



**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 5811

**Ableitung von optischen  
und mikrophysikalischen  
Parametern stratosphärischer  
Aerosole aus Emissions-  
spektren im infraroten  
Spektralbereich**

**G. Echle**

Institut für Meteorologie und Klimaforschung

August 1996

---



FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 5811

**Ableitung von optischen und  
mikrophysikalischen Parametern  
stratosphärischer Aerosole aus  
Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich <sup>1</sup>**

Georg Echle

Institut für Meteorologie und Klimaforschung

<sup>1</sup> Von der Fakultät für Physik der Universität (T.H.) Karlsruhe  
genehmigte Dissertation

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

1996

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

**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**

**ISSN 0947-8620**

### ***Ableitung von optischen und mikrophysikalischen Parametern stratosphärischer Aerosole aus Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich***

Die im Rahmen der EASOE (European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) Kampagne im Winter 1991/92 von MIPAS-B (Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung, Ballonversion) gemessenen Emissionsspektren sind beeinflusst von einer hohen Aerosolkonzentration, die vom Ausbruch des Mt. Pinatubo im Juni 1991 stammt.

Zunächst wurden die grundlegenden Zusammenhänge zwischen den mikrophysikalischen und optischen Größen zur Beschreibung von Aerosoleigenschaften und dem resultierenden Aerosolkontinuum in hochaufgelösten Infrarotemissionsspektren dargelegt. Es wurde eine Methode entwickelt, in hochaufgelösten Emissionsspektren den Beitrag des Aerosolkontinuums von den Emissionslinien der Spurengase zu trennen. Das Verfahren beruht auf der Tatsache, daß das Aerosolkontinuum innerhalb kleiner Spektralintervalle als lokal konstant angenommen werden kann und deshalb in vielen speziell ausgewählten und über den ganzen Spektralbereich verteilten Spektralintervallen individuell bestimmt werden kann. Der Vorteil besteht darin, daß keine *a priori* Information über den Aerosoltyp notwendig ist.

Die Anwendung dieser Methode auf MIPAS-B-Spektren, gemessen im März 1992 in Kiruna, ergab spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten in den Spektralbereichen von  $750 - 980 \text{ cm}^{-1}$  und  $1180 - 1380 \text{ cm}^{-1}$  für die drei untersten Tangentenhöhen bei 11.3 km, 14.5 km und 16.1 km. Deren spektraler Verlauf entspricht dem eines Schwefelsäure-Aerosols.

Mie-Rechnungen zeigen die Sensitivität der spektralen Form der Aerosolextinktion sowohl auf die Zusammensetzung als auch auf die Größenverteilung des Aerosols. Allerdings stellte sich heraus, daß der Informationsgehalt des spektralen Extinktionskoeffizienten bezüglich der Parameter der Größenverteilung auf die Eindeutigkeit der resultierenden Volumendichte beschränkt ist, wenn die Teilchenradien mehr als eine Größenordnung kleiner als die Wellenlänge der Strahlung sind.

Mit Hilfe eines Least-Squares-Anpassungsverfahrens wurden aus den abgeleiteten spektralen Extinktionskoeffizienten die Zusammensetzung und Parameter einer Log-Normal-Größenverteilung für das Pinatubo-Aerosol bestimmt. Die Zusammensetzung und die Volumendichte des Aerosols konnten eindeutig bestimmt werden, während sich für die einzelnen Parameter der Log-Normal-Verteilung starke gegenseitige Korrelationen ergaben.

Die auf der Basis der abgeleiteten Größenparameter berechneten optischen Eigenschaften des Aerosols deuten auf einen nicht zu vernachlässigenden Streuanteil hin. Mit Hilfe eines Mehrfachstreualgorithmus wurde ein signifikanter Einfluß der Streuung auf die spektralen Strahldichten nachgewiesen. Es wurde ein iteratives Verfahren zur Kor-

rektur der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten und der mikrophysikalischen Parameter unter Berücksichtigung von Streuung entwickelt und angewandt.

Für die drei Tangentenhöhen 11.3 km, 14.5 km und 16.1 km ergaben sich jeweils Zusammensetzungen von 68.8 ( $\pm$  3.1), 70.1 ( $\pm$  3.2) und 66.0 ( $\pm$  2.0) Prozent H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Gewichtsanteil und Volumendichten von 3.66 ( $\pm$  0.19), 3.23 ( $\pm$  0.15) und 0.93 ( $\pm$  0.04)  $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ .

Sowohl die abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten als auch die daraus bestimmten mikrophysikalischen Eigenschaften des Aerosols zeigen gute Übereinstimmung mit anderen Infrarotemissionsmessungen und *in situ* Aerosolmessungen.

**Retrieval of optical and microphysical parameters of stratospheric aerosols from emission spectra in the infrared spectral range**

The emission spectra measured by MIPAS-B (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding, balloon version) during the EASOE (European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) campaign in winter 1991/92 are influenced by a high aerosol concentration originating in the eruption of Mt. Pinatubo in June 1991.

First, the fundamental relationships are explained which exist between the microphysical and optical parameters for description of aerosol properties and the resulting aerosol continuum in infrared emission spectra. A method was developed by which the contribution of the aerosol continuum could be separated from the emission lines of the trace gases in high-resolution emission spectra. The method relies on the fact that the aerosol continuum can be considered locally constant within narrow spectral intervals so that it can be determined individually in many specifically selected spectral intervals which are distributed over the whole spectral range. The advantage associated with this method is that no *a priori* information is needed about the type of aerosol.

By applying this method to MIPAS-B spectra, measured in Kiruna in March 1992, spectral aerosol extinction coefficients were derived in the spectral ranges from 750 - 980  $\text{cm}^{-1}$  and 1180 - 1380  $\text{cm}^{-1}$  for the three lowest tangent altitudes at 11.3 km, 14.5 km, and 16.1 km. The spectral shape of the retrieved extinction coefficients corresponds to that of a sulfuric acid aerosol.

Mie computations make evident that the spectral form of aerosol extinction is sensitive both to the composition and the aerosol size distribution. However, it was found that information provided by the spectral extinction coefficient about the parameters of the size distribution is restricted to the unambiguity of the resulting volume density in cases where the particle radii are smaller by more than one order of magnitude than the wavelength of radiation.

Using a least squares fitting procedure, the composition and parameters of a log-normal size distribution were determined for the Pinatubo aerosol from the derived spectral extinction coefficients. It was possible to find a unique solution for the composition and volume density of the aerosol whereas strong intercorrelations were found for the individual log-normal parameters.

The optical properties of the aerosol calculated on the basis of the derived size parameters suggest that scattering may not be neglected. Using a multiple scattering algorithm, a significant influence was found of scattering on the spectral radiances. An iterative procedure was developed and applied for correction of the spectral aerosol extinction coefficients and of the microphysical parameters taking into account multiple scattering. The compositions and volume densities determined for the three tangent altitudes under consideration, namely 11.3 km, 14.5 km and 16.1 km are 68.8 ( $\pm 3.1$ ), 70.1 ( $\pm 3.2$ ) and 66.0 ( $\pm 2.0$ ) weight percent of  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , respectively and 3.66 ( $\pm 0.19$ ), 3.23 ( $\pm 0.15$ ), and 0.93 ( $\pm 0.04$ )  $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ , respectively.

Both the derived aerosol extinction coefficients and the microphysical aerosol properties determined from them show good agreement with other infrared emission measurements and *in situ* aerosol measurements.



<b>1. Einführung</b> .....	<b>1</b>
<b>2. MIPAS-B-Messungen im Winter 1991/1992</b> .....	<b>5</b>
2.1 Das MIPAS-B-Ballonexperiment .....	5
2.1.1 Meßprinzip und instrumentelle Daten .....	5
2.1.2 Beobachtungsgeometrie .....	6
2.1.3 Auswertestrategie für Spurengase .....	7
2.2 Die MIPAS-B-Messungen vom 14./15. März 1992 .....	8
<b>3. Physikalische Eigenschaften von stratosphärischen Aerosolen</b> .....	<b>15</b>
3.1 Mikrophysikalische Eigenschaften des stratosphärischen Aerosols .....	15
3.2 Mie-Theorie .....	19
3.3 Optische Eigenschaften von stratosphärischen Aerosolen .....	22
3.4 Strahlungsübertragung im IR .....	24
3.5 Einfluß von Aerosol auf hochaufgelöste Strahldichtespektren .....	25
<b>4. Ableitung von Aerosolparametern aus Emissionsspektren</b> .....	<b>29</b>
4.1 Ableitung von optischen Parametern aus spektralen Strahldichten .....	29
4.1.1 Vorbemerkungen zum Inversionsproblem .....	29
4.1.2 Auswahl geeigneter Spektralintervalle .....	30
4.1.3 Bestimmung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten .....	36
4.1.4 Fehlerabschätzung .....	40
4.2 Bestimmung von Aerosolparametern aus spektralen Aerosolextinktionen .....	42
4.2.1 Rayleigh-Limit der Mie-Theorie .....	42
4.2.2 Inversionsmethode .....	45
4.2.3 Eindeutigkeit des Inversionsproblems .....	48
4.2.4 Abgeleitete Aerosolparameter .....	52
4.3 Einfluß von Streuung .....	60
4.3.1 Optische Parameter des Aerosols auf der Basis der Pseudoextinktionen ..	61
4.3.2 Abschätzung des Streueffekts mit MODTRAN3 .....	61
4.3.3 Streuung in Abhängigkeit von optischen Parametern .....	65
4.3.4 Korrektur der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten .....	69
4.3.5 Rückwirkungen auf mikrophysikalische Parameter .....	72
<b>5. Einordnung der Ergebnisse</b> .....	<b>75</b>
5.1 Vergleich der Aerosolextinktionskoeffizienten mit CLAES-Daten .....	75
5.2 Einordnung der abgeleiteten Zusammensetzung .....	78
5.3 Vergleich der abgeleiteten Größenparameter mit in situ Messungen .....	80
<b>6. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen</b> .....	<b>85</b>

<b>Liste der Symbole und Abkürzungen</b> . . . . .	<b>89</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b> . . . . .	<b>93</b>
<b>Tabellen</b> . . . . .	<b>95</b>
<b>Literaturverzeichnis</b> . . . . .	<b>97</b>

## 1. Einführung

In seiner ursprünglichen Definition bezeichnet der Begriff *Aerosol* ein Gas oder Gasgemisch im Falle der Atmosphäre, das feste oder flüssige Stoffe in feinstverteilter Form enthält.<sup>1</sup> Im Gegensatz zu dieser Definition werden in der Atmosphärenphysik meist die festen oder flüssigen Bestandteile der Luft an sich und nicht die Mischung als Ganzes als Aerosol bezeichnet. Diese Definition umfaßt sowohl feste Teilchen wie Rußpartikel, Silikate, Seesalze bis hin zu Eiskristallen, als auch flüssige Teilchen wie Lösungen von Säuren oder Gasen. Die atmosphärischen Aerosole umfassen Teilchenradien von weniger als  $10^{-3} \mu\text{m}$  bis hin zu  $20 \mu\text{m}$ . Getrennt von den Aerosolen sind Wolken- bzw. Regentropfen zu betrachten, deren Radien bis in den Millimeterbereich reichen können.

Lange Zeit galt das hauptsächliche Interesse der Aerosolforschung den troposphärischen Aerosolen. Deren unterschiedliche Quellen, vor allem an der Erdoberfläche, führten zu Klassifizierungen wie urbanes Aerosol, maritimes Aerosol, Wüstenaerosol u.v.a., die durch verschiedene Zusammensetzungen und Größenverteilungen charakterisiert sind (siehe z.B. d'Almeida et al., 1991). Vor allem deren Wirkung als Kondensationskeime bei der Wolkenbildung und ihre Auswirkungen auf die kurzwellige (solare) und langwellige (terrestrische bzw. infrarote) Strahlung waren die wesentliche Motivation zur Untersuchung der troposphärischen Aerosole.

