

KfK 5242
März 1994

Bodengebundene Messungen relevanter Spurengase zur Erforschung der Ozonchemie in der arktischen Stratosphäre mit Fourier-Spektrometern

**P. Thomas, T. v. Clarmann, T. Blumenstock, H. Fischer,
L. Gerhardt, T. Gulde, H. Oelhaf, W. Scheuerpflug,
G. P. Stiller, O. Trieschmann, A. Wegner
Institut für Meteorologie und Klimaforschung**

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Corrigenda zu

"Bodengebundene Messungen relevanter Spurengase zur Erforschung der Ozonchemie in der arktischen Stratosphäre mit Fourier-Spektrometern"

KfK-Bericht Nr. 5242

Zu Kapitel 4: Es wurden die HITRAN92 (Rothman et al., J. Quant. Spectr. Rad. Transf., 48, 469, 1992)-Liniendaten verwendet, nachdem sie zur Verfügung standen.

Das Literaturzitat für den "Absinkfaktor" muß heißen: Toon G.C., C.B. Farmer, P.W. Shaper, L.L. Lowes et al., Evidence

Zu Kapitel 5: Die in Tab. 14, 15 und 16 zusammengestellten Daten stellen Zwischenergebnisse aus der laufenden Auswertung dar, die sich nach eingehender Nachbearbeitung zum Teil erheblich geändert haben. Die endgültig ausgewerteten Daten sollen in Kürze veröffentlicht werden.

Die in Tab. 20 zusammengestellten Fehlerbeiträge beziehen sich nur auf einen Teil der in den Tabellen 14, 15, 16, 18 und 19 aufgeführten Meßergebnisse.

Zu Kapitel 8: Einige der Veröffentlichungen sind nur im Text zitiert.

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

Institut für Meteorologie und Klimaforschung

KfK 5242

**Bodengebundene Messungen relevanter Spurengase zur
Erforschung der Ozonchemie in der arktischen Stratosphäre
mit Fourier-Spektrometern**

P. Thomas, T. v. Clarmann, T. Blumenstock,
H. Fischer, L. Gerhardt, T. Gulde, H. Oelhaf, W. Scheuerpflug,
G.P. Stiller, O. Trieschmann, A. Wegner

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

**Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Es handelt sich um den Schlußbericht eines vom BMFT geförderten Vorhabens, das unter dem Förderkennzeichen 01 V0Z15 6 vom 01.03.1990 bis zum 30.06.1993 lief. Das Ziel des Vorhabens lag in der Erfassung von Säulengehalten von Spurengasen, die für die Ozonchemie und für die Ausbildung von Ozonsenken in der Arktis relevant sind. Dabei sollte geklärt werden, welchen Anteil dynamische und chemische Prozesse haben und ob die Chemie der arktischen Stratosphäre Parallelen zu denjenigen in der Antarktis aufweist.

Als Geräte wurden zwei Fourier-Transformationspektrometer (FTS) eingesetzt, die das IR-Spektrum des direkten Sonnenlichts messen, das die atmosphärischen Spurengase in Abhängigkeit ihrer Konzentration selektiv schwächen. Zur Berechnung der Säulendichten werden synthetische Spektren unter Berücksichtigung der Meßgeometrie an die gemessenen angepaßt und die zur Berechnung der synthetischen Spektren verwendeten vertikalen Profile der Mischungsverhältnisse in einem Least-squares-fit-Verfahren variiert. Ein Vorteil dieser Meßtechnik ist, daß in derselben sondierten Luftmasse die Säulengehalte vieler Spurengase simultan bestimmt werden können.

Die FTS waren in jedem Winter 1990 bis 93, u.a. auch während der internationalen Meßkampagnen CHEOPS III, EASOE und ESMOS II, nördlich des Polarkreises in Ny Aalesund/Spitzbergen, Sondre Stromfjord/Grönland und Esrange/Schweden eingesetzt. Aus den gemessenen solaren IR-Spektren wurden vertikale Säulengehalte von O_3 , H_2O , HDO, CH_4 , N_2O , CFC-12, HNO_3 , NO_2 , $ClONO_2$, HCl und HF bestimmt und folgende neue Erkenntnisse gewonnen bzw. bereits bekannte Hypothesen erhärtet. Aus Bodenmessungen kann der stratosphärische Säulengehalt von HCl abgeleitet werden. Das HCl/HF-Verhältnis zeigt starke zeitliche Variationen. Niedrige Verhältnisse weisen auf die Umwandlung des ozonunschädlichen HCl in andere, für den Ozonabbau relevante Cl-Verbindungen und eine stark gestörte Chemie hin. Das tritt vor allem auf, wenn die gemessenen Luftmassen aus den inneren kalten Regionen des Polarwirbels stammen. Abnehmendes HNO_3 und NO_2 weist auf eine Denitrifizierung der Stratosphäre hin und ist mit niedrigen Temperaturen und dem Auftreten von Polaren Stratosphärischen Wolken korreliert. Bei $ClONO_2$ wurde 1992 über Esrange ein stetiger Anstieg von Mitte Januar bis Mitte März festgestellt. Das deutet darauf hin, daß ursprünglich im Hochwinter durch heterogene Prozesse aktiviertes Chlor nach Beendigung der kalten Periode und bei zunehmender Photolyse von HNO_3 in $ClONO_2$ umgewandelt wird.

Ground Based Measurements of Relevant Trace Gases for Studying
the Ozone Chemistry in the Arctic Stratosphere Using
Fourier Transform Spectrometers

Abstract

This is the final report of a project, which was funded by the German Federal Ministry for Research and Technology (BMFT), file No. 01 V0Z15 6, and was conducted from 1 March, 1990 until 30 June, 1993. It was the goal of the project to record zenith column amounts (ZCA's) of trace gases, which are relevant to ozone chemistry and to the development of ozone sinks in the Arctic. Above all, the contribution of dynamic and chemical processes was to be clarified as well as the question whether parallels can be drawn between the chemistry of the Arctic and the Antarctic stratosphere.

The equipment used were two Fourier transform spectrometers (FTS). They allow the IR spectrum of direct sunlight to be measured which is attenuated selectively by the atmospheric trace gases, dependent on their concentrations. To be able to calculate the ZCA's, synthetic spectra are fitted to the measured ones taking into account the measuring geometry, and by varying vertical profiles of the mixing ratios used to calculate the synthetic spectra. An advantage offered by this measuring technique is that the ZCA's of many trace gases can be determined simultaneously in the same probed mass of air.

The FTSs were operating north of the polar circle in Ny Aalesund/Spitsbergen, Søndre Strømfjord/Greenland, and Esrange/Sweden in each winter season from 1990 until 1993, among others also during the international measuring campaigns CHEOPS III, EASOE and ESMOS II. ZCAs of O_3 , H_2O , HDO , CH_4 , N_2O , CFC-12, HNO_3 , NO_2 , $ClONO_2$, HCl and HF have been determined from the measured solar IR spectra. New knowledge has been accumulated and already known hypotheses have been confirmed, respectively: The stratospheric column content of HCl can be derived from ground-based measurements. The HCl/HF ratio exhibits large variations with time. Low ratios indicate the transformation of HCl into other Cl compounds, which are relevant to ozone depletion. This is evident above all for air masses originating from the inner cold region of the polar vortex. Decreasing amounts of HNO_3 and NO_2 are indications of a denitrification of the stratosphere and are correlated with low temperatures and the occurrence of Polar Stratospheric Clouds. For $ClONO_2$ a steady increase was observed above Esrange from mid-January until mid-March 1992. This suggests that chlorine originally activated by heterogeneous processes in the coldest winter period is converted at the end of the cold period to $ClONO_2$; at the same time HNO_3 is photodissociated to NO_2 needed for the formation of $ClONO_2$, too.

1. Aufgabenstellung

Die Ozonkonzentration in der Stratosphäre hat in mittleren und hohen geographischen Breiten ständig abgenommen, wobei die Veränderungen am stärksten in den Polarregionen und im Spätwinter und Frühjahr ausgeprägt sind. In der Südpolarregion sind durch kontinuierliche Langzeitmessungen sowie durch die im Zusammenhang mit der Entdeckung des Ozonlochs initiierten Meßkampagnen die Grundzüge der Ozonchemie und der Dynamik bereits erfaßt und weitgehend verstanden. Dies gilt nicht für die Nordpolarregion, in der sich ähnliche Erscheinungen andeuten. Die im Rahmen dieses Forschungsprojektes durchgeführten Untersuchungen konzentrieren sich deshalb auf die Nordpolarregion, da hier die Ursachen des stratosphärischen Ozonabbaus der Nordhemisphäre zu suchen sind, und dieser Region damit eine Früherkennungsfunktion für die gemäßigten Breiten zukommt.

