elastischer Streuung ist die Wellenlänge des gestreuten Photons gleich derer des einfallenden Photons und der Zustand des Atoms, an dessen Elektron der Streuvorgang stattfand, ändert sich nicht. Bei inelastischer Streuung kann das Elektron in ein anderes Energieniveau übergehen (Anregung des Atoms) oder den Atomverbund verlassen (Ionisation). Die Wellenlänge des Photons ändert sich dabei aufgrund der Energieerhaltung. Diese Art der Streuung wird auch als Compton-Effekt bezeichnet (Povh *et al.*, 2009). Der Photoelektrische Effekt, bei dem das einfallende Photon komplett absorbiert wird und ein Photoelektron aus dem Atomverbund emittiert wird, ist ein Spezialfall der inelastischen Streuung.

Bei genügend hoher Energie des Photons ist außerdem die Bildung eines Elektron-Positron-Paares möglich. Die Photonenenergie muss hierzu mindestens der Ruhemasse von Elektron plus Positron entsprechen, wobei die Wahrscheinlichkeit für Paarbildung mit weiter ansteigender Photonenenergie zunimmt und oberhalb von etwa 10MeV der dominante Wechselwirkungsprozess ist (Povh *et al.*, 2009). Bei geringeren Energien findet zumeist Photoeffekt (dominant bis etwa 100keV) und Compton-Streuung statt (dominant zwischen etwa 100keV und 10MeV Photonenenergie) (Povh *et al.*, 2009).

Bei genügend hoher Energie des einfallenden Primärteilchens finden alle Arten der Wechselwirkung in einer Kaskade statt. Die bei der ersten Wechselwirkung entstehenden Sekundärteilchen können ihrerseits wieder wechselwirken (je nach ihrer Beschaffenheit) oder zerfallen. In diesem Luftschauer wird nahezu die gesamte kinetische Energie des

### *1.3 Wechselwirkung von Teilchen und Strahlung mit Materie*

Primärteilchen nach und nach in Ionisation, Anregung und elektromagnetische Strahlung umgesetzt. Ein Schema eines solchen Luftschauers ist in Abbildung 1.7 gezeigt. Der Einfluss der Teilchenwechselwirkung in der Atmosphäre auf die chemischen Prozesse wird ausführlich in Kapitel 3 diskutiert.





## 2 Modellbeschreibung

In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit verwendeten Modelle vorgestellt. Diese sind ein nulldimensionales Ionenchemiemodell (siehe Abschnitt 2.1), ein eindimensionales Chemiemodell (Abschnitt 2.2), und ein dreidimensionales Chemietransportmodell (Abschnitt 2.3). Die Modellhierarchie (0d, 1d, 3d) spiegelt dabei auch das Vorgehen dieser Arbeit wieder, vom Verständnis mikroskopischer Prozesse auf mögliche Auswirkungen für die gesamte Atmosphäre zu schließen.

Alle Modelle verwenden zur Zeitintegration ein halbimplizites Verfahren, welches in Abschnitt 2.4 hergeleitet wird. Außerdem verwenden alle drei Modelle für Reaktionen von neutralen Stoffen dieselben Reaktionskonstanten. Die Reaktionskonstanten sind hierfür aus dem JPL-Katalog entnommen (Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology) und derzeit auf dem Stand der Veröffentlichung von 2006 (Sander *et al.*, 2006). Eine Liste der Reaktionen, die in den Modellen für neutrale Chemie implementiert sind, ist in Chipperfield (1999) zu finden, die Chemiemodule der Modelle beruhen beide auf der dort beschriebenen SLIMCAT-Chemie.

Im Folgenden sollen die drei Modelle vorgestellt und ihre Verwendung erläutert werden. Gemeinsame Komponenten wie das Integrationsverfahren und die Antriebsdaten für die Ionisation (Abschnitt 2.5) werden anschließend beschrieben.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden insbesondere ein Modul zur Berechnung der  $\text{NO}_x$ -Produktion durch Teilchen und Photoionisation sowie die Möglichkeit der extern vorgegebenen Sonnenspektren entwickelt. Die  $\text{NO}_x$ -Produktion und ihre technische Implementierung wird in Kapitel 3 ausführlich erläutert, die variable Photolyse in Abschnitt 2.3.4.

### 2.1 Ionenchemiemodell

Das ursprünglich in Bremen entwickelte University of Bremen ion chemistry model (UBIC) ist ein nulldimensionales Chemiemodell, welches neben den neutralen Bestandteilen der Atmosphäre und neutralen Spurengasen auch geladene Komponenten (positive sowie negative Ionen und Elektronen) berücksichtigen und ihre zeitliche Entwicklung simulieren kann (Winkler, 2007). Die Funktionsweise sieht vor, dass für ein isoliertes (nulldimensionales) Atmosphärensegment die neutrale Zusammensetzung, Druck, Temperatur sowie eine Ionisationsrate vorgegeben werden. UBIC berechnet den zeitlichen Verlauf der Stoffkonzentrationen der geladenen Bestandteile unter der Annahme gleichbleibender Ionisation und konstanter neutraler Bestandteile. Sobald ein dynamisches Gleichgewicht erreicht ist, gibt UBIC als Ergebnis der Berechnung Bildungs- oder Verlustraten von neutralen Spurenstoffen aus, die durch die ionischen Reaktionen zustandekommen. Dazu wird ein einzelner weiterer Zeitschritt ohne konstant gehaltene neutrale Spezies berechnet und die

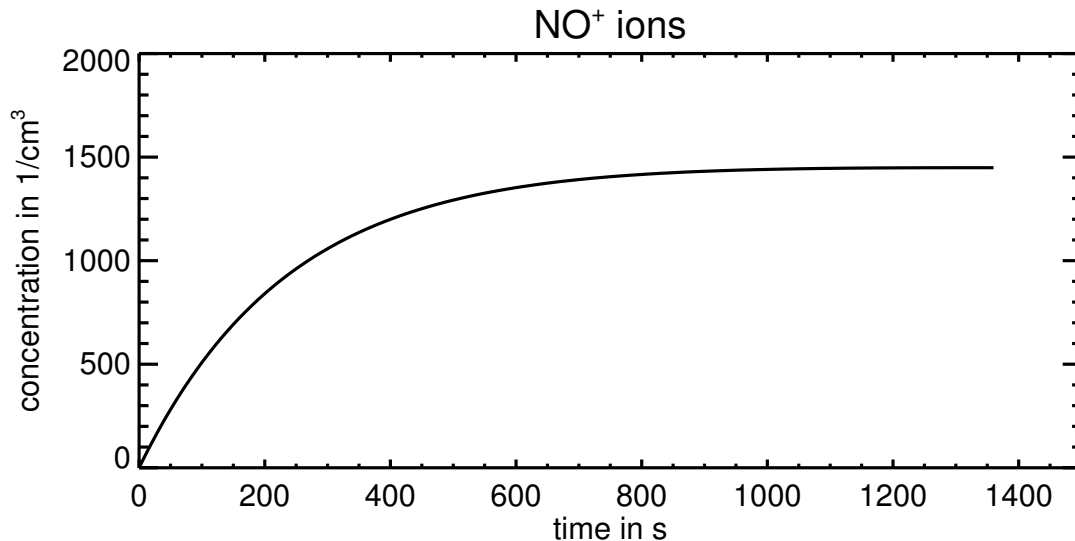


Abbildung 2.1: Konzentration von NO<sup>+</sup>-Ionen in einer Simulation mit UBIC als Funktion der Zeit. Der Verlauf zeigt den Simulationsstart mit neutraler Atmosphäre sowie das Erreichen der Gleichgewichtskonzentration nach einigen Minuten simulierter Zeit.

entsprechenden Änderungen pro Zeiteinheit werden ausgegeben. Da UBIC ausschließlich intensive Größen verwendet (Stoffkonzentrationen, Temperatur) und keine extensive (wie beispielsweise Stoffmengen), ist das Modell als nulldimensional anzusehen.

Die Annahme der zeitlich konstanten Ionisationsrate ist realistisch, wenn davon ausgegangen wird, dass die besonders schnell ablaufenden ionischen Reaktionen innerhalb kurzer Zeit zu einem Gleichgewichtszustand führen. Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte technische Tests belegen, dass dies für repräsentativ ausgewählte Situationen zutrifft. Somit wird für alle folgenden Studien davon ausgegangen, dass dieses Vorgehen korrekt ist. Die Annahme konstanter neutraler Spurenstoffe bei veränderlicher Menge an geladenen Spezies stellt prinzipiell eine Verletzung der Massenerhaltung dar. Dieses Vorgehen ist jedoch nötig, wenn UBIC als zusätzliches Modul für Modelle der neutralen Chemie arbeiten soll. Gleichzeitige Änderung von neutralen und geladenen Spezies ist nur in heterogenen Modellen wie beispielsweise WACCM (Whole Atmosphere Community Climate Model) möglich (Marsh *et al.*, 2007a). Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Tests zeigen, dass der Fehler dieser Vorgehensweise als gering einzustufen ist.

In der Standardkonfiguration, welche für die in dieser Arbeit gezeigten Studien verwendet wird, ist der Integrationszeitschritt auf eine Millisekunde festgelegt. Das simulierte Atmosphärensegment wird als im Gleichgewicht angesehen, wenn alle Spezies, die mit einer Konzentration von  $10^{-5} \frac{1}{\text{cm}^3}$  oder mehr vorliegen, nur noch relative Änderungen von  $10^{-4}$  pro Sekunde oder weniger erfahren. Wird dieser Zustand nicht erreicht, so wird nach 14400 Sekunden die Simulation abgebrochen und ausgewertet. Besonders im Fall von geringfügig, aber schnell oszillierenden Konzentrationen einiger Spezies (aufgrund des numerischen Verfahrens) ist dieses Abbruchkriterium sinnvoll, wie technische Tests zu Beginn dieser Arbeit gezeigt haben.

Eine vollständige Auflistung aller Reaktionen der positiven Ionenchemie in UBIC befindet sich im Anhang von Sinnhuber *et al.* (2012). Dort sind auch die Referenzen angegeben, aus denen die jeweiligen Reaktionskonstanten entnommen sind. Bei Simulationen mit UBIC werden positive Ionenchemie und negative Ionenchemie getrennt berechnet. So wird in der positiven Ionenchemie der Ladungsausgleich durch Elektronen und unspezifische negative Ionen  $X^-$  vorgenommen, in der negativen Ionenchemie wird durch unspezifische  $X^+$  ausgeglichen. Der wesentliche Vorteil dieser Trennung ist eine große Rechenzeiterparnis, da die Dimensionen der zu invertierenden Jakobimatrix klein gehalten werden (siehe Abschnitt 2.4). Für Höhen oberhalb von etwa 80km ist negative Ionenchemie ohne Bedeutung, da hier negative Ladung nur in Form von Elektronen vorkommt (siehe Abbildung 2.2). Für darunterliegende Höhen hat die negative Ionenchemie Auswirkungen auf die Verteilung der neutralen Produkte, aber nicht auf deren Gesamtproduktion, weshalb zugunsten der einfachen Durchführbarkeit der Studien in dieser Arbeit auf Berechnungen der negativen Ionenchemie verzichtet wird.

UBIC ist so konzipiert, dass jeweils nur eine einzige Simulation eines Atmosphärensegments abläuft und dass die Bildungs- und Verlustraten als einziges Ergebnis ausgegeben werden. Somit eignet sich das Ionenchemiemodell besonders gut als Modul, welches durch ein übergeordnetes Modell wiederkehrend aufgerufen und initialisiert wird. Für diese Arbeit wurde UBIC an ein eindimensionales Chemiemodell gekoppelt, durch welches es in verschiedenen Höhen einmal in jeder Modellstunde während des Simulationszeitraumes initialisiert und ausgeführt wurde. Das eindimensionale Chemiemodell wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

Während der Arbeiten mit dem Ionenchemiemodell wurden verschiedenen Modifikationen entwickelt und getestet, welche ein schnelleres Erreichen des Gleichgewichtszustands und damit Rechenzeiterparnis ermöglichen. Diese Modifikationen wurden nach ersten erfolgreichen Tests jedoch zugunsten der Entwicklung der Datenbanklösung für 3d-Modelle (siehe Abschnitt 3.1.2) aufgegeben, da dieses Konzept noch weitaus bedeutendere Rechenzeitvorteile ermöglicht. Als weitere technische Arbeit wurde die Kombination von UBIC mit dem eindimensionalen Chemiemodell (s.u.) für parallele Berechnungen mit OpenMP erweitert. Hierdurch konnten viele der in Kapitel 3 beschriebenen Studien und Test bedeutend schneller durchgeführt werden.

## 2.2 Eindimensionales Chemiemodell

Das in dieser Arbeit verwendete eindimensionale Chemiemodell beruht auf den TOMCAT und SLIMCAT Chemieroutinen (Chipperfield *et al.*, 1993; Chipperfield, 1999) und ermöglicht die Simulation des zeitlichen Verlaufs von Stoffkonzentrationen einer atmosphärischen Säule unter Berücksichtigung von chemischen und photochemischen Reaktionen. In diesem Modell wird kein Transport berücksichtigt, weder durch Strömung noch durch Diffusion. Die Absorption von Sonnenstrahlung bis zur jeweiligen Höhe wird jedoch unter Berücksichtigung der Stoffkonzentrationen in den darüberliegenden Höhen berechnet, wodurch sich letztendlich ein eindimensionaler Charakter des Modells ergibt. Anzahl und Lage der Höhenlevel können in der Initialisierung des Modells frei festgelegt werden, wobei die Chemieroutine für die Stratosphäre und darüber getestet ist.

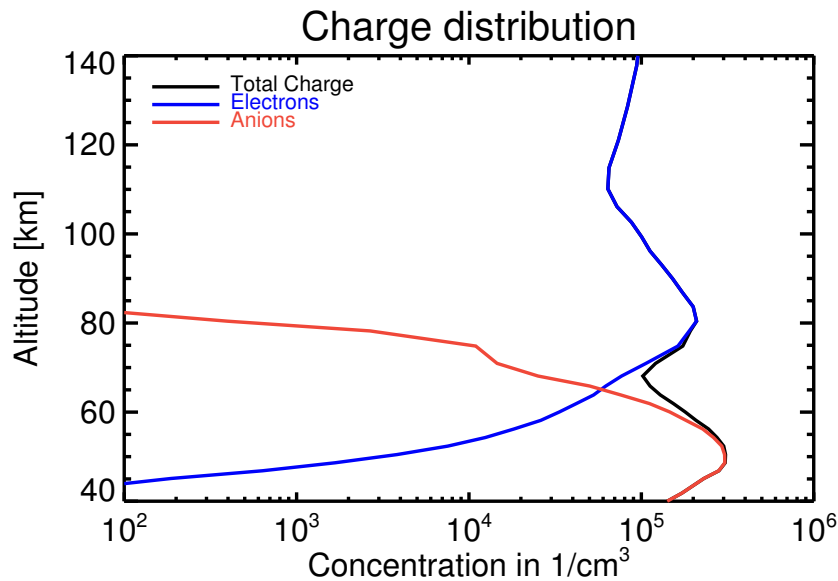


Abbildung 2.2: Beispielhafte Ladungsverteilung während eines solaren Protonenereignisses als Höhenprofil. In rot ist die Dichte negativer Ionendargestellt, in blau die von Elektronen. Als Summe ergibt sich die positive Gesamtladung, die in Ionenform vorliegt.

Das eindimensionale Chemiemodell wird in dieser Arbeit hauptsächlich verwendet, weil es als übergeordnetes Modell für das Ionenchemiemodell UBIC fungieren kann. In dieser Konfiguration lassen sich mit vertretbarem Rechenzeitbedarf verschiedene Arten von Tests durchführen, von denen einige in Kapitel 3 gezeigt werden. Weiterhin kann statt des Ionenchemiemodells an derselben Stelle die Datenbanklösung (Abschnitt 3.1.2) aufgerufen werden, so dass sich das 1d-Modell für viele Testläufe während der Entwicklung der Datenbanklösung anbot. Weiterführende Studien wurden mit dem dreidimensionalen Chemietransportmodell durchgeführt.

## 2.3 Dreidimensionales Chemietransportmodell

Das dreidimensionale Chemietransportmodell (3dCTM) ist ein Atmosphärenmodell, welches chemische Reaktionen und Stofftransport in der Atmosphäre von der Tropopause aufwärts bis zur unteren Thermosphäre simulieren kann. Die wesentlichen Bestandteile sind eine Chemieroutine und eine Transportroutine, die im Folgenden näher beschrieben werden. Zusätzlich stehen Module z.B. zur Berücksichtigung von Teilchenniederschlag und Photoionisation zur Verfügung, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt bzw. weiterentwickelt wurden, und bereits bestehende Module bspw. zur Simulation von polaren Stratosphärenwolken. Weitere Beschreibungen des Modells finden sich u.A. in Winkler (2007); Wissing *et al.* (2010); Sinnhuber *et al.* (2012); Wieters (2013).

Der generelle Ablauf einer Modellstudie mit dem 3dCTM ist in Abbildung 2.3 dargestellt.

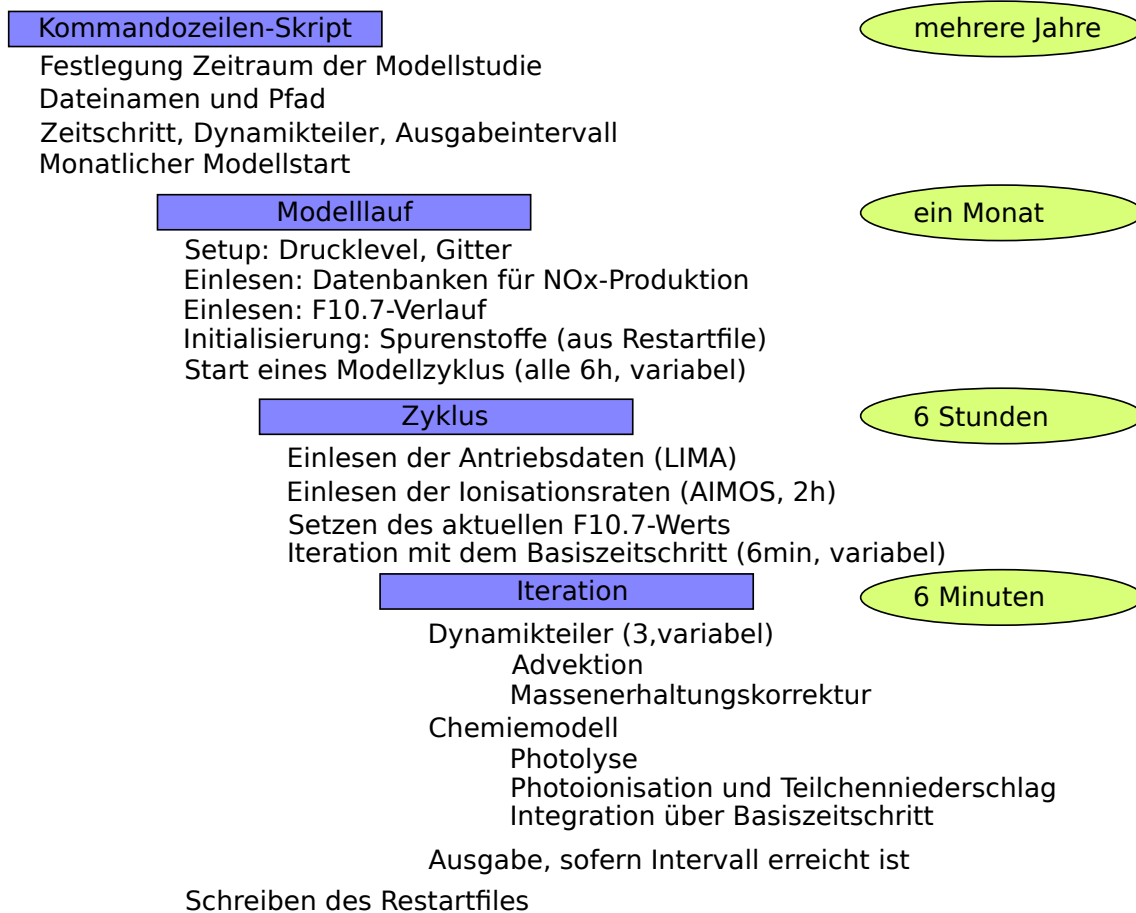


Abbildung 2.3: Ablaufdiagramm einer Modellstudie mit dem 3dCTM. Genaue Beschreibung im Text.

Der gesamte Simulationszeitraum wird im Modell auf verschiedenen technischen Ebenen in immer kleinere Teilzeiträume unterteilt, in denen die jeweils auf diesen Zeitskalen zu berücksichtigenden Prozesse simuliert werden. Die erste Unterteilung des gesamten Simulationszeitraums (üblicherweise mehrere Jahre) in Monatsabschnitte ist dabei rein technisch motiviert. Das monatliche Erstellen von Startdateien für Modellneustarts sichert den Gesamtfortschritt gegen Systemabstürze ohne Datenverlust ab, und das routinemäßige Benutzen der Startdateien schließt unbemerkte Fehler in diesem Sicherungssystem nahezu aus. Weiterhin ist die begrenzte Dauer einer Monatssimulation von Vorteil, um die Steuerung der Rechenleistungsverteilung zwischen mehreren Benutzern auf Großrechner-systemen zu ermöglichen.

Für jeden Simulationsmonat wird das Modellprogramm gestartet. Dort wird zuerst das Modellgitter initialisiert und die letzte Startdatei (Restartfile, geschrieben von der Modellsimulation des vorherigen Monats oder manuell als Initialisierungsdatei erstellt) mit dem Zustand der Atmosphäre eingelesen. Außerdem werden Daten eingelesen, die für den ganzen Monat vorgehalten werden, wie z.B. die Produktion von NO<sub>x</sub> in Abhängig-

keit vom veränderlichen Zustand der Atmosphäre (siehe Kapitel 3) oder geringe Datenmengen wie der zeitliche Verlauf des solaren Radioflussindex' (F10.7), aus denen im entsprechenden Programmteil die zutreffenden Einträge ausgewählt werden, da hier der Speicherbedarf des kompletten Datensatzes gering ist und das mehrmalige Öffnen der ihn enthaltenden Dateien zeitaufwändig wäre.

Ausgehend von der Basisinitialisierung wird die Monatssimulation weiter in sechsstündige Zyklen unterteilt. Die Zykluslänge ist dabei an die Verfügbarkeit der Antriebsdaten für den Stofftransport angepasst. Die vom Leibniz-Institute Middle Atmosphere model (LIMA) vorgegebenen Strömungsgeschwindigkeiten stellen aufgrund ihrer räumlichen Auflösung einen großen Datensatz dar (siehe Abschnitt 2.3.7), der zur Speicherbedarfs-optimierung immer aktuell eingelesen wird. Die zeitliche Auflösung des Datensatzes von sechs Stunden wird im 3dCTM daher übernommen.

Innerhalb eines so festgelegten Zyklus' läuft das Modell ohne weitere Eingaben von außen. Die chemische Entwicklung wird durch Integration mit dem Basiszeitschritt (in den hier vorgestellten Studien immer sechs Minuten) simuliert, der Transport auf einer nochmals weiter unterteilten Skala von jeweils 2 Minuten (Dynamikteiler = 3), um Probleme mit der Massenerhaltung zu verhindern (siehe Abschnitt 2.3.5).

In jedem Basiszeitschritt wird überprüft, ob die seit dem letzten Schreiben der Ausgabedaten (bzw. seit Modellstart) simulierte Modellzeit das Ausgabeintervall erreicht hat. Das Schreiben von Ausgabedaten ist somit sinnvollerweise höchstens in jedem Zeitschritt möglich und kann entsprechend des Bedarfs auch seltener (bspw. einmal täglich) erfolgen. Aufgrund der Abfragestruktur wird das angegebene Intervall ggf. auf ein Vielfaches des Basiszeitschritts aufgerundet, so sind z.B. viertelstündliche Ausgaben bei einem Basiszeitschritt von 6 Minuten nicht möglich und es wird ohne weitere Rückfragen jeweils nach 18 Minuten eine Ausgabe erstellt.

### 2.3.1 Modellgitter

In der gegenwärtigen Konfiguration wird die Erdatmosphäre in Gitterzellen von 3,75 Grad Länge, 2,5 Grad Breite und insgesamt über 47 Drucklevel von 31700 Pa (Tropopause) bis 0,000496 Pa (untere Thermosphäre) aufgelöst. Somit finden die Berechnungen in insgesamt 324864 verschieden großen Modellboxen statt. Die Drucklevel der für diese Arbeit verwendeten Konfiguration sind in Tabelle 2.1 dargestellt. Eine Höhenbereichserweiterung für die Mesosphäre und untere Thermosphäre wurde von Wieters (2013) entwickelt.

### 2.3.2 Chemie

Für das 3dCTM und das eindimensionale Chemiemodell steht dieselbe Chemieroutine zur Verfügung. Dort wird die zeitliche Entwicklung der Zusammensetzung der Atmosphäre berechnet. Dieser Modellteil ist formal unabhängig vom Transport, es wird also für jede Modellbox separat der Stoffumsatz aller im Modell enthaltenen Substanzen berechnet. Dabei wird zwischen zwei verschiedenen Höhenbereichen unterschieden, wobei in der Stratosphäre einige Substanzen zu Familien zusammengefasst sind und darüber

Tabelle 2.1: Drucklevel des 3dCTM, alle Werte in Pa

0.000585	0.0491	1.543	212	9260
0.000957	0.0682	2.53	347	10910
0.001565	0.0948	4.13	568	12850
0.00256	0.1316	6.76	930	15140
0.00419	0.1827	11.06	1521	17850
0.00686	0.254	18.10	2490	21000
0.01122	0.352	29.6	3460	24800
0.01836	0.489	48.5	4800	
0.0255	0.679	79.3	6670	
0.0354	0.943	129.7	7850	

alle Stoffe individuell integriert werden. Die Familien werden gemeinsam integriert, so dass beispielsweise Ozon,  $O(^3P)$  und  $O(^1D)$  zur Familie  $O_x$  zusammengefasst werden.  $O_x$  wird zeitlich integriert und die einzelnen Familienmitglieder werden in ein photochemisches Gleichgewicht gesetzt, wodurch der Rechenzeitbedarf herabgesetzt wird. Ab der Stratopause werden alle Substanzen individuell berechnet, da darüber die Annahme photochemischen Gleichgewichts innerhalb der Familien nicht mehr gilt.

Die Wahl des Zeitschrittes für die Integration muss dabei einerseits fein genug sein, um Massenerhaltung bei der numerischen Integration zu gewährleisten, und andererseits so groß wie unter dieser Bedingung möglich, um Rechenzeit zu sparen. Die gewählten sechs Minuten sind ein dementsprechender Kompromiss. Die numerische Integration erfolgt je nach erwartetem Umsatz der Stoffe über ein einfaches Eulerverfahren (für langlebige Substanzen, deren Menge sich nur langsam ändert) oder über das SIS-Verfahren (Abschnitt 2.4, für kurzlebige Substanzen). In den Tabellen 2.2 und 2.3 sind alle im Modell simulierten Substanzen aufgeführt und die jeweils verwendete Integrationsmethode ist angegeben. Für Substanzen, die in der Stratosphäre in Familien zusammengefasst sind, ist diese Eigenschaft vermerkt. In Klammern genannte Integrationsmethoden finden nur im Modellbereich ohne chemische Familien Anwendung.

### 2.3.3 Produktion von $NO_x$

Die Produktion von  $NO_x$  wird innerhalb der Chemieroutine durch ein eigenständiges Modul auf Grundlage der aus einer externen Datenquelle bereitgestellten Ionisationsraten (siehe Abschnitt 2.5) und der in jedem Zeitschritt neu berechneten kurzwelligen Sonneneinstrahlung ermittelt. Das Modul zur Produktion von  $NO_x$  wurde im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelt. Zuvor konnte  $NO_x$ -Produktion durch Teilcheneinfluss mit konstanter Produktion je Ionenpaar auf Grundlage externer Daten eingebunden werden. Die Entwicklung des neuen Moduls ausgehend vom Ionenchemiemodell UBIC wird in Kapitel 3 ausführlich erläutert.

Die Berechnung der  $NO_x$ -Produktion benötigt als Eingangswerte Zustandsvariablen der Atmosphäre (Druck, Temperatur, sowie die Volumenmischungsverhältnisse von  $NO$ ,  $N$ ,

Tabelle 2.2: Stoffe im 3dCTM

Stoff	Familie	Advektion	Integration
N <sub>2</sub>			unveränderlich
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>		ja	SIS
HNO <sub>3</sub>		ja	SIS
ClNO <sub>3</sub>		ja	SIS
HCl		ja	SIS
HNO <sub>4</sub>		ja	SIS
HOCl		ja	SIS
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>		ja	Euler SIS
CH <sub>4</sub>		ja	Euler
N <sub>2</sub> O		ja	Euler
H <sub>2</sub> O		ja	Euler
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		ja	vorgegeben
F11		ja	Euler
F12		ja	Euler
CH <sub>3</sub> Br		ja	Euler
O <sub>3</sub>	O <sub>x</sub>	ja	(SIS)
NO <sub>3</sub>		ja	SIS
Cl <sub>x</sub>		ja	Euler SIS
Br <sub>x</sub>		ja	Euler SIS
CH <sub>2</sub> O		ja	Euler SIS
MHP		ja	Euler
CO		ja	Euler
F22		ja	Euler
F113		ja	Euler
CCl <sub>4</sub>		ja	Euler
CH <sub>3</sub> Cl		ja	Euler
MTCFM		ja	Euler
F12B1		ja	Euler
F13B1		ja	Euler
HF		ja	Euler

Überblick über die Konfiguration der Chemieroutine im 3dCTM. Die Integrationsmethoden sind das einfache Eulerverfahren (Euler), Semi-implicit symmetric Integration (SIS, siehe Abschnitt 2.4) oder die Behandlung von Stoffen im photochemischen Gleichgewicht (GG). H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> wird aus externen Daten vorgegeben. Integrationsmethoden in Klammern beziehen sich ausschließlich auf den Höhenbereich, in dem keine Zusammenfassung von Stoffen zu Familien vorgenommen wird. Bei mehreren angegebenen Integrationsmethoden sind folgende Fälle möglich: a) Berücksichtigung verschiedener möglicher Reaktionen des Stoffes in verschiedenen Integrationsverfahren, z.B. abhängig davon, mit welchem anderen Stoff die Reaktion stattfindet; b) Berechnung mittels unterschiedlicher Verfahren im Familien- und Nichtfamilienchemieteil, wobei dies durch die entsprechende Klammersetzung gekennzeichnet ist.



Tabelle 2.3: Stoffe im 3dCTM, Fortsetzung

Stoff	Familie	Advektion	Integration
COF <sub>2</sub>		ja	Euler
COFCl		ja	Euler
CO <sub>2</sub>		ja	Euler
O( <sup>3</sup> P)	O <sub>x</sub>	ja	(SIS)
NO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	ja	(SIS)
NO	NO <sub>x</sub>	ja	(Euler:DB)(SIS)
H <sub>2</sub>		ja	(SIS)
H	HO <sub>x</sub>	ja	GG (SIS)
OH	HO <sub>x</sub>	ja	GG (SIS)
HO <sub>2</sub>	HO <sub>x</sub>	ja	GG (SIS)
O <sub>2</sub>		ja	(SIS)
CH <sub>3</sub>		ja	GG
CH <sub>3</sub> O <sub>2</sub>		ja	GG
CH <sub>3</sub> O			GG
HOBr			SIS
HBr			SIS
HO <sub>x</sub>			Euler SIS
O <sub>x</sub>			Euler SIS
OCIO			SIS
O( <sup>1</sup> D)	O <sub>x</sub>		(SIS)
N	NO <sub>x</sub>		(Euler:DB)(SIS)
BrCl			SIS
BrNO <sub>3</sub>			SIS
Cl	Cl <sub>x</sub>		GG
ClO	Cl <sub>x</sub>		GG
Cl <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	Cl <sub>x</sub>		GG
Br	Br <sub>x</sub>		GG
BrO	Br <sub>x</sub>		GG
HCO			GG
NO <sub>x</sub>			Euler SIS

H<sub>2</sub>O und O) und die Bildungsraten verschiedener Ionentypen. Diese werden in einer Vorberechnung getrennt für Teilchenniederschlag und für Photoionisation ermittelt und beide unabhängigen Produktionsraten addiert. Die Verteilung zwischen N<sub>2</sub><sup>+</sup>, N<sup>+</sup>, O<sub>2</sub><sup>+</sup>, O<sup>+</sup> und NO<sup>+</sup> sowie die absolute Ionenproduktionsrate sind wichtige Parameter für die sich daraus ergebende NO<sub>x</sub>-Produktionsrate. Weitere Erläuterungen sind in Kapitel 3 zu finden.

## 2 Modellbeschreibung

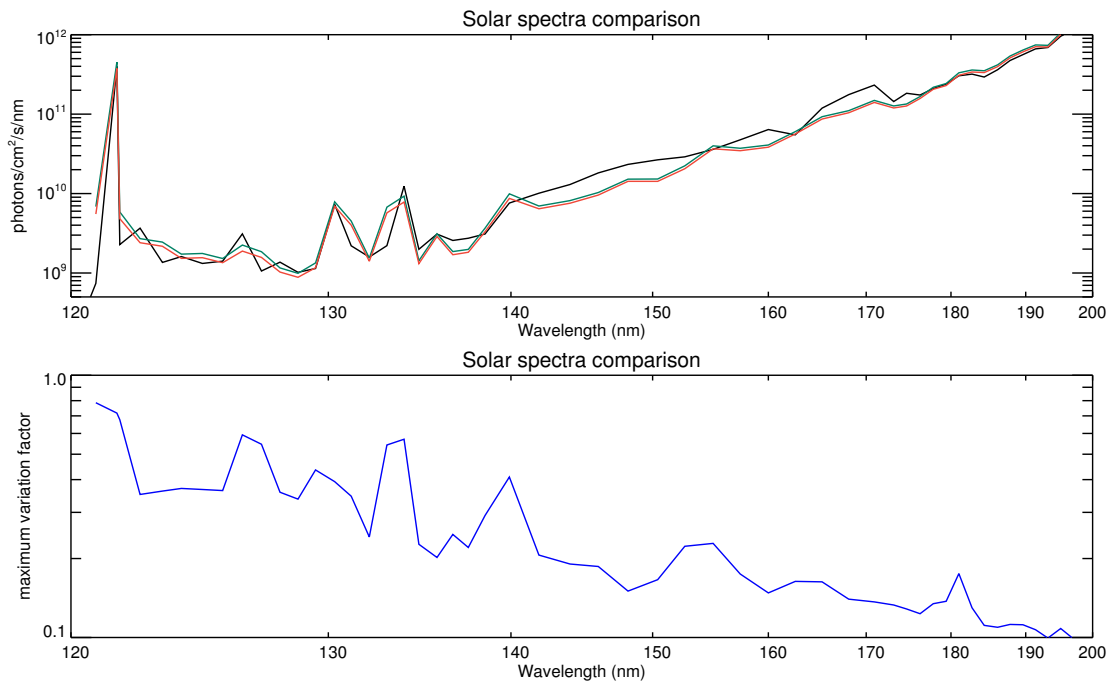


Abbildung 2.4: Veranschaulichung des im 3dCTM verwendeten Sonnenspektrums. Oben: Spektralverlauf von 120 nm bis 200 nm Wellenlänge; schwarz festes Spektrum, grün variables Spektrum zur Zeit des solaren Maximums, rot variables Spektrum zur Zeit des solaren Minimums. Unten: Relative Differenz zwischen variablem Spektrum zum solaren Maximum und zum solaren Minimum, ähnlich Gray *et al.* (2010).

### 2.3.4 Photochemie mit variablem Sonnenspektrum

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Photochemieroutine weiterentwickelt, so dass externe Daten zur Variation der Sonnenstrahlung mit einbezogen werden können. In der Standardkonfiguration wird ein dauerhaft festes Spektrum verwendet, welches Bedingungen im solaren Minimum entspricht. Bei Nutzung des neuen Moduls werden spektral aufgelöste Strahlungsdaten (CCM, 2014) verwendet, die tagesaktuell vorliegen. Die Anpassung des solaren Spektrums an die geometrischen Gegebenheiten und die Berücksichtigung von Absorption beim Durchgang in geringere Höhen werden vom Modell vorgenommen. Die Umrechnung zwischen den gebräuchlichen Einheiten  $\frac{\text{W}}{\text{m}^2}$  und  $\frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$  erfolgt über die Photonenenergie  $E = h\nu$  mit Planckschem Wirkungsquantum  $h$  und der Frequenz  $\nu$  des Lichtquants. In Abbildung 2.4 sind Vergleiche des festen Sonnenspektrums mit dem variablen Spektrum gezeigt, für verschiedene Zeitpunkte im solaren Maximum und solaren Minimum für das variable Spektrum. Der zeitliche Verlauf der Wasserstoff-Lyman-alpha-Strahlung ist in Abbildung 2.5 dargestellt und zeigt sowohl den 27-Tages-Zyklus als auch einen Teil des 11-Jahres-Zyklus der Sonne.

Im gezeigten Wellenlängenbereich ist das differentielle Spektrum gekennzeichnet durch ein lokales Maximum bei 121,5 nm aufgrund der Emission von Wasserstoff-Lyman-alpha-Strahlung. Hin zu größeren Wellenlängen nimmt die Photonenflussdichte zu, was auf-

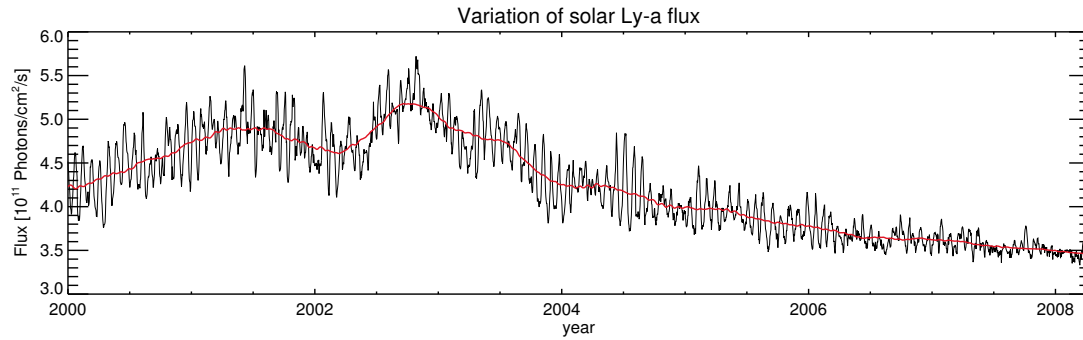


Abbildung 2.5: Zeitlicher Verlauf des Photonenflusses aus solarer Wasserstoff-Lyman-alpha-Strahlung mit der Zeit. Schwarz: Tägliche Daten, Rot: Gleitender Durchschnitt (90 Tage). Datengrundlage von CCM (2014).

grund der Ähnlichkeit des solaren Spektrums zu einem Schwarzkörperspektrum zu erwarten ist. Die Unterschiede zwischen den verschiedenen variablen Spektren sind in Abbildung 2.4 (unten) dargestellt. Der Verlauf der maximalen Variation mit der Wellenlänge stimmt mit dem in Gray *et al.* (2010) gezeigten überein. Die Unterschiede zwischen dem festen Spektrum und den variablen Spektren sind aufgrund des deutlich unterschiedlichen Verlaufs nur schwer darstellbar. Es zeigt sich jedoch bereits aus dem Vergleich der Photonendichte, dass hier verschiedene Datengrundlagen vorliegen. Für zukünftige Modellläufe ist das CCM-Spektrum aufgrund der neueren Datengrundlage vorzuziehen.

### 2.3.5 Transport

Die Bewegung von Stoffen wird im 3dCTM durch Vorgabe der Advektion durch externe Daten ermöglicht (siehe auch Abschnitt 2.3.7). Dabei kommen zur Berechnung der Massenflüsse auch Momente erster und zweiter Ordnung der Stoffmengen zum Tragen (Prather, 1986). Dies bedeutet, dass für jede Modellbox nicht nur die Stoffmassen gespeichert werden (0. Ordnung), sondern zusätzlich in alle drei Raumrichtungen auch Gradienten der Stoffmengen (1. Ordnung, drei Terme für die drei Raumrichtungen) und die Änderung des Gradienten (2. Ordnung, sechs Terme: für die drei Raumrichtungen selbst sowie drei Mischterme mit zwei Raumrichtungen). Durch dieses Verfahren wird eine dynamische Verfeinerung der Modellauflösung erreicht, die in Bezug auf den benötigten Speicherplatz einer entsprechenden Verfeinerung der allgemeinen Modellauflösung überlegen ist. Zur Simulation der Massenflüsse wird der Basiszeitschritt weiter unterteilt, so dass Transport in vertikaler Richtung mit einem Drittel des Basiszeitschritts, also 2 Minuten, simuliert wird, und Transport in horizontaler Richtung mit einem Sechstel des Zeitschritts. Die besonders feine Zeitauflösung des Transports soll sicherstellen, dass auch bei starken Strömungen pro Advektionsschritt immer bedeutend weniger Masse transportiert wird, als in den beteiligten Modellboxen vorhanden ist. Wird diese Einschränkung nicht eingehalten, kommt es zur Verletzung der Massenerhaltung. Die Einschränkung

der pro Zeitschritt maximal transportierbaren Masse wird als Courant-Friedrichs-Lewy-Bedingung (CFL-Bedingung) bezeichnet (Courant *et al.*, 1928). In dieser Bedingung liegt ein weiterer Grund für die Nutzung der Methode der höheren Momente anstelle verfeinerter Auflösung, da die feinere Auflösung zur Einhaltung der CFL-Bedingung zusätzlich mit kleinerem Transportzeitschritt betrieben werden muss.

In der aktuellen Version des 3dCTM ist keine Diffusion berücksichtigt, weder turbulente Diffusion noch molekulare Diffusion. Falls subskalige turbulente Diffusion in die Antriebsdaten einfließt, wird sie aus jenen ins Modell übernommen, eine selbstständige Berechnung im 3dCTM erfolgt jedoch nicht.