Erste *in situ* Messungen von stratosphärischen Aerosolen wurden von C. Junge Anfang der sechziger Jahre vom Stratosphärenballon aus während der Messung der Radioaktivität in der Stratosphäre durchgeführt (Junge et al. 1961). Dabei entdeckte er ein relatives Maximum der Teilchenkonzentration im Höhenbereich zwischen 10 und 25 km mit Teilchenkonzentrationen von bis zu  $0.1 \text{ cm}^{-3}$  für mittlere Teilchenradien von  $0.15 \mu\text{m}$  (Junge, 1963). Seither wurden viele Erkenntnisse über Zusammensetzung, Größenverteilung und Variabilität der stratosphärischen Aerosolschicht, die nach ihrem Entdecker auch *Junge-layer* benannt wird, durch eine Vielzahl von Messungen gesammelt (siehe z.B. Turco et al., 1982; Whitten, 1982). Hauptbestandteil dieses sogenannten stratosphärischen Hintergrund-Aerosols ist kondensierte Schwefelsäure. Die Teilchenkonzentration in der stratosphärischen Aerosolschicht ist im Normalfall deutlich geringer als in der Troposphäre und nimmt oberhalb der Junge-layer mit der Höhe exponentiell ab.

Die globale Variabilität des stratosphärischen Aerosols wird unter anderem durch starke Vulkanausbrüche bestimmt, die große Mengen Gase, vor allem  $\text{SO}_2$ , und Partikel, wie z.B. Asche, in die Stratosphäre schleudern. Während vulkanische Asche schon nach wenigen Monaten durch Sedimentation aus der Stratosphäre entfernt wird, können die aus dem  $\text{SO}_2$  neugebildeten Schwefelsäure-Aerosole über mehrere Jahre in der Strato-

---

<sup>1</sup> Aero (griech.) = Luft, Gas; Sol (chem.) = kolloidale Lösung

sphäre verbleiben und sich dabei über den ganzen Globus verteilen. In diesen Fällen kann das Vertikalprofil der Aerosolteilchenkonzentration in der Stratosphäre ein ausgeprägtes Maximum annehmen und Werte vergleichbar mit der Troposphäre erreichen. Zwei Beispiele aus der jüngsten Vergangenheit für Vulkane, deren explosive Ausbrüche die stratosphärische Aerosolschicht nachhaltig beeinflussten, sind der Ausbruch des mexikanischen Vulkans El Chichón im April 1982 (Pollack et al., 1983) und der Ausbruch des philippinischen Vulkans Pinatubo am 15. Juni 1991 (McCormick, 1992).

Das Interesse der Atmosphärenwissenschaftler für das stratosphärische Aerosol ist zum einen in dessen Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld der Atmosphäre begründet und wurde noch bestärkt durch die Entdeckung, daß das stratosphärische Aerosol auch bei chemischen Prozessen in der Stratosphäre eine Rolle spielt.

Während für das stratosphärische Hintergrund-Aerosol aufgrund der geringen optischen Dicke kein signifikanter Effekt auf die globale Strahlungsbilanz beobachtet wird, wurden nach starken Vulkanausbrüchen deutliche Klima-anomalien aufgrund der veränderten Sonneneinstrahlung und terrestrischen Ausstrahlung ausgelöst. So sank in den beiden Jahren nach Ausbruch des Pinatubo die mittlere globale Durchschnittstemperatur um bis zu 0.7 °C im Vergleich zum langjährigen Mittel (McCormick et al., 1995). Damit überkompensierte der Kühlungseffekt durch das vulkanische Aerosol den zusätzlichen Treibhauseffekt durch anthropogene Emission von Treibhaus-wirksamen Spurengasen. Ähnliche Abkühlungseffekte durch vulkanisches Aerosol in der Stratosphäre waren auch schon bei früheren Vulkanausbrüchen beobachtet worden.

Daß stratosphärische Aerosole eine entscheidende Rolle bei chemischen Reaktionsabläufen spielen können, wurde deutlich bei der Erforschung der Chemie des stratosphärischen Ozonlochs in der Antarktis. Es zeigte sich, daß der Ozonverlust nicht ohne heterogene Reaktionen an der Oberfläche von sogenannten polaren stratosphärischen Wolken (PSC<sup>2</sup>) erklärt werden kann (Crutzen and Arnold, 1986). Die PSCs treten in der winterlichen polaren Stratosphäre erst bei genügend tiefen Temperaturen auf und bestehen im wesentlichen aus Salpetersäure-Wassergemischen. Daß auch vulkanische Aerosole in der Stratosphäre beim Ozonabbau als Reaktionsoberflächen wirksam sein können, zeigte sich deutlich in den beiden Jahren nach Ausbruch des Pinatubo, als auch in mittleren und tropischen Breiten erhöhte Ozonverluste beobachtet wurden (Rodriguez et al., 1994; Grant et al., 1994).

Die Effekte des stratosphärischen Aerosols, sowohl auf die atmosphärische Strahlung als auch auf die Chemie der Stratosphäre, hängen von den mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften der Aerosolteilchen ab. Die Bestimmung dieser Eigenschaften des stratosphärischen Aerosols ist daher das Ziel vielfältiger Meßmethoden. Zu den *in*

---

<sup>2</sup> Polar Stratospheric Cloud

*situ* Meßmethoden, die als Meßplattformen stratosphärische Ballone oder Raketen benutzen, gehören unterschiedliche Aerosolsammler und optische Teilchenzähler, mit denen mikrophysikalische Eigenschaften, wie z.B. Parameter einer Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols bestimmt werden können (Pueschel et al., 1994; Deshler et al., 1992). Fernerkundungsmessungen des stratosphärischen Aerosols benutzen die Änderung der Strahlung durch das Aerosol, sei es die Schwächung der Sonnenstrahlung, die bei Okkultationsexperimenten wie SAGE<sup>3</sup> (McCormick and Veiga, 1992) gemessen wird, oder rückgestreute Laserpulse, wie sie beim LIDAR<sup>4</sup> (Jäger, 1992; Wirth et al., 1994) empfangen werden. Damit lassen sich optische Eigenschaften des Aerosols wie der Extinktionskoeffizient im Falle von SAGE oder das Rückstreuverhältnis und die Änderung der Polarisierungseigenschaften des gestreuten Lichts beim LIDAR ableiten. Falls diese optischen Eigenschaften bei mehreren Wellenlängen bestimmt werden, können daraus auch Rückschlüsse auf die mikrophysikalischen Eigenschaften, wie z.B. die Größenverteilung oder die geometrische Form des Aerosols gezogen werden (Thomason, 1991; Stein et al., 1994).

Die großen optischen Dicken des stratosphärischen Aerosols, wie sie nach starken Vulkanausbrüchen auftreten, haben auch einen nicht zu vernachlässigenden Einfluß auf Fernerkundungsmessungen von Spurengasen in der Stratosphäre. Ein Musterbeispiel für diesen Effekt sind die Auswirkungen des Pinatubo-Aerosols auf die Auswertung der verschiedenen Infrarotmessungen vom UARS<sup>5</sup>-Satelliten, der im September 1991, drei Monate nach dem Ausbruch des Pinatubo gestartet wurde (Reber et al., 1993). Für die Bestimmung stratosphärischer Spurengaskonzentrationen mußte z.B. für die Infrarotemissionsexperimente ISAMS<sup>6</sup> und CLAES<sup>7</sup> der Einfluß des vulkanischen Aerosols auf die empfangene Infrarotstrahlung in den verschiedenen, nur wenige Wellenzahlen umfassenden, Spektralkanälen berücksichtigt werden (Reburn et al., 1993; Roche et al., 1993a). Diese Aerosolsignale in den verschiedenen Spektralkanälen können aber auch dazu benutzt werden, optische und mikrophysikalische Eigenschaften des stratosphärischen Aerosols zu bestimmen. So konnten mit ISAMS und CLAES, obwohl diese Experimente hauptsächlich zur Bestimmung stratosphärischer Spurengaskonzentrationen eingesetzt waren, die globale Ausbreitung des Pinatubo-Aerosols verfolgt werden (Lambert et al., 1993; Mergenthaler et al., 1995), und darüberhinaus auch Informationen über die

---

<sup>3</sup> **Stratospheric Aerosol and Gas Experiment**

<sup>4</sup> **Light Detection And Ranging**

<sup>5</sup> **Upper Atmospheric Research Satellite**

<sup>6</sup> **Improved Stratospheric And Mesospheric Sounder**

<sup>7</sup> **Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer**

Zusammensetzung und Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols abgeleitet werden (Grainger et al., 1993, 1995; Massie et al., 1994).

Auch die vom MIPAS-B<sup>8</sup>-Instrument während der EASOE<sup>9</sup>-Messkampagne im März 1992 in Kiruna (Schweden) gemessenen Emissionsspektren sind stark vom Pinatubo-Aerosol beeinflusst. Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Ableitung von optischen und mikro-physikalischen Eigenschaften des Aerosols aus den hochaufgelösten MIPAS-B-Infrarot-emissionsspektren.

In Kapitel 2 wird zunächst das Meßprinzip des MIPAS-B-Instruments erläutert und die Messungen vom März 1992 vorgestellt. In Kapitel 3 wird dann auf die wesentlichen physikalischen Grundlagen eingegangen, die für die Simulation des Strahldichtebeitrags des Aerosols notwendig sind. In Kapitel 4, dem Hauptteil der Arbeit, wird zunächst der Arbeitsschritt beschrieben, mit dem aus Strahldichtespektren spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten ermittelt werden. Im zweiten Teil wird ausgeführt, welche Information diese spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten über die Mikrophysik der Aerosole enthalten, und es wird ein Verfahren zur Ableitung dieser mikrophysikalischen Eigenschaften entwickelt. Im dritten Teil wird gezeigt, welchen Einfluß die Streuung an den Aerosolen auf die spektrale Strahldichte hat und wie sich dieser Effekt auf die abgeleiteten Aerosolparameter auswirkt. In Kapitel 5 werden die gewonnenen Ergebnisse mit anderen Messungen verglichen. Den Abschluß der Arbeit bildet das Kapitel 6 mit einer Zusammenfassung der wesentlichen Erkenntnisse und Schlußfolgerungen.

---

<sup>8</sup> Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung - Ballonversion

<sup>9</sup> European Arctic Stratospheric Ozone Experiment

## 2. MIPAS-B-Messungen im Winter 1991/1992

### 2.1 Das MIPAS-B-Ballonexperiment

Vom Institut für Meteorologie und Klimaforschung werden zur Fernerkundung stratosphärischer Spurengase die eigens zu diesem Zweck entwickelten MIPAS-Geräte (Fischer, 1993) von verschiedenen Meßplattformen betrieben. Bei den MIPAS-Instrumenten handelt es sich um Fouriertransformationsspektrometer zur Messung hochaufgelöster Emissions- oder Absorptionsspektren im mittleren Infrarot. Das vom Boden eingesetzte MIPAS-LM (LM: Labormodell) mißt die von der Atmosphäre durch Extinktion geschwächte infrarote Sonnenstrahlung, aus der Säulengehalte der absorbierenden Spurengase abgeleitet werden können (Adrian et al., 1994; Wegner, 1995). Im Gegensatz dazu messen das MIPAS-FT- (FT: Flugzeug Transall) und das MIPAS-B-Gerät die bei Blickrichtung gegen den kalten Weltraum von der Atmosphäre emittierte Strahlung, aus der ebenfalls auf die atmosphärischen Spurengaskonzentrationen geschlossen wird (Blom et al., 1994; Höpfner, 1994, Oelhaf et al. 1994).