Das Ziel des Vorhabens liegt in der periodischen Erfassung von Säulengehalten von Spurengasen, die für die Ozonchemie und insbesondere für die Ausbildung möglicher Ozonsenken in der Arktis relevant sind. Es werden auch langlebige Spurengase erfaßt, die sich als Indikatoren für Transportprozesse benutzen lassen. Als Meßmethode dient die bodengebundene Fernerkundung mit Fouriertransformationsspektrometern (FTS) im infraroten Spektralbereich.

Die Messung der Spurengase ist wesentlich für das Verständnis der in der Atmosphäre ablaufenden chemischen Prozesse. Damit leistet das Vorhaben einen Beitrag zum Deutschen Ozonforschungsprogramm. Es trägt insbesondere zur Beantwortung folgender Fragen bei: Wie ist der zeitliche Verlauf von Säulengehalten relevanter Substanzen während des arktischen Spätwinters und Frühjahr im Vergleich zu den Bedingungen über der Antarktis? Zeigt die Chemie der arktischen Stratosphäre im Winter und Frühjahr Parallelen zur anormalen Chemie im antarktischen Frühjahr?

2. Gerätebeschreibung und -entwicklung

Es handelt sich um zwei FTS, die im infraroten Spektralbereich arbeiten: das von der Firma BOMEM gekaufte DA2 und das hauptsächlich in unserem Institut entwickelte MIPAS-LM (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding-Labormodell). Die zentrale Einheit von MIPAS ist ein Doppelpendelinterferometer, das die optische Weglängendifferenz mit zwei Würfeleckenspiegeln erzeugt, die gleichzeitig vor- bzw. zurückbewegt werden (H. Fischer, Remote sensing of the atmospheric trace constituents using Fourier transform spectrometers, Berichte der Bunsen-Gesellschaft für Physikalische Chemie, 96, pp. 306, 1992). Beim DA2 wird ein ebener Spiegel linear bewegt. Bei beiden FTS ist die Optik nicht gekühlt; nur die Detektoren werden mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Die wichtigsten Betriebsdaten sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Die FTS messen das Spektrum des direkten Sonnenlichtes, das die atmosphärischen Spurengase in Abhängigkeit ihrer Konzentration selektiv

schwächen. Das Sonnenlicht wird über ein Teleskop und einen automatisch arbeitenden Sonnensucher in die FTS gespiegelt. Der Sonnensucher wird durch einen positionsempfindlichen Quadrantendetektor gesteuert. Verschiedene Spektralbereiche werden durch verschiedene Detektor-Filter-Kombinationen ausgewählt (Tab. 1), um das Signal/Rausch-Verhältnis zu verbessern und die Datenmenge zu reduzieren.

Die FTS wurden vor allem im Hinblick auf das Erzielen eines höheren Signal/Rausch-Verhältnisses, einer schnelleren und zuverlässigeren Datenerfassung und auf ihren operationellen Einsatz in Feldexperimenten weiterentwickelt und verbessert. Dazu gehörte die Entwicklung und der Bau der automatisch arbeitenden Sonnensucher, der Einsatz rauschärmerer Detektoren und Vorverstärker, schmalbandiger IR-Filter und optimaler Blenden-Filter-Kombinationen. Um die Spektren relativ zu eichen, die Eigenstrahlung der FTS zu berücksichtigen und die FTS ständig zu überprüfen, wurden die Spektrometer mit Hilfe eines Schwarzkörperstrahlers geeicht. Im einzelnen wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

– MIPAS-LM:

- Einsatz von Transputern, eines im KfK entwickelten Interfaces und einer im KfK entwickelten Software, um die Zuverlässigkeit und Schnelligkeit bei der Datenerfassung und Berechnung der Spektren zu erhöhen,
- Interferogrammaufnahme bei der Pendelvor- und -rückwärtsbewegung (1 Interferogramm alle 1,3 s),
- gekühlte Strahlteiler-Detektor-Einheit zur simultanen Messung mit MCT- und InSb-Detektor in ihren zwei spezifischen Spektralbereichen,
- Integration eines Weißlichtzweigs für phasenrichtiges Addieren (Koaddition) der Interferogramme,
- On-line-Qualitätskontrolle der Interferogramme während der Koaddition auf Spikes und verstärktes Rauschen aus der Meßelektronik und wechselnde Intensität, wenn Wolken vor der Sonne vorbeiziehen,
- Anschluß eines Laufwerks für Optical Discs zum schnellen Abspeichern einer größeren Zahl von Interferogrammen und Spektren und Bereitstellung der Spektren für die spätere Offline-Auswertung,
- Einbau in einen Meßcontainer (störungsfreier Transport zum Einsatzort, schnellerer Auf- und Abbau, leichtere Wahl eines optimalen Standortes bezüglich seiner Sicht zur Sonne).

– BOMEM-DA2:

- Neue Detektoroptik mit Blenden in gekühlten Detektordewars zur Reduzierung der Eigenstrahlung,

- gekühlte Strahlteiler-Detektor-Einheit zur rechnergesteuerten Umschaltung zwischen MCT- und InSb-Detektor und Nutzung ihrer spezifischen Spektralbereiche,
- Bau eines mit flüssigem Stickstoff gekühlten Schwarzkörperstrahlers.

3. Durchgeführte Messungen

Entsprechend Tab. 2 wurden Feldmessungen nördlich des Polarkreises während CHEOPS III (Chemistry of Ozone in the Polar Stratosphere), während EASOE (European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) und während ESMOS II (European Stratospheric Monitoring Stations) durchgeführt. MIPAS-LM stand immer in Esrange. BOMEM-DA2 wurde nach der 1. Meßkampagne von Ny Aalesund nach Sondre Stromfjord, Grönland aus folgenden Gründen verlegt:

- kürzere Polarnacht (in der keine Messungen durchführbar sind),
- für IR-FTS bessere topographische und meteorologische Bedingungen:
 - 310 m über NN,
 - niedrigere Luftfeuchte,
 - geringere Bewölkungshäufigkeit,
 - dennoch häufig unterhalb des Polarwirbels.
- einfacher Zugang durch regelmäßige Linienflüge.

Die Tage mit geeigneten Meßbedingungen (wolkenfreier Himmel, Sonne über Horizont, keine apparativen Probleme), an denen tatsächlich gemessen wurde, sind zusammen mit den verwendeten Detektoren, den Filterbereichen und teilweise mit den detektierbaren Spurengasen in Tab. 3 bis 10 zusammengestellt.

Um eine starke Mittelung über unterschiedliche Luftmassen zu vermeiden, wurde i.a. eine Meßzeit von 5 min nach Sonnenauf- und vor Sonnenuntergang gewählt. Dazwischen betrug die Meßzeiten 10 min bis 15 min (Sonnenhöchststand). Während dieser Zeiten änderte sich der Elevationswinkel der Sonne um höchstens $\pm 0,4^\circ$ um den Mittelwert. Wegen der oft kurzen Tage bzw. kurzen wolkenfreien Perioden und der zum Detektor- und Filterwechsel benötigten Zeit, konnten an einem Tag nicht immer alle Detektoren und Filter eingesetzt bzw. alle Spurengase detektiert werden. Bei MIPAS-LM galt diese Einschränkung i.a. allerdings nur bis Ende Februar 1991, beim DA2 immer.

4. Berechnung der Säulendichten

Die Säulendichten der Spurengase werden durch die inverse Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung ermittelt. Dies geschieht iterativ durch ein nichtlineares Least-Squares-Fit-Verfahren (v. Clarmann, Die Bestimmung von Mischungsverhältnissen stratosphärischer Spurengase aus Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich, KfK 4698, 1990). Als Startwerte werden hierfür Druck-Temperatur-Profile sowie Spuren-

gasprofile benötigt. In der Nähe des Meßorts durchgeführte Radiosondenaufstiege liefern Druck, Temperatur und Wasserdampfgehalt. Zusätzlich gestartete Ozonsonden liefern darüberhinaus auch Ozonprofile. Die Vertikalprofile der anderen Spurengase stammen aus der neuesten verfügbaren Literatur, zusammengestellt von G. Echle, H. Oelhaf und A. Wegner, Measurements of atmospheric parameters with MIPAS, Final Report, ESA 9597/91/NL/SF (1992). Aus diesen Daten wird ein Atmosphärenmodell mit 46 Stufen konstruiert.

Von diesen Startwerten ausgehend wird das Strahlungsübertragungsproblem für die jeweilige Meßgeometrie erst vorwärts gelöst. Dafür wird das an unserem Institut entwickelte Linie-für-Linie-Simulationsprogramm SCAIS (Simulation Code for Atmospheric Infrared Spectra) verwendet (G. P. Adrian, T. v. Clarmann, H. Fischer, H. Oelhaf, Trace gas measurements with the ground-based MIPAS experiment during the Arctic winters 1990 to 1992, IRS' 92: Current Problems in Atmospheric Radiation, Hrsg.: S. Keevalik, O. Kärner, A. Deepak Publishing, Hampton, pp. 359, 1993). Die spektroskopischen Daten, die von SCAIS als weitere Eingabedaten benötigt werden, stammen aus der HITRAN- (High Resolution Transmission Molecular Absorption) und der ATMOS (Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy)-Datenbank, (L.S. Rothman et al., The HITRAN database: 1986 edition, Appl. Opt., 26, 4058, 1987; L. R. Brown et al., Molecular line parameters for the atmospheric trace molecule spectroscopy experiment, Appl. Opt., 26, 5154, 1987).