### 2.3.6 Initialisierung

Jeder Modelllauf des 3dCTM benötigt neben den Antriebsdaten auch Startwerte für die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. Um möglichst realitätsnahe Simulationsergebnisse zu erhalten, ist es nötig, dass die Gesamtmengen der Bestandteile und Spurengase der Atmosphäre in etwa der Realität entsprechen. Außerdem ist eine wirklichkeitsnahe Verteilung von Vorteil. Um diese Kriterien zu erfüllen, wird die Initialisierung dementsprechend in mehreren Schritten erzeugt. Dabei werden zuerst grob angepasste Startwerte für verschiedene Stoffe ausgesucht, für Ozon beispielsweise aus Messungen oder assimilierten Daten, und ein vorbereitender Modelllauf mit dem 3dCTM wird ausgehend von diesen Werten gestartet. Über die simulierte Zeit wird die Atmosphäre durchmischt und erreicht damit ein dynamisches Gleichgewicht. Dieser Zustand enthält zwar Stoffmengen, die normalerweise nicht denen zum eigentlich gewünschten Startzeitpunkt entsprechen, er enthält aber Informationen über die zu erwartende Durchmischung der Stoffe. Die Gesamtstoffmengen werden nun so skaliert, dass sie den Gesamtstoffmengen zum gewünschten Startzeitpunkt entsprechen. Mit dieser Methode werden sowohl Dynamik als auch Chemie der Atmosphäre bestmöglich für den gewünschten Initialisierungszeitpunkt abgebildet.

### 2.3.7 LIMA Antriebsdaten

LIMA (Leibniz-Institute middle atmosphere model) ist ein globales Zirkulationsmodell (General Circulation model, GCM) zur Simulation der thermischen Struktur der mittleren Atmosphäre (Berger, 2008). LIMA zeichnet sich durch ein nahezu trianguläres Gitter aus, welches die sonst üblichen Singularitäten an den Polen vermeidet, und erreicht durch eine horizontale Auflösung von etwa 110 km, dass Schwerewellen nicht parametrisiert werden müssen (Berger, 2008). Der abgedeckte Höhenbereich reicht von der Erdoberfläche bis in etwa 150 km Höhe, mit einer Höhenauflösung von etwa 1,1 km.

Aus Simulationen mit LIMA können Wind- und Temperaturfelder für den kompletten Simulationsbereich des 3dCTM entnommen werden. Datensätze für den Zeitraum von Anfang 1990 bis Mai 2010 liegen als Antriebsdaten vor. Alle Transportphänomene außer Diffusion sowie alle Temperaturwerte im 3dCTM stammen aus diesen Antriebsdaten.

## 2.4 Numerische Integration

Das semi implicit symmetric (SIS) scheme (Ramaroson, 1989) ist ein numerisches Verfahren zur näherungsweise Lösung gekoppelter Differentialgleichungen. Es ist bezüglich Stabilität, Genauigkeit und Rechenaufwand zwischen dem einfachen expliziten Eulerverfahren und dem klassischen Runge-Kutta-Verfahren einzuordnen (Engeln-Müllges *et al.*, 2011).

Im SIS-Verfahren wird die Änderung  $\frac{dx}{dt}$  einer Stoffkonzentration  $x$  mit der Zeit  $t$  zum Teil explizit aus der momentanen Änderungsrate zum Zeitpunkt  $t$  und zum Teil implizit aus der Änderungsrate zum nächsten Zeitpunkt  $t + \Delta t$  berechnet. Bezeichnet  $\vec{x}(t)$  die zeitabhängigen Stoffkonzentrationen und  $\vec{f}(\vec{x}(t))$  die zeitlichen Änderungen der Stoffkonzentrationen, so können die Konzentrationsänderungen  $\Delta\vec{x}$  näherungsweise beschrieben werden durch

$$\Delta\vec{x} = \vec{x}(t + \Delta t) - \vec{x}(t) \approx \frac{\Delta t}{2} \left[ \vec{f}(\vec{x}(t + \Delta t)) + \vec{f}(\vec{x}(t)) \right]. \quad (2.1)$$

Verwendet man zusätzlich die Näherung

$$\vec{f}(\vec{x}(t + \Delta t)) \approx \vec{f}(\vec{x}(t)) + \frac{d\vec{f}(\vec{x}(t))}{dt} \cdot \Delta t, \quad (2.2)$$

so kann der Ausdruck 2.1 geschrieben werden als

$$\Delta\vec{x} \approx \frac{\Delta t}{2} \left[ 2 \cdot \vec{f}(\vec{x}(t + \Delta t)) - \frac{d\vec{f}(\vec{x}(t))}{dx} \cdot \frac{d\vec{x}(t)}{dt} \Delta t \right]; \quad (2.3)$$

hierbei ist  $\frac{d\vec{f}(\vec{x}(t))}{dx}$  genau die Jacobimatrix der Funktion  $f$ , die den Stoffkonzentrationen deren zeitliche Veränderungen zuordnet. Zum SIS-Integrationsverfahren gelangt man schließlich, indem man in Gleichung 2.3 zunächst den letzten Term vernachlässigt, da dieser proportional zum (sehr kleinen) Zeitschritt  $\Delta t$  ist, und anschließend die Funktionen  $\vec{f}(\vec{x}(t + \Delta t))$  durch deren Jakobimatrix ausdrückt. Dies ist möglich durch die Ersetzung

$$\vec{f}(\vec{x}) = h^{-1} J \vec{x} \quad (2.4)$$

für homogene Funktionen vom Grad  $h$ . Für die Reaktionskinetik mit bimolekularen Reaktionen ist  $\vec{f}$  homogen vom Grad 2 (Photolyse Grad 1, höhere Ordnungen nicht im Modell vorhanden), es ergibt sich also

$$\vec{x}(t + \Delta t) - \vec{x}(t) \approx \frac{\Delta t}{2} J \vec{x}(t + \Delta t) \quad (2.5)$$

und somit

$$\vec{x}(t + \Delta t) \approx \left[ 1 - \frac{\Delta t}{2} J \right]^{-1} \vec{x}(t). \quad (2.6)$$

Jede Zeitschrittintegration beinhaltet somit die Invertierung der Matrix  $1 - \frac{\Delta t}{2} J$ , die die Dimension  $n \times n$  hat, mit der Anzahl  $n$  der im SIS-Verfahren integrierten Spurenstoffe. Das Invertieren der Matrix stellt den bei diesem Verfahren nötigen Rechenaufwand dar. Der Rechenzeitbedarf steigt mit  $n$  in der dritten Potenz.

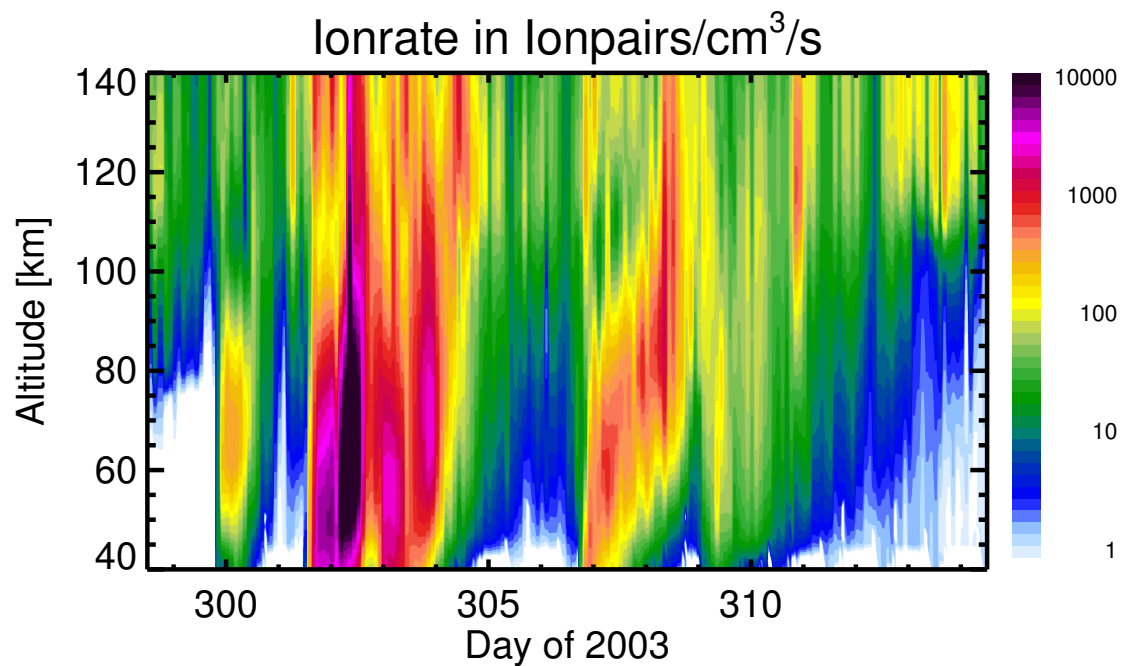


Abbildung 2.6: Durch Teilchenniederschlag erzeugte Ionisation während des solaren Protonenereignisses im Oktober und November 2003. Die dargestellten Ionisationsraten sind mit dem AIMOS-Modell berechnet. In dieser Abbildung sind Daten für 71 Grad nördlicher Breite und 0 Grad östlicher Länge gezeigt, wie sie für die entsprechenden Modellläufe mit dem eindimensionalen Chemiemodell verwendet werden (siehe Kapitel 3).

## 2.5 AIMOS Ionisationsraten

Das atmospheric ionization module Osnabrück (AIMOS) ist ein dreidimensionales numerisches Modell, welches die in der Atmosphäre auftretende Ionisation durch hochenergetische, geladene Teilchen orts- und höhenaufgelöst berechnen kann (Wissing und Kallenrode, 2009).

Die Simulation von auf die Erdatmosphäre auftreffenden Teilchen wird mit einem auf GEANT4 basierenden Monte-Carlo-Code durchgeführt (Agostinelli *et al.*, 2003). In diesem Schritt werden monoenergetische Teilchenstrahlen generiert und deren Wechselwirkung mit der Atmosphäre untersucht. Die Bildung von Kaskaden (bei genügend hoher Energie) sowie die Weiterpropagation von Sekundärteilchen ist mit berücksichtigt. Ergebnis der Simulation sind von Ort, Höhe und Energie der Teilchen abhängige Ionisationsraten für die im Modell enthaltenen Atmosphärensegmente.

Diese prinzipielle Untersuchung wird anschließend mit Daten aus Satellitenmessungen verknüpft. Hierzu werden Teilchenflüsse und -spektren, die von Instrumenten an Bord der Poes- und Goes-Satelliten aufgenommen werden, mit den Ergebnissen der allgemeinen Ionisationssimulation gefaltet. Die Teilchenflussmessungen liegen zunächst nur für die Orbits der Satelliten vor, für eine umfassende Abdeckung der Atmosphäre werden sie auf eine komplette Kugeloberfläche auf Höhe der Satellitenbahnen interpoliert. Hieraus

entsteht ein zeit-, orts- und höhenabhängiger Datensatz von Ionisationsraten der gesamten Atmosphäre. In Abbildung 2.6 ist beispielhaft gezeigt, welche Ionisationsraten AIMOS für das solare Protonenereignis im Oktober 2003 bei 71 Grad nördlicher Breite bereitstellt.

Die von AIMOS bereitgestellten Daten geben die Zahl der Ionisationen pro Zeit- und Volumeneinheit an. Der Datensatz umfasst die Jahre 2000 bis 2012 und stellt alle zwei Stunden aktuelle Werte für die gesamte Atmosphäre zur Verfügung. Für Zeiträume, in denen keine AIMOS-Daten zur Verfügung stehen, kann Ionisation durch Protonen auf Grundlage täglicher Daten nach (Vitt und Jackman, 1996; Jackman *et al.*, 1980) berücksichtigt werden, zusätzlich zur Photoionisation. Diese Daten verfügen über keine Ortsauflösung und werden auf die gesamten Polkappen ( $> 65^\circ$  Nord und Süd) angewendet.





# 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

## 3.1 Produktion von $\text{NO}_x$ und Ionenchemie

Durch den Einfluss von kurzwelliger Sonnenstrahlung und durch Teilchenniederschlag können die Hauptbestandteile der Atmosphäre,  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$  und  $\text{O}$ , ionisiert werden; außerdem sind Dissoziation und dissoziative Ionisation für die molekularen Bestandteile möglich, wobei auch angeregte Zustände der neutralen Produkte entstehen können. Die direkten Produkte des Einflusses von Teilchen und kurzwelliger Strahlung sind demnach  $\text{N}(^4\text{S})$ ,  $\text{N}(^2\text{D})$ ,  $\text{O}$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{N}^+$ ,  $\text{O}_2^+$  und  $\text{O}^+$ , wobei deren relative Häufigkeit vom Mischungsverhältnis der Edukte und der Energie des eintreffenden Teilchens bzw. Strahlungsquants abhängt.

Bei der Berechnung der Häufigkeitsverteilung wird bei Teilcheneinfluss davon ausgegangen, dass eine hinreichend hohe Teilchenenergie vorhanden ist, um Ionisation, Dissoziation und dissoziative Ionisation zu ermöglichen. Entsprechend der Wirkungsquerschnitte für die jeweiligen Vorgänge und der relativen Targethäufigkeit kann angegeben werden, mit welchem Anteil die jeweiligen Ionen in den Ionisationsprozessen gebildet werden. Eine Zusammenfassung mehrerer Betrachtungen ist in Tabelle 3.1 gezeigt. Verschiedene Werte ergeben sich zunächst durch verschiedene Messungen der Wirkungsquerschnitte. Es wurden die relativen Ionenproduktionsraten nach Kieffer und Dunn (1966) für alle folgenden Studien ausgewählt. Diese berücksichtigen die Wirkungsquerschnitte für Ionisation und dissoziative Ionisation von  $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$ , ähnlich wie in Rusch *et al.* (1981), und schließen die Ionisation von  $\text{O}$  mit ein, jedoch ohne die Normierungsfehler aus Jones und Rees (1973), die in Sinnhuber *et al.* (2012) übernommen wurden.

Bei Wechselwirkung von Photonen mit den Bestandteilen der Atmosphäre spielt die Wellenlänge der einfallenden Quanten eine entscheidende Rolle; je nach Photonenenergie werden bestimmte Wechselwirkungen erst ermöglicht. In Tabelle 3.2 sind einige typische Wechselwirkungsvorgänge mit den dazugehörigen Energien und Wellenlängen aufgelistet. Die wellenlängenabhängigen Wirkungsquerschnitte für Ionisation und Dissoziation durch kurzwellige ( $< 105 \text{ nm}$ ) Sonnenstrahlung werden beispielsweise in Solomon und Qian (2005) diskutiert, in Abschnitt 3.2 wird näher auf die Auswirkungen eingegangen. Eine Abhängigkeit der Wechselwirkungsprozesse von der Teilchenenergie ist analog zur Strahlung gegeben (Porter *et al.*, 1976). Diese wird in aktuellen Modellen und auch in dieser Arbeit jedoch nicht berücksichtigt, da die Teilchenenergie (auch von Sekundärteilchen) in praktisch allen Fällen hinreichend hoch ist, um alle Prozesse zu ermöglichen, woraus eine feste Verteilung der betreffenden Wahrscheinlichkeiten folgt. Außerdem löst die Berechnung der Ionisationsraten die geringen Bewegungsenergien von einigen zehn

Tabelle 3.1: Relative Produktionsraten für direkte Ionenproduktion

Ion	Rusch	J&R	Sinnh	K&D
$\text{N}_2^+$	$0.67 \cdot [\text{N}_2]/Q_R$	$0.61 \cdot [\text{N}_2]/Q_{JR}$	$0.46 \cdot [\text{N}_2]/Q_S$	$0.68 \cdot [\text{N}_2]/Q_K$
$\text{N}^+$	$0.21 \cdot [\text{N}_2]/Q_R$	$0.15 \cdot [\text{N}_2]/Q_{JR}$	$0.14 \cdot [\text{N}_2]/Q_S$	$0.22 \cdot [\text{N}_2]/Q_K$
$\text{O}_2^+$	$0.67 \cdot [\text{O}_2]/Q_R$	$0.67 \cdot [\text{O}_2]/Q_{JR}$	$0.67 \cdot [\text{O}_2]/Q_S$	$0.67 \cdot [\text{O}_2]/Q_K$
$\text{O}^+$	$0.33 \cdot [\text{O}_2]/Q_R$	$0.33 \cdot [\text{O}_2]/Q_{JR}$ $+0.37 \cdot [\text{O}]/Q_{JR}$	$0.33 \cdot [\text{O}_2]/Q_S$ $+0.37 \cdot [\text{O}]/Q_S$	$0.33 \cdot [\text{O}_2]/Q_K$ $+0.56 \cdot [\text{O}]/Q_K$
Produzierte Gesamtladung				
$Q_R$	$= 0.88 \cdot [\text{N}_2] + 1.00 \cdot [\text{O}_2]$			
$Q_{JR}$	$= 0.76 \cdot [\text{N}_2] + 1.00 \cdot [\text{O}_2] + 0.37 \cdot [\text{O}]$			
$Q_S$	$= 0.60 \cdot [\text{N}_2] + 1.00 \cdot [\text{O}_2] + 0.37 \cdot [\text{O}]$			
$Q_K$	$= 0.90 \cdot [\text{N}_2] + 1.00 \cdot [\text{O}_2] + 0.56 \cdot [\text{O}]$			

Referenzen: Rusch = Rusch *et al.* (1981), J&R = Jones und Rees (1973), Sinnh = Sinnhuber *et al.* (2012), K&D = Kieffer und Dunn (1966). Tabelle aus Nieder *et al.* (2014).

Tabelle 3.2: Photoreaktionen und ungefähre Wellenlängenschwellwerte, nach Solomon und Qian (2005)

$\text{O}_2 + h\nu \rightarrow \text{O}_2^+ + e^-$	12 eV	100 nm
$\text{O}_2 + h\nu \rightarrow \text{O}^+ + \text{O} + e^-$	19 eV	65 nm
$\text{N}_2 + h\nu \rightarrow \text{N}_2^+ + e^-$	17 eV	75 nm
$\text{N}_2 + h\nu \rightarrow \text{N}^+ + \text{N} + e^-$	39 eV	32 nm

Elektronenvolt, bei denen unterschiedliche Wahrscheinlichkeiten der verschiedenen Prozesse eine Rolle spielen, nicht auf.

Durch den Einfluss von Teilchen und Strahlung kann die Zusammensetzung der Atmosphäre dauerhaft verändert werden. Dies betrifft insbesondere die Bildung von  $\text{NO}_x$  ( $\text{N} + \text{NO} + \text{NO}_2$ ); einerseits kann atomarer Stickstoff direkt durch Dissoziationsprozesse gebildet werden, andererseits führen Folgereaktionen, an denen die primären Produkte des Teilchen- und Strahlungseinflusses beteiligt sind, zur Bildung von  $\text{N}$  und  $\text{NO}$ .  $\text{NO}_2$  entsteht aus  $\text{NO}$  bei Reaktion mit Ozon und wird durch Photolyse wieder zersetzt. Beispiele für die Bildung von  $\text{NO}$  sind die Einzelreaktion



oder eine Reaktionskette wie



und anschließender Reaktion 3.1.

Reaktionen, an denen mindestens ein geladenes oder angeregtes Edukt beteiligt ist, laufen in der Regel bedeutend schneller ab als solche, in denen ausschließlich neutrale Stoffe

Tabelle 3.3: Vergleich von NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten

Quelle	Direkt	Effektiv	NO pro NO <sub>x</sub>
Porter, 1 MeV	1.044		0.48
Porter, asympt.	1.1		
Rusch	0.8 - 1.21	1.2 - 1.61	0.8
Rusch, Korrektur	0.84 - 1.53	1.24 - 1.93	
Jackman		1.25	0.55
Sinnhuber, UBIC	0.985		0.5
UBIC, diese Arbeit	1.1	s. Abschnitt 3.1	0.48

Direkte und effektive NO<sub>x</sub>-Produktion pro Ionenpaar aus verschiedenen Quellen (Porter = Porter *et al.* (1976); Rusch = Rusch *et al.* (1981); Jackman = Jackman *et al.* (1980); Sinnhuber = Sinnhuber *et al.* (2012)) sowie Aufteilung von NO pro NO<sub>x</sub> in der direkten Produktion. Ratenkoeffizienten in 1 pro Ionenpaar, NO pro NO<sub>x</sub> dimensionslos. Aus den in Rusch *et al.* (1981) angegebenen Werten für die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_I$  und  $\sigma_D$  zur Berechnung der direkten Produktion  $P_1(N)$  werden die hier gezeigten Werte gewonnen. Höhenabhängigkeit wird in keiner bisherigen Veröffentlichung angegeben. Tabelle nach Nieder *et al.* (2014).

reagieren. So ist beispielsweise Reaktion 3.1 auch mit atomarem Stickstoff im Grundzustand möglich, läuft jedoch bedeutend langsamer ab als mit N(<sup>2</sup>D) (Rees, 1989; Sander *et al.*, 2011).

Der Beitrag der ionischen Reaktionspfade wird in Nieder *et al.* (2014) erstmals detailliert untersucht und in Abschnitt 3.1.1 diskutiert. Hierbei wird unterschieden zwischen der direkten Produktion von NO<sub>x</sub> (durch Dissoziation und die unmittelbar ablaufende Reaktion 3.1), der indirekten Produktion durch eine oder mehrere Folgereaktionen, und der effektiven Produktion, die sich als Summe der beiden erstgenannten berechnet.

Ergebnisse bisheriger Studien zu den NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten sind in Tabelle 3.3 aufgelistet. Die Produktionsratenkoeffizienten geben an, welche Menge an NO<sub>x</sub> im Mittel je gebildetem Primärionenpaar entsteht.

Die Unterscheidung zwischen der Produktion von N und NO ist wichtig, da atomarer Stickstoff sowohl zur Bildung als auch zum Abbau von NO beitragen kann. Für die Bildung ist die Reaktion



verantwortlich, für den Abbau von NO die Reaktion



Ausschlaggebend dafür, welche Reaktion bevorzugt abläuft, ist neben den Stoffkonzentrationen auch die Temperatur (Dobbin *et al.*, 2006). Bei hohen Temperaturen, wie sie in der Thermosphäre herrschen, macht Reaktion 3.4 einen zunehmenden Anteil aus. Bei niedrigeren Temperaturen in darunterliegenden Höhen verursacht vermehrte Bildung von N(<sup>4</sup>S) also einen Abbau von NO<sub>x</sub>.

### 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

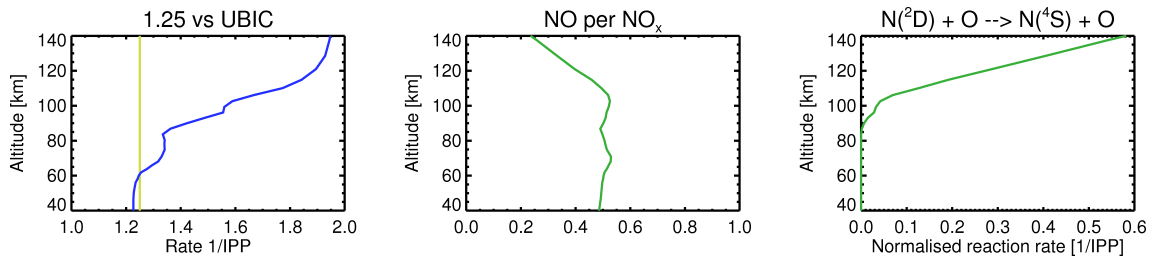


Abbildung 3.1: Ergebnisse der Vorstudien mit dem Ionenchemiemodell UBIC. Links: Höhenprofil der effektiven  $\text{NO}_x$ -Produktionsrate, normiert auf die Ionisationsrate. Zum Vergleich ist die konstante Produktion von 1,25 pro Ionenpaar mit eingezeichnet. Mitte: Verhältnis zwischen produziertem NO und produziertem  $\text{NO}_x$  als Höhenprofil. Das Verhältnis ist für neutrale Folgereaktionen wichtig. Rechts: Höhenprofil der Reaktion 3.6, die für die Abnahme des NO-Anteils mit der Höhe verantwortlich ist. Abbildung nach Nieder *et al.* (2014).

In Abbildung 3.1 (links) sind  $\text{NO}_x$ -Produktionsraten gezeigt, die sich in einem Referenzlauf des eindimensionalen Chemiemodells mit expliziter Ionenchemie ergeben. Hierbei wird in UBIC immer eine direkte Produktionsrate von 1,1  $\text{NO}_x$  pro Ionenpaar verwendet; die zunehmende Bedeutung der indirekten Produktion durch Folgereaktionen mit zunehmender Höhe ist in den Endergebnissen der UBIC-Berechnungen klar erkennbar. Dieser Beitrag steigt von etwa 0,15 pro Ionenpaar in der Stratosphäre bis hin zu 0,85 pro Ionenpaar in der Thermosphäre. Mit zunehmender Höhe geht deswegen die Übereinstimmung mit den konstanten Produktionsratenkoeffizienten zurück.

In Abbildung 3.1 (Mitte) ist das Verhältnis zwischen produziertem NO und produziertem  $\text{NO}_x$  für denselben Zeitpunkt im Referenzlauf gezeigt. Der Grund für die deutliche Abnahme der Produktion von NO ist die Reaktion



die aufgrund der starken Zunahme des Gehalts an atomarem Sauerstoff mit zunehmender Höhe wichtiger wird (Abbildung 3.1, rechts).

#### 3.1.1 Abhängigkeit der $\text{NO}_x$ -Produktion vom Zustand der Atmosphäre

Bereits mit Kenntnis weniger Reaktionspfade zur Bildung von N und NO ist klar, dass die zu erwartende Menge von äußeren Parametern abhängt. Dazu zählen insbesondere die Konzentrationen der an den Reaktionen beteiligten Stoffe selbst und die Temperatur der reagierenden Gase. Zur Untersuchung des Einflusses veränderlicher Parameter wurden Vorstudien durchgeführt, in denen in einem wiederkehrenden Szenario jeweils ein Parameter verändert wurde. Die Simulation wird mit einem eindimensionalen Chemiemodell durchgeführt, welches das Ionenchemiemodell UBIC aufruft. Der Simulationszeitraum enthält das solare Protonenereignis von Oktober/November 2003. Verglichen wird in den

Studien die effektive Produktionsrate von NO<sub>x</sub>, normiert auf die Ionenpaarproduktionsrate. Diese Werte werden als Produktionsratenkoeffizienten bezeichnet.

### Abhängigkeit von atomarem Sauerstoff

In Abbildung 3.2 sind die Ergebnisse zweier solcher Vorstudien gezeigt und die jeweiligen Kausalzusammenhänge dargestellt. Die Variation des Volumenmischungsverhältnisses von atomarem Sauerstoff beeinflusst die NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten in Höhen oberhalb von 80km (Abbildung 3.2, oben links). Eine Erhöhung des Gehalts an atomarem Sauerstoff der Atmosphäre hat einen höheren NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten zur Folge; umgekehrt führt eine Verringerung des O-Anteils zu geringerer NO<sub>x</sub>-Produktion verglichen mit den Ergebnissen des Originaldurchlaufs (der mit Spurenstoffkonzentrationen aus WACCM-Ergebnissen ohne Veränderung initialisiert ist). Die Höhenbeschränkung des Effekts ist Folge der generellen Verfügbarkeit von atomarem Sauerstoff; diese ist unterhalb von etwa 80km sehr gering, das Volumenmischungsverhältnis fällt im Originalszenario von > 10<sup>-3</sup> in 85 km Höhe bis auf 10<sup>-5</sup> auf 75 km Höhe ab. Ausschlaggebend für den Zusammenhang mit den NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten sind insbesondere zwei Reaktionen, die zur NO<sub>x</sub>-Bildung beitragen; erstens



die NO über die unmittelbare Weiterreaktion von N(<sup>2</sup>D) durch 3.1 erzeugt und zusätzlich über die mögliche Rekombination von NO<sup>+</sup> durch 3.3 und anschließender Reaktion 3.1, und zweitens über die Reaktion



die bei zunehmender Verfügbarkeit von O durch die damit einhergehende Zunahme der Produktion von O<sup>+</sup> häufiger abläuft. Für Reaktion 3.7 ist der typische Beitrag zur NO<sub>x</sub>-Produktion im Originalszenario in Abbildung 3.2 (oben rechts) gezeigt.

### Abhängigkeit von Wasserdampf

Der Einfluss veränderlicher Mengen an Wasserdampf auf die NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten wurde in einer weiteren Vorstudie untersucht. Wie in Abbildung 3.2 (unten links) gezeigt ist, hat eine Abnahme des Wasserdampfgehalts größere NO<sub>x</sub>-Produktionsratenkoeffizienten zur Folge. Der Effekt ist auf Höhen zwischen ungefähr 50km und etwa 65km beschränkt. Der Effekt und seine Höhenbeschränkung erklären sich durch den Anteil an Wasserclusterionen X<sup>+</sup>(H<sub>2</sub>O)<sub>n</sub> an der Gesamtladung. Im Originalszenario akkumulieren Wasserclusterionen die gesamte positive Ladung zwischen 40km und 65km Höhe; steht weniger Wasser zur Verfügung, werden zunehmend NO<sup>+</sup>-Ionen gebildet, wodurch Produktion von N und NO durch Rekombination analog Reaktion 3.3 oder mit negativen Ionen stattfindet, also



### 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

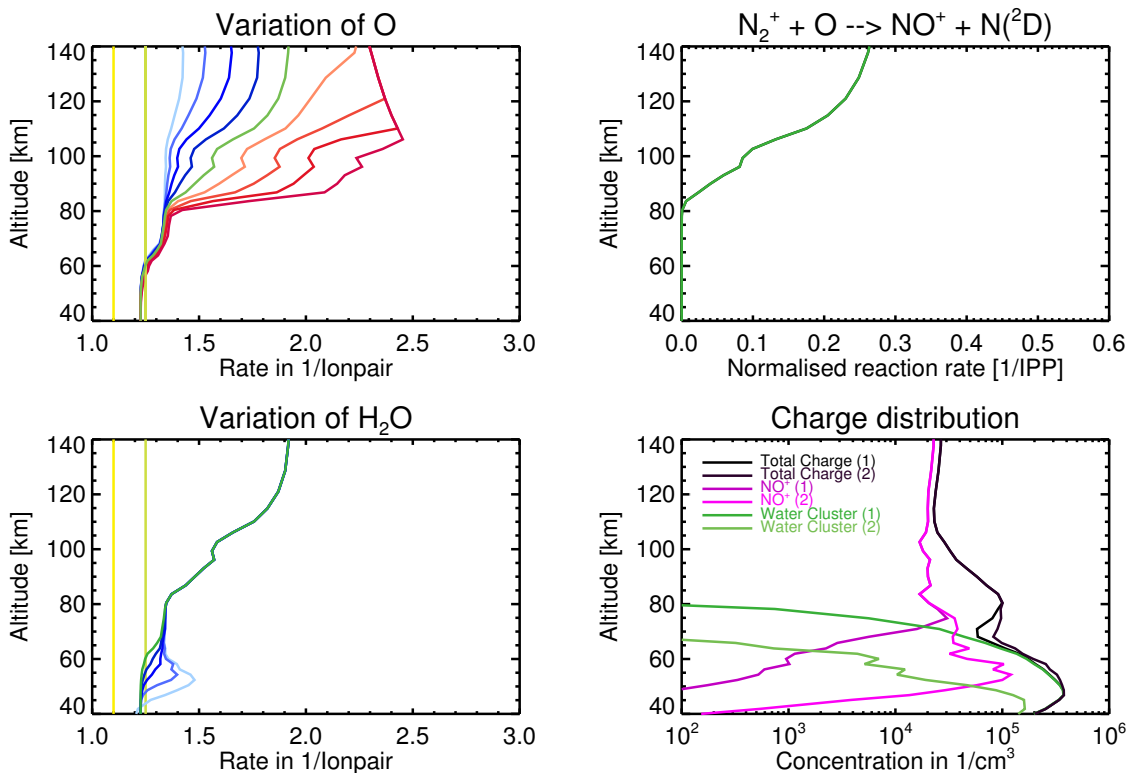


Abbildung 3.2: Höhenprofile zur Veranschaulichung der Variation des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten. In der linken Spalte ist der Koeffizient als Funktion der Höhe gezeigt, wie er aus Modellstudien mit dem Ionenchemiemodell UBIC während des solaren Protonenereignisses von Oktober/November 2003 erhalten wird. Oben links ist zusätzlich zum Originalszenario (grün) noch die Veränderung des Koeffizienten bei verringertem (blau: 1/2, 1/4, 1/8, 1/16) oder erhöhtem (rot: 2-, 4-, 8-, 16-fachem) Gehalt von atomarem Sauerstoff dargestellt. Oben rechts ist ein Höhenprofil von Reaktion 3.7, entsprechend dem Originalszenario, gezeigt. Sie stellt einen wesentlichen Grund für den charakteristischen Höhenverlauf des Koeffizienten und für dessen Abhängigkeit vom Volumenmischungsverhältnis von atomarem Sauerstoff dar. Unten links: Höhenprofil des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten im Originalszenario (grün) und für Modellläufe mit verringertem Wassergehalt (1/4, 1/16, 1/64, 1/256: dunkelblau...hellblau). Unten rechts: Ionenverteilung von  $\text{NO}^+$ -ionen und Wasserclusterionen im Originalszenario (1) und für verringerten Wassergehalt (1/256, 2). Die Ionenverteilung ist der wesentliche Grund für die Abhängigkeit des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten vom Volumenmischungsverhältnis von Wasser. Abbildung nach Nieder *et al.* (2014).

Tabelle 3.4: Wertebereiche für die sieben Parameter, von denen der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizient abhängt. Tabelle aus Nieder *et al.* (2014).

Index	O	NO	N	H <sub>2</sub> O	Temp K	Rho 1/cm <sup>3</sup>	IONR 1/cm <sup>3</sup> s
1	1.00(-12)	4.00(-15)	5.00(-13)	1.00(-10)	80	2.00(+9)	5.00(+0)
2	6.46(-9)	4.00(-11)	8.00(-10)	1.82(-9)	140	2.00(+10)	1.00(+2)
3	4.00(-8)	1.13(-9)	2.53(-8)	3.31(-8)	200	2.00(+11)	2.00(+3)
4	2.48(-7)	3.17(-8)	8.00(-7)	6.03(-7)	260	2.00(+12)	4.00(+4)
5	1.53(-6)	8.94(-7)	2.53(-5)	1.10(-5)	320	2.00(+13)	
6	9.48(-6)	2.52(-5)	8.00(-4)	2.00(-4)	380	2.00(+14)	
7	5.87(-5)	7.10(-4)			440	2.00(+15)	
8	3.63(-4)	2.00(-2)			500	2.00(+16)	
9	2.25(-3)				560	2.00(+17)	
10	1.39(-2)				620	2.00(+18)	
11	1.60(-1)				680		
12	3.00(-1)				740		

Die Ionenkonzentrationen für das Originalszenario und eines mit reduziertem Wassergehalt sind in Abbildung 3.2 (unten rechts) gezeigt.

### Abhängigkeit von weiteren Parametern

Um weitere Zusammenhänge mit dem Zustand der Atmosphäre zu finden, kann die Methode technisch optimiert werden. Dazu wird das Ionenchemiemodell immer für jeweils eine einzelne Berechnung mit einem gegebenen Zustand der Atmosphäre aufgerufen, und gibt die in diesem Fall resultierenden  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten zurück. Auf diese Weise lassen sich mit überschaubarem Rechenaufwand viele verschiedene Parameterkombinationen untersuchen.

Untersucht wurde die Veränderung der  $\text{NO}_x$ -Produktionsrate durch Variation der folgenden Parameter im simulierten Atmosphärensegment:

- Dichte der Luft
- Temperatur der Luft
- Volumenmischungsverhältnis von atomarem Sauerstoff
- Volumenmischungsverhältnis von NO
- Volumenmischungsverhältnis von atomarem Stickstoff
- Volumenmischungsverhältnis von Wasserdampf
- Ionisationsrate.

Für diese Parameter wurden jeweils physikalisch sinnvolle Wertebereiche und darin mehrere diskrete Werte festgelegt, für die jeweils die Berechnungen der Produktionsratenkoeffizienten durchgeführt werden. Diese Werte sind in Tabelle 3.4 dargestellt. Insgesamt

ergeben sich mit dieser Konfiguration  $12 \cdot 8 \cdot 6 \cdot 6 \cdot 12 \cdot 10 \cdot 4 = 1658880$  Kombinationen der Parameter.

Einige exemplarische grafische Darstellungen der Veränderung der Produktionsratenkoeffizienten mit verschiedenen Parametern sind in Abbildung 3.3 gezeigt. Parameterkombinationen, die in der Atmosphäre nicht vorkommen, sind dabei ausgelassen. Ermittelt werden die entsprechenden Kombinationen durch Analyse von Modelldaten (3dCTM, WACCM; Modellläufe mit dem 3dCTM werden in Kapitel 4 beschrieben).

In Abbildung 3.3 (oben links) wird die Abhängigkeit des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten vom Wassergehalt und vom  $\text{NO}$ -Gehalt der Atmosphäre veranschaulicht. Den anderen Parametern sind dabei feste Werte zugeordnet, die anhand des dazugehörigen Index' aus der Bildüberschrift und aus Tabelle 3.4 ersehen werden können. Die Reihenfolge der Parameter in der Bildüberschrift ist Ionisationsrate, Dichte, Temperatur,  $\text{VMR}(\text{O})$ ,  $\text{VMR}(\text{NO})$ ,  $\text{VMR}(\text{N})$ ,  $\text{VMR}(\text{H}_2\text{O})$ . Zunächst wird deutlich, dass der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizient sowohl vom Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}$  ( $y$ -Achse) als auch vom Volumenmischungsverhältnis von Wasser ( $x$ -Achse) abhängt. Desweiteren ist erkennbar, dass die Veränderung des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten mit den beiden Parametern nicht unabhängig voneinander gegeben ist, sondern vielmehr die Variation mit dem Wasserdampfgehalt ihrerseits vom  $\text{NO}$ -Gehalt der Atmosphäre abhängt.

In Abbildung 3.3 (oben rechts) ist das gleiche Szenario wie in Abbildung 3.3 (oben links) dargestellt, lediglich die Ionisationsrate ist verschieden und beträgt hier  $100 \frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$  anstatt  $5 \frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$ . Die Variation des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten ist qualitativ gleich wie im verwandten Szenario, die Amplitude der Veränderung fällt hier jedoch geringer aus. Dieser Zusammenhang kann für viele Parameterkombinationen beobachtet werden und ist Sättigungseffekten der Ionen in der geladenen Atmosphäre zuzurechnen; die direkte Produktion von  $\text{NO}$  und  $\text{N}$  fällt dann im Vergleich stärker ins Gewicht.

In Abbildung 3.3 (Mitte links) ist die Veränderung des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten mit Dichte und Temperatur bei sonst gleichbleibenden Bedingungen zu sehen. Auch in diesem Schaubild wird deutlich, dass die Veränderung des Koeffizienten von beiden Parametern gleichzeitig abhängt.

Die Variation des Koeffizienten mit Gehalt an atomarem Sauerstoff und  $\text{N} (^4\text{S})$  (Abbildung 3.3, Mitte rechts) zeigt im gewählten Szenario eine nur geringfügige Abhängigkeit von  $\text{N} (^4\text{S})$  und den stark ansteigenden Produktionsratenkoeffizienten für Situationen, in denen Sauerstoff fast ausschließlich in atomarer Form vorliegt.

Die Veranschaulichung der Abhängigkeit des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten vom Volumenmischungsverhältnis von atomarem Sauerstoff und der Dichte der Modellatmosphäre (Abbildung 3.3, unten links) zeigt, dass der Koeffizient nicht direkt von der Dichte des atomaren Sauerstoffs abhängt; wäre dies der Fall, würden gleiche Koeffizienten auf Diagonalen von oben rechts nach unten links vorliegen (entsprechend einem gleichbleibenden Produkt aus Luftdichte und Mischungsverhältnis, welches der Dichte des atomaren Sauerstoffs entspricht), was in der Abbildung jedoch nicht zu erkennen ist. Desweiteren ist bemerkenswert, wie bei niedrigem  $\text{VMR}(\text{O})$  (Index 2) der Koeffizient mit zunehmender Dichte erst ansteigt (Index 8) und dann zu noch höheren Dichten wieder abfällt. Dies ist auf Sättigungseffekte der Ionisation bei hohen Dichten zurückzuführen.

Die Veranschaulichung des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten in Abhängigkeit vom Volumenmischungsverhältnis von Wasser und der Dichte der Atmosphäre (Abbildung 3.3,



unten rechts) zeigt erneut keine Abhängigkeit von der Dichte von Wasser; außerdem ist auch hier die Abhängigkeit nicht durch zwei unabhängige Funktionen (eine für Wasser, eine für die Dichte) darstellbar.

Insgesamt ist aus den Veranschaulichungen in Abbildung 3.3 zu erkennen, dass wechselnde atmosphärische Bedingungen deutliche Auswirkungen auf die Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Teilchenniederschlag haben können.

### 3.1.2 Technische Umsetzung von Ionenchemiemodellierung in 3d-Modellen

Aus den Vorstudien in Abschnitt 3.1.1 hat sich ergeben, dass die effektive Produktion von  $\text{NO}_x$  vom Zustand der Atmosphäre abhängt. Um dieses Ergebnis in Modellrechnungen mit dreidimensionalen Chemietransportmodellen zu berücksichtigen, ist es nötig, die Produktionsrate für jede Modellbox getrennt zu berechnen. Bedingt durch die Komplexität des Ionenchemiemodells ist jedoch der Ansatz, die volle Ionenchemie im dreidimensionalen Modell mitberechnen zu lassen, aufgrund der begrenzten Rechenkapazitäten ausgeschlossen.