Das MIPAS-B-Experiment, das von einer Stratosphärenballonplattform betrieben wird, absolvierte 1989 und 1990 zwei erfolgreiche Testflüge in Aire-sur-l'Adour (Frankreich) bevor es während der EASOE-Meßkampagne bei zwei weiteren Meßflügen in Kiruna (Schweden) eingesetzt wurde. Nach dem letzten Flug im März 1992 von Kiruna aus wurde die Ballongondel beim freien Fall aus 30 km Höhe vollständig zerstört. Inzwischen wurde jedoch eine verbesserte Version des MIPAS-B-Geräts gebaut, das im Februar und März 1995 in Kiruna seine ersten beiden erfolgreichen Meßflüge absolvierte (Oelhaf et al., 1996).

#### 2.1.1 Meßprinzip und instrumentelle Daten

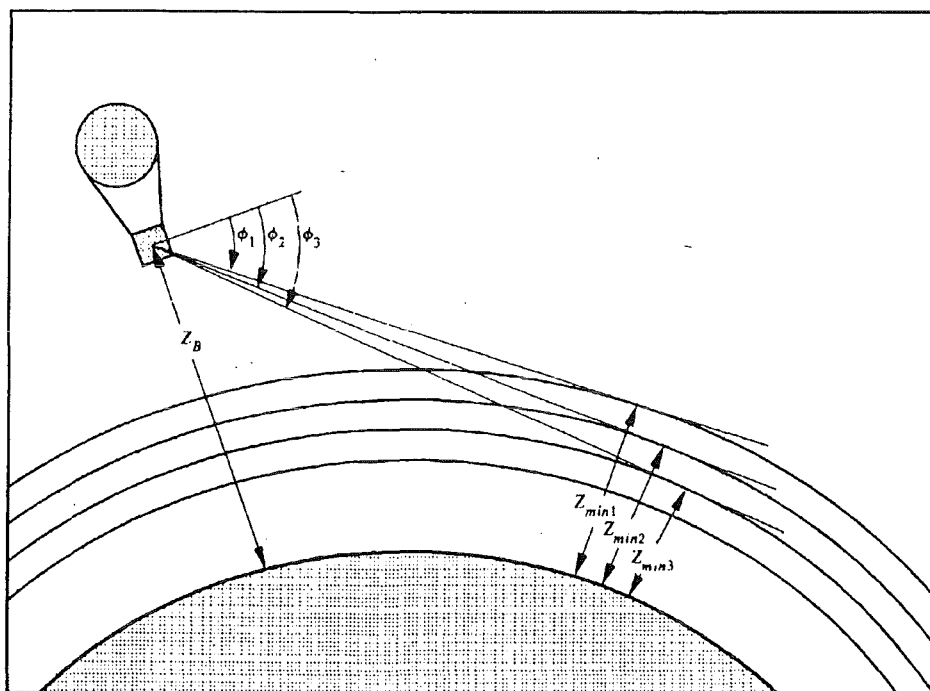
Die zentrale Einheit des MIPAS-B-Instruments ist ein Doppelpendelinterferometer, bei dem im Gegensatz zum gewöhnlichen Michelson Interferometer die optische Wegdifferenz nicht durch eine Translationsbewegung eines Spiegels sondern durch eine Rotationsbewegung von zwei Retroreflektoren realisiert wird (siehe Burkert et al. 1983). Während das gesamte Interferometer mit Trockeneis auf eine Temperatur von 200 K gekühlt wird, werden die Detektoren für die Interferogrammaufnahme mit flüssigem Helium auf ca. 4.2 K gekühlt. Damit wird die Eigenemission des Spektrometers und das Photonenrauschen vermindert und gleichzeitig die Empfindlichkeit erhöht.

Aus den aufgezeichneten Interferogrammen (Meßzeit: 3-4 Sekunden pro Interferogramm) werden mittels schneller Fouriertransformation hochaufgelöste Spektren berechnet. Zur Eichung dieser Spektren werden regelmäßig zwischen den Atmosphärenmessungen Messungen in Richtung des dunklen Weltraums und Schwarzkörpermessungen durchgeführt. Um das spektrale Rauschen zu vermindern, werden einzelne kali-

brichte atmosphärische Spektren, die unter der gleichen Beobachtungsgeometrie aufgenommen wurden, gemittelt. Die spektrale Auflösung der nicht apodisierten Spektren ist  $0.04 \text{ cm}^{-1}$ . Nach Apodisation beträgt die effektive spektrale Auflösung  $0.073 \text{ cm}^{-1}$ . Bei dieser hohen spektralen Auflösung ist es möglich, die Spektrallinien einer Reihe von stratosphärischen Spurengasen zu identifizieren und zur Berechnung der jeweiligen Spurengaskonzentration zu verwenden.

## 2.1.2 Beobachtungsgeometrie

Das MIPAS-B-Instrument wird von einer Stratosphärenballonplattform betrieben, die je nach geographischer Breite eine Gipfelhöhe von 32 km (in polaren Breiten) bis 40 km (in mittleren Breiten) erreicht. Das Gerät mißt die Eigenemission der Atmosphäre im Horizontsondierungsmodus gegen den kalten Weltraum. Im Gegensatz zu Absorptionsmessungen, die als Hintergrundquelle die Sonne oder auch den Mond benötigen, sind Emissionsmessungen unabhängig von diesen Quellen und können deshalb auch in der Polarnacht durchgeführt werden.



**Abbildung 1. Geometrie der Horizontsondierung.** Zugunsten der übersichtlichen Darstellung wurde hier die Refraktion des Sehstrahls vernachlässigt. In den Rechnungen wurde sie selbstverständlich berücksichtigt ( $z_B$  Beobachterhöhe,  $\phi_i$  Elevationswinkel,  $z_{\min,i}$  entsprechende Tangentialhöhe).

Die geometrischen Verhältnisse für die Horizontsondierung sind in Abb. 1 dargestellt. Das Spektrometer, das sich in der Höhe  $z_B$  über der Erdoberfläche befindet, mißt die



Strahlung aus einem Sehstrahl, der tangential durch die Erdatmosphäre führt und durch den Elevationswinkel  $\phi$  definiert ist. Jedem Sehstrahl kann man die sogenannte Tangentenhöhe  $z_{\min}$  zuordnen, die dem kleinsten Abstand des Sehstrahls von der Erdoberfläche entspricht. Der größte Teil der Strahlung, der beim Spektrometer empfangen wird, stammt aus der Schicht, die durch die Tangentenhöhe begrenzt wird, da der optische Weg in dieser Schicht am längsten ist und der Luftdruck dort am größten ist.

Die Messung der von der Atmosphäre emittierten Strahlung erfolgt unter verschiedenen Elevationswinkeln. Die gemessenen Spektren, die verschiedenen Tangentenhöhen entsprechen, erlauben die Bestimmung von Vertikalprofilen der Spurengase. Die entscheidenden Vorteile der Horizontsondierung sind die langen Wege durch die Atmosphäre, die eine große Sensitivität auch bei kleinen Spurengaskonzentrationen erlauben, und die gute vertikale Auflösung der Atmosphäre. Dagegen ist jedoch die horizontale Auflösung aufgrund der langen optischen Wege gering.

### **2.1.3 Auswertestrategie für Spurengase**

Für die Bestimmung von Spurengasmischungsverhältnissen aus den gemessenen Spektren muß die Strahlungsübertragungsgleichung gelöst werden. Die Strahlungsübertragungsgleichung ist im allgemeinen nicht analytisch invertierbar; die Inversion wird deshalb in einem iterativen Verfahren numerisch durchgeführt. Dabei wird ausgehend von Schätzwerten für die atmosphärischen Parameter (z.B. Druck, Temperatur, Mischungsverhältnisse der einzelnen Spurengase, usw.) mit einem Strahlungsübertragungsmodell ein synthetisches Spektrum erzeugt, das mit dem entsprechenden gemessenen Spektrum verglichen wird. Aus der Differenz der spektralen Strahldichten an den einzelnen Frequenzstützstellen des gemessenen und des synthetischen Spektrums, sowie den Sensitivitäten der spektralen Strahldichten auf Änderungen der einzelnen anzupassenden Parameter, werden nach der Methode der kleinsten Quadrate neue Schätzwerte berechnet. Dieses Verfahren wird solange wiederholt, bis eine bestmögliche Übereinstimmung zwischen dem gemessenen und dem simulierten Spektrum erreicht wird.

Bei der Bestimmung von Vertikalprofilen der Spurengase wird das soeben beschriebene Verfahren für jede Tangentenhöhe angewandt, wobei die Parameter jeweils nur in der jeweiligen Tangentenschicht angepaßt werden. Dabei wird mit der Auswertung des Spektrums mit der höchsten Tangentenhöhe begonnen und die Parameter zunächst nur für die höchste Schicht angepaßt. Da der Sehstrahl für die direkt darunterliegende Tangentenhöhe auch die höchste Tangentenschicht passiert (siehe Abb. 1), werden die Ergebnisse für die höchste Schicht übernommen und festgehalten und die Parameter für die zweithöchste Schicht bestimmt. Auf diese Weise wird bis zur tiefsten Tangentenhöhe fortgefahren und man erhält somit ein Vertikalprofil der angepaßten Parameter, dessen vertikale Auflösung im wesentlichen durch die Abstände der einzelnen Tangenten-

höhen bestimmt ist. Für dieses Verfahren wurde der anschauliche Name *Onion-Peeling-Methode* (Zwiebelschälmethode) (Goldman and Saunders, 1979) geprägt.

Es existieren noch andere Verfahren zur Bestimmung von Vertikalprofilen aus einer Sequenz von für verschiedene Tangentenhöhen gemessenen Horizontsondierungsspektren. Zum Beispiel werden beim sogenannten *Global-Fit-Verfahren* (Carlotti, 1988) alle Spektren der einzelnen Tangentenhöhen simultan ausgewertet.

Die soeben beschriebenen Verfahren zur Bestimmung von Vertikalprofilen der Spurengasmischungsverhältnisse werden durch das Inversionsprogramm RAT<sup>10</sup> (v. Clarmann, 1990, 1994) realisiert. Für die Auswertung der MIPAS-B-Spektren wird eine modifizierte Version des Strahlungsübertragungsmodells FASCOD2<sup>11</sup> (Clough et al., 1986) verwendet. Diese FASCOD2-Version erlaubt im Gegensatz zur Originalversion auch die Berücksichtigung von schweren Molekülen, wie z.B. FCKWs<sup>12</sup>, für die keine Liniendaten sondern nur temperaturabhängige Wirkungsquerschnitte vorliegen (Wetzel, persönliche Mitteilung, 1991).

Der Beitrag des Aerosols wird bei der Auswertung der Spurengasmischungsverhältnisse mit dem LOWTRAN<sup>13</sup>-Unterprogramm (Kneizys et al., 1983) auf der Basis von benutzerdefinierten Extinktionskoeffizienten modelliert (darauf wird in Kapitel 3.5 noch näher eingegangen).

## **2.2 Die MIPAS-B-Messungen vom 14./15. März 1992**

Während der EASOE-Meßphase im Winter 1991/1992 wurden zwei MIPAS-B-Meßflüge von der Forschungsstation Esrange bei Kiruna in Nordschweden durchgeführt. Der erste Flug fand in den frühen Morgenstunden am 13. Januar 1992 statt, der zweite Flug in der Nacht vom 14. auf den 15. März 1992. In dieser Arbeit werden ausschließlich Messungen des Fluges im März 1992 behandelt.

Nach dem Aufstieg des MIPAS-B-Ballons auf eine Gipfelhöhe von ca. 33 km folgte der Ballon einer Trajektorie nördlich des Polarwirbelrandes. Auf dieser Trajektorie wurden zwei komplette Sequenzen von Spektren mit unterschiedlichen Blickrichtungen aufge-

---

<sup>10</sup> Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles

<sup>11</sup> Fast Atmospheric Signature CODE 2

<sup>12</sup> Fluor Chlor Kohlen Wasserstoff

<sup>13</sup> LOW TRANsmission

nommen. Für die Blickrichtung Nordost wurden Spektren bis zu einem Elevationswinkel von  $-5.1^\circ$  aufgenommen, was einer minimalen Tangentenhöhe von 6 km entspricht. Für die zweite Sequenz mit Blickrichtung gegen Süden wurden Spektren bei Elevationswinkeln zwischen  $-4.9^\circ$  und  $-1.5^\circ$  gemessen. Die dazugehörigen Tangentenhöhen umspannen einen Bereich von 9 km bis 30 km.