Die Abhängigkeit des Spektrums vom Vertikalprofil des fraglichen Gases wird in jedem Iterationsschritt um den Schätzwert linear entwickelt. Das Schätzprofil kann nun derart modifiziert werden, daß die Summe der Quadrate der Abweichung zwischen berechneten und gemessenen Spektren minimiert wird. Um die Lösung stabil zu halten, wird das Vertikalprofil entweder als ganzes durch einen multiplikativen Faktor skaliert oder durch einen Absinkfaktor modifiziert (L. L. Lowes und R.H. Norton, Evidence for subsidence in the 1989 Arctic winter stratosphere from airborne infrared composition measurements, J. Geophys. Res., 97, pp.7963, 1992). Der Absinkfaktor dehnt oder staucht das Profil ohne die Extremwerte der Mischungsverhältnisse zu ändern.

Eine weitere Möglichkeit, Information nicht nur über die Gesamtsäule eines Gases, sondern auch über seine Höhenverteilung zu gewinnen, ist die spektrale Analyse der Absorptionslinien: Die Spitzen der Spektrallinien enthalten hauptsächlich Information über die höheren Bereiche der Atmosphäre, während die Flügel hauptsächlich Information über die tieferen Bereich enthalten. Auf diese Weise wird bei HCl zwischen dem stratosphärischen und dem troposphärischen Anteil unterschieden (G.P. Adrian, M. Baumann, E. Frank, H. Oelhaf, Optical remote sensing of the atmosphere, Technical Digest, 5, pp.74, 1993). Die Tropopausenhöhe wird dabei dort angesetzt, wo mit zunehmender Höhe der Betrag des Temperaturgradienten kleiner als 1,5 K/km wird.

Die verschiedenen Anwendungen des hier verwendeten Inversionsprogramms RAT (Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles) werden dis-

kutiert in T.v. Clarmann: RAT, Computational tool for retrieval of atmospheric trace gas profiles from infrared spectra, submitted to Appl. Opt., 1993.

Die Anpassung der Spektren wird jeweils für einzelne Spurengase in schmalen, in Tab. 11 zusammengestellten Spektralintervallen durchgeführt. Diese Intervalle sind so gewählt, daß die Linien der zugehörigen Spurengase nur gering von der Temperatur abhängen und keine starken Absorptionslinien anderer Gase enthalten. In den Intervallen sind die relevanten Absorptionslinien verschiedener Gase berücksichtigt. Innerhalb des bei der Auswertung gewählten Spektralbereichs (s. Tab. 11) wird die Grundlinie des synthetischen Spektrums an diejenige des normierten gemessenen Spektrums angepaßt.

Die so bestimmten Spurengaskonzentrationen werden in vertikale Säulendichten umgerechnet. Auch dafür wurden die aktuellen Temperatur-Druck-Profile aus den Radiosondendaten benutzt. Um die Zuverlässigkeit und die absolute Genauigkeit der Ergebnisse zu verbessern, wurde über Säulendichten gemittelt, die sich bei der Auswertung verschiedener Spektralintervalle des gleichen Spektrums, bzw. aus verschiedenen, am gleichen Tag bei verschiedenen Sonnenhöhen gemessenen Spektren ergeben.

5. Meßergebnisse

Die bisher ausgewerteten Spektren sind in den Tabn. 12 bis 19 zusammengestellt. Die in den Tabn. 3 bis 10 aufgelisteten gemessenen Spektren, von denen in den Tabn. 12 bis 19 keine Ergebnisse gezeigt werden, werden noch bearbeitet.

Die in Tabn. 12, 13 und 17 angegebenen relativen Fehler ergeben sich aus der oben beschriebenen Mittelung über verschiedene Spektrallinien und über Spektren, die zu verschiedenen Höhenwinkeln der Sonne gehören. Die Einzelbeiträge der Fehler sind in Tab. 20 zusammengestellt. Die Unsicherheiten bei den spektroskopischen Daten sind in Tab. 20 nicht enthalten. Sie betragen zwischen 2 % und 15 %. Bei Säulendichten ohne Fehlerangaben sind letztere der Tab. 20 zu entnehmen.

6. Eigene Verwertung der Ergebnisse

Die abgeleiteten Säulengehalte der Spurengase wurden genutzt und mit der Temperatur und der potentiellen Vorticity in der Stratosphäre korreliert, um damit chemische und dynamische Prozesse zu untersuchen, die an dem Ozonabbau in der Stratosphäre beteiligt sind. Dabei wurden auch Rückwärtstrajektorien der vermessenen Luftmassen genutzt, um die Vorgeschichte dieser Luftmassen bei der Interpretation zu berücksichtigen. Zusammengefaßt werden folgende bekannte Hypothesen erhärtet bzw. neue Erkenntnisse gewonnen:

- Das HCl/HF-Verhältnis zeigt starke zeitliche Variationen. Niedrige HCl/HF-Verhältnisse weisen auf die Umwandlung des ozonunschädlichen HCl in andere, für den Ozonabbau relevante Cl-Verbindungen und eine stark gestörte Chemie hin. Das tritt vor al-

lem auf, wenn Luft aus den inneren kalten Regionen des Polarwirbels kommt.

- Eine Abnahme der troposphärischen Quellgase CH_4 und N_2O deutet auf ein Absinken der Luftmassen hin und ist mit niedrigen Temperaturen korreliert.
- Abnehmendes HNO_3 und NO_2 weist auf eine Denitrifizierung der Stratosphäre hin und ist mit niedrigen Temperaturen und dem Auftreten von PSCs korreliert.
- Bei einem Luftmassenwechsel von außen in die Vortex nehmen simultan HNO_3 , HF und O_3 zu. Die Säulendichten dieser Spurengase sind mit der potentiellen Vorticity korreliert.
- Bei ClONO_2 wurde über Esrange ein stetiger Anstieg von Mitte Januar bis Mitte März festgestellt mit den höchsten je von uns beobachteten Säulengehalten am Ende der Meßperiode 1992. Das deutet darauf hin, daß ursprünglich im Hochwinter durch heterogene Prozesse aktiviertes Chlor nach Beendigung der kalten Periode und bei zunehmender Photolyse von HNO_3 in ClONO_2 umgewandelt wird.

Ausführlichere Interpretationen der Meßergebnisse stehen in den Veröffentlichungen aus unserem Institut, die im 8. Kapitel zusammengestellt sind. Daraus sind auch die Namen der beteiligten Wissenschaftler und Diplomanden ersichtlich, die an den Messungen, Auswertungen und Interpretationen beteiligt waren.

An der Interpretation der Meßergebnisse wird auch in Zusammenarbeit mit Wissenschaftlern anderer Institutionen kontinuierlich weitergearbeitet. Bisher noch nicht bearbeitete Teilbereiche sind die Klimatologie im Polarwirbel und auch die Unterschiede zwischen dem Sommer- und Winterhalbjahr.

7. Danksagung

Bei der Vorbereitung der Messungen im KfK und bei den Messungen in der Arktis waren A. Friedle, G. Maucher und J. Schreiber, an der Berechnung der Säulendichten waren M. Baumann und H. Karbstein beteiligt, die alle während dieser Zeit ihre Diplomarbeit am IMK anfertigten. Die Elektronik, der Datenerfassungs- und Auswerterechner und die dazugehörige Software wurden von Dr. O. Fromhein, W. Karbstein, B. Kögel, W. Lindl, R. Mathar und Dr. M. Wölfel von HPE wesentlich verbessert, weiterentwickelt oder erneuert. Beim Aufbau neuer Detektor-Dewar-Systeme waren U. Hommel und L. Sepold von HIT behilflich.

Radiosondendaten erhielten wir von T. Jørgensen vom Dänischen Meteorologischen Institut, von E. Kiró vom Finnischen Meteorologischen Institut und von O. Widell in Esrange, Schweden.

Während unserer Messungen in Ny Aalesund, Søndre Strømfjord und Esrange waren uns jeweils Mitarbeiter des AWI, des Dänischen Meteorologischen Instituts sowie der Swedish Space Corporation mit Rat und Tat behilflich.

8. Veröffentlichungen

Adrian, G.P.; Blumenstock, Th.; Fischer, H.; Gulde, Th.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Measurements of column amounts of minor constituents in the polar and midlatitude atmosphere by Fourier transform infrared spectroscopy. XV. Tagung der Europäischen Geophysikalischen Gesellschaft, Kopenhagen, DK, 23.-27. April 1990.