Es bietet sich daher an, die Variation des Produktionsratenkoeffizienten zu berücksichtigen, indem zu jeder in Tabelle 3.4 dargestellten relevanten Parameterkombination die effektive  $\text{NO}_x$ -Produktionsrate in einer Datenbank gespeichert wird, aus der mit geringem Aufwand zum aktuellen Zustand der Atmosphäre in jeder Modellbox der Wert des Produktionsratenkoeffizienten ausgelesen werden kann. Um dabei auch die Verteilung von  $\text{NO}_x$  auf N und NO zu berücksichtigen, werden zwei solcher Datenbanken erstellt; eine für die Produktion von N je Ionenpaar und eine für die Produktion von NO je Ionenpaar. Beim Auslesen der Datenbanken in Modellläufen wird für jede Modellbox der Zustand der Atmosphäre in eine Kombination der Indexwerte aus Tabelle 3.4 umgewandelt, wobei zwischen den diskreten Werten der Parameter logarithmisch interpoliert wird (mit Ausnahme der Temperatur) und Dezimalwerte erhalten bleiben. Mit der so erhaltenen Index-Kombination wird eine lineare Interpolation in sieben Dimensionen durchgeführt, d.h. es werden 128 benachbarte Werte aus der Datenbank mit verschiedenen Gewichtungungen berücksichtigt. Die Gewichtung ergibt sich dabei aus der Multiplikation aller sieben Abstände  $d$  auf der durch die Indizes vorgegebenen Skala zu den jeweils benachbarten Parameterwerten, für die die expliziten Berechnungen vorliegen, wobei Werte mit größerem Abstand weniger berücksichtigt werden:

$$W = \prod_i (1 - d(x_i)) \quad (3.10)$$

mit  $\vec{x} = [R_{\text{ion}}, \rho, T, \text{VMR}(\text{H}_2\text{O}), \text{VMR}(\text{O}), \text{VMR}(\text{NO}), \text{VMR}(\text{N})]$ . Um zu testen, inwieweit diese Methode die Ergebnisse der Berechnungen mit voller Ionenchemie direkt im Modelllauf reproduzieren kann, kann sie auch in das eindimensionale Chemiemodell implementiert werden, welches den direkten Vergleich ermöglicht. Ergebnisse dieser Vergleichsstudien werden in Abschnitt 3.3.1 erläutert.

### 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

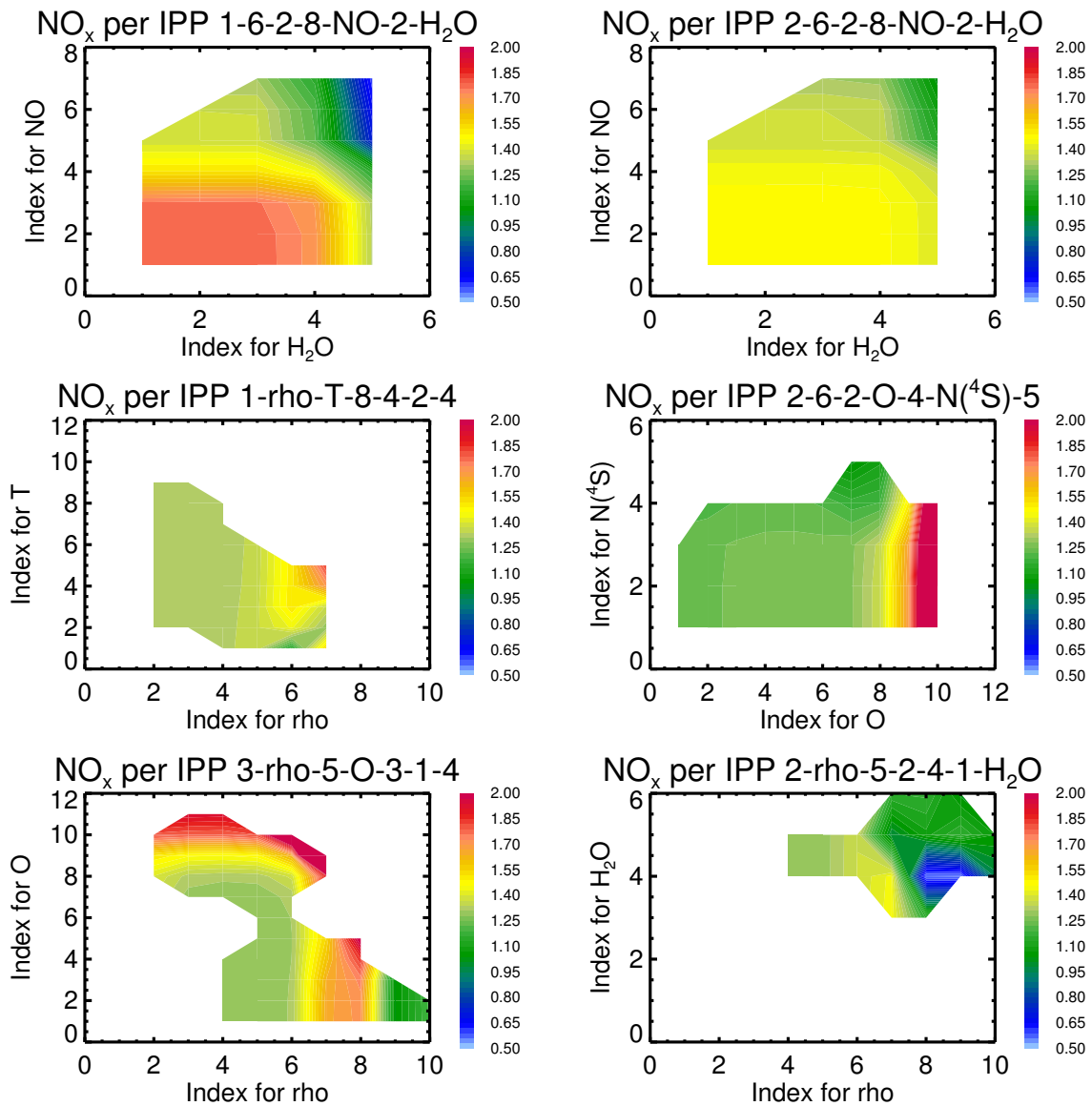


Abbildung 3.3: Schaubilder zur Abhängigkeit des  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten von verschiedenen atmosphärischen Parametern. Die Parameter sind jeweils über einen Index definiert, der in Tabelle 3.4 den Werten der Parameter zugeordnet ist. In den Überschriften der Schaubilder ist der Zustand der Atmosphäre über die Indexfolge Ionisationsrate, Dichte, Temperatur,  $\text{VMR}(\text{O})$ ,  $\text{VMR}(\text{NO})$ ,  $\text{VMR}(\text{N})$  und  $\text{VMR}(\text{H}_2\text{O})$  definiert, wobei jeweils zwei der Parameter variieren und die resultierenden Produktionsratenkoeffizienten anhand der Farbskala in 1 pro Ionenpaar dargestellt sind. Parameterkombinationen, die unter realistischen Bedingungen nicht vorkommen, sind ausgelassen. Oben links: Variation von  $\text{VMR}(\text{NO})$  und  $\text{VMR}(\text{H}_2\text{O})$  bei sonst unveränderten Bedingungen. Oben rechts: gleich wie oben links, jedoch bei höherer Ionisationsrate. Mitte links: Variation von Dichte und Temperatur der Atmosphäre. Mitte rechts: Variation von  $\text{VMR}(\text{O})$  und  $\text{VMR}(\text{N}^{(4\text{S})})$ . Unten links: Variation von Dichte der Atmosphäre und  $\text{VMR}(\text{O})$ . Unten rechts: Variation von Dichte und  $\text{VMR}(\text{H}_2\text{O})$ . Abbildung aus Nieder *et al.* (2014).

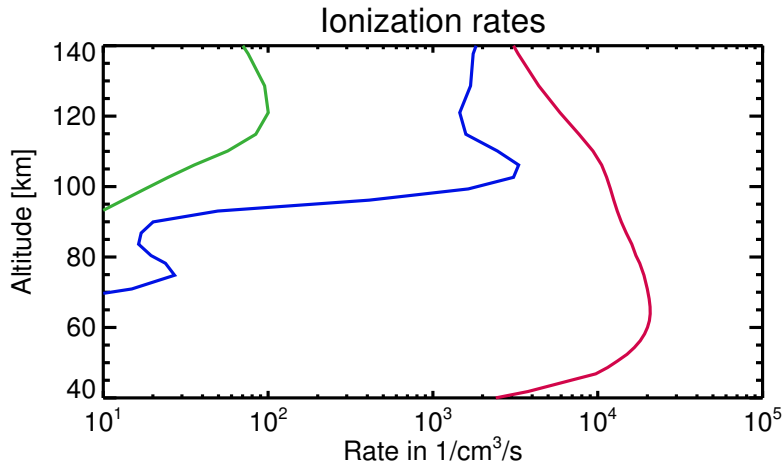


Abbildung 3.4: Vergleich verschiedener Ionisationsquellen im Höhenprofil, in 71 Grad nördlicher Breite. Rot Protonen während des Halloween-SPEs, Blau Photoionisation bei hochstehender Sonne (Zenitwinkel 20 Grad), Grün Auroraelektronen (permanente Ionisation).

## 3.2 Berücksichtigung von Photoionisation

### 3.2.1 Vergleich verschiedener Quellen von Ionisation

Neben Teilchenniederschlag durch die Aurora, geomagnetische Stürme oder solare Protonenereignisse ist Photoionisation eine wichtige Quelle von Ionisation und durch die damit verbundenen Folgereaktionen auch eine Quelle von  $\text{NO}_x$ . In Abbildung 3.4 sind beispielhaft Höhenprofile der aus den verschiedenen Quellen zu erwartenden Ionisationsraten gezeigt. Niederschlag von Auroraelektronen ist auf das Aurora-Oval, die geomagnetischen Breiten zwischen etwa dem 70. und etwa dem 75. Breitengrad (Nord wie Süd) beschränkt (Brasseur und Solomon, 1986). Durch Auroraelektronen werden über die meiste Zeit keine hohen Ionisationsraten erreicht (Maximum etwa  $100 \frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$ ), der Elektronenniederschlag besteht jedoch fortwährend in Höhen oberhalb von etwa 100 km. Während geomagnetischer Stürme sind allerdings bedeutend höhere Raten von mehreren  $1000 \frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$  möglich. Solare Protonenereignisse erreichen die gesamte Polarregion polwärts von  $\pm 60^\circ$  geomagnetischer Breite; sie finden unregelmäßig und mit stark schwankender Intensität statt. Ionisationsraten bis zu  $40000 \frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$  sind möglich, wobei das Maximum der Ionisation in Höhen um etwa 60 km liegt, abhängig vom Energiespektrum der einfallenden Protonen (Wissing und Kallenrode, 2009). Photoionisation schließlich findet über alle Breitengrade statt, ausgenommen in der Polarnacht. Besonders in niedrigen Breiten ist die dauerhafte Sonneneinstrahlung die einzige Quelle von Ionisation in der oberen Mesosphäre und Thermosphäre. Die Raten erreichen mehrere  $1000 \frac{1}{\text{cm}^3\text{s}}$ , Photoionisation ist dabei auf Höhen oberhalb von etwa 90 km beschränkt (Solomon und Qian, 2005).

### 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

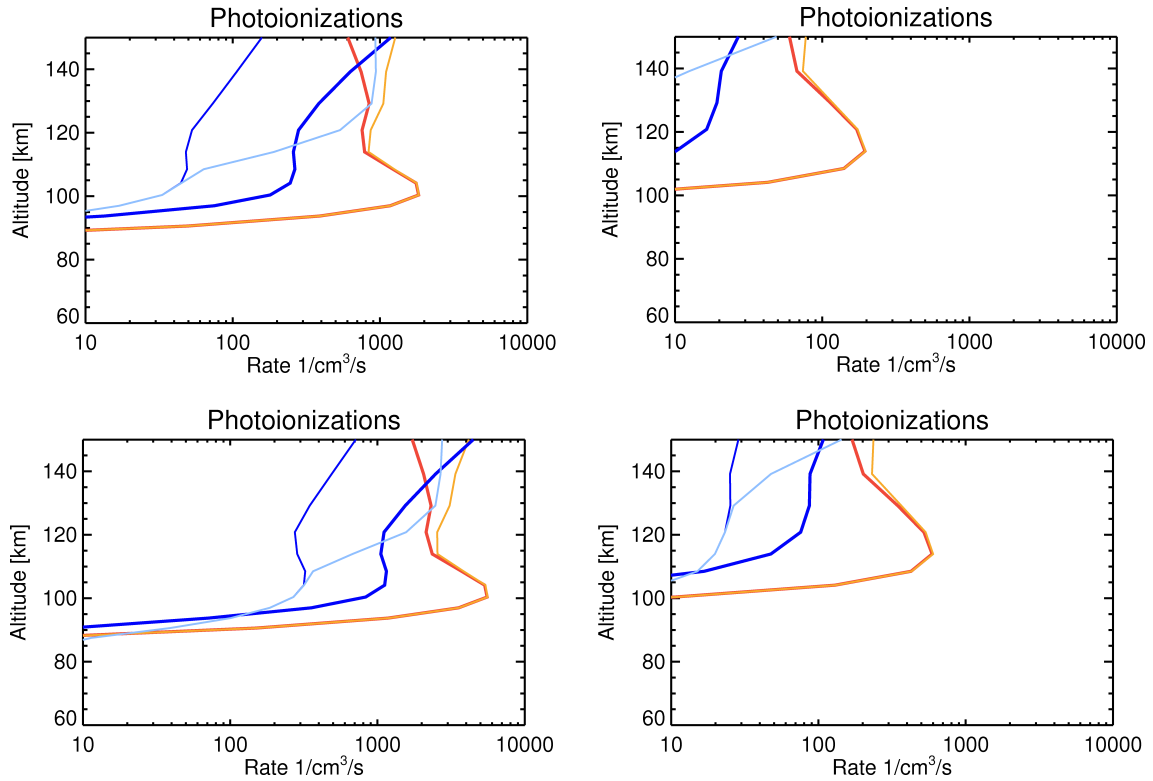


Abbildung 3.5: Produktion von Primärionen und atomarem Stickstoff durch Photoionisation. Die Höhenprofile stellen  $\text{O}_2^+$  (rot),  $\text{O}^+$  (orange),  $\text{N}_2^+$  (blau, dick),  $\text{N}^+$  (blau, dünn) und  $\text{N}(^4\text{S})$  (hellblau) dar. Die beiden oberen Schaubilder zeigen die Ionisationsraten für solares Minimum ( $F_{10.7} = 70$ , 90-Tage-Mittelwert  $\langle F_{10.7} \rangle = 70$ ), die unteren für solares Maximum ( $F_{10.7} = 220$ ,  $\langle F_{10.7} \rangle = 180$ ). In den linken Bildern sind Ergebnisse für hochstehende Sonne (im Zenit) gezeigt, rechts für tiefstehende Sonne (Zenitwinkel = 80 Grad).

#### 3.2.2 Ionenproduktion durch Photoionisation

Um die Photoionisation genauer zu untersuchen, wird ein parametrisiertes Sonnenspektrum im extremen UV mit  $\lambda \leq 105 \text{ nm}$  verwendet (Solomon und Qian, 2005), welches in Bezug auf Photoionisation und -dissoziation nur wenig bedeutende Unterschiede zu hochaufgelösten Spektren zeigt. Das Eindringen der Sonnenstrahlung in die Atmosphäre wird in der Modellrechnung mit einem einfachen Lambert-Beer-Gesetz beschrieben:

$$I(\lambda, z_1) = I(\lambda, z_0) \cdot \exp\left(-\sum_j \sigma_j(\lambda) \cdot N_j(z) / \cos(\alpha)\right) \quad (3.11)$$

wobei  $I$  die Strahlungsintensität (z.B. in Photonen je  $\text{cm}^2$  und Sekunde) für jeden diskreten Wellenlängenbereich (mit mittlerer Wellenlänge  $\lambda$ ) in Abhängigkeit von der Höhe  $z$  ist (vergleiche (Solomon und Qian, 2005)),  $\sigma$  den wellenlängenabhängigen Wirkungsquerschnitt für Absorption bezeichnet (für verschiedene Absorptionsmedien  $j$ , z.B.  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$

und O),  $N_j$  die Säulendichte der Absorptionsmedien und  $\alpha$  den Sonnenzenitwinkel. Aus der Absorption für die einzelnen Bestandteile der Atmosphäre und der wellenlängenabhängigen Wahrscheinlichkeit für Ionisation, Dissoziation und dissoziative Ionisation kann dann die Produktionsrate der Primärionen  $N_2^+$ ,  $N^+$ ,  $O_2^+$  und  $O^+$  berechnet werden. Sekundäre Photoelektronen sind in der Parametrisierung von (Solomon und Qian, 2005) berücksichtigt. Die Modellatmosphäre wird für diese Rechnung vereinfachend als planparallel angenommen, woraus eine unterschätzte Photoionisationsrate bei großen Sonnenzenitwinkeln resultiert. Diese Abweichung kann aufgrund der ohnehin geringen Photoionisationsrate in diesem Fall jedoch in der Gesamtbetrachtung vernachlässigt werden.

In Abbildung 3.5 sind Höhenprofile der relativen Ionenverteilung für Photoionisation gezeigt. Bei hoher Sonnenaktivität, hier beispielsweise bei einem solaren Radioflussindex von  $F_{10.7} = 220 \frac{10^{-22} \text{ W}}{\text{m}^2 \text{ Hz}}$ , und der Sonne im Zenit werden die höchsten Ionisationsraten erreicht. Im gezeigten Beispiel in Abbildung 3.5 (oben links) werden etwa 8000 Ionisationen pro Kubikzentimeter und Sekunde in 100km Höhe erreicht, wovon jeweils knapp die Hälfte auf die Bildung von  $O_2^+$ -Ionen und  $O^+$ -Ionen entfällt, einige hundert pro Kubikzentimeter und Sekunde auf die Bildung von  $N_2^+$  und etwa  $200 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$  je auf  $N^+$  und  $N(^4\text{S})$ . Diese Verteilung verändert sich deutlich mit der Höhe: In 150km Höhe werden vor allem  $O^+$  und  $N_2^+$  (jeweils  $3000 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$ ) produziert, desweiteren atomarer Stickstoff ( $2000 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$ ) und  $O^+$  (etwas über  $1000 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$ ). Unterhalb von etwa 90km findet praktisch keine Photoionisation mehr statt.

Bei flacher Sonneneinstrahlung verlängert sich der Lichtweg durch die Atmosphäre bis zum Erreichen der jeweiligen Höhe. Durch die damit einhergehende Absorption verringern sich die in der unteren Thermosphäre erreichten Ionisationsraten (Abbildung 3.5 oben rechts). Bei einem Sonnenzenitwinkel von 80 Grad beträgt die maximale Ionisationsrate noch etwa  $1000 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$  in 110km Höhe, wiederum je zur Hälfte auf die Produktion von  $O_2^+$  und  $O^+$  verteilt. Die Verteilung als Funktion der Höhe ändert sich wegen des größeren Absorptionsweges dahingehend, dass in etwa die gleichen Verteilungen wie unter senkrechter Einstrahlung erreicht werden, jedoch jeweils in größerer Höhe. Beispielsweise ähnelt die relative Ionenverteilung in 150km Höhe, bei 80 Grad Sonnenzenitwinkel, stark der relativen Verteilung, die unter senkrechter Einstrahlung in 120km Höhe erreicht wird, bei insgesamt geringerer Ionisationsrate (Abbildung 3.5 oben rechts und oben links). Bei geringer Sonnenaktivität wird gegenüber hoher Aktivität eine insgesamt verringerte Photoionisationsrate erzeugt (Abbildung 3.5 unten links und unten rechts), im gezeigten Beispiel bei  $F_{10.7} = 70 \frac{10^{-22} \text{ W}}{\text{m}^2 \text{ Hz}}$  etwa  $4000 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$ . Die relative Verteilung ähnelt dabei sehr stark derjenigen bei hoher Sonnenaktivität. Gleiches gilt für die Photoionisation unter 80 Grad Sonnenzenitwinkel und geringer Sonnenaktivität (Abbildung 3.5, unten rechts), die eine maximale Gesamtionisationsrate von etwa  $400 \frac{1}{\text{cm}^3 \text{ s}}$  zur Folge hat.

#### 3.2.3 Parametrisierung der $\text{NO}_x$ -Produktion durch Photoionisation

Da Photoionisation genau wie Ionisation durch Teilchenniederschlag zur Bildung von  $\text{NO}_x$  führen kann, ist eine Berücksichtigung in Simulationen mit Chemietransportmodellen von Bedeutung. Hierzu muss jedoch die Verteilung der Primärionen besonders be-

### 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

trachtet werden; sie unterscheidet sich bedeutend von derjenigen, die bei Teilchenniederschlag erreicht wird (siehe auch Tabelle 3.2 und Abschnitt 3.2.2). Zusätzlich hängt die Primärionenverteilung bei Photoionisation vom Sonnenzenitwinkel und von der Sonnenaktivität ab, welche sich laufend ändern, wodurch sich ständig wechselnde relative Häufigkeiten der Ionen ergeben. Die indirekte  $\text{NO}_x$ -Produktion hängt maßgeblich von der Verteilung der produzierten Ionen ab; so tragen  $\text{N}_2^+$ -Ionen durch die mögliche Weiterreaktion zu  $\text{NO}^+$  und  $\text{N}(^2\text{D})$  (3.7) bedeutend bei. Für Sauerstoffionen existieren solche Pfade nicht; sie können aber durch Ladungsaustausch, z.B.



ebenfalls zur  $\text{NO}_x$ -Produktion beitragen. Da außer dem Ladungsaustausch (3.12) auch andere Reaktionen ablaufen können, die nicht zur  $\text{NO}_x$ -Produktion führen, ist der Beitrag von Sauerstoffionen geringer als der von Stickstoffionen, vor allem  $\text{N}_2^+$ . Um den Effekt von Photoionisation angemessen in der  $\text{NO}_x$ -Bildung zu berücksichtigen, muss also auch die relative Häufigkeit der Primärionen berücksichtigt werden.

Technisch realisiert wird dies durch weitere Parameter im Datenbanksystem, die die Verteilung der Ionen abbilden. Um Speicherplatzbedarf und Erstellungsrechenzeit der Datenbank gering zu halten, wird die Umsetzung in mehreren Punkten angepasst. Zunächst genügt es, wenn die Lösung Photoionisation oberhalb von etwa 80km darstellen kann. Es wird deshalb ein kombiniertes Datenbanksystem erstellt, welches unterhalb von 80km die Datenbank für Teilcheneinfluss verwendet und oberhalb von 80km eine neue Datenbank, die die Primärionenverteilung berücksichtigt. Diese zweite Datenbank muss nur einen reduzierten Dichtebereich abdecken (sechs statt zehn Werte) und kann außerdem darauf verzichten, für verschiedene Volumenmischungsverhältnisse von Wasserdampf die Produktionsratenkoeffizienten vorzuhalten (ein Wert statt sechs), da oberhalb von 80km praktisch keine Wasserclusterionen mehr gebildet werden (siehe auch Abbildung 3.2). Durch eine grobere Abstufung der Temperatur (sieben statt zwölf Werte) und den Verzicht auf Stützstellen bei sehr kleinen Mischungsverhältnissen von atomarem Sauerstoff (acht statt zwölf Werte) wird so insgesamt erreicht, dass die zweite Datenbank vor Berücksichtigung der Ionenverteilung nur noch etwa  $\frac{1}{25}$  der Einträge der Teilchendatenbank enthält.

Die so gewonnenen zusätzlichen Kapazitäten werden für neue Parameter genutzt. Es wird dabei der insgesamt mögliche Bereich der Ionenverteilung abgedeckt und als Ionentypen werden  $\text{NO}^+$ ,  $\text{N}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{O}^+$  und  $\text{O}_2^+$  einbezogen. Stichprobenartige Untersuchungen zum Zusammenhang der Ionenverteilung mit den  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten ergaben nahezu lineare Abhängigkeiten von den einzelnen Ionentypen; es reichen somit wenige Stützstellen für die multilineare Interpolation aus. Die neuen Parameter sind in Tabelle 3.5 aufgeführt und ihre Werte angegeben.

Tabelle 3.5: Neue Parameter für Photoionisation

Index	$\text{NO}^+$	$\text{N}^+ + \text{N}_2^+$	$\text{N}_2^+$	$\text{O}_2^+$
	Ionenpaar	$\text{N}^+ + \text{N}_2^+ + \text{O}^+ + \text{O}_2^+$	$\text{N}^+ + \text{N}_2^+$	$\text{O}^+ + \text{O}_2^+$
1	0,0	0	0	0
2	0,5	1	1	1
3	1,0			

Tabelle 3.6: Vergleich der 1d-Modelllaufzeiten mit verschiedener Berechnung der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten

Ansatz	Zeitschritt	Schwelle	CPU-Zeit
UBIC	$10^{-3}$ s	$1 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$	$> 86400$ s
red. IC + konst.	$10^{-2}$ s	$10 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$	1466 s
red. IC + konst.	$10^{-2}$ s	$100 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$	420 s
Datenbank	-	-	22 s
konstant 1.25	-	-	22 s

Vergleich der CPU-Zeit für einen Referenzlauf. Der Zeitschritt bezieht sich auf das Ionenchemiemodell, sofern Ionen explizit berechnet werden. Die Schwelle ist derjenige Ionisationswert, ab dem explizite Ionenchemie berechnet wird (sonst 1.25 pro Ionenpaar). Tabelle nach Nieder *et al.* (2014).

### 3.3 1d-Modellstudien zur parametrisierten Produktion von $\text{NO}_x$

#### 3.3.1 Datenbanklösung und UBIC

Die Bestimmung der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus der vorberechneten Datenbank funktioniert mit einem angemessen geringen Rechenzeitbedarf, wie in Tabelle 3.6 dargestellt ist. Beim Vergleich mit der Berechnung aus reduzierter Ionenchemie ist zu beachten, dass in Modellen wie WACCM, die diesen Ansatz wählen, die Ionen in die Matrix des Chemiemodells integriert sind und immer mitgerechnet werden. Die relative Rechenzeitzunahme beträgt in diesem Fall  $\frac{(n+5)^3 - n^3}{n^3}$  bei  $n$  neutralen Stoffen und fünf Ionen und ist im Allgemeinen geringer als bei Neuberechnung des Gleichgewichts der geladenen Atmosphäre wie in den Testläufen. Die Mitberechnung der Ionen bringt allerdings neue Anforderungen an den Zeitschritt mit sich, die zusätzlich berücksichtigt werden müssen. Die Genauigkeit der Datenbankmethode ist für ihren Nutzen ausschlaggebend. Zur Untersuchung wird die multilineare Interpolation der vorberechneten Produktionsratenkoeffizienten mit direkt im Modelllauf berechneten Ratenkoeffizienten verglichen. Wegen des Rechenzeitbedarfs werden diese Vergleichsstudien mit dem eindimensionalen Chemiemodell durchgeführt. Simuliert wird ein Zeitraum ab dem 25. Oktober 2003 bis 10. November 2003, der damit ein großes solares Protonenereignis enthält. Dieses wird über

### 3 Produktion von $\text{NO}_x$ durch Teilchen- und Strahlungseinfluss

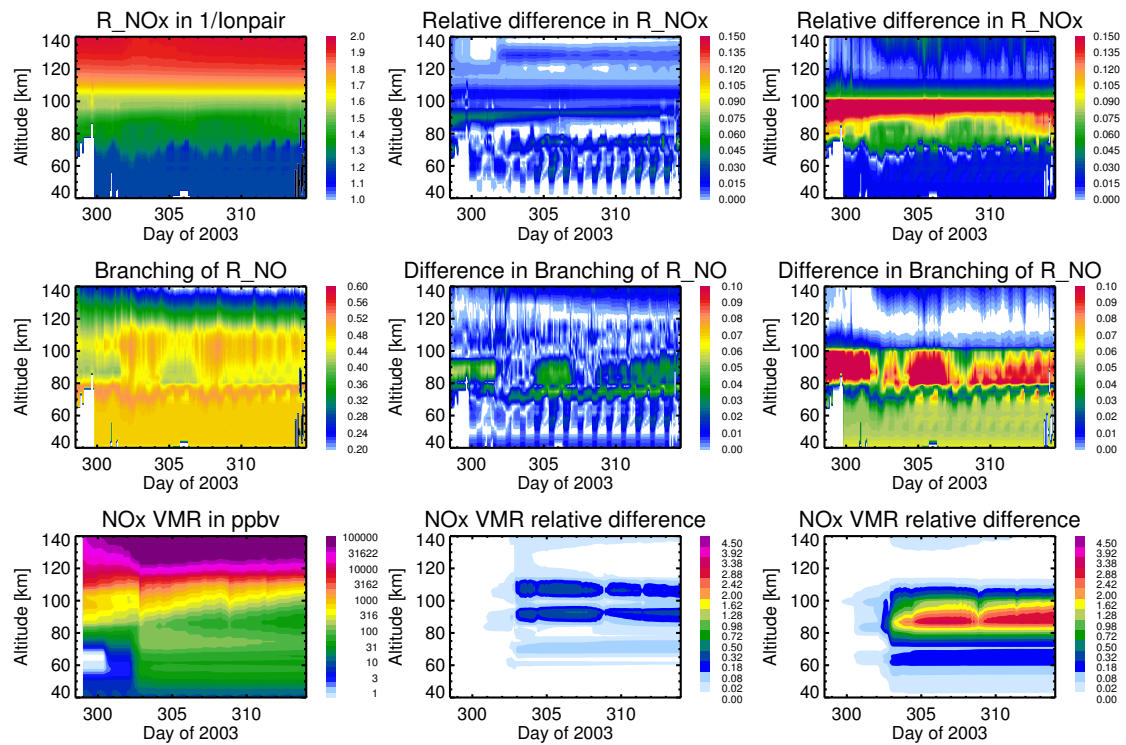


Abbildung 3.6: Vergleich des Ionenchemiemodells UBIC, der Datenbanklösung für  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten, und bisher verwendeter Ansätze mit konstantem Koeffizienten und höhenbeschränkter vereinfachter Ionenchemie am Beispiel des Halloween-SPE 2003. Details zu den Modellstudien im Text. Oben links:  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten im gewählten Szenario als Funktion von Höhe und Zeit, berechnet mit dem Ionenchemiemodell UBIC. Oben Mitte: Relative Differenz der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus UBIC-Berechnungen und denen aus Verwendung der Datenbanklösung. Oben rechts: Relative Differenz der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus UBIC-Berechnungen und derer aus Verwendung der konstanten Koeffizienten bis 100km Höhe und dem vereinfachten Ionenchemiemodell darüber. Mitte links: Anteil der Produktion von NO an der Produktion von  $\text{NO}_x$  in den Berechnungen mit UBIC. Mitte: Absolute Differenz im NO-Anteil zwischen UBIC und Datenbanklösung. Mitte rechts: Absolute Differenz im NO-Anteil zwischen UBIC und konstanter Näherung bzw. vereinfachtem Ionenchemiemodell. Unten links: Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}_x$  im untersuchten Szenario bei Verwendung der Produktionsratenkoeffizienten von UBIC im eindimensionalen Chemiemodell. Unten Mitte: Relative Differenz im  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnis zwischen den Ergebnissen mit UBIC-Produktionsratenkoeffizienten und Datenbank-Produktionsratenkoeffizienten. Unten rechts: Relative Differenz im  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnis zwischen den Ergebnissen mit UBIC-Produktionsratenkoeffizienten und konstanten Produktionsratenkoeffizienten bzw. denen aus vereinfachter Ionenchemie. Abbildung nach Nieder *et al.* (2014).



die für diesen Zeitraum verfügbaren AIMOS-Ionisationsraten (Wissing und Kallenrode, 2009) implementiert (siehe Abschnitt 2.5). Abbildung 2.6 zeigt den zeitlichen Verlauf der verwendeten Ionisationsraten bei 71 Grad nördlicher Breite als Funktion der Höhe, wo Haupt- und Nebenereignis des SPE klar durch die hohen Ionisationsraten zu erkennen sind.

Ein weiterer Vergleichslauf wird mit einem stark vereinfachten Ionenchemiemodell, das oberhalb von 100km Höhe aufgerufen wird und sonst die konstante Näherung nach Jackman *et al.* (1980) verwendet, durchgeführt. Dies stellt den aktuellen Stand der Technik dar. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.6 gezeigt.

Das erste Vergleichskriterium sind die  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten, die von den drei verschiedenen Lösungen ausgegeben werden. In Abbildung 3.6 (oben links) sind die von UBIC berechneten Werte gezeigt. Sie ändern sich im vorliegenden Szenario vor allem mit der Höhe (vergleiche auch Abbildung 3.1), vom Betrag her kleinere Änderungen über die Zeit finden ebenfalls statt. Zum Vergleich ist in Abbildung 3.6 (oben mitte) die relative Differenz  $|R_{\text{UBIC}} - R_{\text{DB}}|/R_{\text{UBIC}}$  mit den Produktionsratenkoeffizienten  $R_{\text{UBIC}}$  des UBIC-Laufs und  $R_{\text{DB}}$  des Datenbanklaufs gezeigt. Die relative Differenz beträgt in den meisten Berechnungen weniger als drei Prozent; in etwa 90km Höhe, 70km und 55km Höhe werden zum Teil auch Werte über 5 Prozent erreicht, niemals jedoch mehr als 10 Prozent.

Der Vergleich zwischen UBIC und dem stark vereinfachten Ionenchemiemodell in Kombination mit den konstanten Produktionsratenkoeffizienten fällt differenzierter aus. Die relative Differenz der Produktionsratenkoeffizienten (analog zum Vergleich UBIC - Datenbank) ist in Abbildung 3.6 (oben rechts) gezeigt. Das reduzierte Ionenchemiemodell wird im Höhenbereich oberhalb vom 100km verwendet; zwischen 100km und 107km Höhe beträgt der Unterschied zu UBIC etwa sieben Prozent; oberhalb dieser Höhe ist die Differenz für alle Berechnungen kleiner als 5 Prozent, in den meisten Fällen auch kleiner als drei Prozent. Unterhalb von 100km Höhe wird eine konstante  $\text{NO}_x$ -Produktionsrate von 1,25 pro Ionenpaar angenommen; sie unterscheidet sich im Höhenbereich zwischen 80km und 100km Höhe erheblich von den UBIC-Ergebnissen und Abweichungen von weniger als 10 Prozent werden nur selten erreicht, aber oft über 15 Prozent. Die Differenz ist dann minimal, wenn die höchsten Ionisationsraten vorliegen (vergleiche Abbildung 2.6 und Abschnitt 3.1.1). Die konstante Näherung erreicht ihre beste Übereinstimmung mit UBIC unterhalb von 65km Höhe; dort ist die relative Differenz kleiner als dreieinhalb Prozent.

Das zweite Vergleichskriterium ist das Verhältnis von produziertem NO zu produziertem  $\text{NO}_x$ . Dieses Verhältnis ist wichtig, weil atomarer Stickstoff sowohl NO bilden als auch abbauen kann (siehe Abschnitt 3.1). In Abbildung 3.6 (mitte links) ist dieses Verhältnis als Ergebnis der UBIC-Rechnung gezeigt. Neben den zeitlichen Änderungen, die teilweise mit den zugrundeliegenden Ionisationsraten korreliert sind, wird das in Abbildung 3.1 gezeigte Profil des Verhältnisses über weite Teile der Simulation qualitativ erreicht.

In Abbildung 3.6 (Mitte) ist die absolute Differenz  $|B_{\text{UBIC}} - B_{\text{DB}}|$  der jeweiligen NO-zu- $\text{NO}_x$ -Verhältnisse gezeigt. Unterschiede von mehr als 0,03 treten nur zwischen 70km und 100km Höhe auf; zu den Zeiten höchster Ionisationsraten (vgl. Abbildung 2.6) wird die Differenz zusätzlich im Bereich zwischen 80km und 100km Höhe geringer als etwa 0,02. Das reduzierte Ionenchemiemodell gibt das Verhältnis zwischen NO und  $\text{NO}_x$  hervorragend wieder (Abbildung 3.6, mitte rechts); oft ist die Abweichung von UBIC praktisch

null, sonst kleiner als 0,02. Unterhalb von 100km Höhe, im Bereich der konstanten Näherung, liegt die Abweichung oft bei Werten um etwa 0,05 und zum Teil auch darunter; zwischen 80km und 100km Höhe werden jedoch fast durchgehend höhere Abweichungen erreicht, auch Werte über 0,1. Zum Zeitpunkt der größten Ionisation ist die Abweichung geringer.

Als drittes Vergleichskriterium wird untersucht, wie sich die verschiedenen  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten auf das im eindimensionalen Chemiemodell erhaltene  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnis auswirken. Abbildung 3.6 (unten links) zeigt dessen zeitlichen Verlauf in Abhängigkeit von der Höhe, wie er unter Verwendung der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus UBIC simuliert wird. Der Beginn des Protonenereignisses ist durch eine Zunahme des  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnisses an Tag 302 in allen Höhen charakterisiert. Im weiteren Verlauf wird  $\text{NO}_x$  chemisch abgebaut, insbesondere durch photolytische Aufspaltung in N und O und durch Reaktion 3.5. Das Nebenmaximum des Protonenereignisses an Tag 308 führt nochmals zu einer kurzfristigen Zunahme des  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnisses.

In Abbildung 3.6 (unten mitte) ist die relative Differenz

$$|\text{VMR}(\text{NO}_x)_{\text{UBIC}} - \text{VMR}(\text{NO}_x)_{\text{DB}}| / \text{VMR}(\text{NO}_x)_{\text{UBIC}}$$

gezeigt. Sie beträgt meistens weniger als 18 Prozent; zwischen 85km und 95km Höhe und zwischen 102km und 110km Höhe wird mit Beginn des Protonenereignisses eine bis zu 50 Prozent große Differenz erreicht. Sie ist im Zusammenhang mit der Tatsache, dass sich das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}_x$  über mehrere Größenordnungen ändert und stark mit der Höhe variiert, als gering einzustufen. Im Gegensatz dazu wird bei Verwendung der konstanten Produktionsratenkoeffizienten das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}_x$  im Vergleich zum Referenzlauf mit UBIC zwischen 85 km und 95 km Höhe um ein mehrfaches überschätzt (Abbildung 3.6, unten rechts), was nicht mehr als vernachlässigbar betrachtet werden kann. Das reduzierte Ionenchemiemodell kann beim  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnis die Ergebnisse von UBIC oberhalb von etwa 105 km Höhe praktisch ohne Abweichungen reproduzieren. Unterhalb dieser Höhe ergaben sich in Testläufen teils erhebliche Abweichungen, weshalb hier die reduzierte Ionenchemie nicht verwendet werden kann.

Zusammenfassend ergibt der Vergleich der verschiedenen Methoden zur Bestimmung der  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten, dass in der Thermosphäre, oberhalb von etwa 105 km Höhe, das volle Ionenchemiemodell UBIC, das reduzierte Ionenchemiemodell und die Datenbank sehr gut übereinstimmende Ergebnisse liefern; für möglichst geringen Rechenzeitbedarf ist die Datenbanklösung vorzuziehen. Zwischen 70km und 105km Höhe liefert nur die Datenbanklösung hinreichend gute Ergebnisse bei vertretbarem Rechenzeitbedarf. Unterhalb von 70km Höhe ist auch die Verwendung der konstanten Produktionsratenkoeffizienten möglich, mit nur geringen Unterschieden zu UBIC und Datenbanklösung.

#### 3.3.2 Datenbank für Photoionisation

Die Datenbankerweiterung für Photoionisation wird ebenfalls auf ihre Übereinstimmung mit dem vollen Ionenchemiemodell getestet. Hierzu wird ein Szenario im Juli 2000 bei

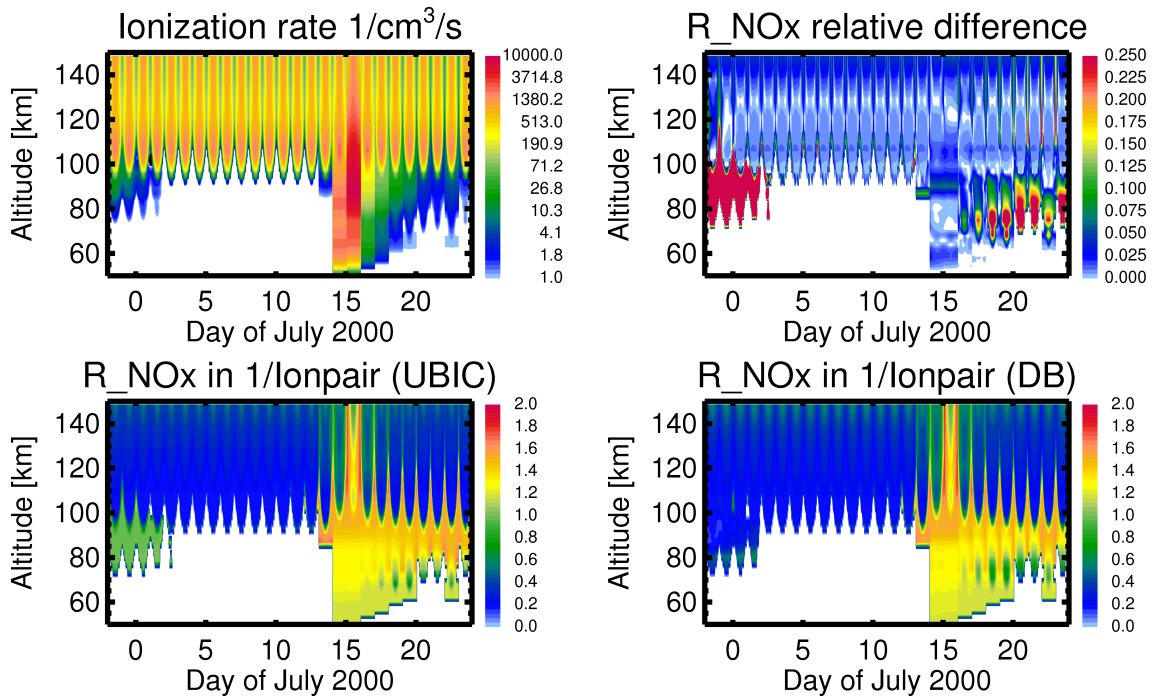


Abbildung 3.7: Vergleichsstudie zwischen UBIC und der Datenbanklösung für Ionisation aus beliebigen Quellen. Es wird ein Szenario im Juli 2000 mit SPE und Photoionisation betrachtet. Oben links: Ionisationsrate durch Photoionisation und Protonen. Unten links:  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus Berechnungen von UBIC. Unten rechts:  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus der Datenbanklösung. Oben rechts: relative Differenz zwischen UBIC-Ergebnissen und den Koeffizienten aus der Datenbank.

etwa 70 Grad nördlicher Breite simuliert; es enthält sowohl ein solares Protonenereignis als auch tägliche Photoionisation. Die akkumulierten Ionisationsraten aus beiden Quellen sind in Abbildung 3.7 (oben links) gezeigt. Bis einschließlich 13. Juli findet ausschließlich Photoionisation mit nennenswertem Einfluss statt; vom 14. bis 17. Juli findet zusätzlich ein solares Protonenereignis mit Maximum am 15. Juli statt. In Höhen von etwa 80 km bis 95 km findet zu Beginn der Simulation und im Anschluss an das Protonenereignis Photoionisation von  $\text{NO}$  statt.