Von diesen Messungen wurden bis jetzt nur die Spektren für die Blickrichtung Nordost und Tangentenhöhen von 11.3 km und höher für die Ableitung von Spurengasprofilen herangezogen. Die vorliegende Arbeit beschränkt sich auf diesen Satz von Spektren.

Die Spektren wurden in zwei Spektralkanälen aufgenommen: Kanal 1 überdeckt das Intervall  $750 - 980 \text{ cm}^{-1}$  ( $10.2 - 13.3 \text{ }\mu\text{m}$ ), Kanal 2 umfaßt den Wellenzahlbereich  $1180 - 1380 \text{ cm}^{-1}$  ( $7.2 - 8.5 \text{ }\mu\text{m}$ ). In Abb. 2 auf Seite 10 sind die im Kanal 1 gemessenen Spektren für die unteren fünf Tangentenhöhen dargestellt. Selbst in dieser spektral sehr komprimierten Darstellung sind eine Reihe charakteristischer Spurengasemissionslinien erkennbar. Der Bereich von  $860 - 920 \text{ cm}^{-1}$  wird in allen gezeigten Höhen von der  $\text{HNO}_3$   $\nu_5/2\nu_3$ -Bande gekennzeichnet. Der Bereich von  $750 - 820 \text{ cm}^{-1}$  wird vor allem von  $\text{CO}_2$ - und  $\text{O}_3$ -Linien beherrscht, während im Intervall  $930 - 970$  deutlich die  $\text{CO}_2$ -Laserbande erkennbar ist. In den unteren beiden Tangentenhöhen bei 11.3 km und 14.5 km sind die Emissionsbanden von FCKW-11 bei  $850 \text{ cm}^{-1}$  und FCKW-12 bei  $923 \text{ cm}^{-1}$  eindeutig identifizierbar. Aus den abgebildeten Spektren wurden Vertikalprofile der folgenden Spurengase abgeleitet (siehe v. Clarmann et al., 1993, 1995; Oelhaf et al., 1994):  $\text{O}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{ClONO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ , FCKW-11, FCKW-12, FCKW-22 und  $\text{CCl}_4$ . Weitere Spurengase, die im Kanal 1 ebenfalls Absorptionsbanden aufweisen, wie z.B.  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{ClO}$ ,  $\text{OCS}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{SF}_6$ , spielen nur eine untergeordnete Rolle (siehe auch Echle et al. 1992, 1994).

In den untersten drei Tangentenhöhen ist die Strahldichte im atmosphärischen Fenster bei  $830 \text{ cm}^{-1}$  und in den Lücken zwischen den  $\text{CO}_2$ -Linien der Laserbande stark erhöht. Dieser kontinuumsartige Beitrag, der mit abnehmender Tangentenhöhe zunimmt, kann dem Aerosol zugeschrieben werden. Zur Verdeutlichung, welcher Strahldichtebeitrag vom Aerosol stammt, wird in Abb. 3 auf Seite 11 das gemessene Spektrum für die Tangentenhöhe von 11.3 km mit einem simulierten Spektrum für die gleiche Meßgeometrie aber ohne Berücksichtigung des Aerosols verglichen. Für die Simulation wurden die aus den gemessenen Spektren abgeleiteten Spurengasprofile verwendet. Es ist deutlich zu erkennen, daß das Aerosolkontinuum nicht nur in den Fenstern zwischen den Linienspektren der Gase einen Beitrag liefert, sondern den gesamten Spektralbereich beeinflusst.

## MIPAS-B März '92 (Kanal 1)

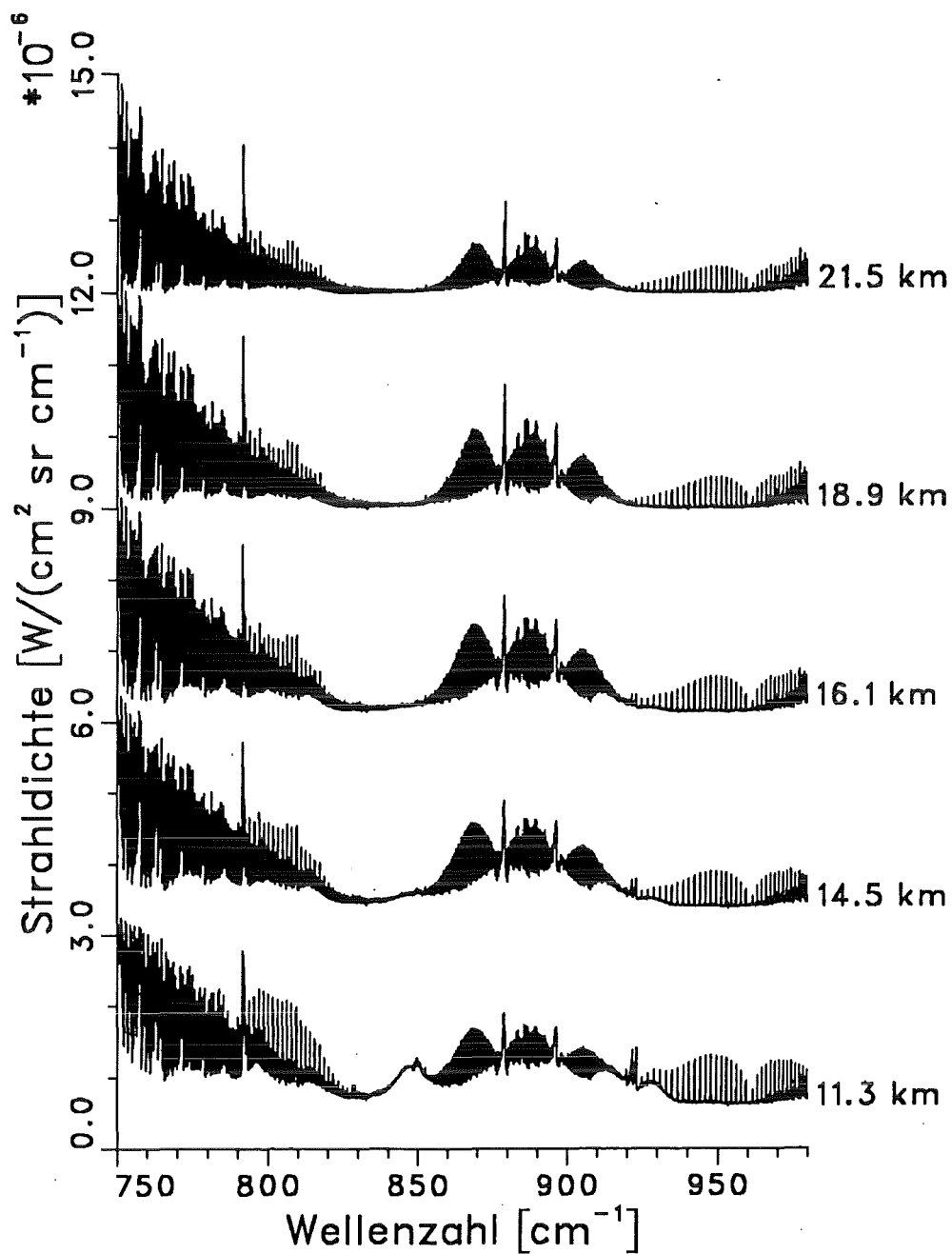


Abbildung 2. Sequenz von MIPAS-B-Spektren im Kanal 1. Zur deutlicheren Unterscheidung wurden die Spektren zwar in derselben Skala aber mit einem Offset von  $3 \times 10^{-6}$  Strahldichteinheiten dargestellt. Die jeweilige Tangentenhöhe ist am rechten Rand angegeben.

MIPAS-B März '92,  $z_{\min} = 11.3$  km

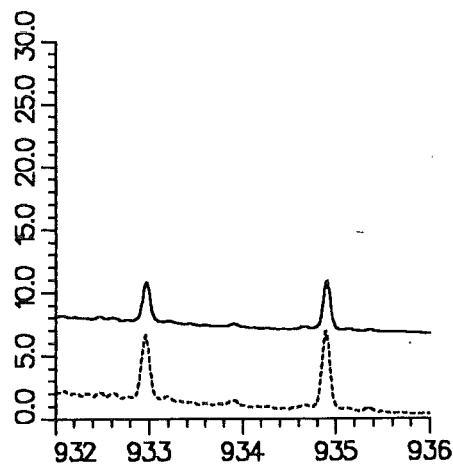
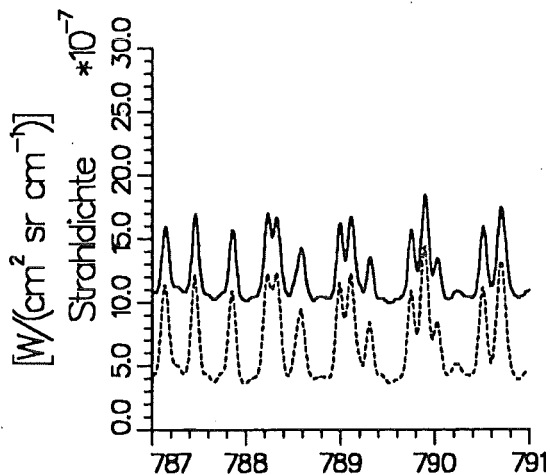
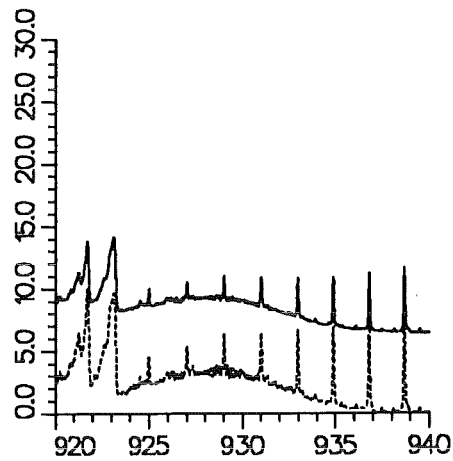
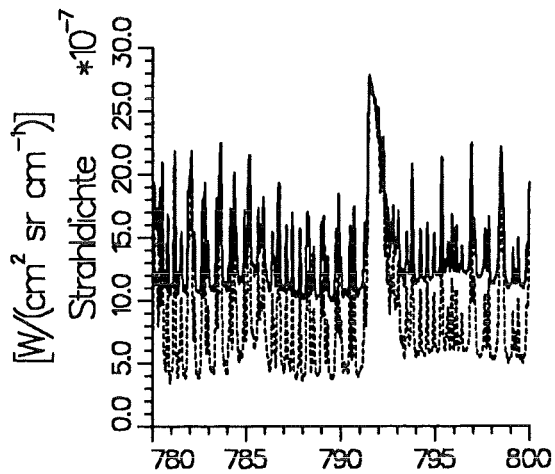
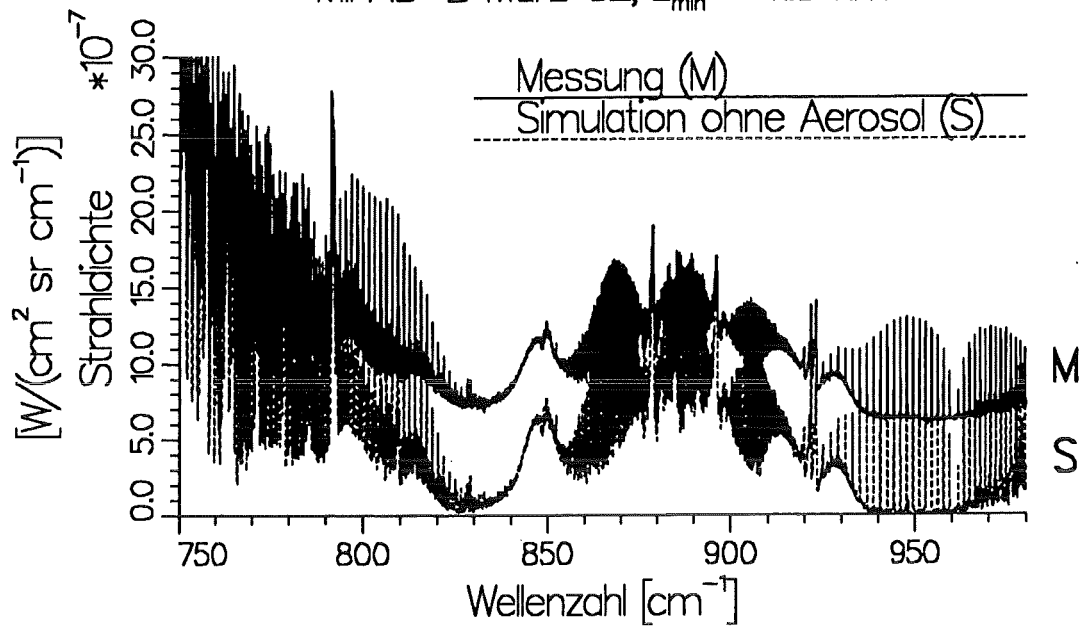