Adrian, G.P.; Blumenstock, Th.; Fischer, H.; Gerhardt, L.; Gulde, Th.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Column amounts of trace gases derived from ground-based IR-spectroscopic measurements in the north polar winter. Proc. of the First European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Research, Schliersee, 3. - 5. Okt., 24-28, 1990.

Adrian, G.P.; Blumenstock, Th.; Fischer, H.; Gerhardt, L.; Gulde, Th.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Column amounts of trace gases derived from ground-based measurements with MIPAS during CHEOPS III, Geophysical Research Letters, 18/4, 783-786, 1991.

Adrian, G.P.; Gulde, Th.; Oelhaf, H.; Trieschmann, O.: Column amounts of trace gases derived from ground-based MIPAS measurements in the late north polar winter 1990, XVI. Tagung der Europäischen Geophysikalischen Gesellschaft, Wiesbaden, 22. - 26. April 1991.

Adrian, G.P.; Blumenstock, T.; Fischer, H.; Gerhardt, L.; Gulde, T.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Column amounts of trace gases derived from ground-based infrared spectroscopic measurements in the late north polar winter 1990. 5th Topical Meeting on Optical Remote Sensing of the Atmosphere, Williamsburg, Va., November 18-21, 1991.

Adrian, G.P.; Blumenstock, T.; Fischer, H.; Frank, E.; Gulde, T.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Column amounts and some information on the vertical distribution of trace gases in the late north polar winter 1990, Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 96/3, 272-276, 1992.

Adrian, G.P.; Fischer, H.; Frank, E.; Oelhaf, H.: Säulengehalte und Vertikalverteilungen atmosphärischer Spurengase im arktischen Spätwinter 1990. Deutsche Meteorologen-Tagung, Berlin, 16.-20. März, 1992, Annalen der Meteorologie 27, 210-211, 1992.

Adrian, G.P.; Blumenstock, T.; Fischer, H.; Frank, E.; Gulde, T.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Column amounts of trace gases from ground-based FTIR measurements in the late north polar winters 1990 and 1991. 1992 Quadrennial Ozone Symp., Charlottesville, Va., USA, June 4 - 13, 1992.

Adrian, G.P.; Fischer, H.; Oelhaf, H.: Interpretation of column amounts of trace gases from MIPAS measurements during the Arctic winters 1990 to 1992. 17th General Assembly of the European Geophysical Society, Edinburgh, GB, April. 6, 1992.

Adrian, G.P.; Fischer, H.; Oelhaf, H.: Trace gas measurements with the ground-based MIPAS experiment during the arctic winters 1990 to 1992. Internat. Radiation Symp., Tallin, Estonia, August 3-8, 1992.

Thomas, P.; Adrian, G.P.; Gulde, T.: Measurements of column densities of

ozone relevant trace gases by Fourier transform spectroscopy. 9th World Clean Air Congress, Montreal, CDN, Aug. 30 - Sept. 4, 1992.

Adrian, G.P.; Fischer, H.; Oelhaf, H.: Trace gas measurements with the ground-based MIPAS experiment during the Arctic winters 1990 to 1992. Internat. Radiation Symp., Tallinn, Estonia, Aug. 3-8, 1992, 3rd Internat. Workshop Atmospheric Science from Space Using Fourier Transform Infrared Spectroscopy, Karlsruhe, Sept. 15 - 17, 1992.

Adrian, G.P.; Baumann, M.; Fischer, H.; Friedle, A.; Gerhardt, L.; Maucher, G.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.; Wegner, A.: First results of ground-based MIPAS measurements of atmospheric trace gases in north Sweden during EASOE. 2nd European Symp. on Polar Stratospheric Ozone, Schliersee, Sept. 29 - Oct. 2, 1992.

Blumenstock, T.; Adrian, G.P.; Fischer, H.; Gerhardt, L.; Oelhaf, H.; Thomas, P.; Trieschmann, O.; Scheuerpflug, W.: First results of ground-based FTIR measurements of atmospheric trace gases in Greenland during EASOE. 2nd European Symp. on Polar Stratospheric Ozone, Schliersee, Sept. 29 - Oct. 2, 1992.

Adrian, G.P.; Baumann, M.; Blumenstock, T.; Fischer, H.; Friedle, A.; Gerhardt, L.; Maucher, G.; Oelhaf, H.; Scheuerpflug, W.; Thomas, P.; Trieschmann, O., and Wegner, A.: First results of ground-based FTIR measurements of atmospheric trace gases in north Sweden and Greenland during EASOE, Geophys. Res. Lett., in Druck, 1993.

Müller, R.; Peter, T.; Crutzen, P.J.; Oelhaf, H.; Adrian, G.P.; v. Clarmann, T.; Wegner, A.; Schmidt, U. und Lary, D.: The history of chlorine species and ozone depletion in the Arctic lower stratosphere in the EASOE winter 1991/92, Geophys. Res. Lett., in Druck, 1993.

Adrian, G.P.; Baumann, M.; Frank, E.; Oelhaf, H.: Retrieval of tropospheric and stratospheric distribution of HCl from ground-based FTIR spectra. Optical Remote Sensing of the Atmosphere, Technical Digest, Vol. 5, 74/TuA4-1-77/TuA4-4, Salt Lake City, 1993.

Blumenstock, T.; Adrian, G.P.; Fischer, H.; Gerhardt, L.; Oelhaf, H.; Scheuerpflug, W.; Thomas, P.; Trieschmann, O.: Column amounts of trace gases measured by FTIR spectroscopy in Sondre Stromfjord (Greenland) during the EASOE campaign. XVIII. Tagung der Europäischen Geophysikalischen Gesellschaft, Wiesbaden, 3.-7. Mai, 1993.

Wegner, A.; Adrian, G.P.; Baumann, M.; Oelhaf, H.: Dynamical and chemical aspects of ground-based FTIR measurements of atmospheric trace gases in north Sweden during the EASOE-campaign. XVIII. Tagung der Europäischen Geophysikalischen Gesellschaft, Wiesbaden, 3.-7. Mai, 1993.

Müller, R.; Peter, T.; Crutzen, P.J.; Oelhaf, H.; Adrian, G.; v. Clarmann, T.; Wegner, A.; Schmidt, U.; Lary, D.: The history of chlorine species and ozone depletion in the Arctic lower stratosphere in the EASOE winter 1991/92. XVIII. Tagung der Europäischen Geophysikalischen Gesellschaft, Wiesbaden, 3.-7. Mai, 1993.

	MIPAS-LM	DA2
Spektrale Auflösung [cm ⁻¹]	0,015	0,010
Apertur des Interferometers [mm]	33	50
Gesichtsfeld (voller Winkel) von Teleskop und Interferometer bei Blendendurchmesser	0,7 mm 0,9 mm 1,1 mm 1,3 mm	0,217° 0,279° 0,226° 0,276° 0,327°
Scanzeit für ein Interferogramm [s]	1,3	50
Amplitude der Pendel- bzw. Linearbewegung [°, cm]	8,6	25
Strahlteiler	KBr mit Ge- Beschichtung	KBr mit Ge- Beschichtung
Maximale Datenrate [kByte/s]	860	24
Detektor D* [W ⁻¹ cmHz [±]]		
InSb (2000 - 5000 cm ⁻¹)	5 x 10 ¹⁰	2 x 10 ¹¹
HgCdTe (600 - 2000 cm ⁻¹)	3.2 x 10 ¹⁰	5 x 10 ¹⁰
Filterbereiche [cm ⁻¹]	710-1220 1780-2020 2690-2980 3650-4640	

Tabelle 1: Betriebsdaten der Spektrometer

Instrument	MIPAS-LM	DA2	DA2
Standort	Esrangle, Schweden	Ny Aalesund, Spitzbergen	Sondre Stromfjord, Grönland
Koordinaten des Ortes	67°53'N, 21°6'O	78°56'N, 11°55'O	67°N, 50°37'W
Höhe des Ortes	470 m ü. NN	10 m ü. NN	310 m ü. NN
Zeit	18. Jan. - 05. April 1990 15. Jan. - 17. Feb. 1991 01. Nov. - 24. Nov. 1991 16. Jan. - 18. März 1992 26. Juni - 21. Juli 1992 12. Jan. - 28. März 1993	13. März - 23. April 1990	21. Jan. - 15. Feb. 1991 01. Nov. - 24. Nov. 1991 15. Jan. - 18. März 1992