Der Vergleich von zwei Simulationen, einmal mit voller Ionenchemie und einmal mit der erweiterten Datenbanklösung, ermöglicht, die erweiterte Datenbanklösung gleichzeitig sowohl für Photoionisation als auch für Teilchenniederschlag zu testen, den sie oberhalb von etwa 80 km weiterhin darstellen soll. Die  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten aus dem Modelllauf mit voller Ionenchemie sind in Abbildung 3.7 (unten links) gezeigt. Im Mittel führt Photoionisation zu einer deutlich geringeren  $\text{NO}_x$ -Bildung als Teilchenniederschlag, was vor allem durch die deutlich seltenere direkte Produktion durch Dissoziation von  $\text{N}_2$  bedingt ist. Insofern erübrigt es sich, einen Vergleich mit konstanter Bildungsrate von 1,25 pro Ionenpaar durchzuführen.

Die mit der erweiterten Datenbanklösung erhaltenen  $\text{NO}_x$ -Produktionsratenkoeffizienten sind in Abbildung 3.7 (unten rechts) dargestellt. Es ergibt sich qualitativ eine gute Über-

einstimmung mit dem Ionenchemiemodell. Zum quantitativen Vergleich ist in Abbildung 3.7 (oben rechts) die relative Differenz  $|R_{\text{UBIC}} - R_{\text{DB}}|/R_{\text{UBIC}}$  mit den Produktionsratenkoeffizienten  $R_{\text{UBIC}}$  des UBIC-Laufs und  $R_{\text{DB}}$  des Datenbanklaufs gezeigt. Die Differenz ist dabei immer geringer als 5 Prozent, mit Ausnahme der folgenden Situationen:

- Bei stattfindender Photoionisation von NO. Hier ist möglicherweise noch ein Fehler im Modell zu finden. Der Beitrag ist jedoch insgesamt gering mit höchstens einigen zehn Photoionisationen pro Kubikzentimeter und Sekunde, siehe auch Abbildung 3.4.
- Nachts bei sehr geringer Gesamtionisationsrate. Es ist zu erwarten, dass diese Abweichungen bei geringer Ionisation keine wesentlichen Auswirkungen auf die Chemie der Atmosphäre haben.
- In Höhen zwischen etwa 85 km und 95 km bei Teilchenionisation. Hier ist der Grad der Übereinstimmung gleich wie bei Verwendung der Datenbankversion ohne Photoionisation (siehe auch Abbildung 3.6, oben Mitte). Ein Nachteil durch die zusätzlich mögliche Berücksichtigung von Photoionisation entsteht auch bei starkem Teilchenniederschlag nicht.

## Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Ionisationsprozesse ausgehend von Teilchenniederschlag und kurzwelliger Strahlung ( $\lambda \lesssim 105 \text{ nm}$ ) untersucht. Anhand von Studien mit dem Ionenchemiemodell UBIC wurde gezeigt, dass die  $\text{NO}_x$ -Produktion dabei in etwa proportional zur Ionisationsrate ist, der Proportionalitätsfaktor jedoch vom Zustand der Atmosphäre abhängt. Ausschlaggebend sind Dichte und Temperatur sowie die Volumenmischungsverhältnisse von O, NO, N und  $\text{H}_2\text{O}$ . Unter Berücksichtigung dieser Parameter zeigt sich eine Abweichung zur bisher meist verwendeten konstanten Produktion von  $1,25 \text{ NO}_x$  pro Ionenpaar insbesondere in Höhen oberhalb von 80 km. Außerdem ergeben sich Abweichungen von der bisher meist ebenfalls konstant angenommenen Aufteilung der Produktion auf N und NO, die aufgrund der verschiedenen möglichen Folgereaktionen wichtig sind.

Um dreidimensionalen Modellen die Produktionsratenkoeffizienten und die Aufteilung zwischen N und NO zur Verfügung zu stellen, wurde eine Datenbanklösung entwickelt. Diese enthält vorberechnete Produktionsratenkoeffizienten in Abhängigkeit des Zustands der Atmosphäre und muss zur Modelllaufzeit lediglich ausgelesen werden. Gegenüber konstanter Parametrisierung wird dadurch eine bedeutend realistischere Darstellung der  $\text{NO}_x$ -Produktion insbesondere oberhalb von 80 km Höhe erreicht, und gegenüber Ionenchemiemodellen eine immense Einsparung an Rechenzeit.

Bei der Berücksichtigung von Photoionisation fällt außerdem noch eine energieabhängige Verteilung der primär entstehenden Ionen ins Gewicht. Eine für Photoionisation erweiterte Datenbank umfasst deswegen auch die Primärionenverteilung. So sind zur gemeinsamen Berücksichtigung von Teilchen- und Photoionisation in 3d-Modellen als Eingangsgrößen die o.g. Zustandsparameter nötig sowie die Gesamtionisationsrate und deren Verteilung auf die Primärionen  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{N}^+$ ,  $\text{O}_2^+$ ,  $\text{O}^+$  und  $\text{NO}^+$ .

## 4 Modellstudien mit dem dreidimensionalen Chemietransportmodell

In diesem Kapitel werden Studien mit dem 3dCTM vorgestellt, in denen der zeitliche Verlauf der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre in drei Dimensionen aufgelöst und über Zeiträume von mehreren Jahren simuliert wird. Das 3dCTM ist in Abschnitt 2.3 beschrieben. Zum Einsatz kommen bei den im Folgenden gezeigten Studien auch die neu entwickelten Module für die Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Teilchenniederschlag und durch Photoionisation sowie für variable solare Einstrahlung im gesamten Spektrum.

Für die genaueren Untersuchungen wurden mehrere verschieden konfigurierte Modellläufe durchgeführt, so dass sich aus deren direktem Vergleich Rückschlüsse auf den Einfluss einzelner Parameter bzw. der technischen Methoden ergeben. Die Konfigurationsmöglichkeiten sowie die Auswahl der Modellläufe sind in Tabelle 4.1 dargestellt. So stehen für den Teilcheneinfluss die Möglichkeiten zur Verfügung, ihn zu ignorieren, nur Protonen zu berücksichtigen, oder Protonen und Elektronen zu berücksichtigen; Die Menge an produziertem  $\text{NO}_x$  durch Teilcheneinfluss kann konstant mit 1,25  $\text{NO}_x$  pro Ionenpaar oder variabel aus der Datenbanklösung (siehe Abschnitt 3.1.2) festgelegt werden;  $\text{NO}_x$  aus Photoionisation kann wahlweise mit berücksichtigt werden oder nicht, und die Photolysereaktionen in der Berechnung der neutralen Chemie können von einem festen Sonnenspektrum angetrieben werden oder von einem variablen. Von den sich ergebenden Kombinationen wurden die repräsentativen ausgewählt (ebenfalls in Tabelle 4.1 dargestellt) und analysiert. Es entfallen Kombinationen ohne Teilcheneinfluss, da hier Datenbank oder konstante Bildung von  $\text{NO}_x$  nicht von Interesse sind, außerdem ist aus Gründen der Implementierung die Berücksichtigung von Photoionisation nicht gänzlich ohne Teilchenniederschlag möglich. Weiterhin dient die Verwendung der konstanten  $\text{NO}_x$ -Produktionsrate lediglich als Kontrolllauf, weshalb keine weiteren Kombinationen jener mit anderen Konfigurationen zur Analyse benötigt werden. Die Modellläufe, in denen Teilchenniederschlag ausschließlich durch Protonen einbezogen wird, sind nur zur Bestimmung der Einzelbeiträge nötig, deswegen entfallen die Kombinationen mit verschiedenen  $\text{NO}_x$ -Bildungsraten und dem variablen Sonnenspektrum. Alle Läufe starten gemeinsam am 1. Januar 1999 und werden aus derselben Konfiguration der Atmosphäre initialisiert. Wie der zur Initialisierung verwendete Zustand erzeugt wird, ist in Abschnitt 2.3.6 beschrieben.

Der erste Kontrollvergleich betrifft die Produktionsratenkoeffizienten der Bildung von  $\text{NO}_x$  durch Teilcheneinfluss. Hierzu ist der direkte Vergleich zwischen konstanter Produktion und Datenbanknutzung bei gleicher Ionisationsrate in Abbildung 4.1 gezeigt. Die

#### 4 Modellstudien mit dem dreidimensionalen Chemietransportmodell

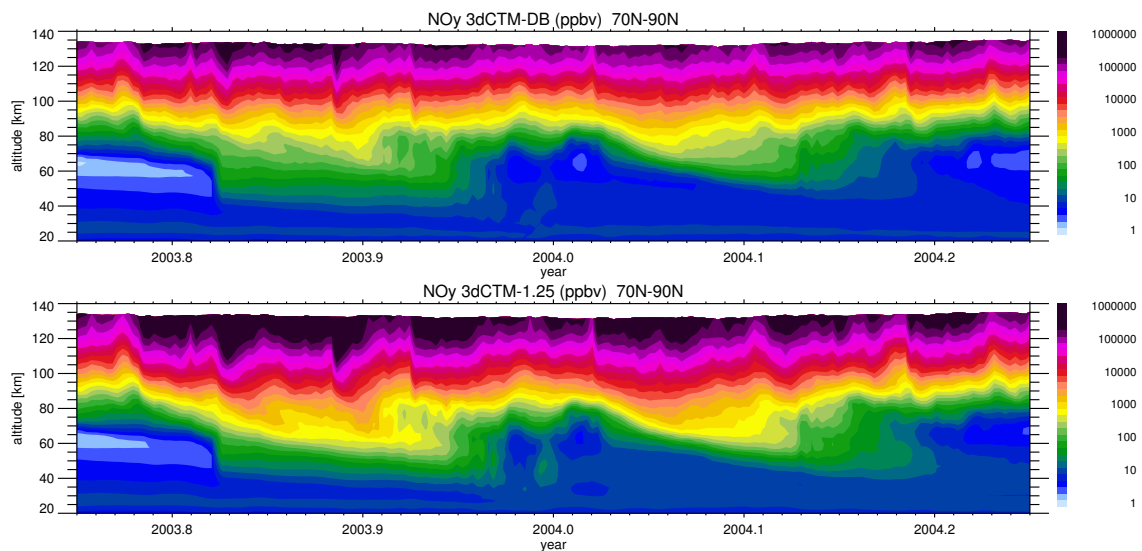


Abbildung 4.1:  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnis aus 3dCTM-Läufen, gezeigt für den Winter 2003/2004, als Funktion von Höhe und Zeit. Über Breitengrade (70-90 Nord) und Längengrade ist gemittelt, wobei die Beiträge der einzelnen Modellboxen mit der jeweiligen Gesamtmasse in der Box gewichtet werden. Oben: Konfiguration des 3dCTM so, dass  $\text{NO}_x$  durch Teilchenionisation gebildet wird, unter Berücksichtigung des Zustands der Atmosphäre (Modelllauf 16-DB, siehe Tabelle 4.1); Unten: Konfiguration mit  $\text{NO}_x$ -Bildung durch Teilcheneinfluss mit konstanter Bildungsrate von 1,25 pro Ionenpaar (Modelllauf 16-125).

deutliche Mehrproduktion von  $\text{NO}_x$  bei konstanter Produktion kommt dabei durch den dort erhöhten Anteil von  $\text{N}(^2\text{D})$  in Verbindung mit Reaktion 3.1 zustande. Dieser Zusammenhang wurde bereits in Kapitel 3 und dort in Abbildung 3.6 diskutiert und gilt offenbar auch bei Berücksichtigung von Transport, wie hier in den Studien mit dem 3d-Modell. Alle folgenden Analysen beruhen auf Modellläufen, die eine der Datenbanklösungen aus Tabelle 4.1 verwenden, da diese (nach dem Stand dieser Arbeit) die genaueste, praktisch anwendbare Methode zur Berücksichtigung von Ionisation darstellen.

Tabelle 4.1: Konfigurationsmöglichkeiten im 3dCTM

	Teilchen	$\text{NO}_x$ p. IP	$\text{NO}_x: h\nu$	Spektrum
	—	1,25	—	fest
	p	DB	DB- $h\nu$	variabel
	p + e			
BASE	—	—	—	fest
BASE-ICCM	—	—	—	variabel
16-125	p + e	1,25	—	fest
16-DB	p + e	DB	—	fest
16-DB-ICCM	p + e	DB	—	variabel
16-phioniz	p + e	DB	DB- $h\nu$	fest
16-phioniz-ICCM	p + e	DB	DB- $h\nu$	variabel
JACK	p	DB	—	fest
JACK-phioniz	p	DB	DB- $h\nu$	fest

Erläuterungen: p: Protonen; e: Elektronen; DB: Datenbanklösung für Produktionsraten bei Teilchenionisation; DB- $h\nu$ : Datenbanklösung für Produktionsraten sowohl für Photoionisation als auch Teilchenionisation; fest: Sonnenspektrum zum solaren Minimum; variabel: Täglich aktualisiertes Sonnenspektrum aus CCMI-Daten

## 4.1 Einzelbeiträge zur Produktion von $\text{NO}_x$

Um abzuschätzen, welchen Beitrag verschiedene Quellen von Ionisation zur gesamten  $\text{NO}_x$ -Produktion leisten, werden mehrere Modellläufe ausgewertet, die sich jeweils nur in der Berücksichtigung von Ionisationsquellen unterscheiden. Folgende Kombinationen stehen zur Verfügung:

- BASE: keine Ionisation
- Jack: Ionisation durch Protonen (siehe Abschnitt 2.5 und Jackman *et al.* (1980))
- Jack-phioniz: Ionisation durch Protonen und kurzwellige Sonnenstrahlung (siehe Abschnitt 3.2)
- 16-DB: Ionisation durch Protonen und Elektronen (siehe Abschnitt 2.5 und Wissing und Kallenrode (2009))
- 16-phioniz: Ionisation durch Protonen, Elektronen und kurzwellige Sonnenstrahlung

Durch Bilden von Differenzen können aus diesen Kombinationen Einzelbeiträge unter verschiedenen Nebenbedingungen gewonnen werden. Die Nebenbedingungen betreffen das Vorhandensein anderer Ionisationsquellen und damit möglicherweise verbundene Sättigungseffekte bei der  $\text{NO}_x$ -Produktion.

In Abbildung 4.2 sind Zeitreihen für  $\text{NO}_x$  aus den vier Modellläufen mit Ionisation gezeigt. In Abbildung 4.2 (oben) ist das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}_x$  aus dem Jack-Lauf gezeigt. Die Protonen alleine führen nur über kurze Zeiträume zur Bildung von

#### 4 Modellstudien mit dem dreidimensionalen Chemietransportmodell

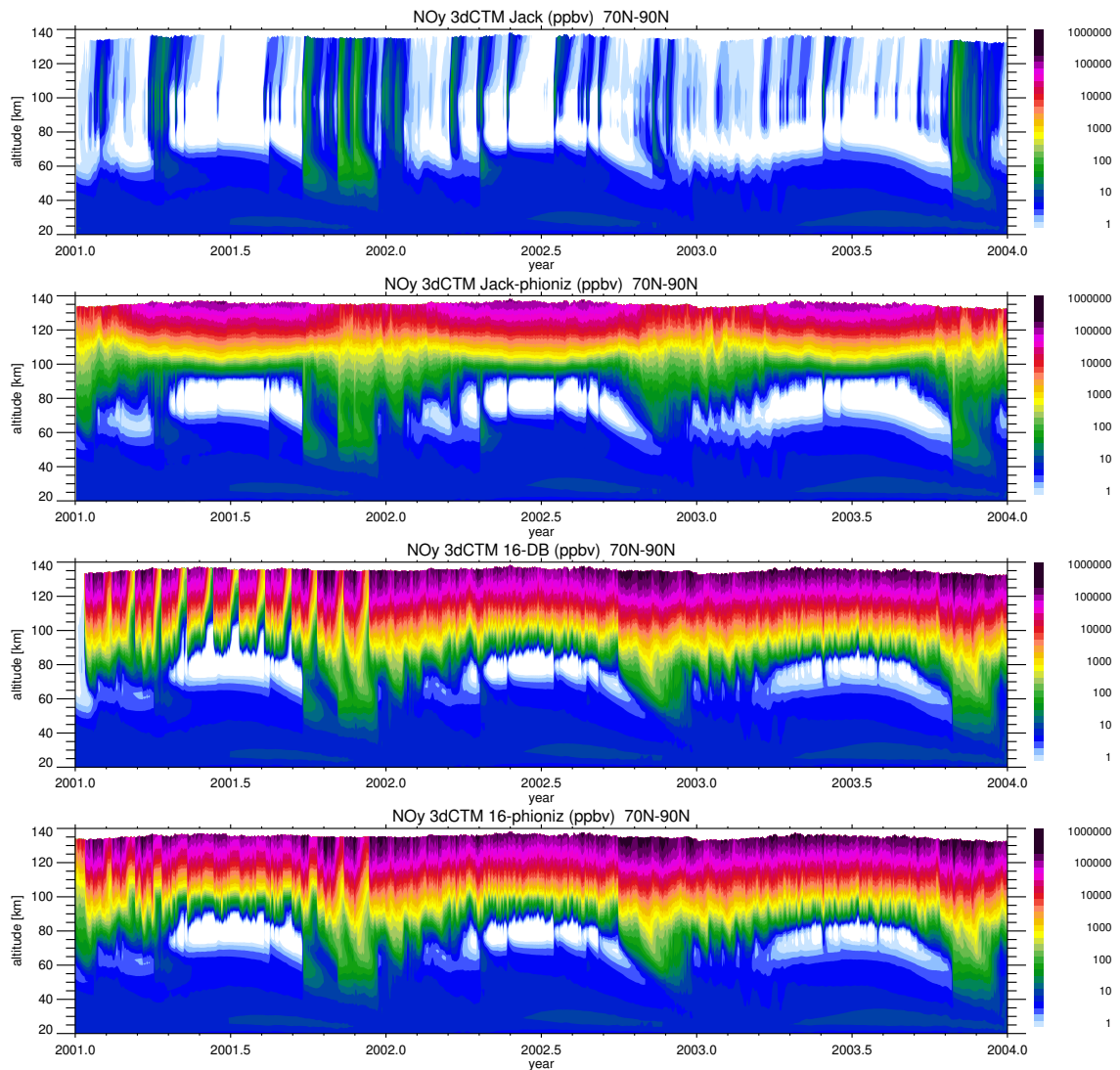


Abbildung 4.2: Illustration verschiedener Beiträge zur Bildung von NO<sub>x</sub> in der Atmosphäre. 1. v. oben: Nur Protonen, 2. v. oben: Protonen und Photoionisation, 3. v. oben: Protonen und Elektronen (vor 2002 eingeschränkte Datengrundlage), unten: Protonen, Elektronen und Photoionisation.



$\text{NO}_x$ , welches während der Zeiten ohne Protonenniederschlag abgebaut wird. Die Hintergrundmenge von wenigen ppb an  $\text{NO}_x$  in der Stratosphäre ist dabei photochemisch erzeugt. Aufgrund der sehr geringen integrierten Ionisationsrate wird keine bedeutende Erhöhung des  $\text{NO}_x$ -Gehalts der Atmosphäre durch die Protonen alleine erreicht.

Wird zusätzlich zu Protonen auch Photoionisation betrachtet (Abbildung 4.2, 2. v. oben), ergibt sich ein deutlich gesteigerter  $\text{NO}_x$ -Gehalt in der Thermosphäre zu Zeiten, in denen diese von Sonnenstrahlung erreicht wird. Aufgrund der beständigen Neubildung sind die vorhandenen Mengen ausreichend, um im Winter im Polarwirbel in niedrigere Höhen transportiert zu werden; Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Photoionisation findet ausschließlich oberhalb von etwa 90 km Höhe statt.

Wird Ionisation durch Protonen und Elektronen berücksichtigt (Abbildung 4.2, 3. v. oben), ergibt sich hier der hauptsächliche Beitrag zur  $\text{NO}_x$ -Produktion aus den zusätzlichen Elektronen. Deren Energieeintrag hängt insbesondere von den Änderungen des Erdmagnetfelds ab, die an den Sonnenfleckenzyklus gekoppelt sind und sich über entsprechend große Zeiträume ändern. Im betrachteten Zeitraum ist der Elektroneneintrag nahezu konstant. Im Jahr 2001 sind Interpolationsartefakte des AIMOS-Modells anhand der schnell schwankenden Mischungsverhältnisse von  $\text{NO}_x$  zu erkennen; höhere Mischungsverhältnisse von  $\text{NO}_x$  im Winter sind auf den zurückgehenden Abbau durch Photolyse zurückzuführen. Transport von  $\text{NO}_x$  in niedrigere Höhen findet auch hier signifikant statt.

Mit allen Quellen von Ionisation (Abbildung 4.2, unten) unterscheidet sich die Menge an  $\text{NO}_x$  nicht bedeutend von der, die bei Ionisation durch Elektronen und Protonen erhalten wird. Dies stellt einen Sättigungseffekt dar, der außerdem dadurch begünstigt wird, dass durch Photoionisation ein größerer Anteil  $\text{N}(^4\text{S})$  gebildet wird als durch Teilchenionisation (vgl. Abschnitt 3.2.2). Bei schon vorhandenem  $\text{NO}$  wird dadurch Reaktion 3.5 begünstigt, so dass keine deutliche Erhöhung des  $\text{NO}_x$ -Gehalts mehr erreicht wird. Die AIMOS-Interpolationsartefakte im Jahr 2001 werden durch Photoionisation geglättet, da Photoionisation direkt im Modell berechnet wird und nicht von externen Datenquellen abhängt.

## 4.2 Quantifizierung des Einflusses von Photoionisation

Der Einfluss von kurzwelliger Strahlung auf die Produktion von  $\text{NO}_x$  soll mithilfe des neu entwickelten Photoionisationsmoduls bestimmt werden. In Abbildung 4.3 (oben) ist das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}_y = \text{NO} + \text{NO}_2 + \text{NO}_3 + 2 \cdot \text{N}_2\text{O}_5 + \text{HNO}_3$  gezeigt, wie es während des solaren Protonenereignisses Ende Oktober 2003 in der Atmosphäre vorkommt, wobei nur Ionisation durch Teilchen berücksichtigt ist (Modelllauf 16-DB). Die Abbildung zeigt einen Breitenschnitt vom 30. Oktober, wobei über die Längengrade gemittelt ist. Das bis hinunter in die obere Stratosphäre ausgedehnte Vorkommen von  $\text{NO}_y$  sowohl in nördlichen als auch südlichen polaren Breiten fällt auf; es ist auf die Ionisation durch Protonen und Elektronen zurückzuführen. Auroraelektronen erreichen diese Höhenbereiche nicht, jedoch ist mit dem SPE ein geomagnetischer Sturm assoziiert, durch den höherenergetische Elektronen auf die Atmosphäre treffen und entsprechend tiefer

#### 4 Modellstudien mit dem dreidimensionalen Chemietransportmodell

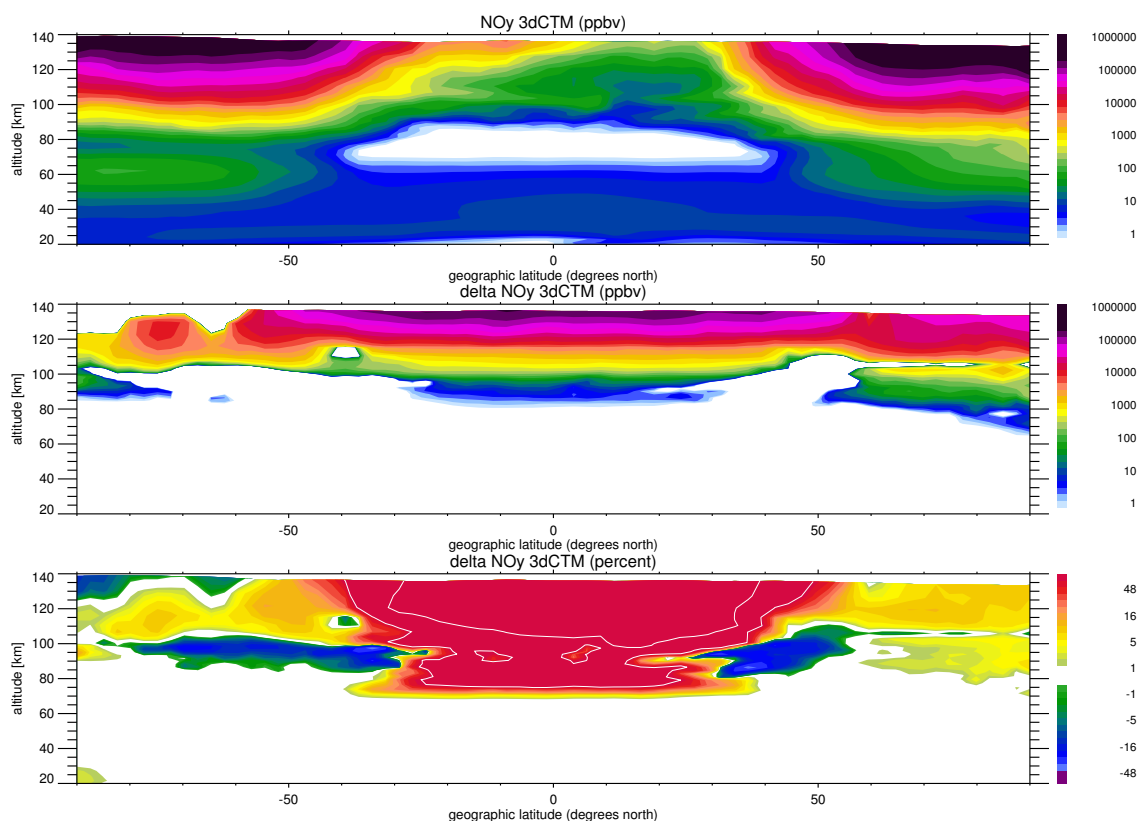


Abbildung 4.3: Breitenschnitte von 3dCTM-Ergebnissen während des Halloween-SPE im Oktober 2003, Tagesmittel vom 30.10.2003. Oben ist das Volumenmischungsverhältnis von NO<sub>y</sub> als Funktion von Höhe und Breitengrad gezeigt, wie es unter Berücksichtigung von Teilcheneinfluss (AIMOS), aber ohne Photoionisation im 3dCTM berechnet wird (Modelllauf 16-DB). Das mittlere Schaubild zeigt, in welchen Höhen und Breiten mehr NO<sub>y</sub> durch Photoionisation entsteht (Farbskala), durch Vergleich mit dem Modelllauf 16-phioniz. Im unteren Schaubild ist für die gleiche Situation der relative Unterschied von NO<sub>y</sub> gezeigt, mit Konturlinien bei 100% und 1000% relativer Änderung.

eindringen. In tropischen Breiten hingegen wird weder in der Thermosphäre noch in den darunterliegenden Atmosphärenschichten das Volumenmischungsverhältnis von NO<sub>y</sub> in den Polarregionen auch nur annähernd erreicht. Hier finden keine nennenswerten Teilchenniederschläge statt, weder durch die Aurora noch durch Protonen.

Ein weiterer Modelllauf (16-phioniz), der auch Ionisation durch kurzweilige Sonnenstrahlung berücksichtigt, wird in Abbildung 4.3 (Mitte) mit diesen Ergebnissen verglichen. Im gezeigten Differenzplot ist sehr gut zu erkennen, dass Photoionisation zu deutlich höheren NO<sub>y</sub>-Werten in der tropischen Thermosphäre führt; der Einfluss in dieser Höhe reicht bis etwa zum 50. Breitengrad sowohl in nördlicher als auch südlicher Richtung. In höheren Breiten wird der Unterschied beinahe vernachlässigbar gegenüber den dort bereits durch Teilcheneinfluss erzielten Werten. Dies wird durch das Schaubild mit den relativen

## 4.2 Quantifizierung des Einflusses von Photoionisation

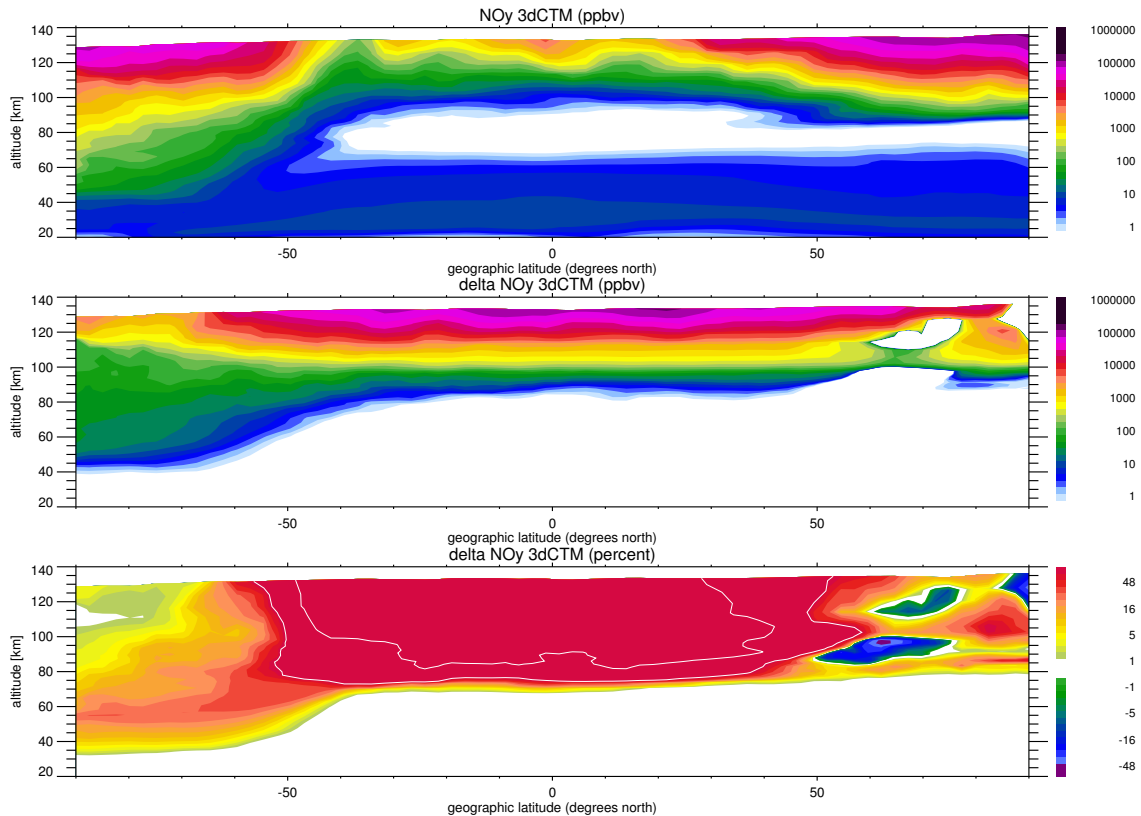


Abbildung 4.4: Wie Abbildung 4.3, jedoch am 15. Juli 2004, zur Demonstration des in südlichen Breiten stattfindenden Abwärtstransports von  $\text{NO}_x$ .

Differenzen (Abbildung 4.3, unten) weiter verdeutlicht. Dort sind auch Bereiche gezeigt, in denen weniger  $\text{NO}_y$  im Modelllauf mit Photoionisation vorliegt (zwischen 80 km und 100 km Höhe, in  $30\text{-}60^\circ$  Nord und  $30\text{-}70^\circ$  Süd). Dieser  $\text{NO}_y$ -Verlust könnte mit der Unterschätzung der  $\text{NO}_x$ -Produktion bei Photoionisation von  $\text{NO}$  zusammenhängen (siehe Abschnitt 3.3.2).

Eine größere Bedeutung von Photoionisation ergibt sich, wenn Luft und damit  $\text{NO}_x$  aus Höhen über etwa 90 km, in denen Photoionisation stattfindet, in tiefere Schichten transportiert wird. Ein solcher Fall ist in Abbildung 4.4 gezeigt: Am 15. Juli 2004 ist auf der Südhalbkugel Winter, der Polarwirbel ist stabil und ausgeprägt.  $\text{NO}_x$ , das in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre produziert wird, gelangt im Polarwirbel in tiefere Höhenlagen. Abbildung 4.4 (oben) zeigt einen Breitenschnitt, wiederum gemittelt über alle Längengrade, aus dem Modelllauf mit Teilchenionisation (16-DB). In Abbildung 4.4 (Mitte) ist die dazugehörige Differenz gezeigt, die durch zusätzliche Berücksichtigung von Photoionisation zustandekommt (Modelllauf 16-phioniz). Polwärts von 60 Grad südlicher Breite erstreckt sich die Einflussnahme von Photoionisation bis in die obere Stratosphäre; in der unteren Mesosphäre werden bereits einige ppb an Zunahme erreicht. Im Schaubild der relativen Differenz (Abbildung 4.4, unten) sind Zunahmen von mehr als 20% in der unteren Mesosphäre in allen polaren südlichen Breiten zu erkennen. Die Zunahme in der oberen Mesosphäre und der Thermosphäre in niedrigeren Breiten ist auch

in diesem Szenario erwartungsgemäß höher.

Photoionisation kann somit prinzipiell auch zum Ozonabbau durch im Polarwirbel heruntertransportiertes  $\text{NO}_x$  beitragen. Diese weiterführende Fragestellung ist in Kapitel 6 beschrieben.

### 4.3 Photolyseraten aus variablem Sonnenspektrum

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das 3dCTM um die Möglichkeit erweitert, die Photolyseraten nicht nur in Abhängigkeit des Sonnenzenitwinkels und der Absorption der über dem betrachteten Atmosphärensegment befindlichen Stoffe zu berechnen, sondern außerdem tägliche Daten über das jeweils datumsaktuelle (spektral aufgelöste) Sonnenspektrum einzulesen und zu verwenden (siehe Abschnitt 2.3.4 und Abbildung 2.4). Wie bereits dargestellt, sind die Spektren in einigen Wellenlängenbereichen verschieden, so dass die Werte des festen Spektrums zum Teil außerhalb des Variationsbereichs des variablen Spektrums liegen. Die Auswirkung der verschiedenen Spektren sowie der Einfluss der Variation im Zeitverlauf werden hier anhand ausgewählter Spurenstoffe dargestellt.

Abbildung 4.5 zeigt relative Differenzen von Spurenstoffen, wie sie zwischen einem Modelllauf mit variablem Sonnenspektrum (BASE-ICCM1, siehe Tabelle 4.1) und mit festem Sonnenspektrum (BASE) jeweils ohne Teilcheneinfluss entstehen. Im Fall von Ozon (Abbildung 4.5, oben) ist zunächst festzustellen, dass zwischen beiden Modellläufen durchgehende Unterschiede bestehen, die den gesamten Höhenbereich, in dem Ozon in nicht vernachlässigbaren Mengen vorliegt, umfassen. Diese durchgehenden Unterschiede sind auf die prinzipiellen Unterschiede der beiden Sonnenspektren zurückzuführen und nicht direkt der Variation geschuldet. Die wenige Prozent umfassende Differenz in der Stratosphäre ist sehr wahrscheinlich auf geringere  $\text{O}_2$ -Photolyse im variablen Spektrum zurückzuführen. Im Wellenlängenbereich, in dem molekularer Sauerstoff den größten Absorptionswirkungsquerschnitt aufweist (ca. 135 nm bis 150 nm, siehe Brasseur und Solomon (1986)), liegt im variablen Spektrum im Mittel eine geringere Intensität vor (siehe Abbildung 2.4). Dieser Effekt ist im solaren Maximum weniger ausgeprägt als im solaren Minimum, was sich sowohl im Spektrum selbst als auch anhand der Ozondifferenz in der Stratosphäre nachvollziehen lässt. Bezüglich der Differenzen in der Mesosphäre ist alleine auf Grundlage der verschiedenen Spektren keine klare kausale Argumentation zu finden. Sowohl die Produktion, vor allem durch Photolyse von molekularem Sauerstoff, als auch der Abbau von Ozon durch Sonnenlicht sind aufgrund der verschiedenen Spektren über den Höhenbereich verschieden. Genauere Analyse einzelner Photolyseraten könnte hier die Kausalität zu Tage fördern, dies wird im Anschluss an diese Arbeit im Rahmen von ROMIC-SOLIC erfolgen.

Kohlenstoffmonoxid (Abbildung 4.5, 2. v. oben) folgt oberhalb von etwa 80 km Höhe der durch den Sonnenzyklus modulierten  $\text{CO}_2$ -Photolyse. Hier ist es dementsprechend logisch nachzuvollziehen, dass im solaren Maximum mehr CO vorliegt als im solaren Minimum. Entsprechend der Spektren und deren Variation ist hier insbesondere die Variation der Lyman-alpha-Strahlung verantwortlich. Die jahreszeitlich schwankende Differenz in der Mesosphäre bis 80 km Höhe sowie die durchgehend positive Differenz in der Stratosphäre erfordern auch hier wieder weitergehende Analysen zur Erklärung.

### 4.3 Photolyseraten aus variablem Sonnenspektrum

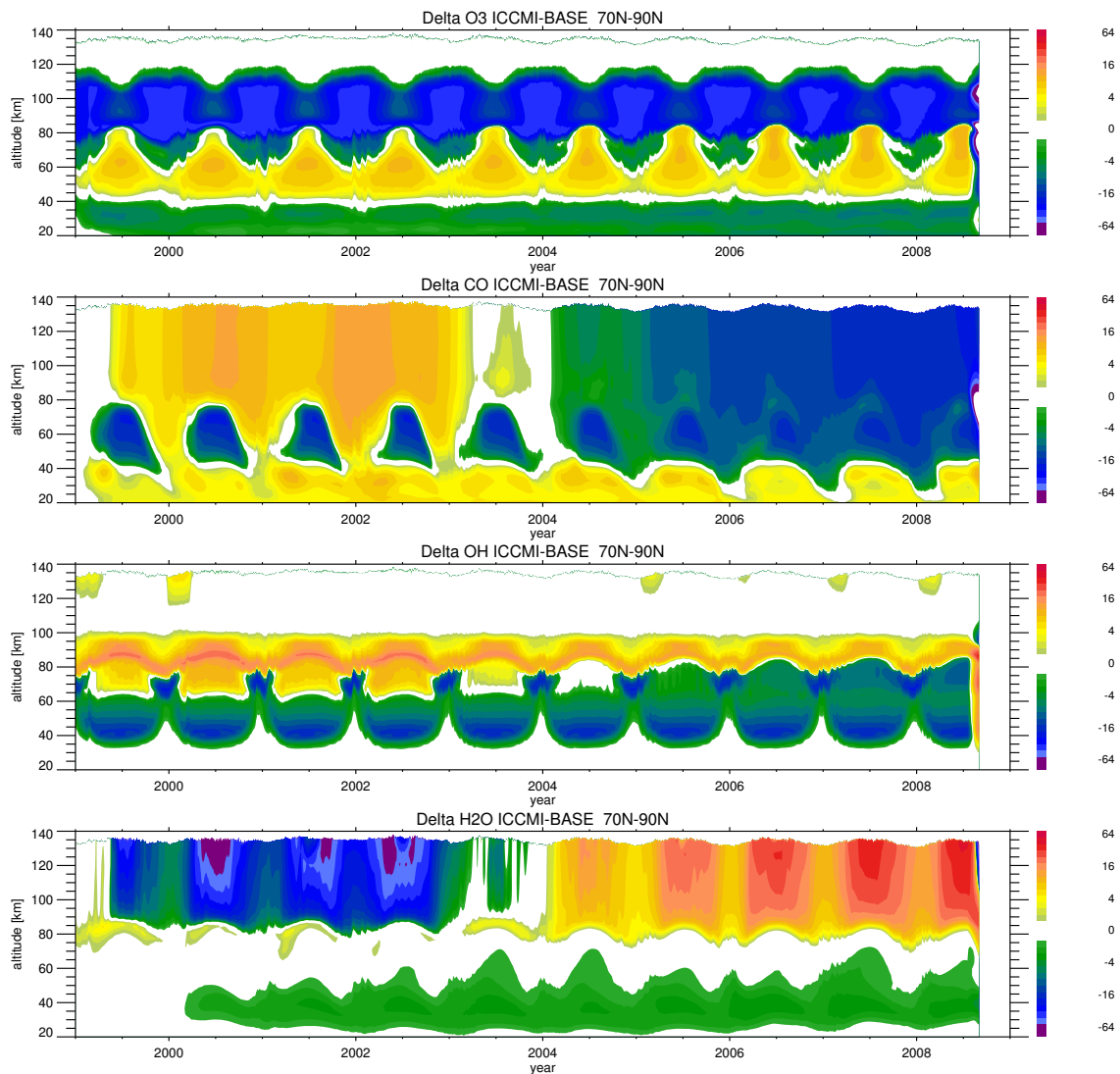


Abbildung 4.5: Relative Differenzen (in Prozent) von Spurenstoffen zwischen einem Modelllauf mit festem Sonnenspektrum (BASE, siehe Tabelle 4.1) und einem Modelllauf mit variablem Sonnenspektrum (BASE-ICCM1) als Funktion von Höhe und Zeit. Oben: Differenzbild für Ozon, 2. v. oben: Differenzbild für Kohlenstoffmonoxid, 3. v. oben: Differenzbild für Hydroxyl-Radikale, unten: Differenzbild für Wasserdampf.

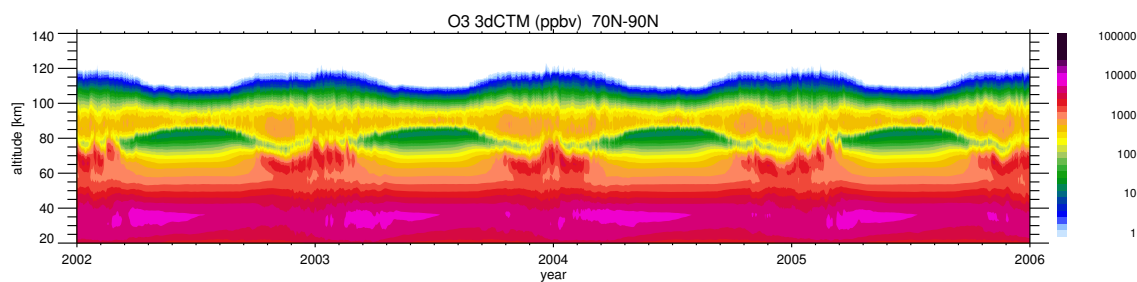


Abbildung 4.6: Darstellung der Ozonvorkommen im 3dCTM als Funktion von Höhe und Zeit. Die Simulation deckt sich sehr gut mit den Erwartungen (Brasseur und Solomon, 1986).