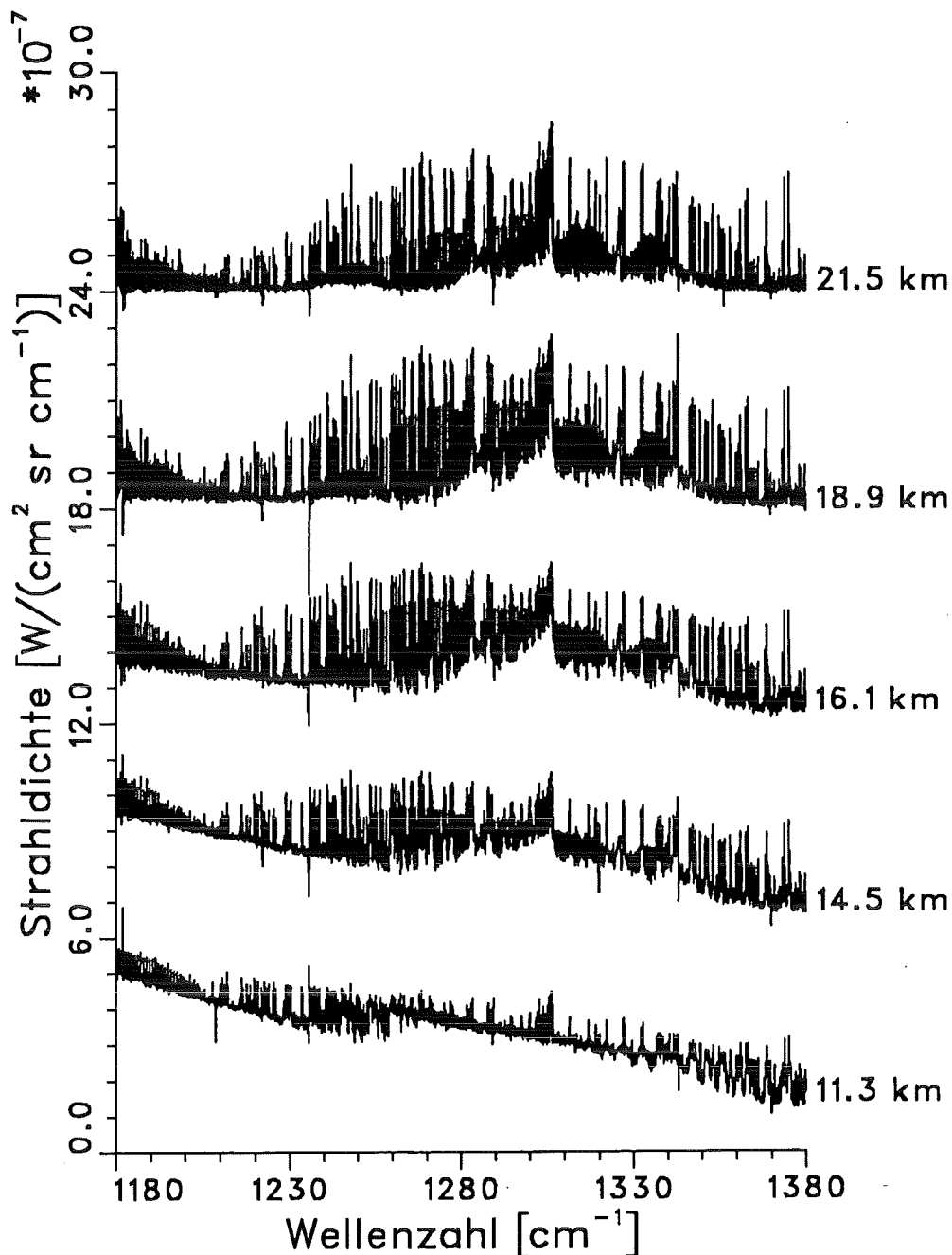
Abbildung 3. Vergleich des Meßspektrums im Kanal 1 mit einem simulierten Spektrum (ohne Aerosol). Zur Verdeutlichung des Informationsgehalts der Spektren wurden zwei Teilintervalle zweimal spektral gestreckt dargestellt.

Dieser Einfluß ist aber aufgrund der Nichtlinearität der Strahlungsübertragung unterschiedlich, je nachdem, ob in dem betreffenden Spektralbereich Gasabsorptionsbanden liegen oder nicht. In den Zentren sehr starker Gasemissionslinien ist der Aerosolbeitrag nicht so stark sichtbar (z.B. im  $\text{CO}_2$  Q-Zweig bei  $792 \text{ cm}^{-1}$ ). Die Detaildarstellung des Spektralintervalls im Bereich von  $790 \text{ cm}^{-1}$ , der vor allem durch eng benachbarte  $\text{CO}_2$ - und  $\text{O}_3$ -Linien beherrscht wird, zeigt jedoch, daß selbst in diesem Spektralbereich die gemessene Strahldichte sensitiv bezüglich des Aerosolkontinuums ist.

In Abb. 4 auf Seite 13 sind die im Kanal 2 gemessenen Spektren dargestellt. Die Tangentenhöhen entsprechen den Spektren von Kanal 1 (vergleiche Abb. 2 auf Seite 10). Das Frequenzintervall von Kanal 2 ist charakterisiert durch eine Vielzahl sich überlappender Absorptionsbanden. Diese stammen hauptsächlich von den Spurengasen  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$  und  $\text{HNO}_3$ . Zusätzlich zu den genannten Spurengasen enthält der dargestellte Frequenzbereich auch noch Emissionslinien von  $\text{CO}_2$ ,  $\text{HOCl}$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ ,  $\text{ClONO}_2$ , u.a., die jedoch nur untergeordnete Beiträge zum Spektrum leisten. Aus den Spektren des Kanals 2 wurden bisher Mischungsverhältnisse der folgenden Spurengase abgeleitet (Wetzel et al., 1995, v. Clarmann et al., 1995):  $\text{O}_3$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2\text{O}_5$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CF}_4$ .

Auch in diesen Spektren ist das Aerosolkontinuum in den unteren drei Tangentenhöhen offensichtlich vorhanden. In Abb. 5 auf Seite 14 sind wiederum für die 11.3 km Tangentenhöhe Messung und Simulation ohne Aerosol auf der Basis der abgeleiteten Spurengasprofile gegenübergestellt und zwei Ausschnitte spektral gestreckt dargestellt. Es zeigt sich, daß der Aerosoleinfluß im Spektralbereich  $1180 - 1250 \text{ cm}^{-1}$  am größten ist. In diesem Bereich heben sich nur die starken Spurengasemissionslinien vom Aerosolkontinuum ab, während die Signaturen kleiner Emissionslinien nicht mehr erkennbar sind. Im Spektralbereich um  $1300 \text{ cm}^{-1}$  gibt es nur sehr kleine Unterschiede zwischen Meßspektrum und Simulation. In diesem Bereich liegt das Zentrum der  $\text{CH}_4$   $\nu_4$ -Bande mit dem starken Q-Zweig bei  $1305 \text{ cm}^{-1}$ , der bis in die mittlere Stratosphäre optisch dicht ist und deshalb keinen Aerosolbeitrag aus unteren Schichten erkennen läßt. In diesem Spektralbereich ist das Spektrum weder auf Änderungen des Aerosolgehalts noch auf Änderungen des  $\text{CH}_4$ -Mischungsverhältnisses in der Tangentenschicht sensitiv.

## MIPAS-B März '92 (Kanal 2)



**Abbildung 4. Sequenz von MIPAS-B-Spektren im Kanal 2.** Zur deutlicheren Unterscheidung wurden die Spektren zwar in derselben Skala aber mit einem Offset von  $6 \times 10^{-7}$  Strahlidichteeinheiten dargestellt. Die jeweilige Tangentenhöhe ist am rechten Rand angegeben.

In diesen Spektren sind, vor allem in den oberen Tangentenhöhen, kleine Bereiche mit stark negativen Strahlidichten zu beobachten. Diese sogenannten *Spikes* sind verursacht durch elektronische Störungen während der Messung. Diese kleinen Spektralbereiche wurden bei der Auswertung nicht berücksichtigt.