Tabelle 2: Kampagnenzeiten

Detektor		MCT	InSb			
Spektralintervall in cm ⁻¹		685 - 1235	1740 - 2040	2550 - 3050	3650 - 4650	
Januar	27			●		
	28			●		
	30	●				
Februar	2				●	
	4	●	●	●		
	8			●	●	
	9	●	●	●	●	
	11	●	●	●	●	
	21		●	●	●	
	22		●			
	23	●	●	●	●	
	März	7		●	●	●
		11			●	
12			●			
13				●		
14				●		
17				●	●	
18		●				
23		○				
24		○				
26		●				
27				●		
28				●		
30	○					
31	○●					
April	1			○●		
	2			●	●	
	3		●	●	●	
	4	○	○	○	○	
	5		○	○	○	
	6		○	○		

Tabelle 3: IR-FTS-Messungen 1990 (Esrange, MIPAS-LM ●, Ny Aalesund, Bomem-DA2 ○)

Detektor	MCT	InSb				
		710 - 1220 HNO ₃ , O ₃ , CO ₂	1780 - 2200 NO	2690 - 2980 HCl, NO ₂ , O ₃ , CH ₄ , H ₂ O, N ₂ O,	3650 - 4640 HF	Ohne Filter
Januar	21			●	●	●
	23			●	●	●
	24	○				
	26	○				
	27			○	○	
	28	●		○		
	29	○		○	○	
	30			○	○	
	31	●				●
Februar	1	●				
	2	●				
	3			●	●	
	5	●○		●○	●○	
	6	●○	○	○	○	●
	7	○				
	9	●		●	●	●
	10	●○	○	●○	●○	●
	11	●		●	●	●
	12	○	○	○	○	
	13	○	●	●	●	
	14	●	●	●	●	
	15	●	●	●	●	

Tabelle 4: IR-FTS-Messungen 1991 (Esrange, MIPAS-LM ●, Søndre Strømfjord, Bomem-DA2 ○)

Spektrometer	MIPAS-LM		BOMEM-DA2			
Detektor	MCT	InSb	MCT	InSb		
Spektralintervall in cm^{-1}			685-1235	1740-2040	2550-3050	3650-4650
Spurengase	HNO ₃ O ₃ CO ₂	HCL HF NO NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HNO ₃ O ₃ CO ₂	NO	HCL NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HF
November 11	○	○				
13			○	○	○	○
14			○		○	○
15			○		○	
17		○	○		○	○
18			○		○	
19	○	○	○			
20	○	○				
24			○			

Tabelle 5: IR-FTS-Messungen 1991 (EASOE)

Spektrometer	MIPAS-LM		BOMEM-DA2			
Detektor	MCT	InSb	MCT	InSb		
Spektralintervall in cm^{-1}			685-1235	1740-2040	2550-3050	3650-4650
Spurengase	HNO ₃ O ₃ CO ₂	HCL HF NO NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HNO ₃ O ₃ CO ₂	NO	HCL NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HF
Januar 17	○	○				
18	○	○				
19	○	○	○			
20	○	○				
22		○				
23	○	○				
24	○	○				
25	○	○				
26	○	○				
27					○	○
28	○	○				
29			○			
30			○	○	○	
31			○	○	○	○

Tabelle 6: IR-FTS-Messungen 1992 (EASOE)

Spektrometer	MIPAS-LM		BOMEM-DA2			
Detektor	MCT	InSb	MCT	InSb		
Spektralintervall in cm^{-1}			685-1235	1740-2040	2550-3050	3650-4650
Spurengase	HNO ₃ O ₃ CO ₂	HCL HF NO NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HNO ₃ O ₃ CO ₂	NO	HCL NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HF
Februar 1			○	○	○	○
2	○	○				
3				○	○	○
4	○	○	○	○	○	○
5			○	○	○	○
6			○	○	○	○
7		○				
8	○	○	○	○	○	○
9			○	○	○	○
10	○	○				
12	○	○				
15	○	○				
17	○	○				
20	○	○	○	○	○	○
22			○	○	○	○
23	○	○	○	○	○	○
24	○	○	○			
25	○	○	○	○	○	○
26			○	○	○	○
27	○	○	○	○	○	○
28				○	○	○

Tabelle 7: IR-FTS-Messungen 1992 (EASOE)

Spektrometer	MIPAS-LM		BOMEM-DA2			
Detektor	MCT	InSb	MCT	InSb		
Spektralintervall in cm^{-1}			685-1235	1740-2040	2550-3050	3650-4650
Spurengase	HNO ₃ O ₃ CO ₂	HCL HF NO NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HNO ₃ O ₃ CO ₂	NO	HCl NO ₂ O ₃ CH ₄ N ₂ O H ₂ O	HF
März 1			○			
2	○	○				
5	○	○				
7	○	○	○	○	○	○
8	○	○		○	○	○
9	○	○	○	○	○	○
10	○	○				
11	○	○				
12	○	○	○	○	○	○
13				○	○	○
14	○	○				
15		○	○			
16	○	○	○	○	○	○
17	○					
18	○	○				

Tabelle 8: IR-FTS-Messungen 1992 (EASOE)

Detektor	MCT	InSb
Spektralintervall in cm^{-1}	700 - 1400	2260 - 4730
Juni 26	○	○
28	○	○
29	○	○
Juli 1	○	○
4	○	○
5	○	○
6	○	○
9	○	○
12	○	
13	○	
14	○	○
17	○	○
18	○	○
19	○	○
21	○	○

Tabelle 9: IR-FTS-Messungen 1992 (ESMOS-II)

Detektor	MCT	InSb
Spektralintervall in cm^{-1}	700 - 1400	2260 - 4730
Januar 25	○	○
28	○	○
29	○	○
31	○	○
Februar 2	○	○
3	○	○
5	○	○
6	○	○
10	○	○
11	○	○
16	○	
18	○	
20	○	○
21	○	○
22	○	○
23	○	○
24	○	○
27	○	○
28	○	○
März 2	○	○
3	○	○
10	○	○
11	○	○
16	○	○
17	○	○
20	○	○
22	○	○
24	○	○
26	○	○
27	○	○
28	○	○

Tabelle 10: IR-FTS-Messungen 1993 (ESMOS-II)

Spektralintervall [cm ⁻¹]	Spurengase (Datenbasis)
779,8 - 780,8	ClONO₂ (A), O ₃ (F), H ₂ O (H), CO ₂ (H)
866 - 870	HNO₃ (A), CF ₂ Cl ₂ (H), H ₂ O (H)
996,5 - 998,5	O₃ (F), H ₂ O (H), CO ₂ (H)
1898 - 1904	NO (H), H ₂ O (H), CO ₂ (H), N ₂ O (H)
1914,5 - 1915,5	NO (H), H ₂ O (H), CO ₂ (H)
2768 - 2773	O₃ (F), N ₂ O (H), CH ₄ (H), HDO (H)
2773 - 2776	HCl (H), O₃ (F), CH ₄ (H), N ₂ O (H), HDO (H)
2806 - 2808	N₂O (H), CH ₄ (H), HDO (H)
2868 - 2873	H₂CO (H), CH ₄ (H), H ₂ O (H)
2890 - 2892,5	NO₂ (H), CH ₄ (H), HDO (H)
2914,5 - 2915,5	NO₂ (H), CH ₄ (H), H ₂ O (H)
2923 - 2927	HCl (H), CH ₄ (H), HDO (H)
4037 - 4042	HF (H), CH ₄ (H), HDO (H)

Tabelle 11: Bei der Berechnung der Säulendichten benutzte Spektralintervalle; die spektroskopischen Daten sind den folgenden Datenbasen entnommen:

- H: HITRAN (High Resolution Transmission Molecular Absorption)
- A: ATMOS (Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy)
- F: Flaud J.M., et al.: Atlas of Ozone Spectral Parameters from Microwave to Medium Infrared, Academic Press, London, San Diego, New York, Boston, Sydney, Tokyo, Toronto, 1990

Die hauptsächlich untersuchten Spurengase sind fettgedruckt.