Die Unterschiede bezüglich OH sind, wie auch dessen Vorkommen, im Wesentlichen auf den Höhenbereich zwischen 70 km und 90 km beschränkt. Hier lässt sich wiederum erkennen, dass OH verstärkt im solaren Maximum vorliegt und die Differenz zum solaren Minimum hin geringer wird bzw. in einigen Höhen auch negativ. Es lässt sich vermuten, dass durch Photolyse mit dem variablen Spektrum mehr atomarer Wasserstoff zur Bildung von OH zur Verfügung steht (siehe Abschnitt 6.1) sowie eine verstärkte Photolyse von Wasserdampf stattfindet und dass hierfür wiederum Lyman-alpha und diejenigen Wellenlängen beitragen, die im variablen Spektrum höhere Intensität erreichen.

Für Wasserdampf (Abbildung 4.5, unten) kann für den Höhenbereich oberhalb von etwa 80 km wiederum verstärkte Photolyse im solaren Maximum und verringerte Photolyse im solaren Minimum für die Differenzen verantwortlich gemacht werden. Dies erklärt auch die geringere Ausprägung der Differenzen in der Polarnacht. Für die Stratosphäre fehlt jedoch auch hier ohne weitere Betrachtungen die Erklärung für das fortbestehende Wasserdefizit im Modelllauf mit variablem Sonnenspektrum. Aufgrund der bedeutend höheren Mengen an Wasserdampf ist aus den gezeigten Bildern kein direkter Zusammenhang zwischen der Photolyse von Wasserdampf und der vermehrten Bildung von OH abzuleiten.

Die Analyse des Einflusses der variablen Sonnenstrahlung auf die Chemie der mittleren Atmosphäre ist mit den hier gezeigten, einfachen Differenzbildern noch nicht abgeschlossen. Weitere Analysen wie beispielsweise die Untersuchung von Einzelreaktionen sind nicht mehr im Rahmen dieser Arbeit, sondern in der Fortsetzung im Rahmen des ROMIC-SOLIC-Projektes geplant. Mit der einfachen Methode der Differenzbildung kann jedoch bei geschickter Anwendung der zeitliche Verlauf von Spurenstoffdifferenzen isoliert werden. Diese Studien sind in Abschnitt 6.3 beschrieben.

## 4.4 Ozon im 3dCTM

In Abbildung 4.6 ist das Volumenmischungsverhältnis von Ozon für die Jahre 2002 bis 2006 und den vollen Höhenbereich des Modells dargestellt, mit Daten aus einem BASE-Modelllauf ohne Teilchen- und Strahlungsionisation. Das prinzipielle Ozonprofil, welches

im Modell gut wiedergegeben wird, zeichnet sich durch ein Maximum in der Stratosphäre und Abnahme des Volumenmischungsverhältnisses mit zunehmender Höhe aus, bis oberhalb von etwa 110km keine nennenswerten Ozonvorkommen mehr bestehen. In etwa 80km Höhe wird der ansonsten nahezu monotone Höhenverlauf durch ein Minimum unterbrochen, welches auf die erhöhte Präsenz von OH zurückzuführen ist. Die Ozon-schicht entsteht durch den Höhenverlauf der Verfügbarkeit von molekularem Sauerstoff und Strahlung, die Photolyse von Sauerstoff auslöst, sowie der Ozonphotolyse, wodurch sich ein dynamisches Gleichgewicht einstellt (Brasseur und Solomon, 1986). Die ausgeprägte OH-Schicht in etwa 75km bis 85km Höhe (siehe auch Abschnitt 6.1 sowie Brasseur und Solomon (1986)) entsteht durch Bildung von OH aus Ozon und atomarem Wasserstoff



wobei die Verfügbarkeit von Ozon mit der Höhe abnimmt und die von atomarem Wasserstoff mit der Höhe zunimmt.

Das im Modell erreichte Ozonprofil sowie die jahreszeitlichen Variationen entsprechen den Erwartungen (Brasseur und Solomon, 1986), was eine wichtige Voraussetzung für Studien zum Ozonabbau (Kapitel 6) darstellt.

## Zusammenfassung

Das 3dCTM kann mit der neu entwickelten Erweiterung zur Berücksichtigung von Teilchenniederschlag und Photoionisation verwendet werden, um die Beiträge verschiedener Quellen von Ionisation und Dissoziation zur Bildung von  $\text{NO}_x$  zu untersuchen. Protonen sind insbesondere bei großen solaren Protonenereignissen von Bedeutung, da sie hohe  $\text{NO}_x$ -Produktionsraten in allen Höhenbereichen bis hinunter zur Stratopause verursachen. Im Gesamtverlauf ist die integrierte  $\text{NO}_x$ -Produktion durch Protonen gering. Der hauptsächlichste dauerhafte Beitrag wird durch Elektronen geleistet und ist auf Höhenbereiche oberhalb von etwa 90km beschränkt. Photoionisation beeinflusst die Thermosphäre in allen Breitenbereichen außerhalb der Polarnacht. Zusätzlich zu bereits berücksichtigter Ionisation durch Elektronen (und Protonen) bedeutet Photoionisation in den meisten Situationen keine Mehrproduktion von  $\text{NO}_x$ , da der Effekt des Elektronenniederschlags insbesondere in polaren Breiten deutlich überwiegt. Zusätzliche Beiträge von Photoionisation lassen sich dagegen in tropischen Breiten feststellen (wo jedoch kein signifikanter Effekt auf Ozon erwartet wird) sowie im Polarwirbel in südlichen polaren Breiten, in denen Beiträge aus der obersten Mesosphäre heruntertransportiert werden. Der Effekt auf Ozon wird in Kapitel 6 untersucht.





# 5 Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen

Die mit der im Rahmen dieser Arbeit erweiterten Konfiguration des 3dCTM gewonnenen Ergebnisse können mit Spurengasmessungen verschiedener Instrumente verglichen werden. Die Vergleiche liefern Hinweise darauf, welche Prozesse im Modell realitätsnah implementiert sind und bei welchen Mechanismen weiterer Verbesserungsbedarf besteht. Aufgrund der im Rahmen dieser Arbeit fertiggestellten Erweiterung zur genaueren Bestimmung der  $\text{NO}_x$ -Produktion liegt bei diesen Vergleichen der Fokus auf den Ergebnissen zum  $\text{NO}_x$ -Gehalt der Atmosphäre. Außerdem bietet sich Kohlenstoffmonoxid zum Vergleich an, um die Abbildung dynamischer Prozesse zu überprüfen.

Es werden Daten von MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding) sowie von SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric CHartography) verwendet. Die MIPAS-Daten enthalten  $\text{NO}_y$  und CO in der Mesosphäre und Stratosphäre und sind in Funke *et al.* (2014) bereits in der hier gezeigten Form veröffentlicht und diskutiert. Eine Glättung in Gestalt eines 5-tägigen gleitenden Durchschnitts ist auf den hier verwendeten Datensatz angewendet. Die SCIAMACHY-Daten liefern für diese Vergleiche NO in der oberen Mesosphäre und Thermosphäre und werden in Bender *et al.* (2013) und Bender *et al.* (2014) beschrieben.

## 5.1 Fallstudie: HEPPA Winter 2003/2004

In den Winter 2003/2004 fallen zwei bemerkenswerte Ereignisse, die besonders für die mittlere Atmosphäre von großer Bedeutung sind und innerhalb der HEPPA-Gemeinschaft (High Energy Particle Precipitation in the Atmosphere) ausführlich diskutiert werden (Funke *et al.*, 2011; Lopez-Puertas *et al.*, 2005; Seppälä *et al.*, 2007). Es handelt sich dabei um ein solares Protonenereignis Ende Oktober und Anfang November 2003 (Halloween SPE) und um ein plötzliches Erwärmen der Stratosphäre (Sudden Stratospheric Warming, SSW) im Dezember 2003. Beide Ereignisse haben eine deutliche Zunahme des  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnisses in der Mesosphäre und auch in der oberen Stratosphäre zur Folge (Randall *et al.*, 2005). Beim Protonenereignis wird die Veränderung durch hochenergetische Teilchen (vor allem Protonen) verursacht, die direkt bis hinunter zu Höhen von etwa 40 km in die Atmosphäre eindringen können und dort über die in Kapitel 3 beschriebenen Vorgänge  $\text{NO}_x$  produzieren. Beim SSW dagegen bricht durch die verstärkte Dissipation von Rossby-Wellen der Polarwirbel zusammen, wobei sich gleichzeitig die Temperatur der Stratosphäre erhöht (Matsuno, 1971). Die anschließende Neubildung des Polarwirbels hat dann ein verstärktes Absinken von Luft in hohen Breiten zur

## 5 Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen

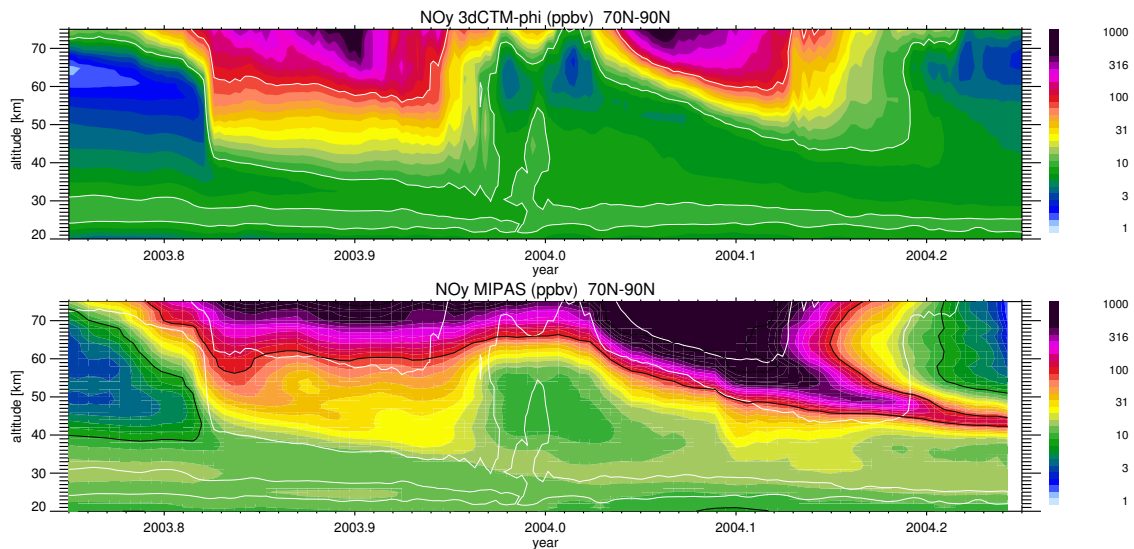


Abbildung 5.1: Darstellung des Volumenmischungsverhältnisses von  $\text{NO}_x$  während des Winters 2003/2004 als Funktion von Höhe und Zeit, gemittelt über 70 bis 90 Grad nördlicher Breite und alle Längengrade. Oben: Modellergebnisse des 3dCTM mit Teilchenionisation und Photoionisation (Modelllauf 16-phioniz); Unten: Ergebnisse von MIPAS-Messungen. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die weißen Konturlinien (10 ppbv und 100 ppbv) aus der Darstellung der Modellergebnisse unverändert in die Darstellung der MIPAS-Ergebnisse übernommen. Die zusätzlichen schwarzen Konturlinien dort entsprechen den gleichen Mischungsverhältnissen aus den MIPAS-Ergebnissen.

Folge;  $\text{NO}_x$  wird dabei mit der Luft von größeren Höhen in niedrigere Höhen heruntertransportiert. Dieser Transporteffekt tritt mit dem Wiederaufbau des Polarwirbels zeitlich verzögert nach der Erwärmung ein und wird in diesem Beispiel im Januar 2004 sichtbar (Randall *et al.*, 2005).

In Abbildung 5.1 (oben) ist der zeitliche Verlauf des  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnisses für den Winter 2003/2004 gezeigt. Für die gewählte Darstellung ist sowohl in der geografischen Breite (70N - 90N) als auch über alle Längengrade gemittelt. Der zugrundeliegende Modelllauf berücksichtigt  $\text{NO}_x$ -Produktion durch Teilchenionisation und Photoionisation, abhängig vom Zustand der Atmosphäre (Modelllauf 16-phioniz, siehe Tabelle 4.1 sowie Abschnitt 3.1.2). Der dargestellte Zeitraum beginnt Anfang Oktober, die Atmosphäre befindet sich hier in einem der Jahreszeit entsprechenden Zustand. Ende Oktober findet das Ionisationsereignis (SPE) statt, wodurch in allen Höhen von etwa 40km bis zum oberen Rand der Modellatmosphäre (hier nur bis 78km Höhe gezeigt) der  $\text{NO}_x$ -Gehalt der Atmosphäre zunimmt. Der so gebildete Zustand ist über Wochen nahezu stabil, weil zusätzlicher Abwärtstransport im Polarwirbel dem Abbau und Abtransport von  $\text{NO}_x$  in der Mesosphäre und oberen Stratosphäre entgegenwirkt. Durch die anhaltend hohe Aktivität der Aurora wird in der Thermosphäre  $\text{NO}_x$  nachproduziert, so dass dort kein signifikanter Rückgang stattfindet. Nach dem Zusammenbruch des Polarwirbels im

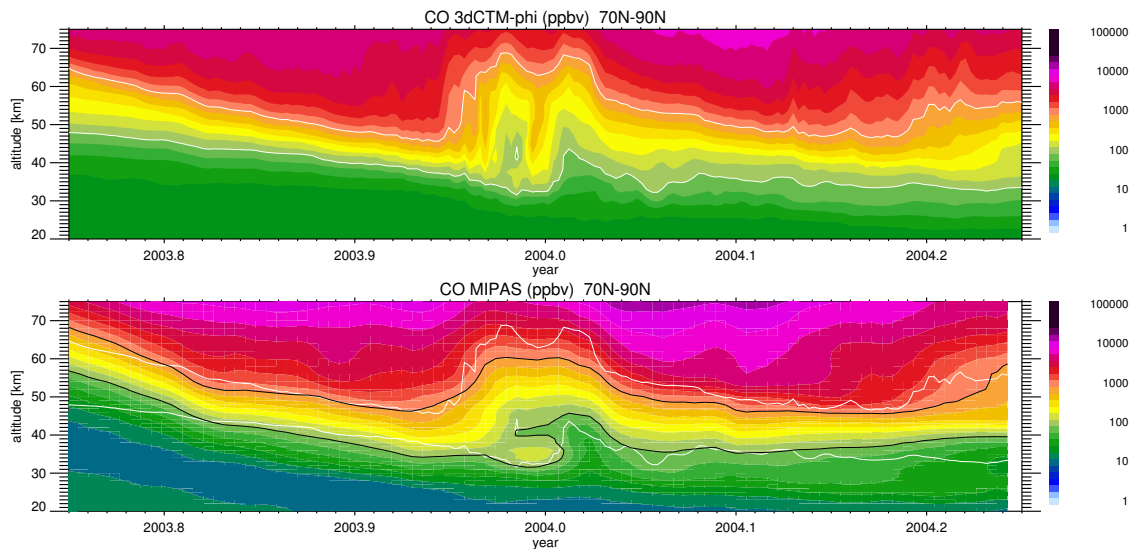


Abbildung 5.2: Wie Abbildung 5.1, jedoch für Kohlenstoffmonoxid.

Dezember 2003 geht das  $\text{NO}_x$ -Mischungsverhältnis besonders in der oberen Stratosphäre stark zurück, da hier für kurze Zeit sowohl der Abwärtstransport fehlt als auch Durchmischung aus niedrigeren Breiten stattfindet, in denen sich weniger  $\text{NO}_x$  befindet.

Im Januar 2004 beginnt eine erneute Zunahme des  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnisses in der Mesosphäre. Diese ausschließlich durch Absinken hervorgerufene Änderung ist auf den wieder gebildeten Polarwirbel zurückzuführen, der nach der plötzlichen Erwärmung der Stratosphäre besonders ausgeprägt ist.

In Abbildung 5.1 (unten) sind für dasselbe Szenario Ergebnisse der MIPAS-Messungen gezeigt. Für den gezeigten Zeitraum Ende 2003 mit dem Halloween SPE wird insgesamt eine sehr gute qualitative Übereinstimmung zwischen Modell und Messungen erreicht, wobei MIPAS meist etwas höhere Werte zeigt. Der deutliche Rückgang von  $\text{NO}_x$  um den Jahreswechsel ist dagegen in beiden Ergebnissen verschieden: Im Modell wird ein deutlicher Rückgang beinahe bis auf das Referenzniveau in der Mesosphäre bis 70km Höhe erreicht, wohingegen MIPAS diesen Rückgang nur bis etwa 55 km Höhe sieht. Eine mögliche Erklärung ist, dass das Anheben der Stratopause (Elevated Stratopause Event, nach dem SSW) in Modell und Erdatmosphäre verschieden deutlich ausfällt. Im Januar 2004 setzt der Abwärtstransport von Luft im Polarwirbel erneut ein, wodurch erneut erhöhte Mengen an  $\text{NO}_x$  in der Mesosphäre auftreten. Dieser Zusammenhang wird prinzipiell sowohl in den Modellsimulationen als auch in den Messungen wiedergegeben. Anhand der Konturlinien im Schaubild lässt sich allerdings erkennen, dass das im Modell erreichte  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnis in etwa eine Größenordnung geringer ist als jenes in den Messergebnissen. Zwei mögliche Erklärungen liegen nahe: Der Abwärtstransport im Modell könnte unzureichend wiedergegeben sein, was in diesem Fall von den zugrundeliegenden LIMA-Daten (Abschnitt 2.3.7) ausgeht, oder die Menge an  $\text{NO}_x$  im Modell könnte in den Höhenbereichen, aus denen Luftmassen heruntertransportiert werden, zu gering sein.

Folglich gilt es, die dynamischen Prozesse weiter zu untersuchen. Hierzu eignet sich Koh-

## 5 Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen

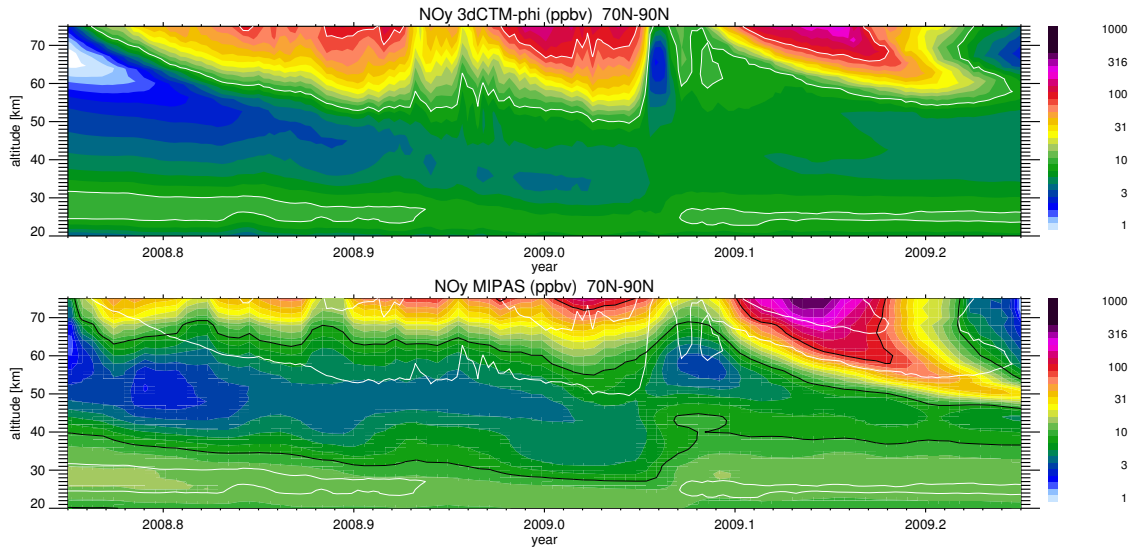


Abbildung 5.3: Wie Abbildung 5.1, jedoch für den Winter 2008/2009.

lenstoffmonoxid, da es vom solaren Protonenereignis weitgehend unbeeinflusst die Transportprozesse in der Atmosphäre abbilden kann. CO entsteht in der oberen Mesosphäre und in der Thermosphäre durch Spaltung von Kohlenstoffdioxid durch Sonneneinstrahlung



und wird insbesondere in Reaktionen mit OH wieder abgebaut (Brasseur und Solomon, 1986)



Das Gleichgewicht zwischen diesen beiden Reaktionen ist im Sommer und Winter wegen der unterschiedlich starken  $\text{CO}_2$ -Photolyse verschieden, ändert sich auf kurzen Zeitskalen jedoch nur wenig.

Bei bestehendem Polarwirbel wird CO unabhängig von Teilcheneinflüssen von seinen Quellregionen in die untere Mesosphäre transportiert. Dieses Verhalten wird in Abbildung 5.2 dargestellt. Hier stimmen Modellergebnisse und Messergebnisse sehr gut überein, wobei MIPAS höhere Werte für die Mischungsverhältnisse insbesondere ab etwa 60 km Höhe aufwärts zeigt. Dieser Unterschied ist beim erneuten Abwärtstransport im Jahr 2004 ausgeprägter als Ende 2003. Desweiteren lässt sich beobachten, dass durch das solare Protonenereignis kein nennenswerter Abbau von CO stattfindet. Die Entstehung von  $\text{HO}_x$  durch Ionisation und Reaktion 5.2 würden diesen Zusammenhang jedoch zumindest lokal und vorübergehend erwarten lassen, wenn auch nicht in ausgeprägtem Maß.

Der Vergleich von CO zeigt, dass höchstens eine geringfügige Unterschätzung des Luftmassen-Abwärtstransports im Modell nach dem SSW vorliegt. Aufgrund dieser Analyse bleibt als mögliche Erklärung der Unterschiede im  $\text{NO}_x$  noch eine Unterschätzung von  $\text{NO}_x$  in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre bei dort gleichzeitig realistischer Menge an CO. Dies wird in Abschnitt 5.3.1 weiter erörtert.

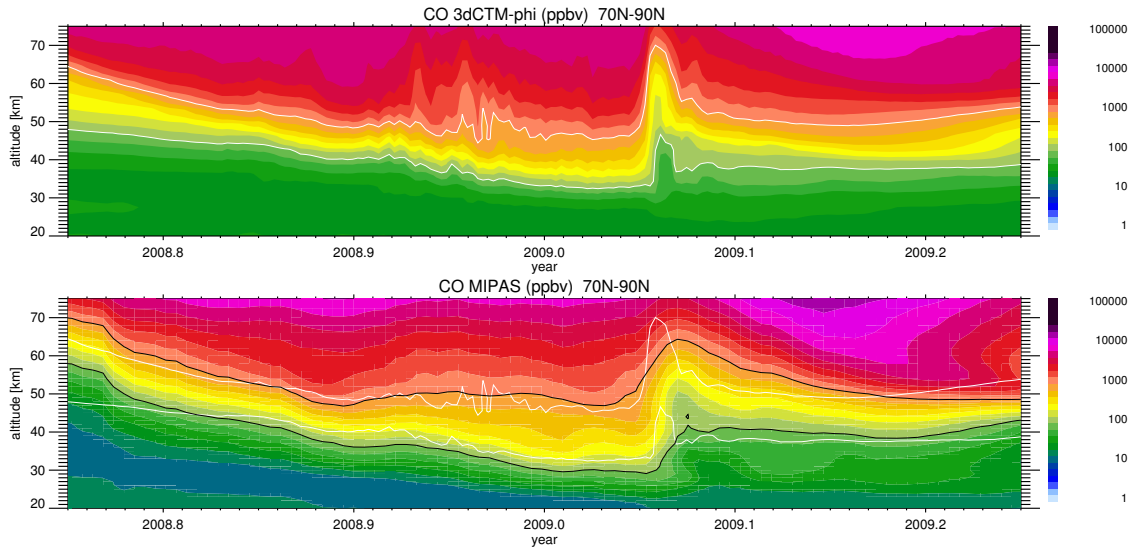


Abbildung 5.4: Wie Abbildung 5.3, jedoch für Kohlenstoffmonoxid.

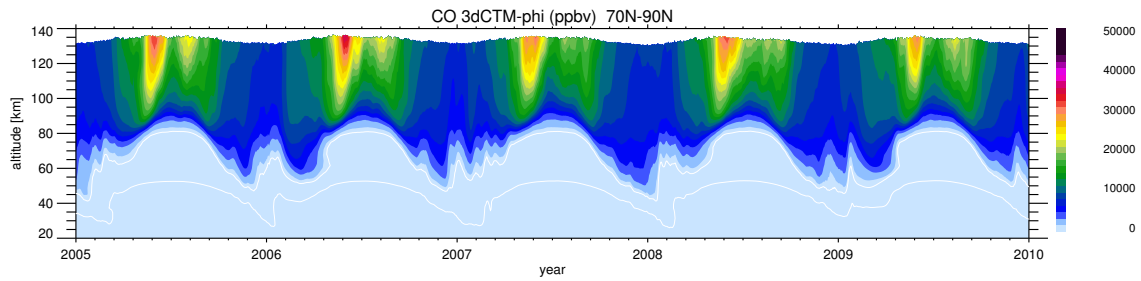


Abbildung 5.5: Volumenmischungsverhältnis von Kohlenstoffmonoxid aus dem 3dCTM, gezeigt für den gesamten Höhenbereich des Modells. Die lineare Skala ist zur besseren Ablesbarkeit der Maximalwerte gewählt.

## 5.2 Fallstudie: HEPPA II Winter 2008/2009

Neben dem Winter 2003/2004 wird auch der Winter 2008/2009 innerhalb der HEPPA-Gemeinschaft diskutiert. Erneut tritt hier ein SSW-Ereignis auf, nach dem der neu gebildete Polarwirbel für besonders ausgeprägten Abwärtstransport der Luftmassen sorgt. Bezüglich der Ionisation sind in diesem Fall keine besonderen Vorkommnisse zeitnah erfolgt, so dass hier besonderes Augenmerk auf den Transport ohne Berücksichtigung außergewöhnlicher Nebenbedingungen gelegt werden kann.

Gegenüber der Analyse des HEPPA-Winters 2003/2004 fällt in diesem Zeitraum auf, dass insgesamt sehr viel geringere Mengen an  $\text{NO}_x$  in der Mesosphäre auftreten, wie Abbildung 5.3 veranschaulicht, insbesondere im Vergleich mit Abbildung 5.1. Auch im hier gezeigten Zeitraum ist wieder eine qualitative Übereinstimmung zwischen Modellergebnissen und Messergebnissen gegeben. Unterschiede zeigen sich hier in der jeweiligen Bedeutung des Abwärtstransports vor und nach der Neubildung des Polarwirbels Ende Januar 2009. Im davor liegenden Zeitraum zeigen die Modellergebnisse mehr  $\text{NO}_x$  in der

## 5 Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen

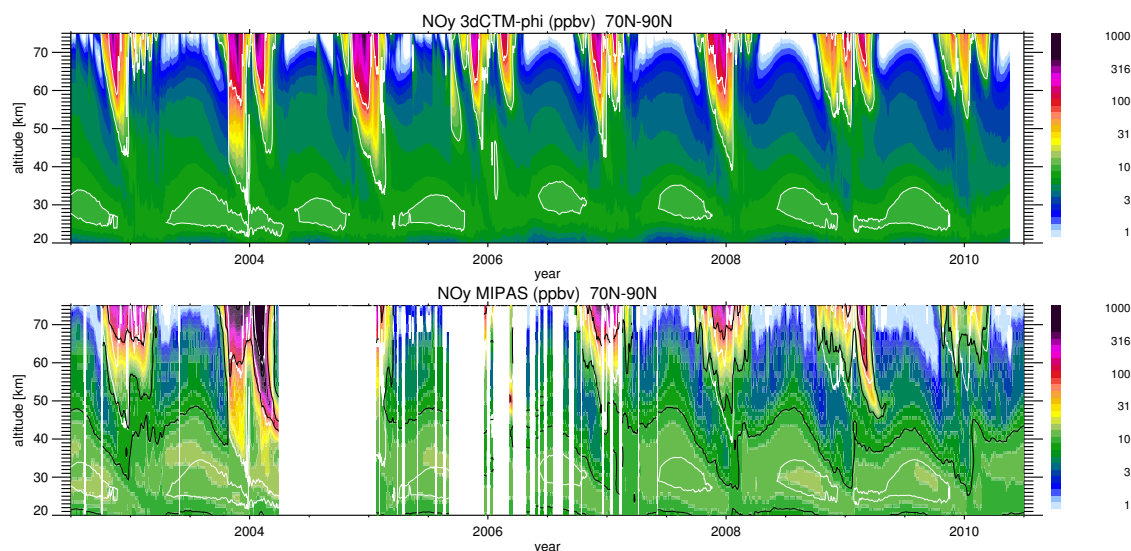


Abbildung 5.6: Wie Abbildung 5.1, jedoch für den gesamten Zeitraum, für den MIPAS-Ergebnisse und Modellergebnisse des 3dCTM vorliegen (Mitte 2002 bis Mitte 2010).

Mesosphäre, im danach liegenden Zeitraum die Messergebnisse. Wiederum ist es möglich, dass Luftmassen aus verschiedenen Höhen heruntertransportiert werden, in denen  $\text{NO}_x$  im Modell einmal gut und einmal nur unzureichend wiedergegeben ist.

Zur weiteren Analyse kann auch in diesem Zeitraum Kohlenstoffmonoxid betrachtet werden. Der Zeitverlauf ist entsprechend in Abbildung 5.4 dargestellt. Auch in diesem Fall ergibt sich qualitativ eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Modellergebnissen und Messergebnissen, insbesondere bis zum Zusammenbruch des Polarwirbels Mitte Januar 2009. In Verbindung mit den Ergebnissen für  $\text{NO}_x$  im gleichen Zeitraum legt dies die Vermutung nahe, dass der Abwärtstransport im Polarwirbel vom Modell sehr gut wiedergegeben wird und die größere Menge an  $\text{NO}_x$  durch höhere Mischungsverhältnisse in der Quellregion, die oberhalb des hier analysierten Höhenbereichs liegt, erklärt werden kann. Das generelle Defizit von CO im Modell am oberen Rand des betrachteten Höhenbereichs setzt sich in darüberliegenden Höhen mit nahezu konstantem Mischungsverhältnis fort, entgegen der Erwartung eines weiter steigenden Mischungsverhältnisses bis zu etwa 70 ppm (Abbildung 5.5). Hierdurch kann das Defizit in 70 km-75 km Höhe nicht als Transportdefizit gedeutet werden, obwohl diese Möglichkeit nicht abschließend ausgeschlossen werden kann. Der auffällige Unterschied im CO während des Elevated Stratopause Events Anfang 2009 ist auch auf die 5-tägige Glättung der Messdaten zurückzuführen. Der Anstiegszeitpunkt stimmt tatsächlich in Messung und Modell überein, wobei in der Messung insgesamt das Elevated Stratopause Event deutlicher hervortritt, wenn Glättung und Zeitraum des Ereignisses berücksichtigt werden.

Beim wiederaufgebauten Polarwirbel zeigt sich bei CO ein qualitativ ähnliches, jedoch weniger ausgeprägtes Verhalten wie bei  $\text{NO}_x$ : die MIPAS-Messungen zeigen hier größere Mischungsverhältnisse und länger anhaltenden Abwärtstransport vor allem in der unteren Mesosphäre. Der Unterschied reicht jedoch auch hier wiederum nicht aus, um daraus

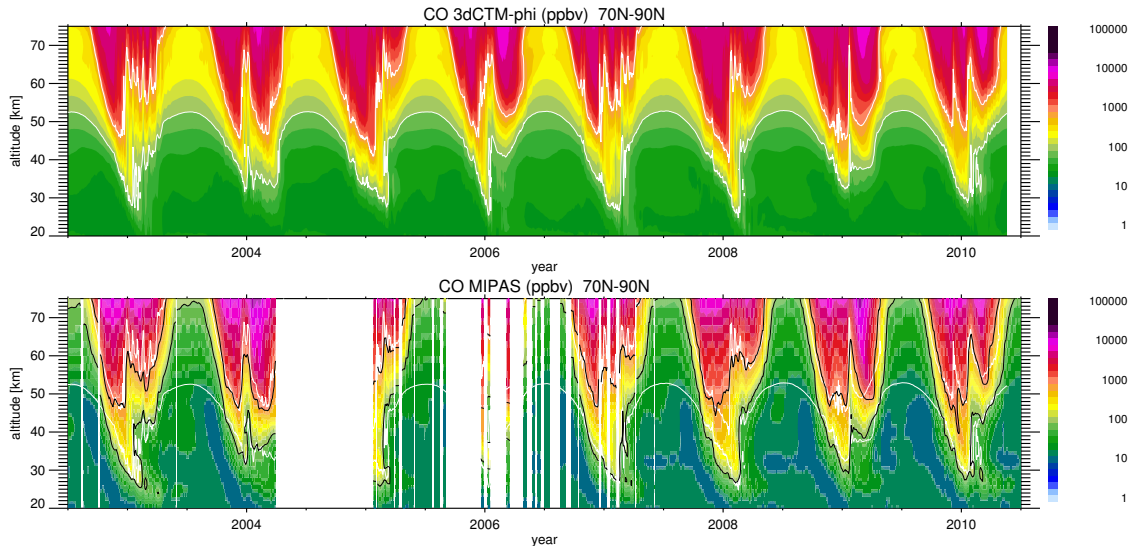
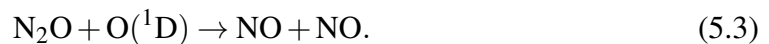


Abbildung 5.7: Wie Abbildung 5.6, jedoch für Kohlenstoffmonoxid.

zu folgern, dass der Abwärtstransport im Modell unzureichend berücksichtigt wäre. Vielmehr sind geringe Unterschiede im CO-Gehalt höherer Lagen zu vermuten und für die Untersuchung der größeren Differenzen in Bezug auf  $\text{NO}_x$  Vergleiche in höheren Bereichen der Atmosphäre nötig, wie sie in Abschnitt 5.3 mit dem SCIAMACHY-Instrument gezeigt sind.

### 5.3 Langzeitvergleich Modell/Messungen

Ein Vergleich von  $\text{NO}_x$  über den gesamten Zeitraum, für den Messergebnisse von MIPAS vorliegen, ist in Abbildung 5.6 für nördliche polare Breiten gezeigt. Qualitative Übereinstimmung ergibt sich hier durch den prinzipiellen Zeitverlauf, der sowohl in Modell als auch in Messungen wesentliche Merkmale zeigt: Absinken von  $\text{NO}_x$  in die Mesosphäre und obere Stratosphäre im Winter, Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Teilchenionisation im Oktober 2003 und erhöhte Mengen an  $\text{NO}_x$  in der Stratosphäre im Sommer.  $\text{NO}_x$  in der Stratosphäre wird insbesondere durch



gebildet (Brasseur und Solomon, 1986) und der für diese Reaktion benötigte atomare Sauerstoff in angeregtem Zustand wiederum durch Photolyse von Ozon, Wasser oder molekularem Sauerstoff. In der Stratosphäre zeigen die MIPAS-Ergebnisse durchgehend mehr  $\text{NO}_x$ , was möglicherweise durch eine Unterschätzung der  $\text{O}(^1\text{D})$ -Produktion im Modell zustandekommt. Deutliche Unterschiede ergeben sich nach den SSW-Ereignissen, die bereits gesondert diskutiert wurden.

Ein Vergleich für Kohlenstoffmonoxid in nördlichen polaren Breiten ist in Abbildung 5.7 gezeigt. In diesem Vergleich ist einerseits eine hervorragende Übereinstimmung des in

## 5 Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen

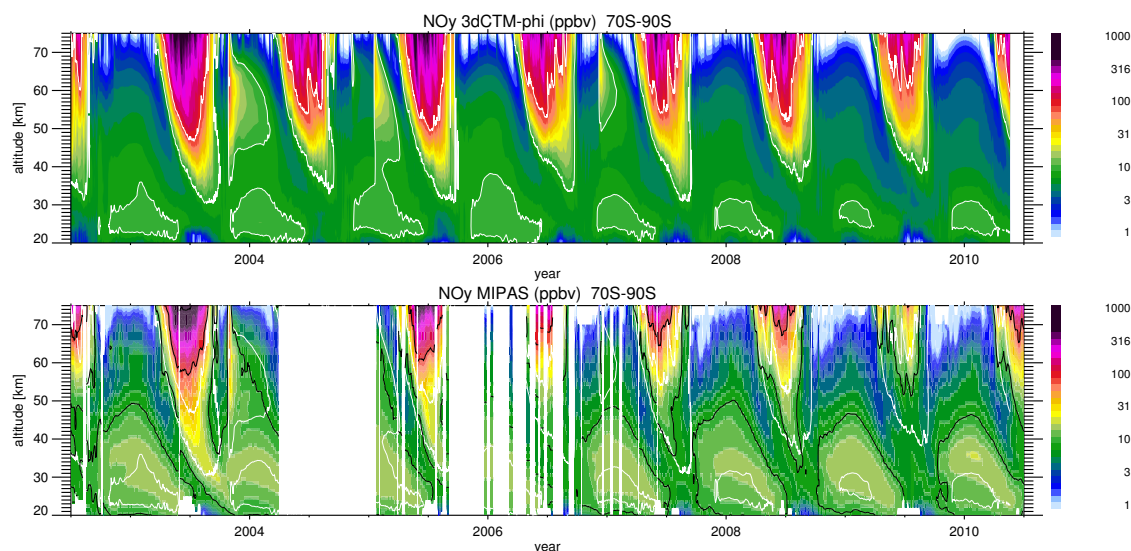


Abbildung 5.8: Wie Abbildung 5.6, jedoch für südliche polare Breiten von 70 Grad Süd bis 90 Grad Süd.

den Wintermonaten heruntertransportierten Kohlenstoffmonoxids zu erkennen, andererseits ein bedeutender Überschuss im Modell in den Sommermonaten, besonders in der Mesosphäre, jedoch weniger ausgeprägt auch darunter. Die Überschätzung in den Sommermonaten kann durch eine Überschätzung der  $\text{CO}_2$ -Photolyserate oder unzureichende Durchmischung mit Regionen geringeren  $\text{CO}$ -Gehalts zustandekommen.

In Bezug auf die Durchmischung zeigen andere Breitengrade ähnliche Volumenmischungsverhältnisse von  $\text{CO}$ , so dass dies als Ursache nicht in Frage kommt. In Bezug auf die Photolyserate fällt auf, dass bei einer Änderung der Photolyserate auch andere (höhere) Höhenbereiche betroffen wären. Somit würde eine eventuell angezeigte Korrektur der Photolyserate auch die Menge an absinkendem  $\text{CO}$  im Winter verändern und die dort gute Übereinstimmung beeinflussen. Diese Auswirkung ist anhand eines Testlaufs in Abbildung 5.10 illustriert. Der Effekt verringerter Photolyserate auf die Sommermonate in der Mesosphäre ist außerdem gering gegenüber der Veränderung heruntertransportierten  $\text{CO}$ s. Es bleibt aufgrund der guten Übereinstimmung herabtransportierten  $\text{CO}$ s im Originalmodelllauf und des Einflusses der Photolyserate auf alle Jahreszeiten nur die Vermutung, dass noch ungeklärte Dynamikdefizite für den zu geringen Unterschied zwischen Sommer und Winter verantwortlich sind.

Für südliche polare Breiten lassen sich dieselben Untersuchungen durchführen. Ein Vergleich von  $\text{NO}_x$  für den gesamten Vergleichszeitraum, gemittelt ab 70 Grad südlicher Breite polwärts, ist in Abbildung 5.8 gezeigt. Bereits diskutierte Sachverhalte sind hier erneut zu erkennen: Prinzipielle Übereinstimmung zwischen Modell und Messung mit mehreren solaren Protonenereignissen (Oktober 2003, Januar 2005, Dezember 2006) und Abwärtstransport durch den Polarwirbel im Winter sowie ansteigende Mengen an  $\text{NO}_x$  in der Stratosphäre im Sommer. Erneut zeigen die Messungen mehr stratosphärisches  $\text{NO}_x$  als die Modellergebnisse, hier im Sommer ohne direkten Einfluss von Abwärtstransport. Zusätzlich fällt in dieser Darstellung auf, dass die Modellergebnisse insbesondere im so-



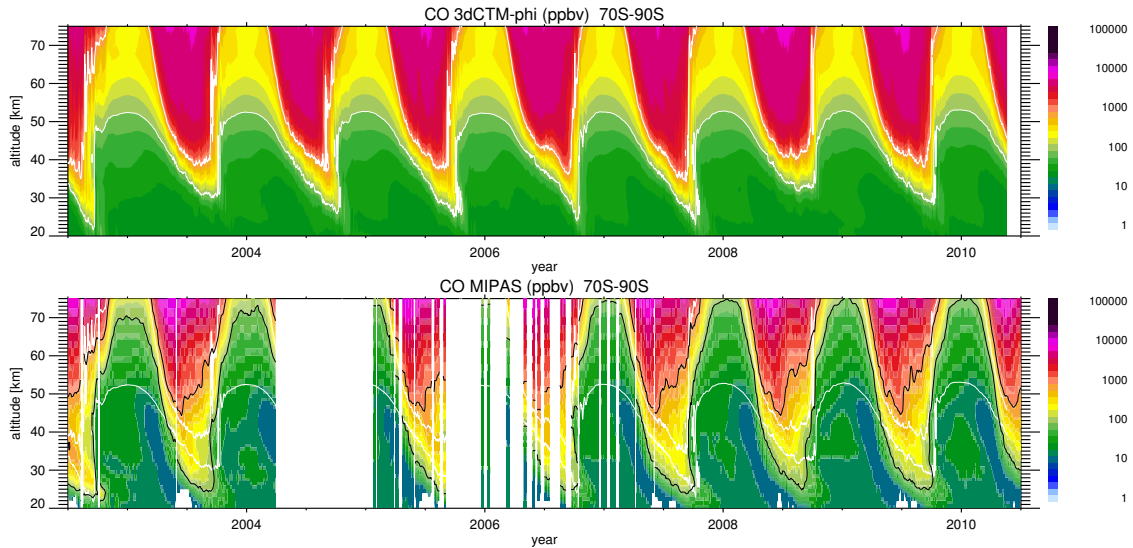


Abbildung 5.9: Wie Abbildung 5.8, jedoch für Kohlenstoffmonoxid.