MIPAS-B März '92,  $z_{\min} = 11.3$  km

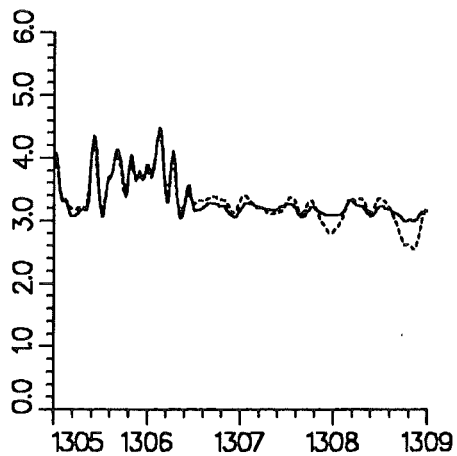
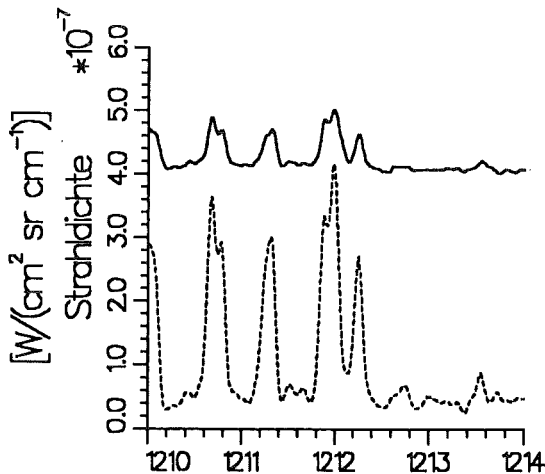
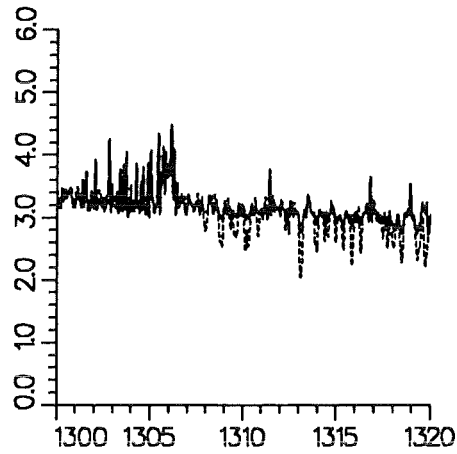
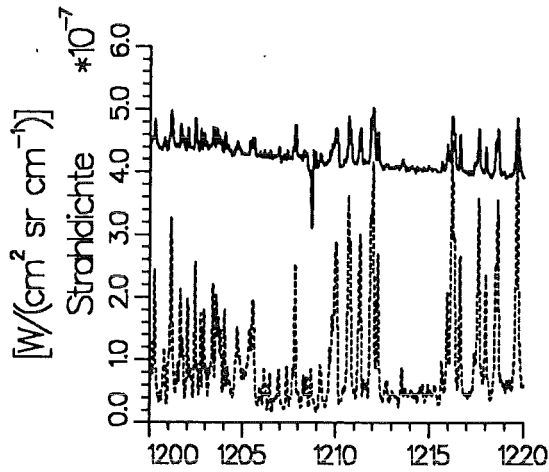
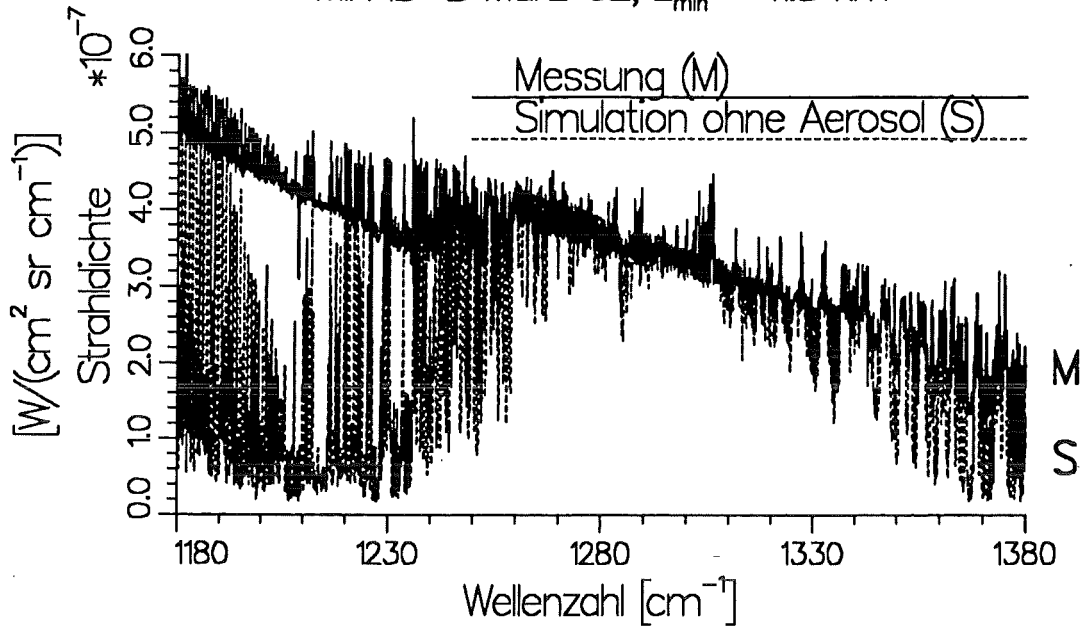


Abbildung 5. Vergleich des Meßspektrums im Kanal 2 mit einem simulierten Spektrum (ohne Aerosol). Zur Verdeutlichung des Informationsgehalts der Spektren wurden zwei Teilintervalle zweimal spektral gestreckt dargestellt.



### 3. Physikalische Eigenschaften von stratosphärischen Aerosolen

Bevor man Aussagen über den Informationsgehalt der MIPAS-Spektren bezüglich der Aerosoleigenschaften treffen kann, muß zunächst erklärt werden, durch welche physikalischen Größen Aerosoleigenschaften beschrieben werden können und wie diese Eigenschaften die Strahlungswirkung des Aerosols beeinflussen. In Abb. 6 auf Seite 16 sind die wesentlichen physikalischen Parameter zur Beschreibung der Aerosoleigenschaften und die ihre Wechselwirkungen beschreibenden physikalischen Prozesse schematisch dargestellt. Es bietet sich an, die physikalischen Eigenschaften des stratosphärischen Aerosols aufzuteilen in mikrophysikalische Eigenschaften und optische Eigenschaften, da die optischen Eigenschaften bei Kenntnis der mikrophysikalischen Eigenschaften mit Hilfe der Mie-Theorie (bei kugelförmigen Teilchen) direkt berechnet werden können.

Zur Untersuchung der Wirkung von Aerosolteilchen auf das Strahlungsfeld der Atmosphäre genügt wiederum die Kenntnis der optischen Eigenschaften der Aerosolteilchen. Die entsprechende physikalische Grundlage ist durch die Theorie der Strahlungsübertragung gegeben.

#### 3.1 Mikrophysikalische Eigenschaften des stratosphärischen Aerosols

Von einem mikrophysikalischen Standpunkt aus gesehen können Aerosolteilchen durch ihre geometrische Form und die sie beschreibenden Größenparameter, ihre chemische Zusammensetzung und die Phase, in der sie vorliegen, beschrieben werden.

In der Regel hat man es in der Atmosphäre nicht mit einzelnen Aerosolteilchen zu tun, sondern mit Teilchenkollektiven, die einen weiten Größenbereich abdecken. Diese Teilchenkollektive werden durch sogenannte Teilchengrößenverteilungen beschrieben. In der Regel handelt es sich um *Radius-Verteilungen*  $n(r)$ , die besagen, daß  $n(r)dr$  Teilchen mit Radien zwischen  $r$  und  $r + dr$  vorliegen. Für die Beschreibung von stratosphärischen Aerosolen wird häufig die *Log-Normal-Verteilung* verwendet. Sie ist gegeben durch:

$$n(r) = \sum_{i=1}^I \frac{N_i}{rs_i\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{\ln^2(r/r_i)}{2s_i^2}\right] \quad [3.1]$$

$I$  gibt die Anzahl der Moden der Log-Normal-Verteilung an,  $N_i$  ist die Teilchenzahl des  $i$ -ten Modes im Einheitsvolumen (Einheit:  $[\text{cm}^{-3}]$ ),  $r_i$  ist der Peak-Radius des  $i$ -ten Modes (Einheit:  $[\mu\text{m}]$ ) und  $s_i$  ist ein Maß für die Breite des  $i$ -ten Modes (in manchen Darstellungen findet man statt  $s_i$  auch  $\ln s'_i$ ). In der Regel genügen zur Charakterisierung

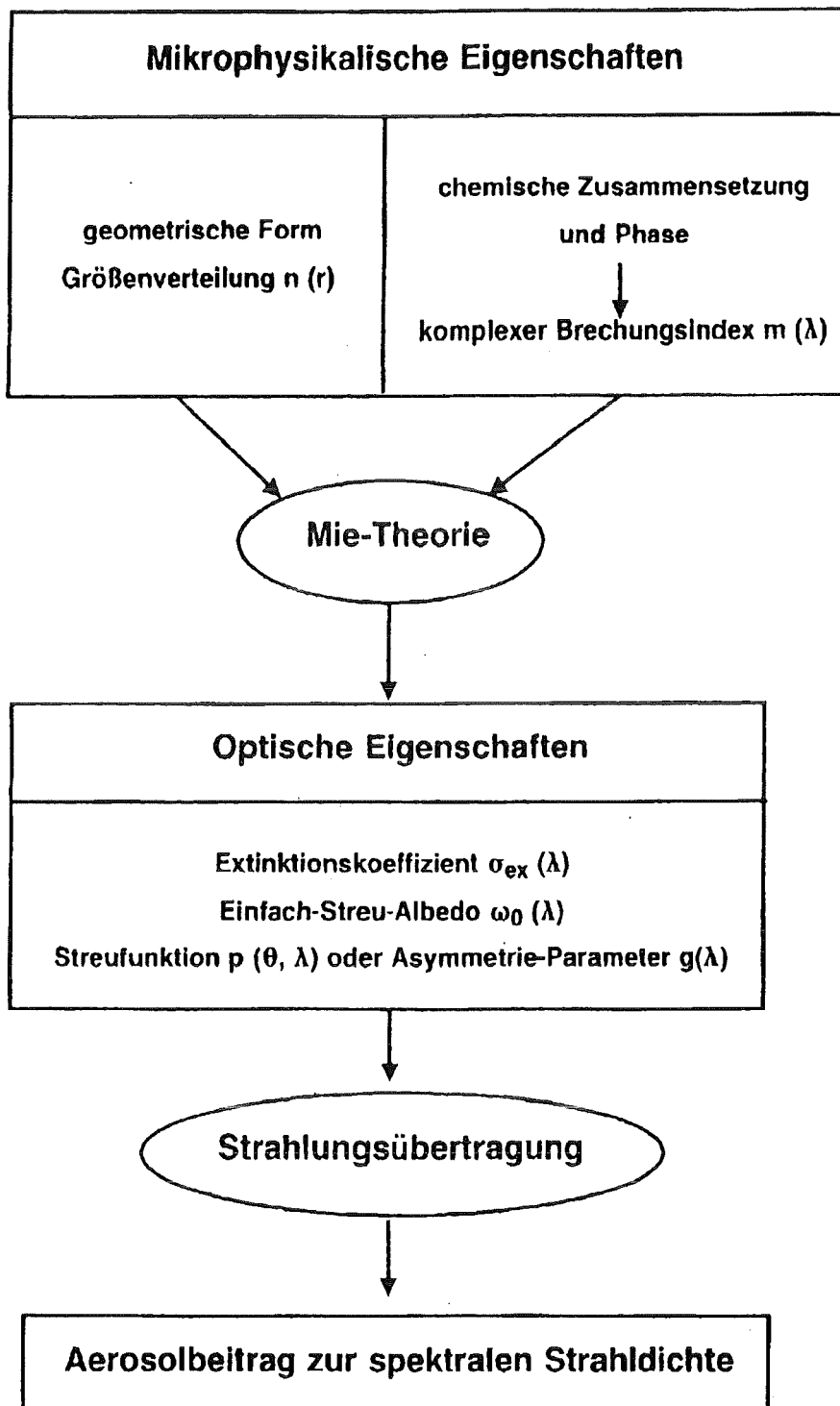
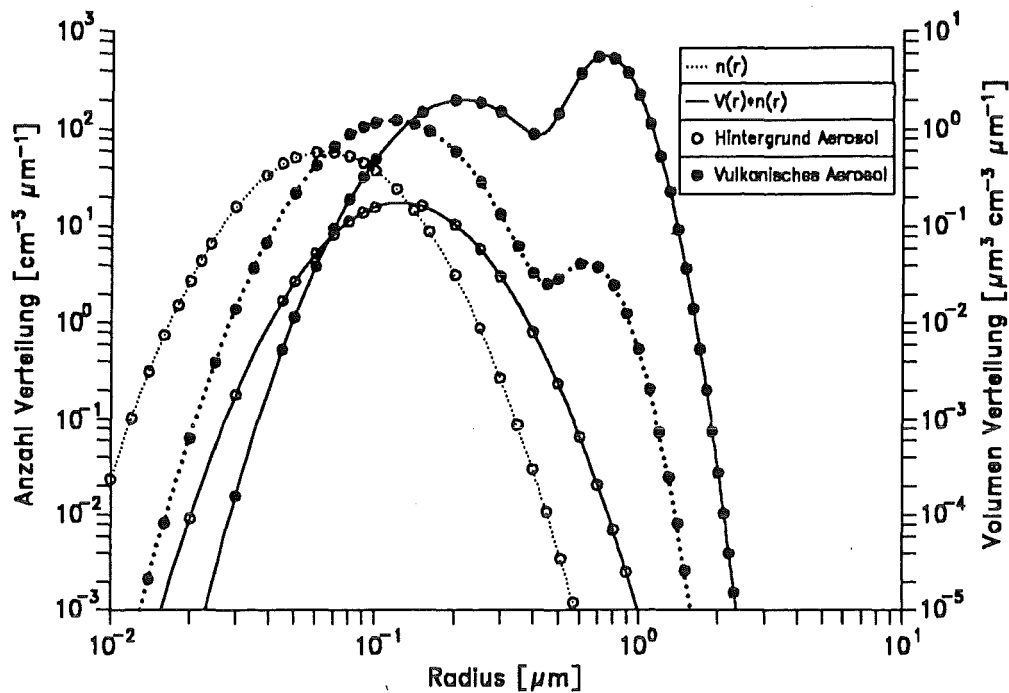