	27.01.90	28.01.90	02.02.90	04.02.90	08.02.90	09.02.90	11.02.90	23.02.90	07.03.90	11.03.90	12.03.90	13.03.90	14.03.90	17.03.90	26.03.90	31.03.90
O ₃	6.3 · 10 ¹⁸ ± 12 %	5.9 · 10 ¹⁸ ± 11 %		6.9 · 10 ¹⁸ ± 14 %	1.1 · 10 ¹⁹ ± 12 %	9.1 · 10 ¹⁸ ± 15 %	7.4 · 10 ¹⁸ ± 14 %	9.5 · 10 ¹⁸ ± 12 %	9.4 · 10 ¹⁸ ± 11 %	9.0 · 10 ¹⁸ ± 13 %	9.8 · 10 ¹⁸ ± 13 %	7.6 · 10 ¹⁸ ± 12 %	7.6 · 10 ¹⁸ ± 16 %	9.6 · 10 ¹⁸ ± 13 %	1.3 · 10 ¹⁹ ± 11 %	1.2 · 10 ¹⁹ ± 11 %
H ₂ O	1.3 · 10 ²² ± 7 %	1.6 · 10 ²² ± 7 %		1.8 · 10 ²² ± 9 %	1.9 · 10 ²² ± 8 %	1.7 · 10 ²² ± 12 %	1.3 · 10 ²² ± 6 %	2.4 · 10 ²² ± 8 %	5.1 · 10 ²¹ ± 6 %	5.9 · 10 ²¹ ± 14 %		5.8 · 10 ²¹ ± 7 %	1.5 · 10 ²² ± 8 %	2.2 · 10 ²² ± 9 %		
CH ₄	2.9 · 10 ¹⁹ ± 12 %	3.2 · 10 ¹⁹ ± 12 %		3.3 · 10 ¹⁹ ± 11 %	3.3 · 10 ¹⁹ ± 10 %	3.3 · 10 ¹⁹ ± 11 %	3.4 · 10 ¹⁹ ± 11 %	3.4 · 10 ¹⁹ ± 10 %	3.1 · 10 ¹⁹ ± 11 %	3.0 · 10 ¹⁹ ± 19 %		3.3 · 10 ¹⁹ ± 10 %	3.1 · 10 ¹⁹ ± 11 %	3.6 · 10 ¹⁹ ± 11 %		
N ₂ O	5.3 · 10 ¹⁸ ± 6 %	5.4 · 10 ¹⁸ ± 6 %		5.2 · 10 ¹⁸ ± 7 %	5.7 · 10 ¹⁸ ± 7 %	5.5 · 10 ¹⁸ ± 8 %	6.1 · 10 ¹⁸ ± 8 %	5.8 · 10 ¹⁸ ± 6 %	5.4 · 10 ¹⁸ ± 12 %	5.3 · 10 ¹⁸ ± 9 %		5.5 · 10 ¹⁸ ± 7 %	5.6 · 10 ¹⁸ ± 8 %	6.0 · 10 ¹⁸ ± 10 %		
NO ₂	≤ 1.0 · 10 ¹⁵	≤ 1.2 · 10 ¹⁵		≤ 9.0 · 10 ¹⁴	≤ 1.2 · 10 ¹⁵	≤ 1.1 · 10 ¹⁵	≤ 1.2 · 10 ¹⁵	3.4 · 10 ¹⁵ ± 13 %	2.0 · 10 ¹⁵ ± 38 %	2.5 · 10 ¹⁵ ± 25 %		1.8 · 10 ¹⁵ ± 16 %	≤ 1.2 · 10 ¹⁵	≤ 1.2 · 10 ¹⁵		
NO									4.3 · 10 ¹⁵ ± 24 %		4.2 · 10 ¹⁵ ± 11 %					
HNO ₃				2.9 · 10 ¹⁶ ± 30 %		2.9 · 10 ¹⁶ ± 21 %	2.9 · 10 ¹⁶ ± 28 %				2.9 · 10 ¹⁶ ± 14 %				2.7 · 10 ¹⁶ ± 24 %	2.7 · 10 ¹⁶ ± 27 %
HCl	2.5 · 10 ¹⁵ ± 13 %	2.5 · 10 ¹⁵ ± 13 %		2.6 · 10 ¹⁵ ± 13 %	4.8 · 10 ¹⁵ ± 13 %	4.8 · 10 ¹⁵ ± 13 %	3.6 · 10 ¹⁵ ± 13 %	3.6 · 10 ¹⁵ ± 13 %	3.7 · 10 ¹⁵ ± 12 %	3.8 · 10 ¹⁵ ± 12 %		3.2 · 10 ¹⁵ ± 12 %	3.0 · 10 ¹⁵ ± 12 %	4.6 · 10 ¹⁵ ± 16 %		
HCl _{strat}	2.0 · 10 ¹⁵ ± 13 %	1.9 · 10 ¹⁵ ± 13 %		2.0 · 10 ¹⁵ ± 13 %	4.1 · 10 ¹⁵ ± 13 %	4.0 · 10 ¹⁵ ± 13 %	3.1 · 10 ¹⁵ ± 13 %	3.1 · 10 ¹⁵ ± 13 %	3.0 · 10 ¹⁵ ± 12 %	3.1 · 10 ¹⁵ ± 12 %		2.6 · 10 ¹⁵ ± 12 %	2.3 · 10 ¹⁵ ± 12 %	3.7 · 10 ¹⁵ ± 16 %		
HF			1.5 · 10 ¹⁵ ± 17 %		1.6 · 10 ¹⁵ ± 12 %	1.6 · 10 ¹⁵ ± 17 %	1.4 · 10 ¹⁵ ± 15 %	7.5 · 10 ¹⁴ ± 14 %						1.7 · 10 ¹⁵ ± 15 %		

Tabelle 12: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm² und relative Fehler; die zugehörigen Spektren wurden mit MIPAS-LM gemessen.

	21.01.91	23.01.91	28.01.91	31.01.91	01.02.91	02.02.91	03.02.91	05.02.91	06.02.91	09.02.91	10.02.91	11.02.91	13.02.91	14.02.91	15.02.91
O ₃ [10 ¹⁷]	83 ± 2 %	83 ± 11 %	91 ± 4 %	96 ± 9 %	123 ± 5 %	117 ± 2 %	94 ± 17 %	107 ± 14 %	106 ± 8 %	88 ± 22 %	96 ± 11 %	93 ± 12 %	93 ± 9 %	106 ± 17 %	98 ± 12 %
H ₂ O [10 ²⁰]	138 ± 2 %	145 ± 3 %	171 ± 1 %	146 ± 3 %	67	76 ± 1 %	49	212 ± 7 %	139 ± 1 %	88 ± 6 %	72 ± 8 %	176 ± 18 %	80	74 ± 2 %	69 ± 4 %
HDO [10 ¹⁷]	30 ± 4 %	32 ± 5 %		32			8	41		18 ± 3 %	15 ± 6 %	28	16	14	36
N ₂ O [10 ¹⁷]	63 ± 2 %	54 ± 8 %		58			58	62		59 ± 6 %	59 ± 2 %	56	57	55 ± 1 %	53
CH ₄ [10 ¹⁸]	35 ± 5 %	33 ± 6 %		36 ± 4 %			35 ± 2 %	37 ± 1 %		34	36 ± 2 %	34 ± 3 %	34 ± 2 %	34 ± 3 %	33
HNO ₃ [10 ¹⁵]			23	21	21	23 ± 1 %		20	18	19 ± 7 %	18 ± 2 %	21 ± 6 %		24	24
NO ₂ [10 ¹³]	51 ± 2 %	≤ 81		76			63	≤ 178		62	95 ± 35 %	40	≤ 189	169	≤ 154
HCl [10 ¹⁴]	51 ± 15 %	36 ± 8 %		54 ± 10 %			48 ± 10 %	53 ± 7 %		53 ± 2 %	46 ± 3 %		55	50 ± 16 %	55 ± 13 %
HCl _{strat} [10 ¹⁴]	27	18		29		26		29		29	25		30	27	29
HF [10 ¹⁴]	17 ± 39 %	19 ± 32 %		14			6	17		8 ± 39 %	13 ± 5 %		18	17	18
CO ₂ [10 ²⁰]			72 ± 1 %	70 ± 1 %	65 ± 2 %	71 ± 2 %		69 ± 1 %	68 ± 2 %	63 ± 1 %	72 ± 1 %	60		68 ± 3 %	69 ± 2 %

Tabelle 13: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm² und relative Fehler; die zugehörigen Spektren wurden 1991 mit MIPAS-LM gemessen.