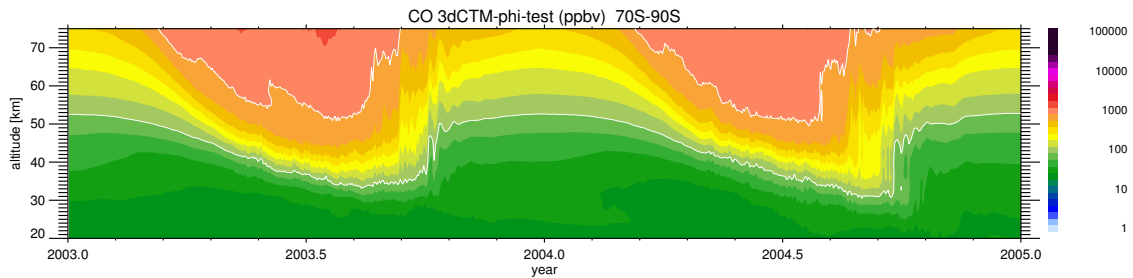


Abbildung 5.10: Kohlenstoffmonoxid in südlichen polaren Breiten analog der vorangegangenen Abbildungen, hier jedoch auf Grundlage eines Testlaufs, in dem verringerte Photolyse von  $\text{CO}_2$  stattfindet.

laren Minimum bedeutend mehr  $\text{NO}_x$  im Polarwirbel zeigen als die Messergebnisse. Hier ist es als möglich anzusehen, dass die AIMOS-Ionisationsraten eine Schwäche bezüglich ihrer Modulation mit dem Sonnenzyklus aufweisen, die die permanente Ionisation durch Elektronen betrifft.

Auch im Vergleich von CO in südlichen polaren Breiten (Abbildung 5.9) zeigen sich bereits bekannte Gegebenheiten. Die prinzipielle Übereinstimmung bezüglich des Abwärts-transportes sowie die Überschätzung von CO im Sommer in den Modellergebnissen sind auch in diesem Vergleich zu beobachten. Zusätzlich zeigt sich ein interessanter Gradient der CO-Volumenmischungsverhältnisse im Modell während des Winters: gegenüber den Messungen ist in der unteren Mesosphäre und oberen Stratosphäre bedeutend mehr CO vorhanden, woran sich mit abnehmender Höhe ein besonders steiler Gradient anschließt, so dass die Messergebnisse in der unteren Stratosphäre wiederum signifikant mehr CO anzeigen. Dieses Verhalten des Modells könnte abermals durch die vorgegebenen Dynamikdaten verursacht sein; LIMA verwendet keine Parametrisierung für Schwerewellen (siehe auch Abschnitt 2.3.7), löst jedoch nicht das gesamte Spektrum im Modell auf.

Hierdurch könnte zu einem geringen Teil Antrieb für weiteren Abwärtstransport fehlen, wodurch eine derartige Stauung im Bereich der Stratopause ermöglicht werden könnte.

### 5.3.1 Vergleich mit SCIAMACHY

Ein Vergleich der Modellergebnisse mit Messungen des SCIAMACHY-Instruments für NO ist in Abbildung 5.11 gezeigt. Der MLT-Modus (mesosphere, lower thermosphere) des Instruments deckt Höhenbereiche ab, in denen die MIPAS-Nominal-Daten, die für die bisherigen Vergleiche verwendet wurden, nicht vorliegen. Dieser Vergleich ermöglicht eine Einschätzung der NO<sub>x</sub>-Vorkommen oberhalb der bisherigen Vergleiche und damit eine Überprüfung der dort für den Abwärtstransport vorhandenen Mengen.

Die Anzahldichten von NO werden in Abbildung 5.11 für verschiedene Höhen verglichen, jeweils im Mittel über 70-75 Grad nördlicher Breite und über 10km Höhe. Für 75 km bis 85 km Höhe (Abbildung 5.11, oben) kann noch von Übereinstimmung gesprochen werden, wenn das Gesamtniveau der Anzahldichten zwischen Messung und Modell verglichen wird. Im Winter ergeben sich mehrere Punkte mit Übereinstimmung. Die Messergebnisse zeigen dabei aber mindestens gleiche, oftmals höhere Anzahldichten, wobei zwischen Modell und Messungen ein Faktor von bis zu drei liegt. Die Übereinstimmung wird in 85 km bis 95 km weniger häufig, und der Faktor zwischen Modell und Messung erreicht oft etwa vier, manchmal auch höhere Werte. Darüber erscheint ein deutliches Defizit des Modells gegenüber den Messungen. In 95 km bis 105 km Höhe steht kurzzeitiger Übereinstimmung Ende 2009 ein Vergleichsfaktor von bis zu zehn gegenüber, insbesondere Anfang 2010. In 105 km bis 115 km zeigt sich ein ähnliches Bild, bei einem Faktor von vier für die meiste Zeit des Jahres 2009 und einem Faktor von bis zu zehn Anfang 2010. Mit weiter zunehmender Höhe nimmt der Unterschied wieder ab, mit häufigerer Übereinstimmung von Modell und Messungen, verglichen mit den darunterliegenden Höhen. Für größere Höhen sind keine Schaubilder gezeigt, die Rückläufigkeit der Differenz wurde jedoch überprüft und bestätigt.

Die Differenz zwischen Modell und Messungen oberhalb des Höhenbereiches, der in den MIPAS-Vergleichen diskutiert wurde, legt nahe, dass ein Defizit in dieser Quellhöhe ausschlaggebend für die Unterschätzung des Abwärtstransports nach den SSW-Ereignissen ist. Dieses könnte durch die vorgegebenen AIMOS-Ionisationsraten bedingt sein, denkbar ist darüberhinaus auch eine zu geringe photochemische Lebensdauer von NO. Darüberhinaus liegt die Vermutung nahe, dass im Polarwirbel vor den SSW-Ereignissen kein besonders ausgeprägter Transport über die Mesopause stattfindet, so dass in diesem Fall die NO<sub>x</sub>-Vorkommen den Messungen gut entsprechen, da Abwärtstransport aus der oberen Mesosphäre ( $\lesssim$  90 km) stattfindet, in der kein ausgeprägtes Defizit im Modell vorliegt. Der Transport über die Mesopause findet nach dem SSW-Ereignis mutmaßlich verstärkt statt, wodurch die oberhalb der Mesopause unterschätzte Menge an NO<sub>x</sub> eine Rolle spielt.

## Zusammenfassung

Auf Grundlage der Vergleiche des 3dCTM mit Messungen können die folgenden Ergebnisse zusammengefasst werden:

- Qualitative Übereinstimmung zwischen Modell und Messungen in Bezug auf die Spurenstoffe  $\text{NO}_x$  und CO wird in einer Vielzahl verschiedener Situationen in der Stratosphäre und Mesosphäre erreicht.
- Unstimmigkeiten ergeben sich für  $\text{NO}_x$  nach SSW-Ereignissen. Dort wird die Menge an  $\text{NO}_x$  in der Mesosphäre im Modell unterschätzt.
- Eine Unterschätzung von  $\text{NO}_x$  zeigt sich generell im Bereich der Mesopause und untersten Thermosphäre.
- Kohlenstoffmonoxid wird im Sommer im Modell gegenüber den Messungen überschätzt.

Aufgrund der  $\text{NO}_x$ -Unterschätzung nach SSW-Ereignissen und im Zusammenhang mit der  $\text{NO}_x$ -Unterschätzung in der untersten Thermosphäre lässt sich vermuten, dass Abwärtstransport im Polarwirbel nur etwa ab der Mesopause stattfindet und dass nach SSW-Ereignissen vermehrter Transport über die Mesopause stattfindet. Aufgrund der Vergleiche von Kohlenstoffmonoxid und der guten Übereinstimmung zwischen Modell und Messungen im Winter sowohl vor als auch nach SSW-Ereignissen lassen sich generelle Probleme mit dem Abwärtstransport der Luftmassen ausschließen. Die Überschätzung von Kohlenstoffmonoxid im Modell im Sommer ist anhand weiterer Tests mit der  $\text{CO}_2$ -Photolyserate zu untersuchen.

## 5 Vergleich der Modellsimulationen mit Messergebnissen

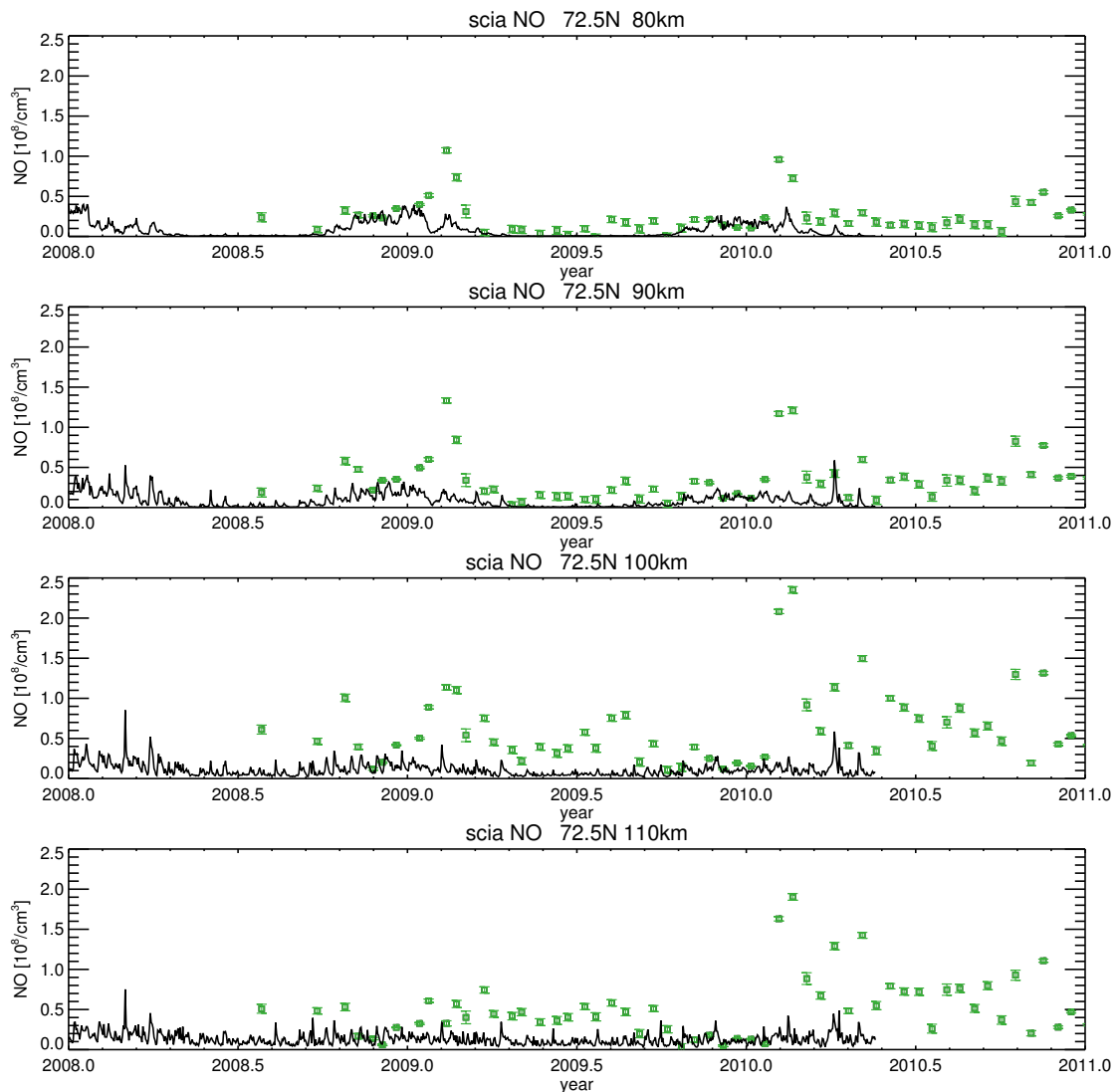


Abbildung 5.11: Vergleichsbilder der Anzahldichte von NO als Funktion der Zeit, für verschiedene Höhenbereiche (10km gemittelt) für 70-75 Grad nördlicher Breite. Gezeigt sind Modellergebnisse (schwarze Linie) und SCIAMACHY-Messergebnisse (grüne Quadrate) mit Fehlerbalken. Oben: 75 km-85 km, 2. v. oben 85 km-95 km, 3. v. oben 95 km-105 km, unten 105 km-115 km.

# 6 Modellstudien zur Untersuchung des Einflusses solarer Variabilität auf die Erdatmosphäre

Die im vorangegangenen Kapitel demonstrierte prinzipielle Übereinstimmung der Modellergebnisse des 3dCTM mit Messergebnissen des MIPAS-Instruments gestattet die Durchführung und Interpretation weiterer Modellstudien, die in diesem Kapitel vorgestellt werden sollen. Von besonderem Interesse sind Studien zum Ozonabbau durch  $\text{NO}_x$  und  $\text{HO}_x$  (Abschnitt 6.1), zum Beitrag von Photoionisation (Abschnitt 6.2) sowie Studien zur Variation des Strahlungs- und Teilcheneinflusses auf langen Zeitskalen (Abschnitt 6.3).

## 6.1 Ozonabbau durch $\text{NO}_x$ und $\text{HO}_x$

$\text{NO}_x$  kann Ozon in einem katalytischen Zyklus abbauen, weshalb Ozonverluste nach solaren Protonenereignissen oder nach signifikantem Abwärtstransport von  $\text{NO}_x$  wie nach SSW-Ereignissen in den betroffenen Höhen erwartet werden. Der Reaktionsmechanismus mit dem größten Beitrag besteht aus den beiden Reaktionen



(Brasseur und Solomon, 1986). Für den effektiven Ozonabbau ist es in diesem Fall nötig, dass genügend atomarer Sauerstoff für Reaktion 6.2 vorliegt. Da atomarer Sauerstoff insbesondere unter Sonneneinstrahlung durch



gebildet wird, ist die Effektivität des Ozonabbaus durch  $\text{NO}_x$  während der Polarnacht eingeschränkt. In diesem Fall ist dann zu diskutieren, ob Ozonabbau durch OH und  $\text{HO}_2$  im Reaktionskreislauf



erfolgt (Brasseur und Solomon, 1986).

Ergebnisse der Modellstudien vom Winter 2003/2004 sind in Abbildung 6.1 dargestellt.

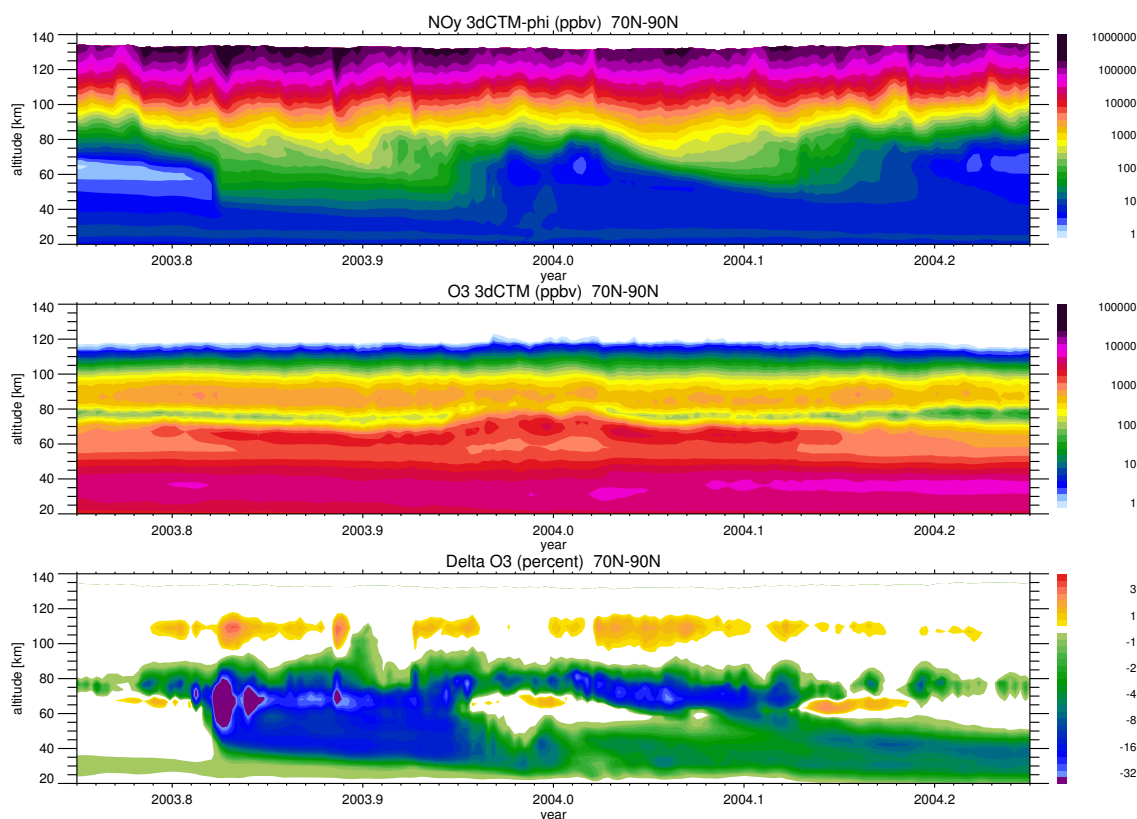


Abbildung 6.1: Ozonstudien im Winter 2003/2004. Oben ist das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{NO}_x$  aus dem Modelllauf 16-phioniz gezeigt (vgl. Abbildung 5.1), hier für den gesamten simulierten Höhenbereich und gemittelt über 70-90 Grad Nord. Das mittlere Schaubild zeigt das Volumenmischungsverhältnis von Ozon aus einem BASE-Modelllauf ohne ionisierende Einflüsse in sonst gleicher Konfiguration. Im unteren Schaubild ist die relative Ozondifferenz für dieselben Breiten und Zeiten dargestellt, die sich zwischen BASE-Modelllauf und 16-phioniz-Modelllauf ergibt. Sie ist dementsprechend dem Teilcheneinfluss und der Photoionisation zuzurechnen.

Der zeitliche Verlauf des Volumenmischungsverhältnisses von  $\text{NO}_x$  (oben) aus dem Modelllauf 16-phioniz (siehe Tabelle 4.1) ist hier, anders als bspw. in Abbildung 5.1, für den gesamten Höhenbereich des Modells gezeigt. Die Zunahme des Mischungsverhältnisses ist besonders in jenen Höhen zu beobachten, die auch bereits in Kapitel 5 analysiert wurden, bis in maximal etwa 80km Höhe. Im mittleren Schaubild von Abbildung 6.1 ist das Volumenmischungsverhältnis von Ozon für denselben Zeitraum und denselben Höhenbereich dargestellt, allerdings aus einem BASE-Modelllauf ohne Teilchen- und Strahlungionisation.

Im unteren Schaubild von Abbildung 6.1 ist eine relative Ozondifferenz gezeigt, die durch Vergleich von zwei verschiedenen Modellläufen erhalten wird. Hierzu werden die Ozonmengen des BASE-Laufs ohne Teilchenniederschlag mit denen des Modelllaufs

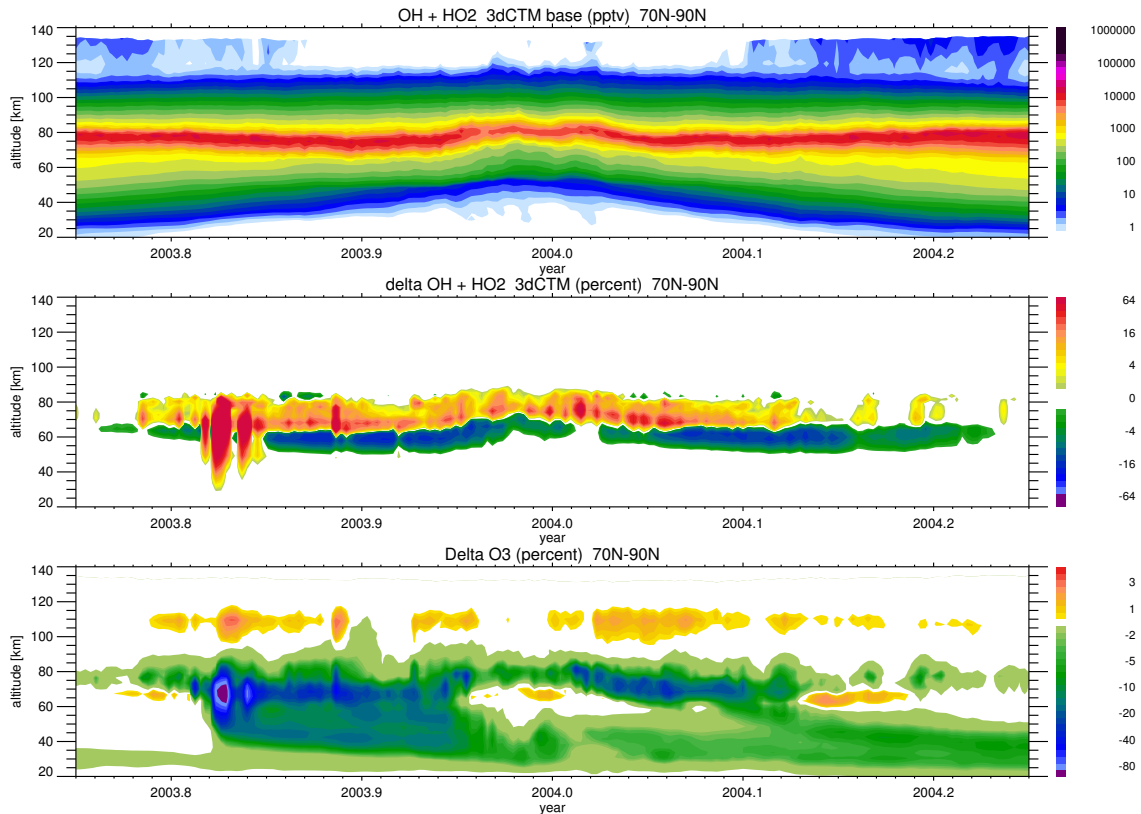


Abbildung 6.2: Ozonstudien im Winter 2003/2004. Das Volumenmischungsverhältnis von OH und  $\text{HO}_2$  (oben) wirkt sich auf die Struktur der Ozonvorkommen (Abbildung 6.1, Mitte) aus (Details im Text). Änderungen des OH +  $\text{HO}_2$ -Mischungsverhältnisses werden durch Teilcheneinfluss direkt (Bildung) und indirekt (Abbau durch  $\text{HNO}_3$ , welches durch Teilcheneinfluss vermehrt gebildet wird) verursacht (Mitte). Zur Veranschaulichung ist im unteren Abschnitt nochmals die Ozondifferenz (16-phioniz-Modelllauf gegenüber BASE-Modelllauf) gezeigt, wobei die veränderte Farbskala den maximalen temporären Ozonverlust durch  $\text{HO}_x$  zeigt.

16-phioniz (siehe auch Tabelle 4.1), in dem Produktion von  $\text{NO}_x$  durch Teilcheneinfluss und Photoionisation berücksichtigt wird, verglichen. Veränderungen oberhalb von etwa 105 km sind aufgrund des dort generell sehr niedrigen Ozonvorkommens nicht relevant. Darunter kann problemlos ein zeitlicher Zusammenhang zwischen Erhöhungen des  $\text{NO}_x$ -Volumenmischungsverhältnisses und der Abnahme der Ozonvorkommen identifiziert werden. Mehrere aufeinanderfolgende solare Protonenereignisse am 26. Oktober, 28. Oktober (Hauptereignis mit größtem Protonenfluss), 2. und 4. November sowie am 21. November sind im Ozondifferenzplot klar zu identifizieren. Alle führen zu lokaler, temporärer Ozonabnahme von mehr als 30%, die sich in ihrer Ausprägung (Dauer und Höhenbereich) nach der Intensität des Ereignisses richtet und zwischen 50 km und 80 km Höhe auftritt. Das Hauptereignis erreicht kurzzeitig eine lokale Ozonabnahme von mehr als 80%, die in einer Schnittdarstellung weiter Unten noch genauer zuzuordnen ist. Durch

den Halloween SPE (Ende Oktober 2003) und weiter absinkendes  $\text{NO}_x$  wird außerdem ein Ozonrückgang von 10% und mehr zwischen etwa 45 km Höhe und 75 km Höhe verursacht, der bis zum Eintritt des SSW-Ereignisses Mitte Dezember anhält.

Mit dem Zusammenbruch des Polarwirbels verringert sich die Menge an  $\text{NO}_x$  in der unteren Mesosphäre und oberen Stratosphäre signifikant. Einerseits fehlt der Abwärtstransport aus Höhenbereichen mit größerem Volumenmischungsverhältnis, andererseits findet Transport von Luftmassen aus niedrigeren in polare Breiten statt. Niedrigere Breiten sind vom SPE nicht betroffen und liefern so Luftmassen mit erheblich geringerem  $\text{NO}_x$ -Gehalt.

Mit dem erneuten Aufbau des Polarwirbels im Januar 2004 und absinkendem  $\text{NO}_x$  wird wiederum eine Ozondifferenz gegenüber dem Modelllauf ohne Teilcheneinfluss festgestellt. Diese fällt geringer aus als Ende 2003 und ist insbesondere im Wesentlichen auf den Höhenbereich zwischen etwa 65 km und 80 km beschränkt. Die im Vergleich geringe Ozondifferenz korreliert mit den Mengen an  $\text{NO}_x$ , die zum Abbau zur Verfügung stehen. Da keine direkte Produktion (die im Modell gut wiedergegeben wird, siehe Kapitel 5) in den betroffenen Höhen stattfindet und der Abwärtstransport gegenüber Messungen unterschätzt wird, ist davon auszugehen, dass ebenso die hier gezeigten lokalen Ozondifferenzen unterschätzt werden.

In der Stratosphäre verbleibt nach dem SPE eine Ozondifferenz von etwa 3% bis 5% dauerhaft über den gesamten Winter. Die Lebensdauer von Ozon ist in der Stratosphäre größer als in der Mesosphäre, was sich in längeren Zeitskalen von zeitlichen Verläufen äußert (Brasseur und Solomon, 1986).

Kurzlebige  $\text{HO}_x$ -Spezies ( $\text{OH}$ ,  $\text{HO}_2$ ) werden wie auch  $\text{NO}_x$  durch Teilcheneinfluss gebildet und können durch die Reaktionen 6.4 und 6.5, aber auch analog der Reaktionen 6.1 und 6.2 zum Ozonabbau beitragen. Aufgrund der begrenzten Lebensdauer durch Reaktion von  $\text{HO}_x$  mit verschiedenen anderen Spezies ist es naheliegend zu vermuten, dass der zeitlich begrenzte und besonders ausgeprägte Ozonabbau zur Zeit der Teilchenniederschläge zusätzlich durch  $\text{HO}_x$  verursacht wird, und der langanhaltende Ozonverlust ausschließlich durch  $\text{NO}_x$  zustandekommt. Zur Untersuchung dieses Zusammenhangs sind in Abbildung 6.2 das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{OH} + \text{HO}_2$  (oben), die relative Differenz dieser Stoffe zwischen 16-phioniz-Modelllauf und BASE-Modelllauf (Mitte) und nochmals die Ozondifferenz zwischen ebenjenen Modellläufen gezeigt (unten). Eine Korrelation zwischen  $\text{OH} + \text{HO}_2$  - Überschuss im Modelllauf mit Teilcheneinfluss und gleichzeitig erscheinenden niedrigeren Ozonwerten ist klar zu erkennen. Die  $\text{OH} + \text{HO}_2$  - Zunahme beschränkt sich dabei, mit Ausnahme des Halloween SPE, auf Höhen oberhalb von etwa 65 km. In diesen Höhen ist der Ozonabbau durch  $\text{OH} + \text{HO}_2$  der dominante Prozess (Brasseur und Solomon, 1986). Die Rolle von  $\text{NO}_x$  in diesem Höhenbereich muss weiter diskutiert werden, was anhand des folgenden Fallbeispiels vertieft wird.

Ähnliche Studien bezüglich des Ozonabbaus können in südlichen polaren Breiten durchgeführt werden, wodurch eventuell vorhandene hemisphärische Unterschiede untersucht werden können. Für den Winter 2004 auf der Südhalbkugel sind Schaubilder zu  $\text{NO}_x$ , Ozon und Ozondifferenz zu einem BASE-Modelllauf in Abbildung 6.3 gezeigt. Der Verlauf des Volumenmischungsverhältnisses von  $\text{NO}_x$  (Abbildung 6.3, oben) zeichnet sich besonders durch ausgeprägtes, kontinuierliches Absinken aus. Zusätzlich finden solare Protonenereignisse am 11. April, 25./26. Juli und 13. September statt. Deren Auswirkung auf  $\text{NO}_x$  ist, besonders am 25. und 26. Juli, zwar erkennbar, steht jedoch deutlich



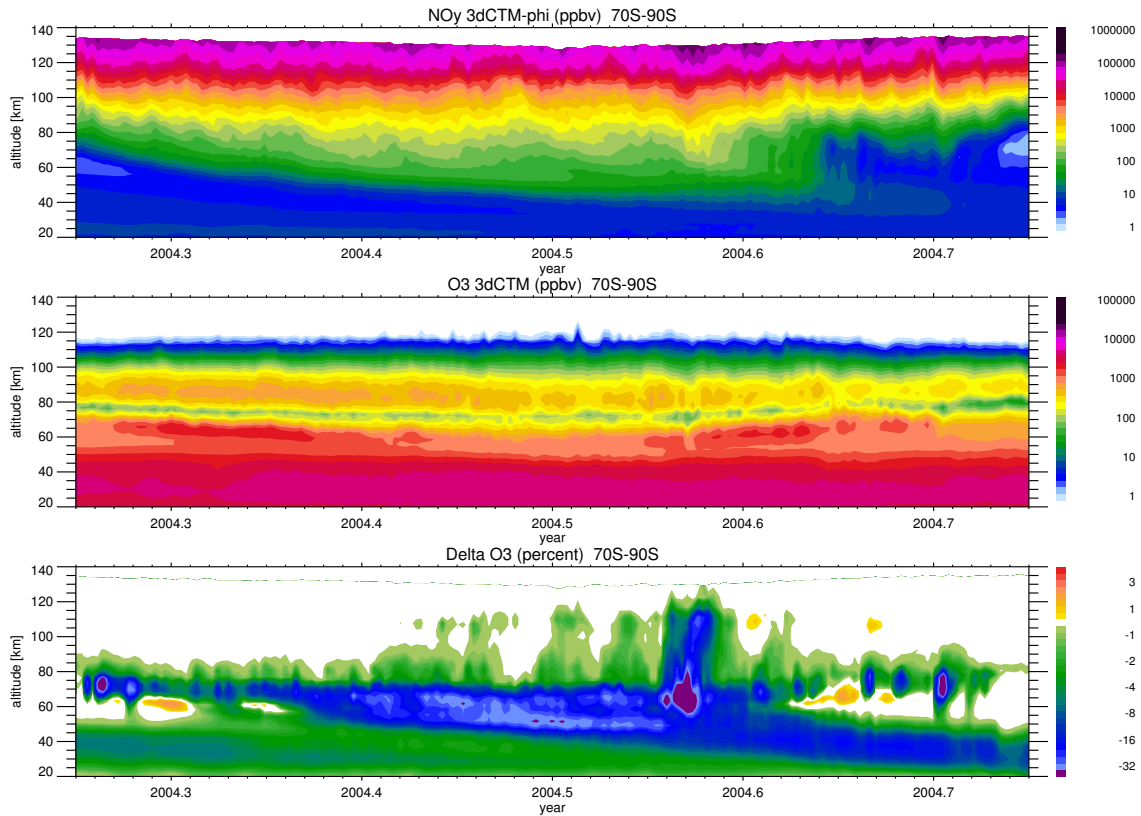


Abbildung 6.3: Analog Abbildung 6.1, jedoch für den Südhemisphärenwinter 2004.

hinter dem Halloween SPE zurück. Der bereits diskutierte prinzipielle Ozonverlauf (Abbildung 6.3, Mitte) dient wiederum der einfacheren Einordnung der dargestellten Ozondifferenzen (Abbildung 6.3, unten). Signifikante Differenzen sind insbesondere in Höhen unterhalb von etwa 80 km zu erkennen. Das Ereignis am 11. April ist mit zeitlich begrenztem Ozonabbau von über 32% in 70 km bis 75 km Höhe korreliert, der vermutlich insbesondere durch die Produktion von  $\text{HO}_x$  verursacht wird und durch Durchmischung schnell an Intensität verliert. Anschließende Ozondifferenzen werden durch absinkendes  $\text{NO}_x$  verursacht, wobei zunächst nur Höhen zwischen 75 km und 80 km betroffen sind und im weiteren Verlauf sukzessive auch niedrigere Höhen Ozondifferenzen zeigen. Die Vermutung, dass  $\text{NO}_x$  hier kausal ist und  $\text{OH}$  und  $\text{HO}_2$  nur untergeordnete Rollen spielen, wird durch die Darstellungen in Abbildung 6.4 erhärtet. Zusätzliches  $\text{OH}$  und  $\text{HO}_2$  wird in Höhen bis minimal 60 km festgestellt (Abbildung 6.4, Mitte), was jedoch nicht für die Ozondifferenzen gilt. Bevor das solare Protonenereignis am 25. Juli stattfindet, ist bereits der Oberrand der Stratosphäre in etwa 50 km Höhe von Ozonverlusten von mehr als 10% betroffen. Zwischen 50 km und 65 km Höhe werden durch absinkendes  $\text{NO}_x$  dagegen etwa 30% Ozonabbau erreicht. Dieser Zusammenhang, der in nördlichen polaren Breiten nicht zu erkennen ist, ist insbesondere im Hinblick auf die Effektivität der verschiedenen Ozonabbauzyklen interessant (Brasseur und Solomon, 1986; Lary, 1997). Der Beitrag von  $\text{NO}_x$  auch in Höhen oberhalb von 50 km ist demnach ein wichtiger Faktor für dortigen Ozonabbau.

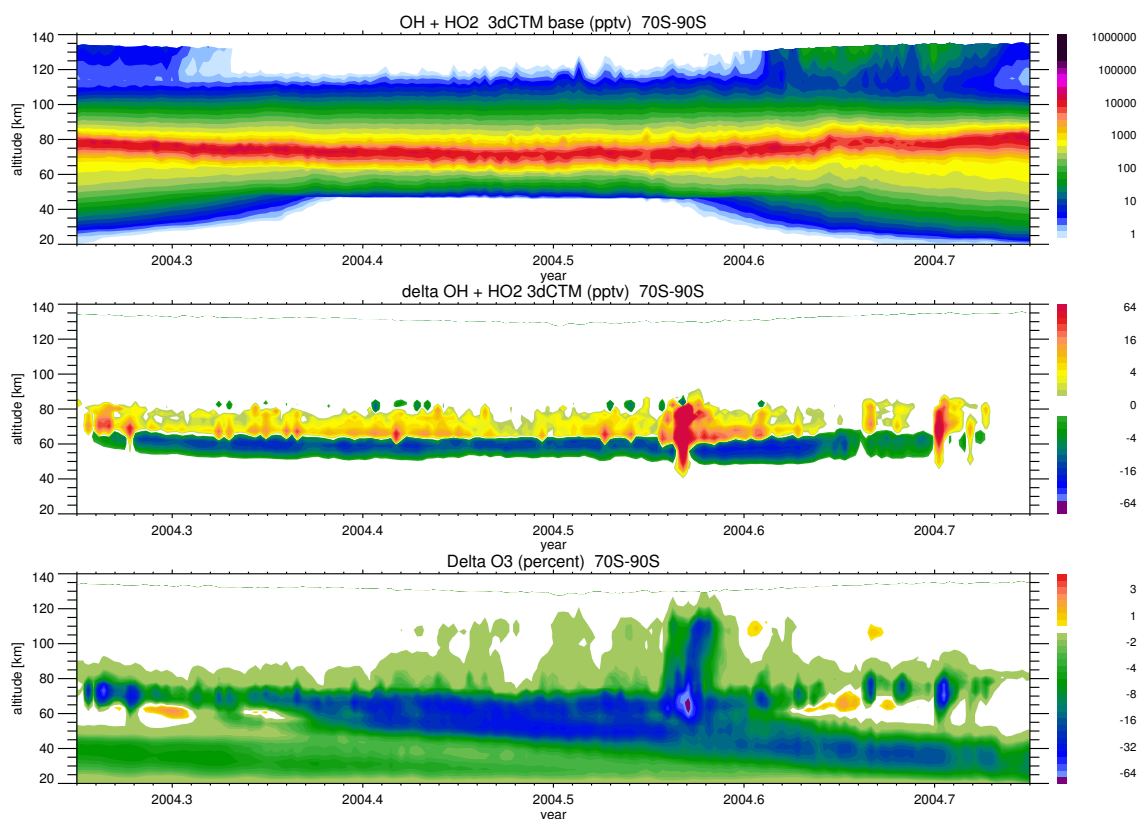


Abbildung 6.4: Wie Abbildung 6.2, jedoch für den Südhemisphärenwinter 2004. Die veränderte Farbskala für die Ozondifferenzen zeigt den maximalen Ozonverlust durch  $\text{HO}_x$ .

Das Protonenereignis im Juli führt in 60km bis 80km Höhe wiederum zeitlich begrenzt zu bedeutendem Ozonabbau von über 30%, kurzzeitig sogar mehr als 64%, was auch hier mit bedeutender Zunahme an OH und  $\text{HO}_2$  in den betroffenen Höhen korreliert ist (Abbildung 6.4, Mitte). Im Anschluss an das Protonenereignis verringert sich der Abwärtstransport, wodurch aufgrund der begrenzten Lebensdauer von Ozon in der Mesosphäre auch die Differenz verschwindet. In der Stratosphäre hingegen bleibt die Differenz bestehen. Das Protonenereignis im September ist im Ozondifferenzplot klar erkennbar, jedoch ohne Bedeutung im Gesamtverlauf.

Die Ozondifferenzen von einigen Prozent in der Stratosphäre, die ab Beginn des dargestellten Zeitraums vorliegen, könnten auf Abwärtstransport im vorangegangenen Winter zurückzuführen sein oder auf das solare Protonenereignis im Oktober 2003. Ihre Herkunft wird in Abschnitt 6.2 erörtert.

Für den HEPPA-II Winter (Nordhemisphärenwinter 2008/2009) können weitere Ozonuntersuchungen durchgeführt werden. Diese sind in Abbildung 6.5 analog der vorangegangenen Abbildungen dargestellt. Der zeitliche Verlauf von  $\text{NO}_x$  wurde im Kapitel 5 bereits diskutiert. Auch im Ozonverlauf sind keine bedeutenden Abweichungen von der prinzipiellen Erwartung zu erkennen, mit Ausnahme der erhöhten Stratopause Ende Januar 2009, die zur Überdeckung des Ozonminimums bei etwa 80km Höhe führt.

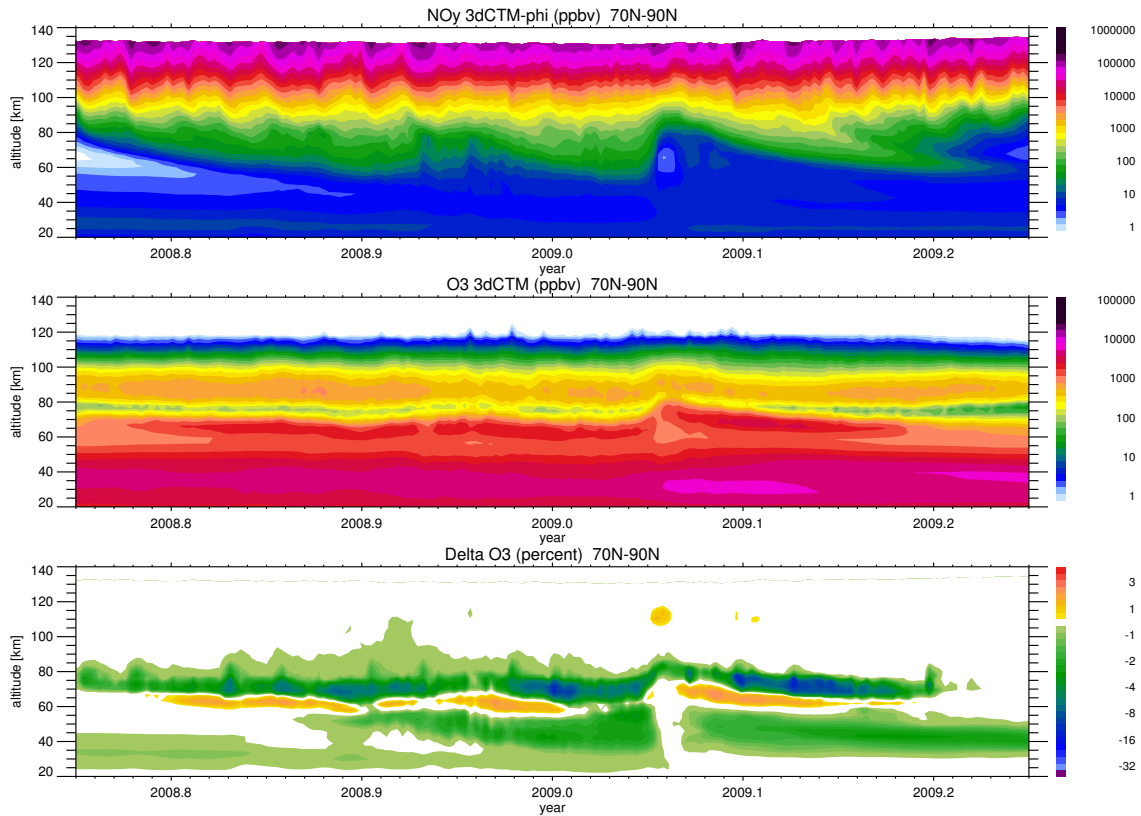


Abbildung 6.5: Analog Abbildung 6.1, jedoch für den HEPPA-II Winter 2008/2009.

Ozonabbau findet insbesondere zwischen 70 km und 80 km Höhe statt, sobald  $\text{NO}_x$  im Polarwirbel in diesen Höhenbereich transportiert wird. Die maximale Ozondifferenz vor dem Zusammenbruch des Polarwirbels wird zum Jahreswechsel mit etwa 10% erreicht. Zwischen etwa 58 km und 67 km ist eine positive Differenz von bis zu drei Prozent zu beobachten, die mit Verringerungen der OH- und  $\text{HO}_2$ -Mengen in diesen Höhenbereichen und denselben Zeiträumen korreliert ist (Abbildung 6.6, Mitte und unten). Der Mechanismus, der zur Verringerung der OH- und  $\text{HO}_2$ -Mengen führt, ist jedoch nicht abschließend geklärt. Reaktionen mit  $\text{HNO}_2$  sind in diesem Höhenbereich nicht wichtig (Brosseur und Solomon, 1986), Reaktionen mit Ozon passen nicht zur gleichzeitigen relativen Ozonzunahme. Signifikante Zunahmen atomaren Wasserstoffs, die auch zum Abbau von  $\text{HO}_2$  beitragen könnten, sind im Modell nicht festzustellen.