Abbildung 6. Physikalische Eigenschaften von Aerosolen und ihre Zusammenhänge

stratosphärischer Aerosolgrößenverteilungen 1- bis 2-modale Log-Normal-Verteilungen. Abb. 7 zeigt die Anzahlverteilung und die dazugehörige Volumenverteilung zweier typischer stratosphärischer Aerosolgrößenverteilungen. Die Volumenverteilung ergibt sich bei kugelförmigen Teilchen aus der Anzahlverteilung durch Multiplikation mit dem Teilchenvolumen  $V(r) = (4\pi/3)r^3$ . Die Volumenverteilung wird hier gezeigt, weil sich später



**Abbildung 7. Anzahl- und Volumenverteilung typischer stratosphärischer Aerosole.** Die Skala der Anzahlverteilungen (gestrichelte Linien) ist in der linken y-Achse, die Skala der dazugehörigen Volumenverteilungen (durchgezogene Linien) ist in der rechten y-Achse gegeben. Die Parameter der zugrundeliegenden Log-Normal-Verteilungen sind in Tabelle 1 auf Seite 17 angegeben.

herausstellen wird, daß die optischen Eigenschaften des Aerosols im betrachteten Wellenlängenbereich sensitiv auf das Volumen der Teilchen sind (siehe Kapitel 4.2.1.). Die Parameter der gezeigten Größenverteilungen sind in Tabelle 1 auf Seite 17 aufgelistet.

Bezeichnung	$N_i$ [ $\text{cm}^{-3}$ ]	$r_i$ [ $\mu\text{m}$ ]	$s_i$
HG (1 Mode)	5.0	0.08	0.47
TD (2 Moden)	18.1	0.142	0.451
	1.5	0.67	0.223

**Tabelle 1. Parameter für zwei Beispiele stratosphärischer Aerosolgrößenverteilungen.** HG: stratosphärische Hintergrundverteilung nach Hofmann and Rosen (1983), TD: vulkanische Verteilung nach T. Deshler (1994).

Die in Abb. 7 abgebildete monomodale Größenverteilung, gemessen von Hofmann und Rosen (1983) im Jahre 1982 vor dem Ausbruch des El Chichón, beschreibt die stratosphärische Hintergrundverteilung, die bei ungestörten Bedingungen, d.h. ohne vulkanisches Aerosol oder PSCs, vorliegt. Das Hintergrund-Aerosol besteht hauptsächlich aus Teilchen im Größenbereich um  $0.1 \mu\text{m}$ .

Die zweite abgebildete Größenverteilung, eine bimodale Verteilung wurde von Deshler (1994) im Februar 1992 über Kiruna gemessen. Der Mode mit den kleineren Partikeln entspricht dabei weitgehend der normalen Hintergrundverteilung, während der zweite Mode einen Anteil mit signifikant größeren Teilchen (im Radiusbereich von 0.6 - 0.8  $\mu\text{m}$ ) zeigt, der vom Ausbruch des Pinatubo im Juni 1991 auf den Philippinen stammt.

Die zusätzlich gezeigten dazugehörigen Volumenverteilungen lassen erkennen, daß die Wichtung der Größenverteilung mit dem Volumen der Aerosolpartikel eine Verschiebung des Maximums der Verteilungen zu größeren Radien bewirkt.

Die Zusammensetzung und Phase des stratosphärischen Aerosols hängt stark von den herrschenden Bedingungen wie Temperatur und  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis, sowie der Wirksamkeit der verschiedenen Quellen des Aerosols ab. Das stratosphärische Hintergrund-Aerosol besteht hauptsächlich aus Schwefelsäure/Wasser-Tropfen, wobei der Schwefelsäureanteil, angegeben in  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent, eine Funktion der Temperatur und des  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdrucks ist (Steele and Hamill, 1981). Die Hauptquelle dieses Schwefelsäure-Aerosols ist die Kondensation von Sulfaten, die bei der Photodissoziation von Karbonsulfid ( $\text{OCS}$ ) durch solare UV-Strahlung (Crutzen, 1976; Chin and Davis, 1995) und bei der Oxidation von Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ) entstehen, das durch Vulkanausbrüche in die Stratosphäre gelangt (Oberbeck et al., 1983; Mankin et al., 1992).

Nach starken Vulkanausbrüchen kann das stratosphärische Aerosol auch einen signifikanten Anteil an Rußpartikeln enthalten, der jedoch schon nach kurzer Zeit, in der Größenordnung von einigen Wochen bis zu wenigen Monaten, durch Sedimentation in die Troposphäre gelangt und dort schnell ausgewaschen wird (Oberbeck et al., 1983; Pueschel et al., 1994).

In polaren Breiten können während der Polarnacht bei entsprechend niedrigen Temperaturen polare stratosphärische Wolken (PSC) entstehen. Deren chemische Zusammensetzung und Phase hängt sehr stark von der Temperatur und dem Ursprung der umgebenden Luftmasse ab. In der Regel handelt es sich dabei entweder um Zweiphasengemische von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$  (z.B.  $\text{NAT}^{14}$ ) oder Dreiphasengemische, in denen zusätzlich noch  $\text{H}_2\text{SO}_4$  enthalten ist (MacKenzie et al., 1995).

Die Zusammensetzung und die Phase, in der die Aerosolpartikel vorliegen, bestimmen den komplexen Brechungsindex  $m$ , der eine Funktion der Wellenlänge ist. Dabei beschreibt der Imaginärteil des Brechungsindex die Absorptionseigenschaften des Aerosols. Im Falle eines sehr kleinen Imaginärteils ist die Absorption des Aerosols zu vernachlässigen. Dies ist für die meisten atmosphärischen Aerosole etwa im sichtbaren Spektralbereich ( $\lambda < 0.75 \mu\text{m}$ ) der Fall. Im infraroten Spektralbereich, der uns hier vor

---

<sup>14</sup> Nitric Acid Trihydrat

allem interessiert ( $7 \mu\text{m} < \lambda < 13 \mu\text{m}$ ), ist der Imaginärteil des Brechungsindex deutlich von Null verschieden. Hier werden die optischen Eigenschaften des Aerosols deshalb wesentlich stärker durch die Absorption bestimmt.

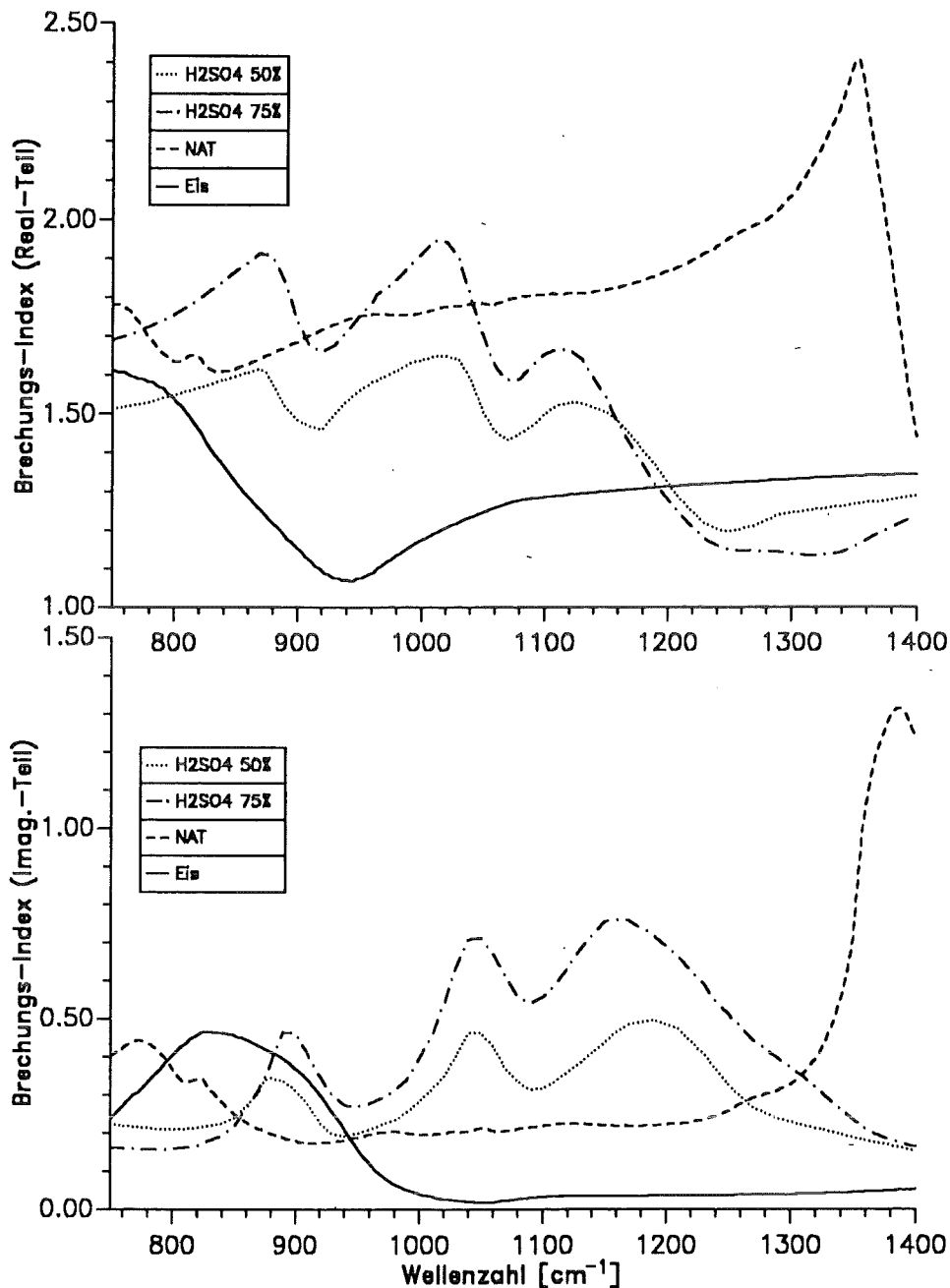
In Abb. 8 auf Seite 20 sind die Brechungsindizes von Schwefelsäure/Wasser-Lösungen für 50 % und 75 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent, sowie die Brechungsindizes für Salpetersäure-Trihydrat (NAT) und für reines Wassereis als Funktion der Wellenzahl im mittleren Infrarot dargestellt. Die Brechungsindizes für die Schwefelsäure/Wasser-Lösungen stammen von Palmer and Williams (1975), während die Brechungsindizes für NAT und Eis von O.B. Toon et al. (1994) gemessen wurden. Sowohl die Real- als auch die Imaginärteile der Brechungsindizes für die verschiedenen chemischen Zusammensetzungen zeigen einen unterschiedlichen spektralen Verlauf, der sich erwartungsgemäß auch in der spektralen Abhängigkeit der optischen Größen des Aerosols widerspiegelt (siehe weiter unten).

### 3.2 Mie-Theorie

Die Wechselwirkung von Aerosolpartikeln mit elektromagnetischer Strahlung ist abhängig von der Größe, der geometrischen Form und dem Brechungsindex der Aerosolteilchen. Bei gegebener Größenverteilung und komplexem Brechungsindex, der durch die Zusammensetzung und Phase der Aerosolteilchen bestimmt ist, können die optischen Eigenschaften des Aerosols berechnet werden. Die Größe der Teilchen in Relation zur Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung bestimmt die Art der Wechselwirkung. In den Fällen mit Teilchen sehr viel größer oder sehr viel kleiner als die Wellenlänge der Strahlung ist die Lösung des Wechselwirkungsproblems entweder durch die geometrische Optik ( $\lambda \ll r$ ) oder durch die Rayleigh-Theorie ( $\lambda \gg r$ ) gegeben.