	Nov. 11, 91	Nov. 19, 91	Nov. 20, 91	Jan. 24, 92	Jan. 28, 92	Jan. 31, 92	Feb. 2, 92	Feb. 4, 92
H ₂ O	$7.66 \cdot 10^{21}$	$1.56 \cdot 10^{22}$	$1.52 \cdot 10^{22}$	$2.16 \cdot 10^{22}$	$2.11 \cdot 10^{22}$	$3.06 \cdot 10^{22}$	$1.89 \cdot 10^{22}$	$1.40 \cdot 10^{22}$
HDO	$1.59 \cdot 10^{18}$	$3.35 \cdot 10^{18}$	$3.22 \cdot 10^{18}$	$4.57 \cdot 10^{18}$	$4.28 \cdot 10^{18}$	$6.35 \cdot 10^{18}$	$4.26 \cdot 10^{18}$	$2.90 \cdot 10^{18}$
(HDO/H ₂ O)/ $3 \cdot 10^{-4}$	0.69	0.71	0.71	0.71	0.68	0.69	0.75	0.69
CFC12	$9.3 \cdot 10^{15}$	-	$9.52 \cdot 10^{15}$	-	$10.5 \cdot 10^{15}$	$9.72 \cdot 10^{15}$	$8.87 \cdot 10^{15}$	$9.56 \cdot 10^{15}$
N ₂ O	$5.86 \cdot 10^{18}$	$6.17 \cdot 10^{18}$	$6.00 \cdot 10^{18}$	$6.04 \cdot 10^{18}$	$5.95 \cdot 10^{18}$	$6.29 \cdot 10^{18}$	$5.69 \cdot 10^{18}$	$5.76 \cdot 10^{18}$
CH ₄	$3.34 \cdot 10^{19}$	$3.38 \cdot 10^{19}$	$3.26 \cdot 10^{19}$	$3.33 \cdot 10^{19}$	$3.29 \cdot 10^{19}$	$3.34 \cdot 10^{19}$	$3.15 \cdot 10^{19}$	$3.37 \cdot 10^{19}$
O ₃	$7.77 \cdot 10^{18}$	$6.86 \cdot 10^{18}$	$7.53 \cdot 10^{18}$	$6.64 \cdot 10^{18}$	$9.57 \cdot 10^{19}$	$6.98 \cdot 10^{18}$	$9.33 \cdot 10^{18}$	$1.03 \cdot 10^{19}$
HNO ₃	$2.28 \cdot 10^{16}$	-	$2.09 \cdot 10^{16}$	$1.38 \cdot 10^{16}$	$1.47 \cdot 10^{16}$	$1.19 \cdot 10^{16}$	$3.11 \cdot 10^{16}$	$2.87 \cdot 10^{16}$
ClONO ₂	-	-	$1.65 \cdot 10^{15}$	-	$2.24 \cdot 10^{15}$	-	-	$3.47 \cdot 10^{15}$
HCl	$3.78 \cdot 10^{15}$	$5.07 \cdot 10^{15}$	$3.88 \cdot 10^{15}$	$2.70 \cdot 10^{15}$	$3.37 \cdot 10^{15}$	$3.13 \cdot 10^{15}$	$3.50 \cdot 10^{15}$	$3.22 \cdot 10^{15}$
HF	-	$9.20 \cdot 10^{14}$	$13.8 \cdot 10^{14}$	$7.22 \cdot 10^{14}$	$6.56 \cdot 10^{14}$	$5.10 \cdot 10^{14}$	$15.3 \cdot 10^{14}$	$16.5 \cdot 10^{14}$
HCl _{strat}	$2.03 \cdot 10^{15}$	$2.15 \cdot 10^{15}$	$1.79 \cdot 10^{15}$	$1.42 \cdot 10^{15}$	$1.62 \cdot 10^{15}$	$1.71 \cdot 10^{15}$	$1.66 \cdot 10^{15}$	$1.55 \cdot 10^{15}$
T _{min} (°C)	-65.2	-76.2	-78.4	-75.1	-79.4	-76.6	-71.1	-72.4
HCl _{strat} /HF		2.34	1.30	1.97	2.47	3.36	1.08	0.91

Tabelle 14: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm²; die zugehörigen Spektren wurden mit MIPAS-LM gemessen

	Feb. 7, 92	Feb. 8, 92	Feb. 10, 92	Feb. 12, 92	Feb. 15, 92	Feb. 17, 92	Feb. 24, 92	Feb. 27, 92
H ₂ O	2.46 · 10 ²²	2.15 · 10 ²²	2.57 · 10 ²²	1.22 · 10 ²²	1.23 · 10 ²²	1.39 · 10 ²²	1.20 · 10 ²²	1.63 · 10 ²²
HDO	5.0 · 10 ¹⁸	4.75 · 10 ¹⁸	5.72 · 10 ¹⁸	2.59 · 10 ¹⁸	2.62 · 10 ¹⁸	2.99 · 10 ¹⁸	2.86 · 10 ¹⁸	3.64 · 10 ¹⁸
(HDO/H ₂ O)/ 3·10 ⁻⁴	0.68	0.74	0.74	0.71	0.71	0.72	0.79	0.74
CFC12	-	10.3 · 10 ¹⁵	8.50 · 10 ¹⁵	8.58 · 10 ¹⁵	8.53 · 10 ¹⁵	9.67 · 10 ¹⁵	-	8.92 · 10 ¹⁵
N ₂ O	5.67 · 10 ¹⁸	5.68 · 10 ¹⁸	5.76 · 10 ¹⁸	5.63 · 10 ¹⁸	5.74 · 10 ¹⁸	6.15 · 10 ¹⁸	5.88 · 10 ¹⁸	5.54 · 10 ¹⁸
CH ₄	3.20 · 10 ¹⁹	3.34 · 10 ¹⁹	3.56 · 10 ¹⁹	3.46 · 10 ¹⁹	-	3.78 · 10 ¹⁹	3.73 · 10 ¹⁹	3.06 · 10 ¹⁹
O ₃	-	8.10 · 10 ¹⁸	8.13 · 10 ¹⁸	9.01 · 10 ¹⁸	9.63 · 10 ¹⁸	9.10 · 10 ¹⁸	8.31 · 10 ¹⁸	9.76 · 10 ¹⁸
HNO ₃	-	2.72 · 10 ¹⁶	-	-	2.13 · 10 ¹⁶	2.12 · 10 ¹⁶	-	1.96 · 10 ¹⁶
ClONO ₂	-	-	3.24 · 10 ¹⁵	-	-	2.83 · 10 ¹⁵	-	-
HCl	3.87 · 10 ¹⁵	3.49 · 10 ¹⁵	3.91 · 10 ¹⁵	4.19 · 10 ¹⁵	4.61 · 10 ¹⁵	4.92 · 10 ¹⁵	4.55 · 10 ¹⁵	4.69 · 10 ¹⁵
HF	11.2 · 10 ¹⁴	13.3 · 10 ¹⁴	11.3 · 10 ¹⁴	11.2 · 10 ¹⁴	8.89 · 10 ¹⁴	9.41 · 10 ¹⁴	13.7 · 10 ¹⁴	9.76 · 10 ¹⁴
HCl _{strat}	1.74 · 10 ¹⁵	1.57 · 10 ¹⁵	1.78 · 10 ¹⁵	2.11 · 10 ¹⁵	2.29 · 10 ¹⁵	2.36 · 10 ¹⁵	2.25 · 10 ¹⁵	2.33 · 10 ¹⁵
T _{min} (°C)	-74.0	-73.6	-73.9	-71.1	-71.1	-63.5	-70.4	-65.8
HCl _{strat} /HF	1.55	1.18	1.57	1.88	2.57	2.51	1.64	2.39

Tabelle 15: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm²; die zugehörigen Spektren wurden mit MIPAS-LM gemessen.

	Mar. 2, 92	Mar. 5, 92	Mar. 7, 92	Mar. 8, 92	Mar. 10, 92	Mar. 12, 92	Mar. 14, 92
H ₂ O	1.71 · 10 ²²					1.02 · 10 ²²	1.88 · 10 ²²
HDO	3.58 · 10 ¹⁸					2.15 · 10 ¹⁸	3.98 · 10 ¹⁸
(HDO/H ₂ O)/ 3·10 ⁻⁴	0.70					0.70	0.71
CFC12	-	-	8.72 · 10 ¹⁵	8.96 · 10 ¹⁵	-	7.35 · 10 ¹⁵	8.72 · 10 ¹⁵
N ₂ O	5.79 · 10 ¹⁸	5.70 · 10 ¹⁸	5.71 · 10 ¹⁸	5.79 · 10 ¹⁸	5.72 · 10 ¹⁸	5.42 · 10 ¹⁸	5.24 · 10 ¹⁸
CH ₄	3.90 · 10 ¹⁹	-	3.29 · 10 ¹⁹	3.51 · 10 ¹⁹	3.24 · 10 ¹⁹	3.21 · 10 ¹⁹	2.93 · 10 ¹⁹
O ₃	8.49 · 10 ¹⁸	-				9.42 · 10 ¹⁸	9.71 · 10 ¹⁸
HNO ₃	-	-	1.84 · 10 ¹⁶	2.20 · 10 ¹⁶	-	2.57 · 10 ¹⁶	2.83 · 10 ¹⁶
ClONO ₂	5.41 · 10 ¹⁵	-	4.48 · 10 ¹⁵	5.28 · 10 ¹⁵	-	7.20 · 10 ¹⁵	6.91 · 10 ¹⁵
HCl	5.56 · 10 ¹⁵	4.22 · 10 ¹⁵	4.43 · 10 ¹⁵	4.72 · 10 ¹⁵	4.57 · 10 ¹⁵	4.33 · 10 ¹⁵	4.36 · 10 ¹⁵
HF	19.6 · 10 ¹⁴	15.8 · 10 ¹⁴	-	15.6 · 10 ¹⁴	12.8 · 10 ¹⁴	21.3 · 10 ¹⁴	21.5 · 10 ¹⁴
HCl _{strat}	2.56 · 10 ¹⁵	1.85 · 10 ¹⁵	1.98 · 10 ¹⁵	2.10 · 10 ¹⁵	2.04 · 10 ¹⁵	2.03 · 10 ¹⁵	2.19 · 10 ¹⁵
T _{min} (°C)	-69.6	-				-69.8	-67.4
HCl _{strat} /HF	1.31	1.17	-	1.34	1.59	0.95	1.02

Tabelle 16: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm²; die zugehörigen Spektren wurden mit MIPAS-LM gemessen.