Darunter sind mit fortschreitendem Absinken Ozondifferenzen von einigen Prozent bis in die obere Stratosphäre zu erkennen. Beim Zusammenbruch des Polarwirbels ist, wie auch schon in den vorangegangenen Betrachtungen, wegen Transport aus niedrigeren Breiten ein kurzzeitiges Verschwinden der Ozondifferenz zu bemerken.

Im erneut entstandenen Polarwirbel ist zwischen 70 km und 80 km Höhe erneuter Ozonverlust zu sehen, der Anfang Februar sein Maximum mit etwa 10% erreicht. Wie schon Anfang 2004 ist hier damit zu rechnen, dass das Absinken von  $\text{NO}_x$  unterschätzt wird (siehe Abschnitt 5.2) und damit auch der Abbau von Ozon. Mit Ende des Abwärtstransports bilden sich die mesosphärischen Differenzen schnell zurück, da Ozon hier kurzlebig ist

## 6 Modellstudien zur Untersuchung des Einflusses solarer Variabilität auf die Erdatmosphäre

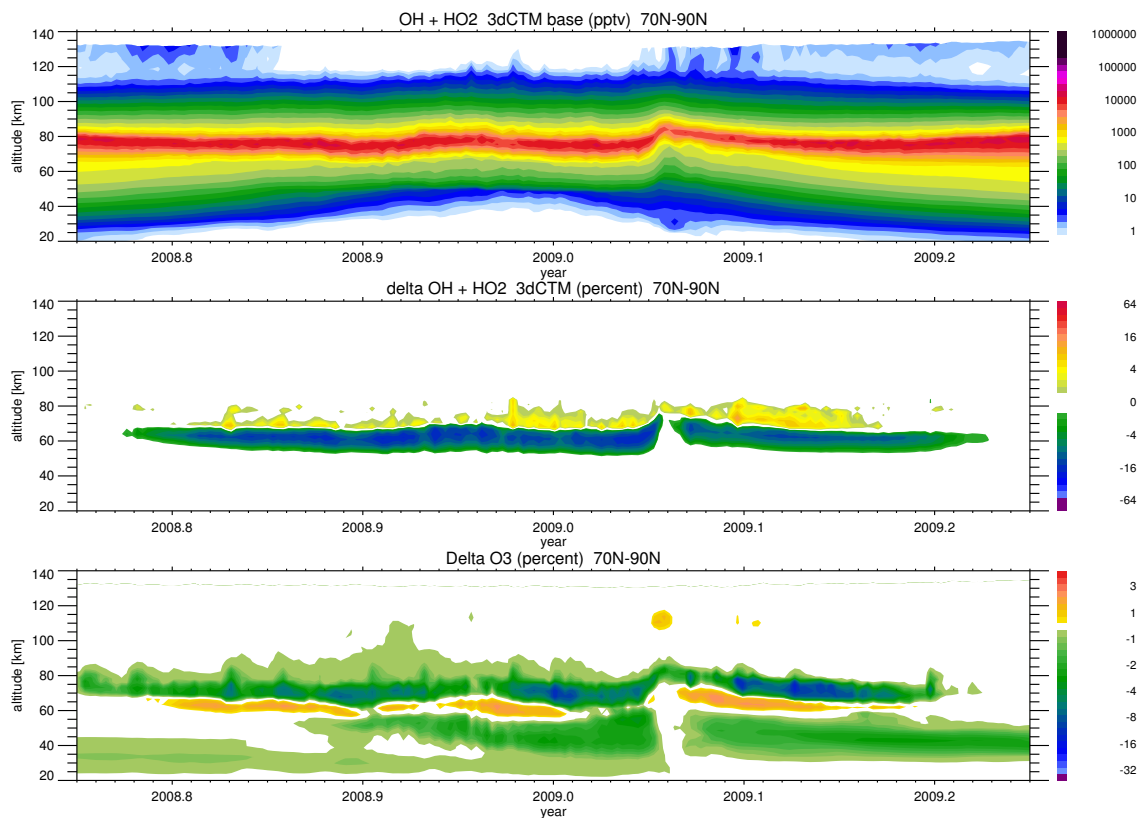


Abbildung 6.6: Wie Abbildung 6.2, jedoch für den HEPPA-II Winter 2008/2009.

und damit auch dessen Differenzen, während sie in der Stratosphäre noch bestehen bleiben.

Zum Vergleich der Maximalausprägungen der verschiedenen mit Ozonabbau assoziierten Ereignisse sind in Abbildung 6.7 Schnittzeichnungen der Ozondifferenzen als Funktion von Breitengrad und Höhe gezeigt, jeweils zum Zeitpunkt der bedeutendsten Effekte. Die größten temporären Auswirkungen zeigt hier ganz klar das solare Protonenereignis Ende Oktober 2003 (Abbildung 6.7, oben). Dort sind in beiden Hemisphären (ab 50 Grad südlicher Breite sowie ab 55 Grad nördlicher Breite) in Höhen zwischen 60 km und 80 km (süd) bzw. 55 km und 80 km (nord) Ozonrückgänge um mehr als 30% zu verzeichnen, die Spitzenwerte erreichen mit über 96% in den nördlichsten polaren Breiten einen fast vollständigen lokalen und temporären Ozonabbau. In südlichen polaren Breiten ist außerdem die obere Stratosphäre mit Verlusten von etwa als 10% betroffen, im Norden von einigen Prozent. In den südlichsten Breiten ab 80 Grad Süd liegen in der gesamten Stratosphäre etwa 10% Ozonverlust vor.

Zum Vergleich sind Ozondifferenzen aus dem Absinken von  $\text{NO}_x$  am 15.7.2004 dargestellt (Abbildung 6.7, Mitte). Sie fallen insgesamt sehr viel geringer aus als beim solaren Protonenereignis, erreichen jedoch in den südlichsten Breiten ebenfalls über 30% Verlust in 45 km bis 65 km Höhe. Ab 75 Grad südlicher Breite werden in dieser Höhe außerdem bereits mehr als 20% Ozondifferenz erreicht. Die gesamte Stratosphäre enthält ab etwa 60 Grad südlicher Breite einige Prozent weniger Ozon als im Referenzlauf. Ab etwa 70

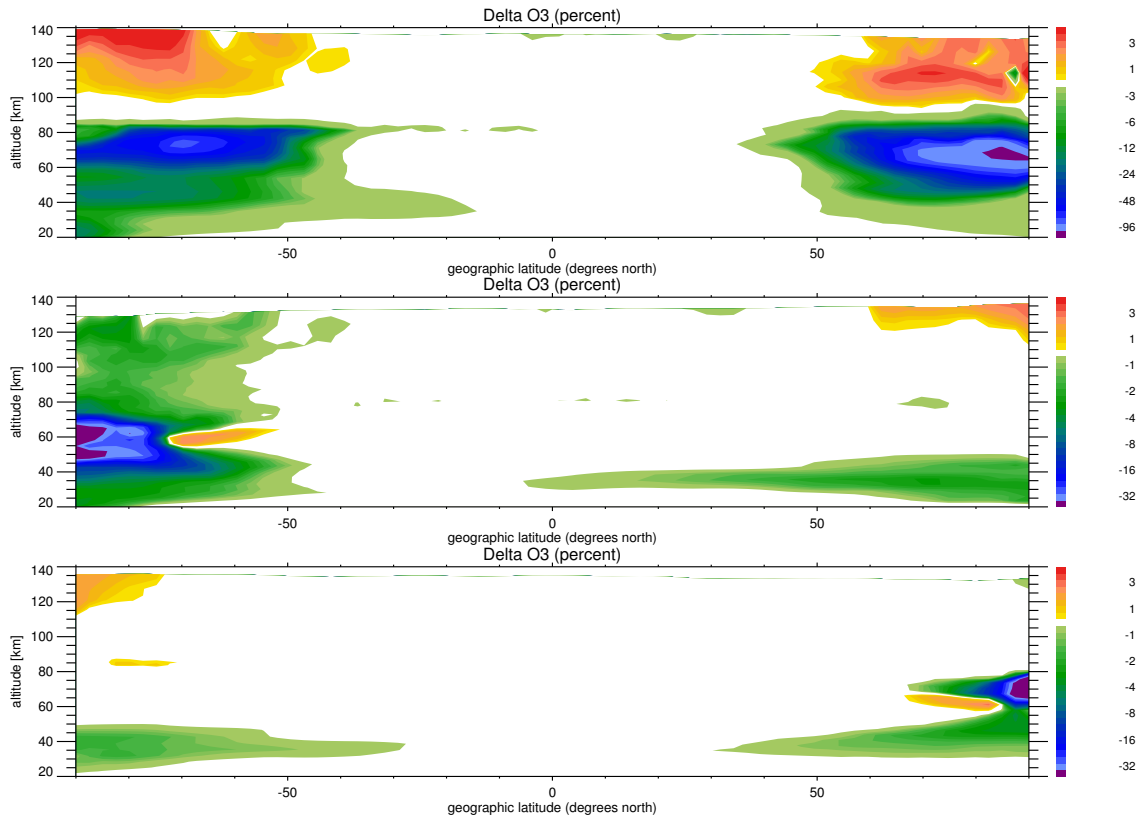


Abbildung 6.7: Ozondifferenzen zwischen BASE-Modelllauf und 16-phioniz-Modelllauf (siehe Tabelle 4.1) als Breitenschnitte dargestellt. Oben: 30.10.2003, während des Halloween-SPE. Mitte: 15.7.2004, zur Veranschaulichung des Transporteffekts während des Winters auf der Südhalbkugel. Unten: 21.2.2009, während Abwärtstransports nach SSW in nördlichen polaren Breiten. Die verschiedenen Farbskalen der einzelnen Schaubilder sind zu beachten.

Grad südlicher Breite gilt dies auch für die Mesosphäre oberhalb von 75 km Höhe. Insbesondere in südlichen Breiten kommt durch Absinkende Luft ein bedeutender Ozonverlust zustande (siehe auch Abbildung 6.3). Dessen zeitliche Entwicklung wird in Abschnitt 6.2 untersucht.

Die im Vergleich geringsten Ozonunterschiede zeigen sich im Winter 2009 am 21. Februar (Abbildung 6.7, unten). Bedeutende Differenzen werden hier nur in den nördlichsten Breiten erreicht (etwa 10% bei 80 Grad Nord und mehr als 30% ab 85 Grad Nord) und nur in Höhen zwischen etwa 65 km und etwa 75 km. Unterschiede von wenigen Prozent treten außerdem in den polaren Stratosphären beider Hemisphären auf.

Dieser Vergleich unterstreicht die Bedeutung großer Ionisationsereignisse für die Ozonvorkommen der Atmosphäre insbesondere in polaren Breiten. Die Berücksichtigung von Abwärtstransport ist ebenfalls wichtig, wobei hier der Effekt in südlichen Breiten stärker ausgeprägt ist als im Norden, was auf den im Süden stabileren Polarwirbel zurückzuführen ist. Abwärtstransport von  $\text{NO}_x$  nach SSW-Ereignissen wird im Modell vermutlich

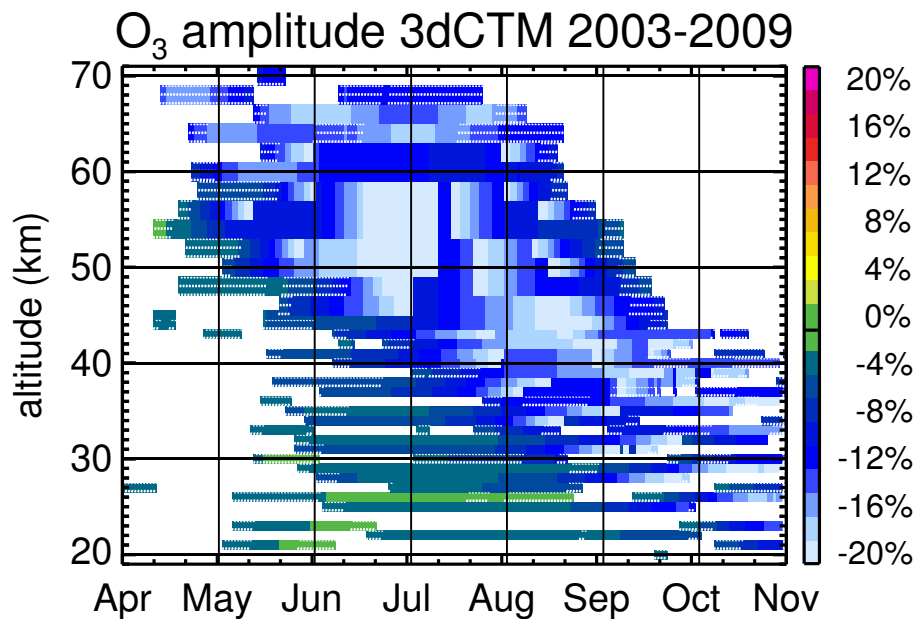


Abbildung 6.8: Ozonveränderungen aus einer Überlagerungsanalyse der Jahre 2003 bis 2009, auf Grundlage von Modelldaten des 3dCTMs (Modelllauf 16-DB gegenüber BASE-Modelllauf). Es sind ausschließlich Bereiche gefärbt, die ein Signifikanzlevel von 95% erreichen oder übertreffen. Signifikanz zwischen 95% und 99% ist geriffelt markiert, ungeriffelte Bereiche liegen über 99%. Die Berechnung der Ozonveränderungen erfolgt durch Subtraktion der Modellläufe und anschließender Division durch deren Mittelwert. Abbildung aus Fyterer *et al.* (2015).

unterschätzt, weshalb sich die Bedeutung dieser Ereignisse für die Ozonvorkommen anhand der bisherigen Modellstudien nicht einordnen lässt.

## Korrelationsanalyse des Abwärtstransports

In Fyterer *et al.* (2015) werden wiederkehrende Veränderungen der Ozonvorkommen im südlichen Polarwirbel und deren Zusammenhang mit absinkenden  $\text{NO}_y$ -Anomalien untersucht. Dazu werden Messergebnisse mehrerer Satellitenexperimente (MIPAS: Juli 2002 bis März 2004 und Januar 2005 bis April 2012, SABER: ab Januar 2002, SMR: ab Februar 2001) ausgewertet und  $\text{NO}_y$ - und Ozonanomalien, definiert als Differenzen zwischen Jahren mit hoher und Jahren mit niedriger geomagnetischer Aktivität, untersucht. Diese Anomalien werden Zeit- und Höhenbereichen zugeordnet. Es wird eine signifikante Korrelation zwischen hohem Ap-Index am 1. April und Ozonanomalien von -5% bis -10% festgestellt, die sich in den Monaten Juni und Juli in der oberen und mittleren Stratosphäre zeigt. Zum Vergleich wird eine Differenzanalyse mit dem 3dCTM mit den im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Daten (Modelllauf 16-DB gegenüber BASE-Modelllauf) herangezogen. In Abbildung 6.8 ist für die mit dem 3dCTM erhaltenen Ozondifferenzen

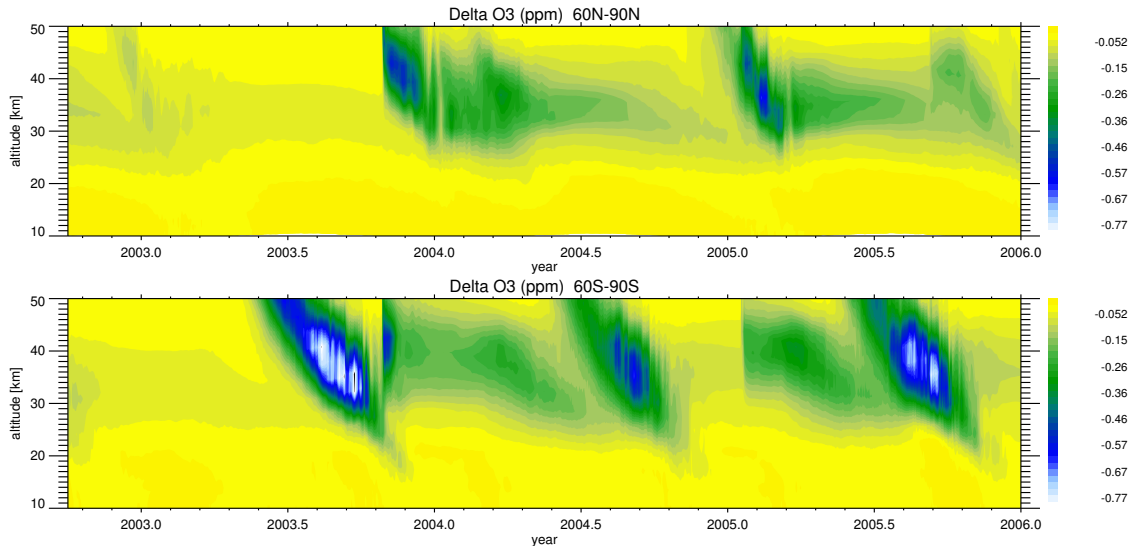


Abbildung 6.9: Ozondifferenz zwischen BASE-Modelllauf und 16-phioniz-Modelllauf für nördliche (oben) und südliche polare Breiten (unten) in ppm. Dargestellter Zeitraum und Höhenbereich sowie die Farbskala sind analog Reddman *et al.* (2010) gewählt.

diese Analyse gezeigt. Die Differenzbildung zwischen den Modellläufen ist dabei mit der Differenzbildung zwischen Zeiten hohen und niedrigen Ap-Index' vergleichbar, die Amplitude sollte die Ergebnisse der Ap-Analyse jedoch übertreffen.

Im Schaubild ist ein klarer Zusammenhang von Ozonabbau mit dem Abwärtstransport von Luftmassen gezeigt. Die Ozondifferenzen erreichen regelmäßig 20% Verlust in der unteren Mesosphäre und oberen Stratosphäre in den Monaten Juni und Juli, was mit dem in Abbildung 6.3 gezeigten Beispiel aus dem Jahr 2004 in Einklang steht. Im weiteren Absinken bleiben hohe Ozonverluste von 10% bis 20% bestehen, nicht in allen Höhenbereichen wird aber durchgehend Signifikanz der Analyse erreicht. Die persistenten Ozonunterschiede von wenigen % in der mittleren Stratosphäre, die in diesem Kapitel diskutiert wurden, werden in den Monaten Mai, Juni und Juli auch in der Überlagerungsanalyse gefunden, bevor das Hauptereignis diese Höhen erreicht. Es bestehen jedoch in vielen Höhen statistische Vorbehalte, die persistenten Ozondifferenzen sind statistisch weniger signifikant.

## Vergleich mit anderen Studienergebnissen

Modellstudien zum Einfluss von  $\text{NO}_x$  auf Ozon in der Stratosphäre wurden beispielsweise bereits von Reddman *et al.* (2010) durchgeführt. Dort werden MIPAS-Messergebnisse für  $\text{NO}_x$  in der Mesosphäre in ein Chemietransportmodell (KASIMA - Karlsruhe Simulation Model of the middle Atmosphere) eingefügt, um deren Effekt auf die Stratosphäre durch Abwärtstransport zu untersuchen. Es werden dabei nur Zeiträume mit erhöhtem  $\text{NO}_x$ -Gehalt der Mesosphäre im Modell berücksichtigt, und ausschließlich bis Anfang

2004 (Details in Reddmann *et al.* (2010)). Insofern unterscheiden sich die Quellen von  $\text{NO}_x$  in dieser Studie und in den hier durchgeführten Studien deutlich, insbesondere in der Nordhemisphäre, ein Vergleich der Ergebnisse bietet sich jedoch trotzdem an.

In Abbildung 6.9 sind Ozondifferenzen zwischen BASE-Modelllauf und 16-phioniz-Modelllauf (siehe Tabelle 4.1) analog Reddmann *et al.* (2010) gezeigt. In nördlichen polaren Breiten (Abbildung 6.9, oben) ist Ozonverlust mit dem Halloween-SPE 2003 im 3dCTM ähnlich KASIMA vorhanden, wenn auch etwas weniger ausgeprägt. Die entsprechenden Höhenbereiche stimmen zwischen den verschiedenen Modellstudien gut überein. Absinkendes  $\text{NO}_x$  Anfang 2004 ist im 3dCTM bedeutend weniger berücksichtigt als in KASIMA, da die dort verwendeten MIPAS-Daten deutlich höhere Konzentrationen zeigen (siehe Abbildung 5.1). Entsprechend ist im 3dCTM Anfang 2004 nur eine geringe Ozondifferenz vorhanden, während in der KASIMA-Studie in diesem Zeitraum die hauptsächlichen Ozonverluste stattfinden. In der KASIMA-Studie werden nach Februar 2004 keine  $\text{NO}_x$ -Mengen mehr von außen in das Modell aufgenommen, weshalb keine weiteren Effekte, so wie im 3dCTM Anfang 2005, erzielt werden.

Beim Vergleich der Ozondifferenzen in südlichen polaren Breiten (Abbildung 6.9, unten) zwischen 3dCTM und KASIMA wird Mitte und Ende 2003 eine hervorragende Übereinstimmung erreicht. Auf Grundlage der qualitativen Übereinstimmung der  $\text{NO}_x$ -Mengen zwischen 3dCTM und MIPAS in diesem Zeitraum ist die Übereinstimmung zu erwarten. Aufgrund der beendeten  $\text{NO}_x$ -Berücksichtigung in KASIMA nach diesem Zeitraum sind für dahinterliegende Ereignisse keine weiteren Vergleiche sinnvoll.

Insgesamt bestätigt der Vergleich mit den Modellstudien aus Reddmann *et al.* (2010) eine gute Wiedergabe der Effekte von solaren Protonenereignissen und Abwärtstransport von  $\text{NO}_x$  im Polarwirbel, mit Ausnahme der Zeiten nach SSW-Ereignissen.

## 6.2 Einzelbeiträge zum Ozonabbau

Die durchgeführten Modellstudien bieten die Möglichkeit, die Einzelbeiträge verschiedener Ionisationsquellen zum Ozonabbau in der Mesosphäre und Stratosphäre durch Differenzbildung zwischen entsprechenden Modellläufen quantitativ zu untersuchen. Für Photoionisation, die mittels des im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelten Moduls im 3dCTM berücksichtigt werden kann, wird der Vergleich zwischen Modellläufen mit Teilchenionisation (16-DB, siehe auch Tabelle 4.1) und mit Teilchen- und Photoionisation (16-phioniz) gezogen. Ergebnisse sind in Abbildung 6.10 analog Abbildung 6.7, jedoch mit anderer Farbskala dargestellt. Für den 30. Oktober 2003 (Abbildung 6.10, oben) sind keine signifikanten Ozondifferenzen festzustellen. Im Fall eines ausgeprägten solaren Protonenereignisses und nur geringem Abwärtstransport von Luftmassen ist Photoionisation dementsprechend von untergeordneter Bedeutung. Demgegenüber wird im stabilen südlichen Polarwirbel zusätzliches  $\text{NO}_x$  heruntertransportiert, welches zuvor unter Sonneneinstrahlung und durch Photoionisation in der Thermosphäre und oberen Mesosphäre gebildet wurde (siehe auch Abbildung 4.4). Hier werden durch Photoionisation zusätzliche Ozonverluste von etwa 5% bis über 10% erreicht, und zwar zwischen 47km und 65km Höhe in Breiten ab 80 Grad Süd (Abbildung 6.10, Mitte). In dieser Situation trägt Photoionisation etwa zu einem Fünftel zum Ozonabbau bei. Dieses Ergebnis erscheint



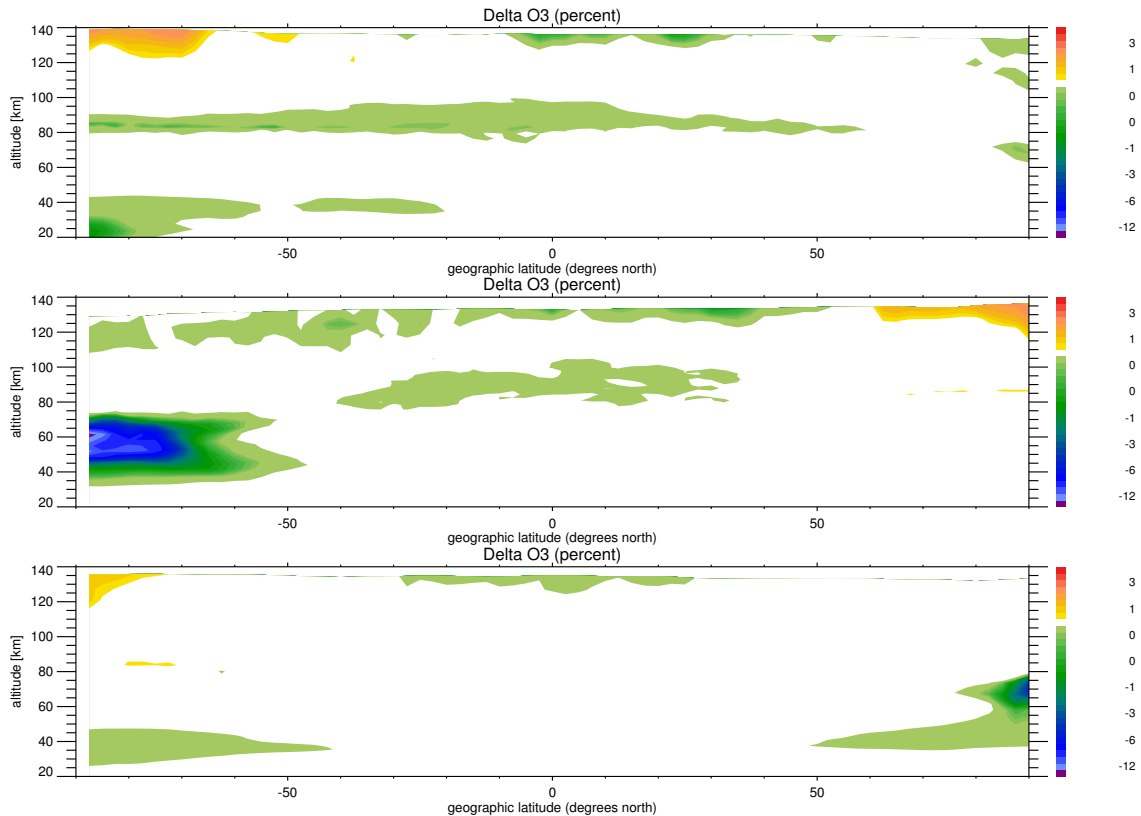


Abbildung 6.10: Analog Abbildung 6.7, jedoch für Ozondifferenzen durch Photoionisation. Gezeigt sind die relativen Ozonunterschiede zwischen einem Modelllauf mit Teilchenionisation, aber ohne Photoionisation (16-DB) und einem mit beiden Ionisationsquellen (16-phioniz). Die Farbskala ist gegenüber Abbildung 6.7 verändert.

qualitativ nach dem SSW-Ereignis im Winter 2008/2009 erneut, jedoch ist der Effekt am 21.2.2009 (Abbildung 6.10, unten) auf Breiten nördlich von 80 Grad Nord und auf Höhen zwischen 60km und 80km beschränkt. Die maximale Ausprägung ist hier etwa 3% zusätzlicher Ozonverlust, was weniger als einem Zehntel des Teilchenbeitrags entspricht. Es bleibt zu vermuten, dass der im Modell unterschätzte Abwärtstransport auch zu einer Unterschätzung des zusätzlichen Beitrags von Photoionisation führt, da deren ausschließliche Wirkhöhe oberhalb von 90km liegt.

Generell sind die Effekte zusätzlicher Photoionisation bezüglich der Ozonvorkommen lokal begrenzt und in ihrer Ausprägung denen von Teilchenionisation unterlegen. Trotzdem bietet die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Lösung zur Berücksichtigung von Photoionisation die Möglichkeit, auch jene Fälle gezielt zu untersuchen, in denen der Beitrag von Photoionisation nicht vernachlässigt werden kann, wie im südlichen Polarwirbel.

Darüberhinaus ist es möglich, die Beiträge der permanenten Ionisation durch Elektronen und von temporären Protonenereignissen zu vergleichen. Die maximale Ausprägung wurde bereits in Abschnitt 6.1 diskutiert, es bleibt jedoch, verschiedenen Ozonabbau den unterschiedlichen Primäreffekten zuzuordnen. Abbildung 6.11 zeigt hierzu Ozondiffe-

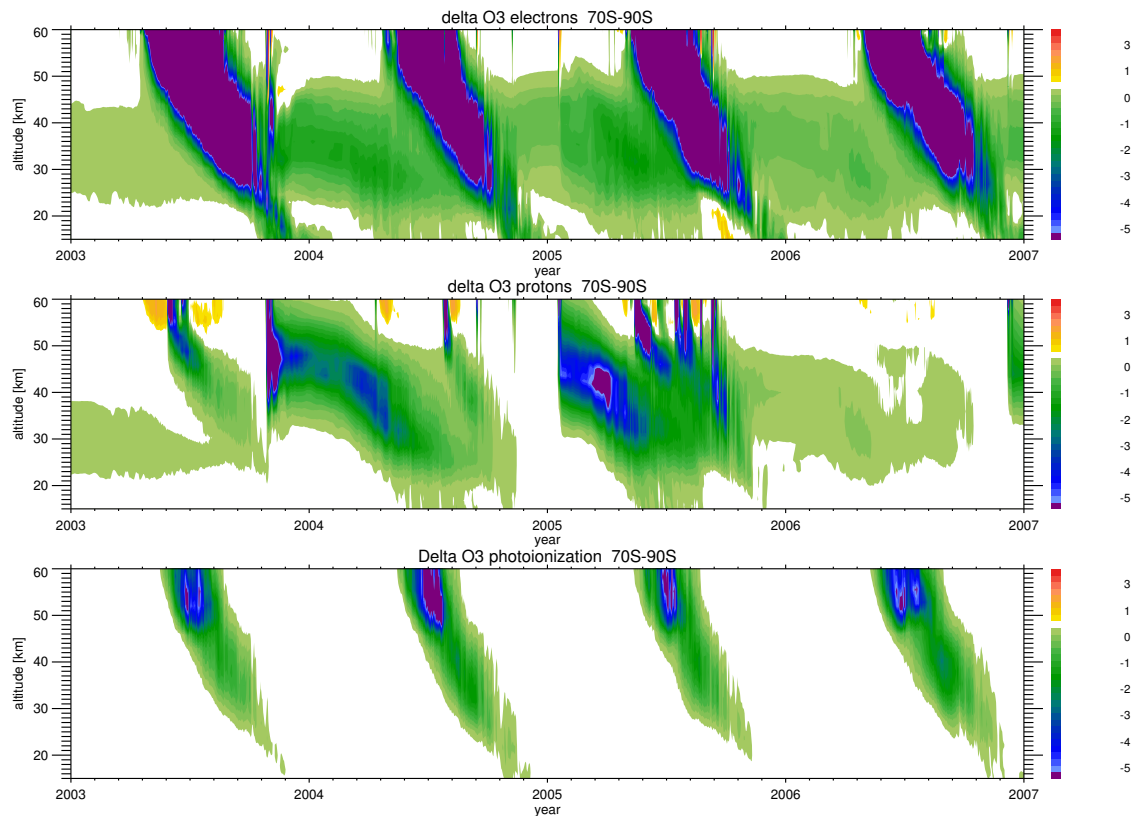


Abbildung 6.11: Differenzbilder für Ozon in der Stratosphäre und unteren Mesosphäre zur Identifizierung des Einflusses verschiedener Ionisationsquellen (relative Differenz in Prozent). Oben: Differenzbildung so, dass der Einfluss der permanenten Elektronenionisation näherungsweise isoliert ist (Differenz zwischen Modelllauf JACK und 16-DB). Mitte: Einfluss der Ionisation ausschließlich durch Protonen (Differenz zwischen BASE und JACK). Unten: Zusätzlicher Einfluss von Photoionisation auf Ozon, wenn bereits Protonen und Elektronen berücksichtigt werden (Differenz zwischen 16-DB und 16-phioniz).

renzen zwischen verschiedenen Modellläufen. Die Differenz zwischen einem Modelllauf mit vollständiger Teilchenionisation und einem mit Ionisation ausschließlich durch Protonen isoliert somit den Einfluss der permanenten Elektronenionisation auf Ozon. Gezeigt ist das Ergebnis für südliche polare Breiten (ab 70 Grad Süd) für mehrere Jahre von Anfang 2003 bis Ende 2006 in Abbildung 6.11 (oben). Mit Hauptaugenmerk auf den langanhaltenden Ozondifferenzen lässt sich hier feststellen, dass Elektronen insbesondere im Winter während des stabilen Polarwirbels wesentliche Ozonverluste verursachen (siehe auch Abschnitt 6.1). Die über den Sommer andauernde Wirkung der Elektronen auf stratosphärisches Ozon beträgt in dieser Darstellung etwa 2 Prozent Verlust in den Südhemisphärensommern 2003/2004 und 2004/2005, jedoch weniger als ein Prozent Verlust in den Sommern 2002/2003 und 2005/2006. Dieser Unterschied könnte technische Hintergründe haben und muss im Zusammenhang mit dem isolierten Ozonverlust durch

Protonenionisation (Abbildung 6.11, Mitte) diskutiert werden. Solare Protonenereignisse im Oktober 2003 und im Januar 2005 haben außer den in Abschnitt 6.1 besprochenen kurzfristigen Ozonveränderungen auch andauernde Effekte auf stratosphärisches Ozon zur Folge, wie in Abbildung 6.11 (Mitte) dargestellt ist. Diese Effekte erreichen höhenabhängig 2% bis 5% Ozonverlust, der über Monate im Südsommer anhält. In Verbindung mit dem Ozonverlust durch Elektronen fällt insbesondere eine zeitliche Korrelation des verstärkten Effekts im Schaubild für Elektronen und des Effekts durch Protonen auf. Es ist wahrscheinlich, dass die aus verschiedenen Quellen stammenden Daten für Protonenionisation (nach Vitt und Jackman (1996) sowie Jackman *et al.* (1980) für Protonen und nach Wissing und Kallenrode (2009) für den Kombinationsdatensatz mit Protonen und Elektronen) sich geringfügig in Bezug auf die durch Protonen erzielten Ionisationsraten unterscheiden und dies in der gezeigten Differenzdarstellung einen Effekt der Elektronen vermuten lässt, der jedoch höchstwahrscheinlich nicht existiert. Der anhaltende Ozonverlust durch Elektronen ist demnach im Südsommer auf Werte von bis zu einem Prozent beschränkt. Auch die Analyse von in Abbildung 6.11 nicht dargestellten Jahren unterstützt dieses Ergebnis. Der zusätzliche Beitrag von Photoionisation zum Ozonabbau ist in Abbildung 6.11 (unten) erneut als Zeitverlauf für südliche polare Breiten dargestellt. Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt diskutiert, ist Photoionisation insbesondere im stabilen südlichen Polarwirbel nicht vernachlässigbar, einen feststellbaren Beitrag zu den über den Sommer andauernden Effekten leistet sie jedoch nicht.

## 6.3 Variation von Teilchen- und Strahlungseinfluss auf langen Zeitskalen

Ähnlich wie in Abschnitt 4.1 können durch Differenzbildung zwischen verschiedenen Modellläufen (Konfiguration siehe Tabelle 4.1) die Einflüsse einzelner Prozesse isoliert und damit untersucht werden. Um die zeitliche Veränderung des Strahlungseinflusses zu isolieren, werden Doppeldifferenzen für verschiedene Spurenstoffe gebildet. Die Differenz zwischen Modelllauf mit festem und mit variablem Sonnenspektrum (BASE bzw. BASE-ICMI) isoliert den Strahlungseinfluss (siehe auch Abschnitt 4.3). Der tageweise Vergleich dieser Differenzen mit den Werten, die im Jahr 2007 auftreten, eliminiert feste Unterschiede und isoliert damit zusätzlich den zeitlichen Verlauf der Differenzen. Das Jahr 2007 wird als Referenz ausgewählt, da es nahezu im solaren Minimum liegt und außerdem keine besonderen Teilchenereignisse enthält, was beim analogen Vorgehen bezüglich des Teilcheneinflusses (s.u.) wichtig ist. Das Jahr 2008 steht aufgrund fehlender Antriebsdaten für die Modellläufe nicht komplett zur Verfügung. Um die Analyse nicht durch sehr kurzzeitige Schwankungen zu erschweren, wird außerdem ein gleitender Durchschnitt aller Werte über 90 Tage verwendet. Die Differenzen werden zur einfacheren Veranschaulichung relativ zum Referenzlauf angegeben. Für ausgewählte Spurenstoffe sind die Ergebnisse dieser Vorgehensweise in Abbildung 6.12 dargestellt.

In Bezug auf Ozon (Abbildung 6.12, oben) lassen sich insbesondere zwei Merkmale erkennen. Zum einen existiert ein Ozonüberschuss im solaren Maximum oberhalb der OH-Schicht, der erwartungsgemäß mit weiterer Annäherung an das Referenzjahr verschwin-

det. Hier ist als Ursache die verstärkte Photolyse von molekularem Sauerstoff durch den erhöhten Strahlungseintrag wahrscheinlich. Außerdem existiert ein Ozondefizit zwischen 70 km und etwa 85 km, welches ebenfalls im solaren Maximum ausgeprägt ist und zur Referenz hin verschwindet. Dieses Defizit kann mit einem Überschuss an OH korreliert werden, der in Abbildung 6.12 (3. v. oben) gezeigt ist und einen sehr ähnlichen Verlauf im gleichen Höhenbereich nimmt. Aufgrund der Möglichkeit des katalytischen Abbaus von Ozon durch OH liegt es nahe, hier eine Kausalität zu vermuten. Desweiteren ist eine positive Ozondifferenz in der unteren Mesosphäre und der Stratosphäre zu beobachten. Sie fällt im Vergleich gering aus, da der direkte Einfluss des sich verändernden Strahlungseinflusses in diesen Höhen bereits abgeschwächt ist. Der prinzipielle Verlauf, mehr Ozon im solaren Maximum vorzufinden, ist auch hier gegeben. Interessant ist, dass die Differenzen sich bis hinunter zu etwa 20 km Höhe ausbreiten, wobei dazu die Vermutung naheliegt, dass weiter oben entstandene Differenzen nur durch Transport diesen Höhenbereich erreichen.

Für Kohlenstoffmonoxid (Abbildung 6.12, 2. v. oben) zeigt sich eine positive Differenz im solaren Maximum, die mit der dort verstärkt auftretenden  $\text{CO}_2$ -Photolyse erklärt werden kann. Verstärkte  $\text{CO}_2$ -Photolyse findet insbesondere oberhalb von etwa 80 km statt, dort sind die Strahlungsdifferenzen ausgeprägt. Durch Abwärtstransport von Luftmassen im Winter werden ebenso die positiven CO-Differenzen in niedrigere Höhenbereiche mitgenommen. Die geringfügigen negativen Differenzen zwischen etwa 65 km und 75 km Höhe könnten mit dem dort verstärkten Auftreten von OH verknüpft sein, diese Vermutung lässt sich jedoch ohne Analyse der Einzelreaktionsgeschwindigkeiten nicht überprüfen.

Die zeitliche Veränderung von OH (Abbildung 6.12, 3. v. oben) kann klar mit der zeitlichen Veränderung der Sonneneinstrahlung korreliert werden. Allerdings kann nicht eindeutig bestimmt werden, über welche Zwischenprozesse die relative Zunahme von OH verursacht wird - verstärkte Photolyse von Wasser kann anhand der hier dargestellten Bilder (Abbildung 6.12, unten) nicht festgestellt werden, und ein anderweitig verursachtes verstärktes Auftreten von atomarem Wasserstoff zur Bildung von OH erscheint nicht kausal begründbar. Auch an dieser Stelle sind weiterführende Untersuchungen mit Einzelreaktionsgeschwindigkeiten nötig, um den intuitiv logischen Verlauf der OH-Differenz kausal zu erklären.

Die zeitliche Veränderung des Wasserdampfgehalts (Abbildung 6.12, unten) mit dem solaren Zyklus ist in Höhen oberhalb von etwa 85 km klar mit der Veränderung der Strahlungsintensität korreliert. Erhöhte Photolyseraten sind auch hier zu vermuten, insbesondere auch wegen der stärkeren Ausprägung der Differenz im Sommer. Weitere Auswirkungen, beispielsweise auf andere Spurenstoffe, sind anhand des Zeitverlaufs jedoch nicht zu begründen.

Zur Isolation der zeitlichen Veränderung des Teilcheneinflusses können Doppeldifferenzen analog der Vorgehensweise bezüglich Strahlungseinfluss gebildet werden, hier jedoch zwischen einem Modelllauf ohne Teilcheneinfluss (BASE) und einem mit Teilcheneinfluss (16-DB). Hierdurch wird zunächst der Teilcheneinfluss isoliert, durch Vergleich mit dem Jahr 2007 zusätzlich seine zeitliche Veränderung. Ergebnisse hierzu sind in Abbildung 6.13 dargestellt.

Insgesamt sind bei keinem der in Abbildung 6.13 gezeigten Spurenstoffe zeitliche Veränderungen zu erkennen, die sichtbar mit dem Sonnenzyklus korreliert wären. Ein genereller bzw. dauerhafter Effekt der Sonnenaktivität auf Teilchenniederschlag ist also nicht fest-

zustellen. Dennoch fallen einige Differenzen in den Spurenstoffschaubildern auf, die mit gleichzeitig stattfindenden solaren Protonenereignissen in Verbindung gebracht werden können. Diese Ereignisse sind sichtbar, da der Referenzzeitraum 2007 keine solchen enthält. Es treten in den jeweiligen Ereigniszeiträumen Ozonverluste, CO-Abbau, verstärkte Bildung von OH und Abbau von Wasser auf. Ungeklärt bleiben die genauen Hintergründe andersorientierter Differenzen in den Jahren 1999 und 2000. Hier ist allerdings denkbar, dass aufgrund der noch fehlenden AIMOS-Daten der Modelllauf 16-DB noch nicht sein dynamisches Gleichgewicht erreicht hat, was im Referenzzeitraum 2007 allerdings der Fall ist. Die hier gebildeten Differenzen sind deshalb nur bedingt aussagekräftig. Dieses Problem besteht bei der Untersuchung des Strahlungseinflusses nicht, da dort keine AIMOS-Daten verwendet werden.

Sowohl für den zeitlichen Verlauf von Strahlungseinfluss als auch Teilcheneinfluss lassen sich keine hemisphärischen Unterschiede feststellen, weshalb hier auf eine Beschreibung verzichtet werden kann.