	04.04.1990
O ₃	7.1 · 10 ¹⁸ ± 12 %
H ₂ O	6.1 · 10 ²¹ ± 6 %
CH ₄	3.5 · 10 ¹⁹ ± 12 %
N ₂ O	5.4 · 10 ¹⁸ ± 6 %
NO ₂	7.9 · 10 ¹⁵ ± 30 %
HCl	3.2 · 10 ¹⁵ ± 12 %
HCl _{strat}	2.5 · 10 ¹⁵ ± 12 %
HF	1.9 · 10 ¹⁵ ± 14 %

Tabelle 17:
Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm² und relative Fehler; die zugehörigen Spektren wurden am 04. April 1990 in Ny Aalesund, Spitzbergen, mit dem DA2 gemessen.

	Nov. 13, 91	Nov. 17, 91	Jan. 27, 92	Jan. 30, 92	Jan. 31, 92	Feb. 5, 92	Feb. 9, 92	Feb. 17, 92	Feb. 20, 92
H ₂ O	6.67 · 10 ²¹	16.6 · 10 ²¹	3.66 · 10 ²¹	2.91 · 10 ²¹	2.71 · 10 ²¹	1.32 · 10 ²¹	4.67 · 10 ²¹	2.66 · 10 ²¹	2.34 · 10 ²¹
HDO	14.0 · 10 ¹⁷	35.1 · 10 ¹⁷	7.06 · 10 ¹⁷	4.72 · 10 ¹⁷	5.79 · 10 ¹⁷	1.55 · 10 ¹⁷	6.99 · 10 ¹⁷	5.13 · 10 ¹⁷	3.79 · 10 ¹⁷
(HDO/H ₂ O)/ 3·10 ⁻⁴	0.70	0.71	0.64	0.54	0.71	0.39	0.50	0.64	0.54
N ₂ O	6.03 · 10 ¹⁸	5.89 · 10 ¹⁸	5.73 · 10 ¹⁸	6.26 · 10 ¹⁸	6.55 · 10 ¹⁸	6.50 · 10 ¹⁸	6.09 · 10 ¹⁸	5.41 · 10 ¹⁸	5.63 · 10 ¹⁸
CH ₄	3.40 · 10 ¹⁹	3.40 · 10 ¹⁹	3.31 · 10 ¹⁹	3.49 · 10 ¹⁹	3.68 · 10 ¹⁹	3.53 · 10 ¹⁹	3.58 · 10 ¹⁹	3.31 · 10 ¹⁹	3.37 · 10 ¹⁹
O ₃	6.68 · 10 ¹⁸	6.58 · 10 ¹⁸	9.35 · 10 ¹⁸	10.8 · 10 ¹⁸	11.1 · 10 ¹⁸	11.4 · 10 ¹⁸	10.3 · 10 ¹⁸	9.53 · 10 ¹⁸	9.88 · 10 ¹⁸
HCl	4.34 · 10 ¹⁵	4.42 · 10 ¹⁵	4.48 · 10 ¹⁵	4.11 · 10 ¹⁵	4.29 · 10 ¹⁵	4.69 · 10 ¹⁵	5.09 · 10 ¹⁵	4.30 · 10 ¹⁵	6.02 · 10 ¹⁵
HCl _{strat}	3.23 · 10 ¹⁵	2.39 · 10 ¹⁵	2.14 · 10 ¹⁵	1.99 · 10 ¹⁵	2.07 · 10 ¹⁵	2.56 · 10 ¹⁵	2.65 · 10 ¹⁵	3.03 · 10 ¹⁵	3.09 · 10 ¹⁵
HF	1.30 · 10 ¹⁵	1.67 · 10 ¹⁵	1.37 · 10 ¹⁵	-	1.82 · 10 ¹⁵	1.64 · 10 ¹⁵	1.18 · 10 ¹⁵	-	2.58 · 10 ¹⁵
HCl _{strat} /HF	2.49	1.43	1.57	-	1.14	1.56	2.25	-	1.20
T _{min} (K)	199	200	206	211	211	220	210	207	209

Tabelle 18: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm²; die zugehörigen Spektren wurden mit BOMEM-DA2 in Sondre Stromfjord, Grönland, gemessen.

	Feb. 23, 92	Feb. 25, 92	Feb. 28, 92	Mar. 7, 92	Mar. 8, 92	Mar. 9, 92	Mar. 12, 92	Mar. 13, 92
H ₂ O	1.92 · 10 ²¹	2.14 · 10 ²¹	9.95 · 10 ²¹	4.39 · 10 ²¹	5.66 · 10 ²¹	4.73 · 10 ²¹	2.88 · 10 ²¹	2.10 · 10 ²¹
HDO	4.18 · 10 ¹⁷	3.33 · 10 ¹⁷	16.1 · 10 ¹⁷	8.96 · 10 ¹⁷	9.43 · 10 ¹⁷	8.48 · 10 ¹⁷	4.91 · 10 ¹⁷	3.40 · 10 ¹⁷
(HDO/H ₂ O)/ 3·10 ⁻⁴	0.73	0.52	0.54	0.68	0.56	0.60	0.57	0.54
N ₂ O	5.51 · 10 ¹⁸	5.82 · 10 ¹⁸	5.81 · 10 ¹⁸	6.04 · 10 ¹⁸	5.95 · 10 ¹⁸	6.17 · 10 ¹⁸	6.04 · 10 ¹⁸	5.63 · 10 ¹⁸
CH ₄	3.41 · 10 ¹⁹	3.49 · 10 ¹⁹	3.35 · 10 ¹⁹	3.25 · 10 ¹⁹	3.29 · 10 ¹⁹	3.27 · 10 ¹⁹	3.49 · 10 ¹⁹	3.16 · 10 ¹⁹
O ₃	8.08 · 10 ¹⁸	9.93 · 10 ¹⁸	7.80 · 10 ¹⁸	11.2 · 10 ¹⁸	10.6 · 10 ¹⁸	8.25 · 10 ¹⁸	11.1 · 10 ¹⁸	9.13 · 10 ¹⁸
HCl	4.99 · 10 ¹⁵	5.84 · 10 ¹⁵	4.30 · 10 ¹⁵	4.95 · 10 ¹⁵	5.40 · 10 ¹⁵	4.97 · 10 ¹⁵	6.36 · 10 ¹⁵	5.34 · 10 ¹⁵
HCl _{strat}	2.79 · 10 ¹⁵	2.99 · 10 ¹⁵	2.01 · 10 ¹⁵	2.45 · 10 ¹⁵	2.93 · 10 ¹⁵	2.42 · 10 ¹⁵	3.47 · 10 ¹⁵	3.20 · 10 ¹⁵
HF	1.97 · 10 ¹⁵	1.86 · 10 ¹⁵	1.95 · 10 ¹⁵	1.84 · 10 ¹⁵	2.07 · 10 ¹⁵	1.68 · 10 ¹⁵	0.98 · 10 ¹⁵	0.92 · 10 ¹⁵
HCl _{strat} /HF	1.42	1.61	1.03	1.33	1.42	1.44	3.54	3.48
T _{min} (K)	209	206	210	212	215	214	206	208

Tabelle 19: Vertikale Säulengehalte in Molekülen/cm²; die zugehörigen Spektren wurden mit BOMEM-DA2 in Sondre Stromfjord, Grönland, gemessen.

Spurengas/ Fehlerbeitrag durch	H ₂ O	HDO	N ₂ O	CH ₄	CFC12	O ₃	HNO ₃	ClONO ₂	HCl	HCl _{strat}	HF
Residuen ($< 2\%$)	2 %	2 %	1 %	2 %	5 %	5 %	10 %	10 %	8 %	8 %	10 %
Temperatur ($< 2\text{ K}$)	0.1 %	0.1 %	1 %	0.1 %	3 %	0.1 %	3 %	3 %	1 %	1 %	1 %
Beobachtungswinkel ($< 0.1^\circ$)	4 %	4 %	3 %	3 %	3 %	1 %	1 %	1 %	1 %	1 %	1 %
Skalierung	1 %	1 %	1 %	1 %	5 %	5 %	5 %	10 %	3 %	3 %	5 %
Vertikalprofil der Mischungsverhältnisse	5 %	5 %	5 %	5 %	5 %	5 %	10 %	10 %	5 %	9 %	7 %
Überlagerung anderer Gase	—	—	—	—	15 %	—	—	20 %	10 %	10 %	10 %
Gesamtfehler	7 %	7 %	6 %	6 %	18 %	9 %	15 %	27 %	14 %	16 %	16 %

Tabelle 20: Relative Fehlerbeiträge in % zu den vertikalen Säulengehalten.