## Vergleich mit anderen Studienergebnissen

Die zeitliche Variation mittlerer Ozonvorkommen über den solaren Zyklus wurde in Soukharev und Hood (2006); Gray *et al.* (2010) untersucht. Ausgehend von Messergebnissen des SAGE-II-Experiments (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II) von 1985 bis 2003 werden die Ozonvorkommen zwischen solarem Maximum und solarem Minimum in Zusammenhang gebracht. Mittels einer multiplen Regressionsanalyse werden Ozondifferenzen, die auf der Änderung der solaren Einstrahlung beruhen, aus den Daten extrahiert. In den untersuchten Höhen zwischen 20 km und 53 km werden dabei statistisch signifikante Ozonveränderungen gefunden. Diese befinden sich insbesondere zwischen 20 und 40 Grad südlicher Breite in 24 km bis 40 km Höhe sowie in tropischen Breiten (20 Grad Süd bis 30 Grad Nord) oberhalb von 40 km Höhe und betragen maximal knapp über 4%. Durch den Einfluss der Sonnenstrahlung ergeben sich also größere Ozonvorkommen im solaren Maximum als im solaren Minimum.

Eine ähnliche Untersuchung ist mit den Ergebnissen des 3dCTM möglich. Die Ergebnisse einer einfachen Differenzbildung zwischen Ozon im solaren Maximum (Jahr 2002) und Ozon nahe dem solaren Minimum (Jahr 2007) sind in Abbildung 6.14 (oben) gezeigt, der Modelllauf 16-phioniz-ICCM1 wird verwendet (siehe Tabelle 4.1). Im Bereich der Ozonschicht lassen sich Zunahmen von etwa zwei Prozent in äquatorialen Breiten und mehr als zehn Prozent in subpolaren und polaren Breiten feststellen. In tropischen Breiten ist eine deutliche Abnahme von Ozon unterhalb der Ozonschicht im solaren Maximum vorhanden. Desweiteren sind in der Mesosphäre besonders große negative Differenzen auszumachen, zwischen 30 und 60 Grad Süd und 20 und 60 Grad Nord. Anhand der dargestellten Differenzen lässt sich deren Ursache nicht bestimmen. In dieser Darstellung sind alle Parameter, die sich von 2002 zu 2007 ändern, berücksichtigt, also außer der solaren Einstrahlung auch Änderungen der Dynamik. Diese Darstellung ist somit nicht direkt mit Soukharev und Hood (2006); Gray *et al.* (2010) vergleichbar.

Um den gleichen Effekt wie in der Analyse der Messdaten aus Soukharev und Hood (2006) zu erhalten, kann auch an dieser Stelle eine Doppeldifferenz der Modellergebnisse verwendet werden. Es wird dann sowohl zwischen den Jahresmittelwerten von 2002

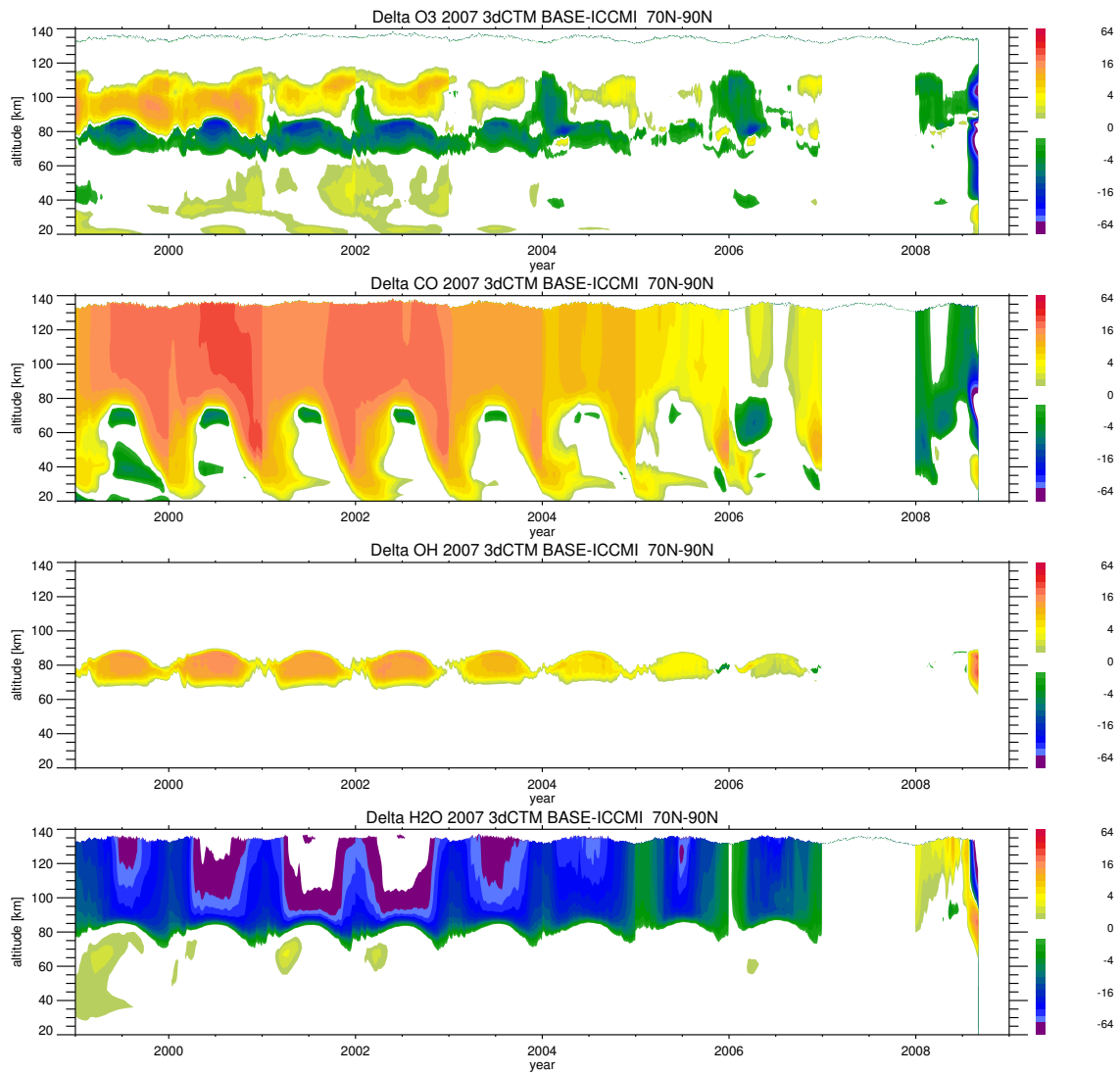


Abbildung 6.12: Doppeldifferenz-Bild zur Illustration der zeitlichen Veränderung des Strahlungseinflusses. Abbildung analog Abbildung 4.5, jedoch als Doppeldifferenz (Erklärung im Text).

### 6.3 Variation von Teilchen- und Strahlungseinfluss auf langen Zeitskalen

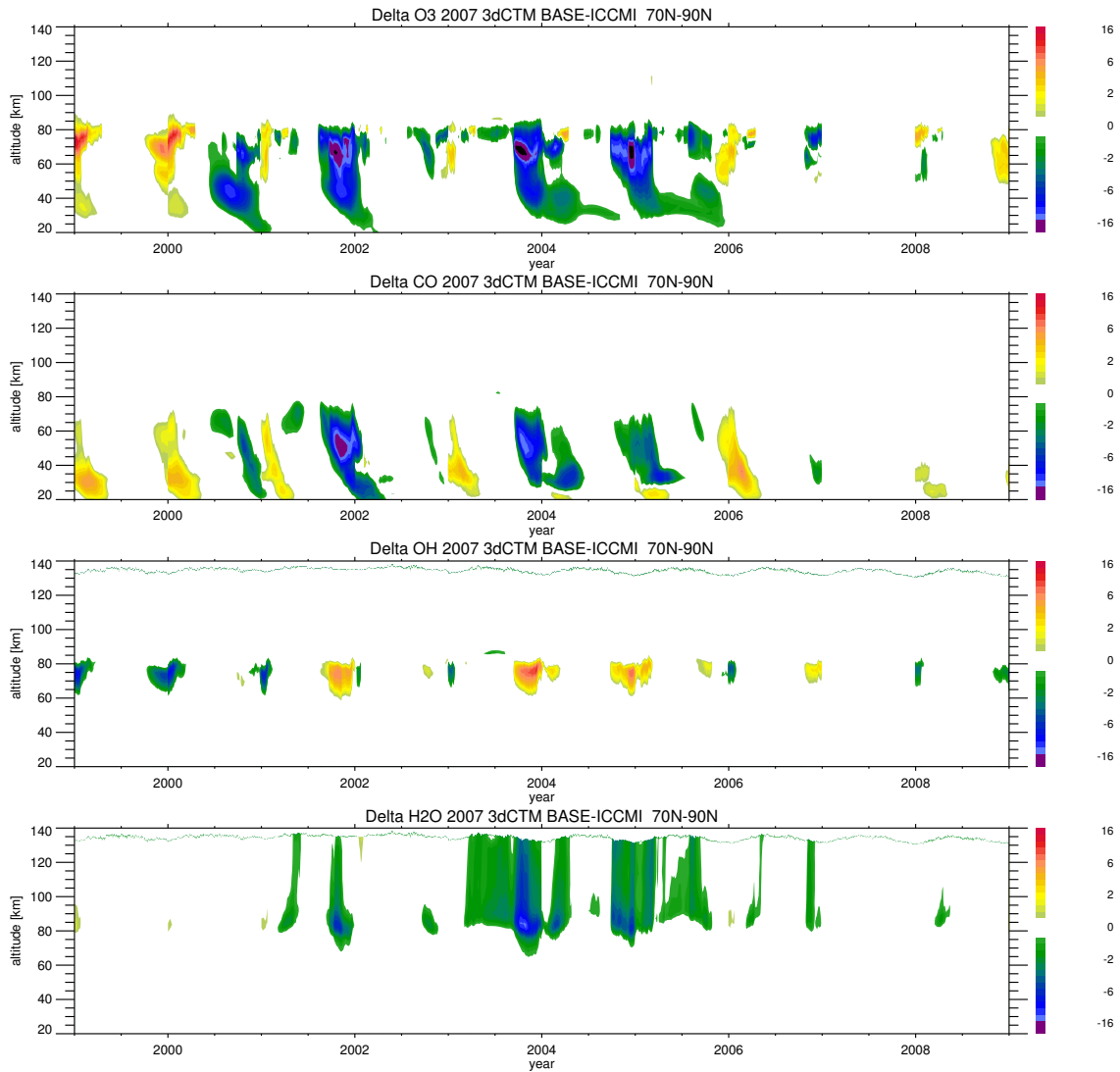


Abbildung 6.13: Analog Abbildung 6.12, jedoch zur Illustration des Teilcheneinflusses auf langen Zeitskalen. Die veränderte Farbskala ist zu beachten. Weitere Erklärungen im Text.

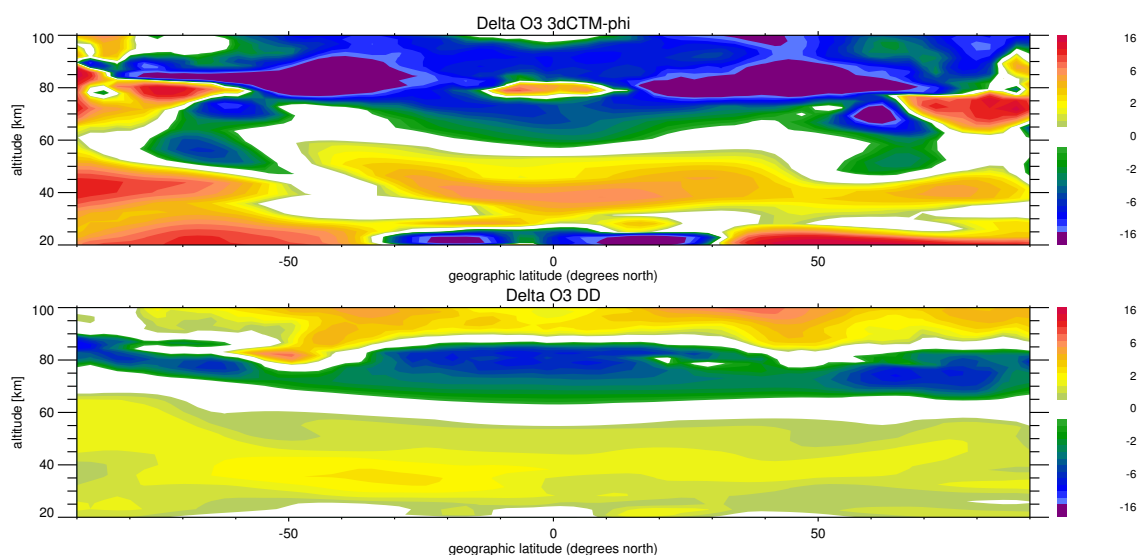


Abbildung 6.14: Relative Ozondifferenz im jährlichen Mittel zwischen den Jahren 2002 und 2007, etwa entsprechend solarem Maximum und solarem Minimum. Die Differenzen sind als Funktion von Höhe und Breitengraden dargestellt, analog zu einer Abbildung aus Gray *et al.* (2010). Oben: Einfachdifferenz zwischen 2002 und 2007, mit Daten aus dem Modelllauf 16-phioniz-ICCM1 (siehe Tabelle 4.1); unten: Doppeldifferenz zwischen 2002 und 2007 sowie zwischen den Modellläufen 16-phioniz-ICCM1 und 16-phioniz zur Isolation des Strahlungsbeitrags.

und 2007 als auch zwischen zwei Modellläufen, einmal mit variabler Sonneneinstrahlung und einmal ohne (16-phioniz-ICCM1 und 16-phioniz), eine Differenz gebildet. In dieser Analyse bleibt die unterschiedliche Sonneneinstrahlung 2002 und 2007 als einziger Unterschied isoliert. Änderungen der Dynamik werden durch die Differenzbildungen eliminiert.

Ergebnisse der Doppeldifferenzbetrachtung sind in Abbildung 6.14 (unten) gezeigt. Der Strahlungseinfluss auf Ozon lässt sich hier auf einfache Weise kausal erklären. In der Stratosphäre und unteren Mesosphäre sind die Ozonvorkommen im solaren Maximum wegen der größeren Strahlungsmenge erhöht, in der mittleren Mesosphäre wird durch die Sonneneinstrahlung die Bildung von OH verstärkt, wodurch sich Ozon verringert, und in der darüberliegenden Mesosphäre wird wiederum durch mehr Strahlung mehr Ozon im solaren Maximum produziert. Diese Ergebnisse stehen im Einklang mit jenen aus der Zeitreihen-Doppeldifferenzanalyse in Abbildung 6.12. Durch die Betrachtung der Ozondifferenzen unter Ausschluss und unter Einbeziehung dynamischer Variation lässt sich zeigen, dass ein großer Teil der in Abbildung 6.14 (oben) erkennbaren Differenzen dynamischen Effekten zuzuordnen sind. Insbesondere in tropischen Breiten in etwa 20 km Höhe ist unter Einbezug der Dynamik an sich änderndes Verhalten der tropischen Tropopause zu denken. Außerdem könnte die Ozonzunahme in 20 km bis 25 km Höhe polwärts dieses Bereiches auf eine Verstärkung der Brewer-Dobson-Zirkulation im solaren Maximum hindeuten. Veränderungen im Teilchenfluss sind in der Einfachdifferenz ebenfalls



enthalten, allerdings sind diese vernachlässigbar, wie sich durch deren Extraktion zeigen lässt. Abbildung 6.13 zeigt für das Jahr 2002 ein ähnliches Ergebnis.

Zwischen der Doppeldifferenzstudie mit dem 3dCTM und den Ergebnissen aus Gray *et al.* (2010) und Soukharev und Hood (2006) besteht prinzipielle Übereinstimmung in Bezug auf Vorzeichen und Größenordnung der isolierten Ozondifferenzen. Auch ist die Nord-Süd-Asymmetrie mit verstärktem Ozonüberschuss zwischen 20 und 40 Grad Süd (bis zu 4%, gegenüber etwa 2% in den entsprechenden nördlichen Breiten) in der Stratosphäre qualitativ im Modell wiedergegeben.

## Zusammenfassung

Weiterführende Modellstudien insbesondere zum Einfluss solarer Variabilität auf Ozon wurden in diesem Kapitel gezeigt. Lokale und temporäre Ozonverluste von über 80% in der Mesosphäre können mit großen solaren Protonenereignissen assoziiert werden. Die obere Stratosphäre ist mit geringeren relativen Ozonverlusten von bis zu 10% ebenfalls betroffen. In einer höhenabhängigen Ausprägung von bis zu 5% können diese Ozonverluste in südlichen polaren Breiten den dortigen Sommer über bestehen bleiben. Winterlicher Abwärtstransport von polaren Luftmassen, die aufgrund der fortwährenden Ionisation durch die Aurora  $\text{NO}_x$  enthalten, führt ebenfalls zu Ozonverlusten, wobei dieser Zusammenhang in südlichen polaren Breiten bedeutend stärker ausgeprägt ist als im Norden und dort Ozonverluste von über 30% in der Mesosphäre und Stratosphäre zur Folge hat, von denen etwa 1% in der Stratosphäre über den Sommer bestehen bleibt. Der Effekt von zusätzlicher Photoionisation bei schon vorhandener Teilchenionisation auf Ozon ist in nördlichen Breiten minimal und beträgt in südlichen Breiten zusätzlich bis zu etwa einem Fünftel des Teilcheneffekts. Der Ozonverlust durch Teilchenionisation wird mit erhöhten Konzentrationen sowohl an  $\text{NO}_x$  als auch  $\text{HO}_x$  assoziiert. Es fällt insbesondere in südlichen polaren Breiten auf, dass auch Ozonabbau oberhalb von 50 km mit  $\text{NO}_x$  korreliert ist, obwohl dies in dieser Höhe nicht den dominanten Zyklus für Ozonabbau darstellt (Brosseur und Solomon, 1986; Lary, 1997). Die Kausalität bzw. Quantifizierung der Anteile ist deshalb durch weiterführende Untersuchungen noch zu klären. Vergleiche mit einer anderen Modellstudie zum Einfluss des Abwärtstransports von  $\text{NO}_x$  auf stratosphärisches Ozon (Reddmann *et al.*, 2010) zeigen gute Übereinstimmung bei SPE-Ereignissen und für Abwärtstransport von  $\text{NO}_x$ , nicht jedoch nach SSW-Ereignissen.

Die Untersuchung von Modellläufen über mehrere Jahre zeigt eine klare Modulation mit dem Sonnenzyklus, die insbesondere auf veränderliche Photolyse von  $\text{O}_2$  zurückzuführen ist. Für den Teilcheneinfluss kann bei Verwendung der AIMOS-Ionisationsraten keine solche Modulation isoliert werden.

Eine Isolation des Einflusses solarer Strahlung auf Ozon ähnlich der Studien in Soukharev und Hood (2006) ist mittels Doppeldifferenzbildung im 3dCTM möglich. Erhöhte Ozonvorkommen im solaren Maximum von 2% bis 4% Prozent in allen Breiten der Stratosphäre lassen sich in der Modellanalyse im Einklang mit der Messdatenanalyse von Soukharev und Hood (2006) finden.



# 7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Modellstudien zum Einfluss solarer Variabilität auf die Ozonvorkommen der Atmosphäre durchgeführt. Hierzu wurde zunächst die Bildung von  $\text{NO}_x$  durch Teilchenniederschlag und Photoionisation mit Hilfe eines Ionenchemiemodells quantifiziert. Insbesondere oberhalb von 80 km Höhe ergeben sich signifikante Unterschiede gegenüber bisher verwendeten, einfachen Parametrisierungen. Es wurde eine neue Parametrisierung zur Berücksichtigung der  $\text{NO}_x$ -Produktion in 3d-Modellen entwickelt, die die Ergebnisse des Ionenchemiemodells gut wiedergibt, ohne dabei erhöhten Rechenzeitbedarf zu verursachen. Ein bereits vorhandenes dreidimensionales Chemie-transportmodell (3dCTM) wurde zur Verwendung mit dem neuen  $\text{NO}_x$ -Modul erweitert. Modellstudien mit dem 3dCTM zeigen wahlweise die getrennten oder gemeinsamen Beiträge verschiedener Teilchenarten und von Photoionisation auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre. Vergleiche mit Messergebnissen von Satellitenexperimenten zeigen gute Übereinstimmung mit dem erweiterten 3dCTM insbesondere in Bezug auf  $\text{NO}_x$  in der Stratosphäre und Mesosphäre, bei kleineren Defiziten im Bereich der Mesopause und untersten Thermosphäre.

Studien zur quantitativen Untersuchung von Ozonabbau, der durch Teilchenniederschlag und Photoionisation indirekt über die Bildung von  $\text{NO}_x$  und  $\text{HO}_x$  verursacht wird, sind somit mit dem im Rahmen dieser Arbeit erweiterten 3dCTM möglich. Diese Studien zeigen, dass mit großen solaren Protonenereignissen lokale, temporäre Ozonverluste von über 80% in polaren Breiten assoziiert sind, und aufgrund der Eindringtiefe der Protonen auch die obere Stratosphäre erreicht wird. In der südlichen polaren Stratosphäre ergeben sich über mehrere Monate anhaltende Ozondifferenzen von bis zu 5% nach solaren Protonenereignissen. Außerdem spielt Abwärtstransport von Luftmassen von der oberen Mesosphäre in die Stratosphäre im Polarwirbel in südlichen polaren Breiten eine wesentliche Rolle, da hiermit auch  $\text{NO}_x$  aus seinen Quellhöhen oberhalb von 80 km in besonders ozonreiche Höhen heruntertransportiert wird. Dadurch entsteht ein den Winter über anhaltender Ozonverlust von 10% bis 30% in der Mesosphäre, der auch die Stratosphäre erreicht und dort mit einer geringen Ausprägung von etwa 1% persistent bleibt. Der Beitrag von Photoionisation auf den Ozonabbau beträgt im Südwinter etwa 20% des Teilchenbeitrags, bei Protonenereignissen und in nördlichen polaren Breiten hingegen ist er vernachlässigbar. Auf Zeitskalen von mehreren Jahren lässt sich mit den Modellstudien außerdem die Variation der Ozonvorkommen mit dem solaren 11-Jahres-Zyklus untersuchen. Es lässt sich dabei der Beitrag der solaren Strahlung isolieren, der eine Erhöhung der Ozonmengen in der Stratosphäre um 2% bis 4% im solaren Maximum gegenüber dem solaren Minimum verursacht.

Die Ozonvorkommen werden also durch solare Variation maßgeblich beeinflusst: bei bedeutenden solaren Protonenereignissen 80% kurzfristiger mesosphärischer Verlust sowie bis zu 5% anhaltender stratosphärischer Verlust im Süden, langfristig durch Absinken

## 7 Zusammenfassung und Ausblick

10% bis 30% mesosphärischer und etwa 1% persistenter stratosphärischer Verlust, durch Variation der UV-Strahlung 4% stratosphärische Ozonzunahme im solaren Maximum, sowie über 10% mesosphärische Variation durch Veränderungen der Dynamik mit dem solaren Zyklus. Teilcheneffekte betreffen dabei polare Breiten und Strahlungs- und Dynamikeffekte die gesamte mittlere Atmosphäre.

Im Rahmen des Projektes ROMIC-SOLIC (Role of the Middle Atmosphere in Climate - Quantification of Uncertainties of Solar Induced Climate variability) ist eine Fortführung dieser Arbeit geplant. Die gefundenen bedeutenden Ozonveränderungen lassen weitere Auswirkungen auf die ozonbestimmten Heizraten und damit auf die Dynamik der Atmosphäre erwarten. Diese Auswirkungen sollen mit Hilfe von Chemieklimamodellen untersucht werden, die oft jedoch die obere Mesosphäre und untere Thermosphäre nicht abdecken. Wichtiges Zwischenziel in SOLIC ist, für diese Modelle Parametrisierungen des  $\text{NO}_x$ -Gehalts der Atmosphäre als obere Randbedingung zur Verfügung zu stellen, wobei ausreichend lange Zeiträume von mehreren Jahrzehnten von diesem Datensatz abgedeckt werden müssen. Folglich muss diese Parametrisierung ohne die AIMOS-Ionisationsraten auskommen, die nur für wenige Jahre (2001 bis 2012) vorliegen. Deshalb werden die Ionisationsraten als Funktion des Kp-Index' oder des AA-Index' parametrisiert, um auf dieser Grundlage mit dem 3dCTM den  $\text{NO}_x$ -Gehalt der Atmosphäre als Funktion von Breiten- und Längengrad, Kp- oder AA-Index und solarem Radioflussindex bzw. Sonnenfleckenanzahl darstellen zu können. Damit kann ein Zeitraum zurück bis 1868 (Beginn der Aufzeichnungen des AA-Index') abgedeckt werden. Diese Parametrisierung wird wiederum in den Chemieklimamodellen verwendet, die weitere Kopplungsmechanismen der Atmosphäre an die solare Variation simulieren.

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen Personen bedanken, die durch ihre fachliche und menschliche Unterstützung zu dieser Arbeit beigetragen haben.

Besonderer Dank an erster Stelle gilt Miriam Sinnhuber, die als Gruppenleiterin diese Arbeit hervorragend betreut hat. Sehr zahlreiche konstruktive Gespräche mit vielen neuen Ideen haben den Inhalt der vorliegenden Dissertation bedeutend geprägt.

Zahlreiche Datensätze wurden für diese Arbeit zur Verfügung gestellt. Dafür möchte ich Bernd Funke, Stefan Bender, Stefan Lossow und Jan Maik Wissing danken.

Eine sehr gute Arbeitsatmosphäre und regen Ideenaustausch verdanke ich vielen Kolleginnen und Kollegen am Institut. Namentlich erwähnen möchte ich Felix Friederich, Stefan Bender, Tilo Fytterer, Stefan Versick, Khalil Karami und Thomas Reddmann. In vielen computertechnischen Fragen waren Udo Grabowski und Johannes Plieninger sehr hilfsbereit. Dafür möchte ich mich ebenfalls bedanken. Außerdem gilt mein Dank den Institutssekretärinnen Astrud Wiessner und Derya Cayiroglu für die Unterstützung bei Verwaltungsangelegenheiten.

Für Korrekturvorschläge zur vorliegenden Arbeit möchte ich mich außer bei Miriam Sinnhuber auch bei Luisa Röhner, Stefan Bender, Hartmut Nieder und Gertrud Nieder bedanken.

Zu guter Letzt möchte ich Johannes Orphal danken. Er hat als Institutsleiter und Referent die Rahmenbedingungen für diese Arbeit geschaffen und sie damit erst ermöglicht.



# Literaturverzeichnis

- CCMI recommendations*, <http://solarisheppa.geomar.de/ccmi> (2014).
- S. Agostinelli *et al.*: *Geant4 - a simulation toolkit*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **506** (2003), pp. 250 – 303, ISSN 0168-9002, doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](http://dx.doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8).
- D. G. Andrews, J. R. Holton, C. B. Leovy: *Middle Atmosphere Dynamics*, Academic press 1987.
- R. Arlt, I. Usoskin: *400 Jahre Sonnenflecken*, <http://www.aip.de/de/aktuelles/scientific-highlights/6-2011-sonnenflecken> (2011).
- S. Bender, M. Sinnhuber, J. P. Burrows, M. Langowski, B. Funke, M. López-Puertas: *Retrieval of nitric oxide in the mesosphere and lower thermosphere from SCIAMACHY limb spectra*, Atmospheric Measurement Techniques **6** (2013), pp. 2521–2531, doi: 10.5194/amt-6-2521-2013.
- S. Bender, M. Sinnhuber, T. von Clarmann, G. Stiller, B. Funke, M. López-Puertas, J. Urban, K. Pérot, K. A. Walker, J. P. Burrows: *Comparison of nitric oxide measurements in the mesosphere and lower thermosphere from ACE-FTS, MIPAS, SCIAMACHY, and SMR*, Atmospheric Measurement Techniques Discussions **7** (2014), pp. 12735–12794, doi:10.5194/amtd-7-12735-2014.
- U. Berger: *Modeling of middle atmosphere dynamics with LIMA*, J. Atmos. Solar-Terr. Phys. **70** (2008), pp. 1170–1200, doi:10.1016/j.jastp.2008.02.004.
- H. A. Bethe: *Energy production in stars*, Phys. Rev. **55** (1939), pp. 434–456.
- G. Brasseur, S. Solomon: *Aeronomy of the Middle Atmosphere: Chemistry and Physics of the Stratosphere and Mesosphere*, D. Reidel, Dordrecht 1986.
- M. P. Chipperfield: *Multiannual simulations with a three-dimensional chemical transport model*, J. Geophys. Res. **104** (1999).
- M. P. Chipperfield, D. Cariolle, P. Simon, R. Ramaroson, D. J. Lary: *A three-dimensional modeling study of trace species in the Arctic lower stratosphere during winter 1989–1990*, J. Geophys. Res. **98** (1993), p. 7199–7218, doi:10.1029/92JD02977.
- R. Courant, K. Friedrichs, H. Lewy: *Über die partiellen Differenzgleichungen der mathematischen Physik*, Mathematische Annalen **100** (1928).

- R. Davis, D. S. Harmer, K. C. Hoffman: *Search for Neutrinos from the Sun*, Phys. Rev. Lett. **20** (1968), pp. 1205–1209, doi:10.1103/PhysRevLett.20.1205.
- W. Demtröder: *Experimentalphysik*, volume 4: Kern-, Teilchen- und Astrophysik, Springer, Berlin 2005, 2., überarb. Aufl. edition, ISBN 3-540-21451-8.
- A. L. Dobbin, A. D. Aylward, M. J. Harris: *Three-dimensional GCM modeling of nitric oxide in the lower thermosphere*, J. Geophys. Res. **111** (2006), doi:10.1029/2005JA011543.
- J. Eddy: *The Maunder Minimum*, Science **192** (1976), pp. 1189–1202.
- T. Egorova, E. Rozanov, V. Zubov, E. M. W. Schmutz, T. Peter: *Chemistry-climate model SOCOL: a validation of the present-day climatology*, Atmos. Chem. Phys. (2005), doi: 10.5194/acp-5-1557-2005.
- G. Engeln-Müllges, K. Niederdrenk, R. Wodicka: *Numerik-Algorithmen*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2011, doi:10.1007/978-3-642-13473-9.
- U. Feldman, E. Landi, N. Schwadron: *On the sources of fast and slow solar wind*, J. Geophys. Res. **110** (2005).
- P. Foukal: *Solar Astrophysics*, Wiley-VCH Weinheim 2013.
- F. Friederich, T. von Clarmann, B. Funke, H. Nieder, J. Orphal, M. Sinnhuber, G. Stiller, J. M. Wissing: *Lifetime and production rate of NO<sub>x</sub> in the upper stratosphere and lower mesosphere in the polar spring/summer after the solar proton event in October–November 2003*, Atmos. Chem. Phys. (2013), doi:10.5194/acp-13-2531-2013.
- B. Funke, A. Baumgaertner, M. Calisto, T. Egorova, C. H. Jackman, J. Kieser, A. Krivolutsky, M. Lopez-Puertas, D. R. Marsh, T. Reddmann, E. Rozanov, S.-M. Salmi, M. Sinnhuber, G. Stiller, P. T. Verronen, S. Versick, T. von Clarmann, T. Y. Vyushkova, N. Wieters, J. M. Wissing: *Composition changes after the 'Halloween' solar proton event: the High-Energy Particle Precipitation in the Atmosphere (HEPPA) model versus MIPAS data intercomparison study*, Atmos. Chem. Phys. **11** (2011), doi: 10.5194/acpd-11-9407-2011.
- B. Funke, M. López-Puertas, G. Stiller, T. von Clarmann: *Mesospheric and stratospheric NO<sub>y</sub> produced by energetic particle precipitation during 2002–2012*, J. Geophys. Res. Atmos. **119** (2014), doi:10.1002/2013JD021404.
- T. Fytterer, M. G. Mlynczak, H. Nieder, K. Pérot, M. Sinnhuber, G. Stiller, J. Urban: *Energetic particle induced intra-seasonal variability of ozone inside the Antarctic polar vortex observed in satellite data*, Atmos. Chem. Phys. (2015), doi: 10.5194/acp-15-3327-2015.
- L. Gray, J. Beer, M. Geller, J. D. Haigh, M. Lockwood, K. Matthes, U. Cubasch, D. Fleitmann, G. Harrison, L. Hood, J. Luterbacher, G. A. Meehl, D. Shindell, B. van Geel, W. White: *Solar influences on climate*, Rev. Geophys. **48** (2010), doi: 10.1029/2009RG000282.



- J. R. Holton: *The Influence of Gravity wave breaking on the general circulation of the middle Atmosphere*, J. Atmos. Sci. (1983).
- J. R. Holton, G. J. Hakim: *An introduction to dynamic meteorology*, Academic press 2013.
- C. H. Jackman, E. L. Fleming, F. M. Vitt: *Influence of extremely large solar proton events in a changing stratosphere*, J. Geophys. Res. **105** (2000), pp. 11659–11670.
- C. H. Jackman, J. E. Frederick, R. S. Stolarski: *Production of Odd Nitrogen in the Stratosphere and Mesosphere: An Intercomparison of Source Strengths*, J. Geophys. Res. **85** (1980), pp. 7495–7505.
- C. H. Jackman, D. R. Marsh, F. M. Vitt, R. R. Garcia, E. L. Fleming, G. J. Labow, C. E. Randall, M. Lopez-Puertas, B. Funke, T. von Clarmann, G. Stiller: *Short- and medium-term atmospheric constituent effects of very large solar proton events*, Atmos. Chem. Phys. **8** (2008), pp. 765–785.
- R. A. Jones, M. H. Rees: *Time dependent studies of the aurora - I. Ion density and composition*, Planet. Space Sci. **21** (1973), pp. 537–557.
- M.-B. Kallenrode: *Space Physics*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2010.
- L. J. Kieffer, G. H. Dunn: *Electron Impact Ionization Cross-Section Data for Atoms, Atomic Ions, and diatomic Molecules: I. experimental data*, Rev. Mod. Phys **38** (1966), pp. 1–35.
- R. Kippenhahn, A. Schlüter: *Eine Theorie der solaren Filamente*, Zeitschrift für Astrophysik **43** (1957), pp. 36–62.
- M. Kuperus, M. A. Raadu: *The Support of Prominences formed in neutral Sheets*, Astron. and Astrophys. **31** (1974), pp. 189–193.
- D. J. Lary: *Catalytic destruction of stratospheric ozone*, J. Geophys. Res. **102** (1997), pp. 21515–21526.
- M. Lopez-Puertas, B. Funke, S. Gil-Lopez, T. von Clarmann, G. Stiller, M. Höpfner, S. Kellmann, H. Fischer, C. H. Jackman: *Observation of NO<sub>x</sub> enhancement and ozone depletion in the Northern and Southern Hemispheres after the October-November 2003 solar proton events*, J. Geophys. Res. **110** (2005), doi:10.1029/2005JA011050.
- D. Marsh, R. R. Garcia, D. E. Kinnison, B. A. Boville, F. Sassi, S. C. Solomon, K. Matthews: *Modeling the whole atmosphere response to solar cycle changes in radiative and geomagnetic forcing*, J. Geophys. Res. **112** (2007a), doi:10.1029/2006JD008306.
- D. Marsh, M. Mills, D. Kinnison, J.-F. Lamarque, N. Calvo, L. Polvani: *Climate change from 1850 to 2005 simulated in CESM1(WACCM)*, J. Clim. **in press** (2013), doi:10.1175/JCLI-D-12-00558.1.
- D. R. Marsh, R. R. Garcia, D. E. Kinnison, B. A. Boville, F. Sassi, S. C. Solomon, K. Matthews: *Modeling the whole atmosphere response to solar cycle changes in radiative and geomagnetic forcing* (2007b), doi:10.1029/2006JD008306.

- T. Matsuno: *A dynamical model of the Stratospheric sudden Warming*, J. Atmos. Sci. **28** (1971).
- G. D. Nastrom, B. B. Balsley, D. A. Carter: *Mean meridional winds in the mid- and high-latitude summer mesosphere*, Geophys. Res. Lett. **9** (1982), pp. 139–142, doi:10.1029/GL009i002p00139.
- H. Nieder, H. Winkler, D. Marsh, M. Sinnhuber: *NO<sub>x</sub> production due to energetic particle precipitation in the MLT region: Results from ion chemistry model studies*, J. Geophys. Res. **119** (2014), doi:10.1002/2013JA019044.
- H. S. Porter, C. H. Jackman, A. E. S. Green: *Efficiencies for production of atomic nitrogen and oxygen by relativistic proton impact in air*, J. Chem. Phys. **65** (1976), pp. 154–167.
- B. Povh, K. Rith, C. Scholz, F. Zetsche: *Teilchen und Kerne*, Springer-Lehrbuch, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg 2009, 8 edition, ISBN 978-3-540-68080-2.
- M. Prather: *Numerical advection by conservation of second-order moments*, J. Geophys. Res. **91** (1986).
- M. A. Raadu, M. Kuperus: *Thermal instability of coronal neutral sheets and the formation of quiescent prominences*, Solar Physics **28** (1973), pp. 77–94.
- R. A. Ramaroson: *Modelisation locale: Á une et trois dimensions des processus photochimiques de l'atmosphère moyenne*, Dissertation, Univ. Paris VI (1989).
- C. E. Randall, V. L. Harvey, G. L. Manney, Y. Orsolini, M. Codrescu, C. Sioris, S. Brohede, C. S. Haley, L. L. Gordley, J. M. Zawodny, J. M. Russell: *Stratospheric effects of energetic particle precipitation in 2003-2004*, Geophys. Res. Lett. **32** (2005), doi:10.1029/2004GL022003.
- T. Reddmann, R. Ruhnke, S. Versick, W. Kouker: *Modeling disturbed stratospheric chemistry during solar-induced NO<sub>x</sub> enhancements observed with MIPAS/ENVISAT*, J. Geophys. Res. **115** (2010), doi:10.1029/2009JD012569.
- M. H. Rees: *Physics and Chemistry of the Upper Atmosphere*, Cambridge Univ. Press Cambridge 1989.
- D. W. Rusch, J.-C. Gerard, S. Solomon, P. J. Crutzen, G. C. Reid: *The Effect of Particle Precipitation Events on the neutral and ion Chemistry of the Middle Atmosphere - I. Odd Nitrogen*, Planet. Space Sci. **29** (1981), pp. 767–774.
- J. M. Russell, L. L. Gordley, J. H. Park, S. R. Drayson, W. D. Hesketh, R. J. Cicerone, A. F. Tuck, J. E. Frederick, J. E. Harries, P. J. Crutzen: *The Halogen Occultation Experiment*, J. Geophys. Res. **98** (1993), doi:10.1029/93JD00799.
- S. P. Sander, J. Abbatt, J. R. Barker, J. B. Burkholder, R. R. Friedl, D. M. Golden, R. E. Huie, C. E. Kolb, M. J. Kurylo, G. K. Moortgat, V. L. Orkin, P. H. Wine: *Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies, Evaluation No. 17*, JPL Publication **10-6** (2011).

- S. P. Sander, D. M. Golden, M. J. Kurylo, G. K. Moortgat, P. H. Wine, A. R. Ravishankara, C. E. Kolb, M. J. Molina, B. J. Finlayson-Pitts, R. E. Huie, V. L. Orkin: *Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies, Evaluation No. 15*, JPL Publication **10-6** (2006).
- M. Schwabe: *Über die Flecken der Sonne*, *Astronomische Nachrichten* **15** (1838), p. 243.
- M. Schwabe: *Sonnenbeobachtungen im Jahre 1843*, *Astronomische Nachrichten* **21** (1844), p. 233.
- F. Schüssler *et al.*: *Measurement of the energy spectrum of cosmic rays above  $10^{18}$  eV using the Pierre Auger Observatory*, *Phys. Lett. B* **685** (2010), doi:10.1016/j.physletb.2010.02.013.
- A. Seppälä, M. A. Clilverd, C. J. Rodger: *NO<sub>x</sub> enhancements in the middle atmosphere during 2003-2004 polar winter: Relative significance of solar proton events and the aurora as a source*, *J. Geophys. Res.* **112** (2007), doi:10.1029/2006JD008326.
- M. Sinnhuber, H. Nieder, N. Wieters: *Energetic particle precipitation and the chemistry of the mesosphere / lower thermosphere*, *Surv. Geophys.* (2012), doi:10.1007/s10712-012-9201-3.
- A. K. Smith, D. R. Marsh, M. G. Mlynczak, J. C. Mast: *Temporal variations of atomic oxygen in the upper mesosphere from SABER*, *J. Geophys. Res.* **115** (2010), doi:10.1029/2009JD013434.
- S. Solomon, L. Qian: *Solar extreme-ultraviolet irradiance for general circulation models*, *J. Geophys. Res.* **110** (2005), doi:10.1029/2005JA011160.
- B. Soukharev, L. Hood: *Solar cycle variation of stratospheric ozone: Multiple regression analysis of long-term satellite data sets and comparisons with models*, *J. Geophys. Res.* **111** (2006), doi:10.1029/2006JD007107.
- M. Stix: *On the time scale of energy transport in the sun*, *Solar Physics* **212** (2002).
- F. M. Vitt, C. H. Jackman: *A comparison of sources of odd nitrogen production from 1974 through 1993 in the Earth's middle atmosphere as calculated using a two-dimensional model*, *J. Geophys. Res.* **101** (1996).
- N. Wieters: *Investigation of the impact of extraterrestrial energetic particles on stratospheric nitrogen compounds and ozone on the basis of three dimensional model studies*, Dissertation, Universität Bremen (2013).
- D. Williams: *Sun Fact Sheet*, <http://nssdc.gsfc.nasa.gov/planetary/factsheet/sunfact.html> (2013).
- H. Winkler: *The response of middle atmospheric ozone to solar proton events in a changing geomagnetic field*, Dissertation, University of Bremen (2007).
- J. M. Wissing, M.-B. Kallenrode: *Atmospheric Ionization Module Osnabrück (AIMOS): A 3-D model to determine atmospheric ionization by energetic charged particles from different populations*, *J. Geophys. Res.* **114** (2009), doi:10.1029/2008JA013884.

## Literaturverzeichnis

- J. M. Wissing, M.-B. Kallenrode, N. Wieters, H. Winkler, M. Sinnhuber: *Atmospheric Ionization Module Osnabrück (AIMOS): 2. Total particle inventory in the October-November 2003 event and ozone*, J. Geophys. Res. **115** (2010), doi:10.1029/2009JA014419.