Für die vorliegende Anwendung der Wechselwirkung von Infrarotstrahlung mit stratosphärischen Aerosolen sind die Teilchenradien und die Strahlung von ähnlicher Größenordnung. Dieser Fall kann deshalb weder durch die geometrische Optik noch durch die Rayleigh-Theorie vernünftig approximiert werden. Für den Fall von kugelförmigen Teilchen, die dieser Bedingung gehorchen, hat Gustav Mie die Maxwellschen Gleichungen gelöst (Mie, 1908). Auch für Zylinder mit kreisförmigem oder elliptischem Querschnitt (Wait, 1955; Yeh, 1965), sowie für Rotationsellipsoide (Asano and Sato, 1980) existieren theoretische Lösungen des Streuproblems.

Die Lösungen der Mie-Theorie sind nicht in analytischer Form darstellbar, sondern werden durch unendliche Reihen von Zylinderfunktionen beschrieben. Deren numerische Handhabung ist jedoch mit heutigen Computern kein Problem. Auf eine mathematische Herleitung der Mie-Theorie soll hier verzichtet werden; der interessierte Leser sei auf Lehrbücher wie Kyle (1991) oder van de Hulst (1981) verwiesen. An dieser Stelle sollen nur die Größen, die für das weitere Verständnis notwendig sind, eingeführt werden.



**Abbildung 8. Komplexe Brechungsindizes für verschiedene stratosphärische Aerosole.** Im oberen Bild ist der Realteil des Brechungsindex als Funktion der Wellenzahl für die verschiedenen Zusammensetzungen dargestellt. Im unteren Bild sind die dazugehörigen Imaginärteile abgebildet.

Ein wichtiges Ergebnis der Mie-Lösung sind der Extinktions- ( $q_{ex}$ ), Streu- ( $q_s$ ) und Absorptionsquerschnitt ( $q_a$ ) eines Teilchens. Sie sind jeweils eine Funktion des Teilchenradius und der Wellenlänge. Die physikalische Interpretation dieser Querschnitte ergibt sich leicht aus der Wechselwirkung von Strahlung mit dem Teilchen: Das Produkt aus der einfallenden Strahldichte und dem Absorptionsquerschnitt ergibt die vom Teilchen absorbierte Strahldichte (d.h. die Strahldichte, die durch Absorption im Teilchen in Wärme umgewandelt wird). Das Produkt aus der einfallenden Strahldichte und dem Streu-

querschnitt ergibt die Strahldichte, die ihre Ausbreitungsrichtung gegenüber der Einfallrichtung geändert hat. Für den Extinktionsquerschnitt gilt:

$$q_{ex} = q_a + q_s \quad [3.2]$$

Das heißt, der Extinktionsquerschnitt beschreibt den Anteil der Strahldichte, die durch das Teilchen durch Absorption und Streuung beeinflusst wird.

Die Einfachstreu-Albedo  $\omega_0$  ist gegeben durch das Verhältnis des Streuquerschnitts zum Extinktionsquerschnitt:

$$\omega_0 = \frac{q_s}{q_{ex}} \quad [3.3]$$

Sie gibt den Anteil der Strahlung an, die dem Strahlungsfeld erhalten bleibt, aber seine ursprüngliche Richtung geändert hat.

Die Winkelverteilung der gestreuten Strahlung (interpretierbar als die Wahrscheinlichkeit mit der ein Photon in eine bestimmte Richtung gestreut wird) ist gegeben durch die normierte Streufunktion  $p$ . Sie ist ebenfalls eine Funktion der Wellenlänge und des Teilchenradius. Bei kugelförmigen streuenden Teilchen ist die Streufunktion eine Funktion nur eines Winkels, des Streuwinkels  $\theta$ , der die Richtung der gestreuten Strahlung relativ zur ursprünglichen Ausbreitungsrichtung angibt. In vielen Fällen ist es nützlich, die Winkelverteilung der gestreuten Strahlung auf einen Parameter zu reduzieren. Dies erfolgt durch die Definition des Asymmetrie-Parameters:

$$g = \frac{\int p(\theta) \cos \theta d \cos \theta}{\int p(\theta) d \cos \theta} \quad [3.4]$$

Der Asymmetrie-Parameter gibt den mittleren Cosinus des Streuwinkels  $\theta$  an und nimmt für vorwärtsstreuende Teilchen Werte zwischen 0 und 1 an, je nachdem wie stark die Vorwärtsstreuung ausgeprägt ist.

Die soeben definierten Größen beziehen sich alle auf ein kugelförmiges Teilchen mit dem Radius  $r$ , das mit Strahlung der Wellenlänge  $\lambda$  wechselwirkt. Die entsprechenden Größen für ein Teilchenkollektiv, das durch die Größenverteilung  $n(r)$  beschrieben wird, erhält man einfach durch Integration über alle Teilchenradien. Der Volumenabsorptions- und Volumenstreuoeffizient sind dann gegeben durch:

$$\sigma_a(\lambda) = \int_0^{\infty} q_a(m(\lambda), r, \lambda) n(r) dr \quad [3.5]$$

$$\sigma_s(\lambda) = \int_0^{\infty} q_s(m(\lambda), r, \lambda) n(r) dr \quad [3.6]$$

Der Volumenextinktionskoeffizient ergibt sich entsprechend zu Gl. [3.2] durch:

$$\sigma_{ex} = \sigma_a + \sigma_s \quad [3.7]$$

Ganz analog können die Streufunktion und damit auch der Asymmetrie-Parameter der Teilchenpolydispersion durch Integration über die Radien der Einzelteilchen berechnet werden.

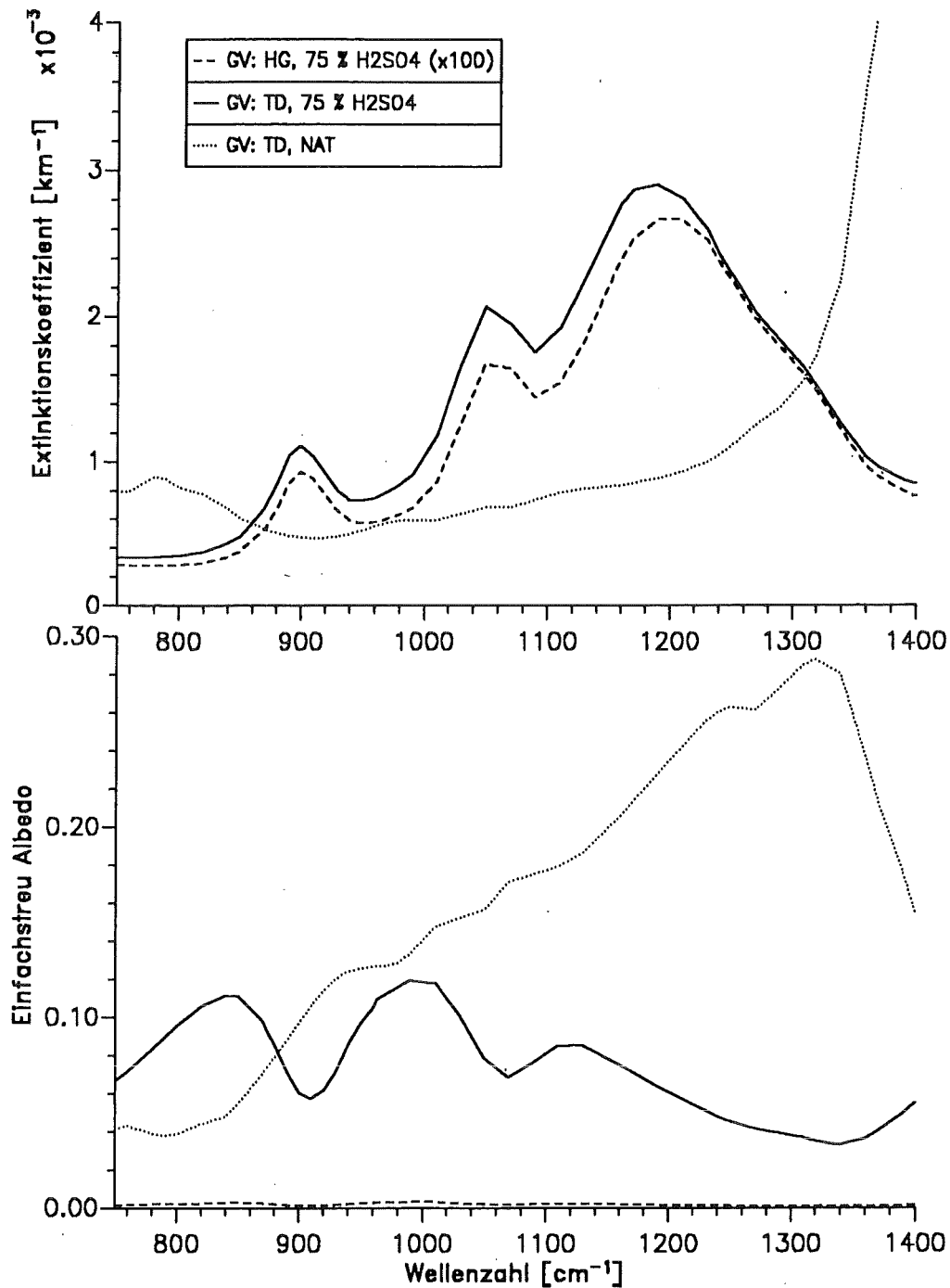
Für die Mie-Rechnungen im Rahmen dieser Arbeit, wurde ein Mie-Streumodell verwendet, das auf einem Rechenmodell für homogene Mie-Partikel basiert (Quenzel und Müller, 1978), von Metzger (1984) auf schalenförmige Mie-Partikel erweitert und auf der IBM-Großrechenanlage des Forschungszentrums Karlsruhe installiert wurde. Für die Rechnungen im Rahmen dieser Arbeit wurden nur homogene Aerosolteilchen angenommen.

### 3.3 *Optische Eigenschaften von stratosphärischen Aerosolen*

Die Kenntnis der optischen Parameter des Aerosols ist notwendig, um die Strahlungswirkung des Aerosols berechnen zu können. Dabei sind die wesentlichen optischen Parameter die spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten und Aerosolabsorptionskoeffizienten, beide als Funktion der Wellenlänge. Für den Fall, daß das Strahlungsübertragungsmodell Einfach- oder Mehrfachstreuung berücksichtigt, muß zusätzlich noch die Streufunktion oder als einfache Parametrisierung der Asymmetrie-Parameter als Funktion der Wellenlänge bereitgestellt werden. Polarisationseffekte durch Streuung treten an kugelförmigen Teilchen nicht auf und brauchen deshalb nicht berücksichtigt werden.

In Abb. 9 sind die Volumenextinktionskoeffizienten und die Einfachstreu-Albedo für 3 unterschiedliche theoretische Aerosole als Funktion der Wellenzahl aufgetragen. Als Grundlage der Mie-Rechnungen dienten die in Abb. 7 auf Seite 17 und Abb. 8 auf Seite 20 gezeigten Größenverteilungen und Brechungsindizes. Es ist deutlich zu erkennen, daß der spektrale Verlauf des Extinktionskoeffizienten vor allem durch den Imaginärteil des Brechungsindex bestimmt wird. Der Vergleich der beiden H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Aerosole zeigt jedoch, daß auch die Größenverteilung in geringem Ausmaß die spektrale Verteilung der Extinktionskoeffizienten beeinflusst, ansonsten müßten sich die Extinktionskoeffizienten bei gleicher Zusammensetzung durch einfache Skalierung ineinander überführen lassen. Ein signifikanter Streuanteil von über 10 % ergibt sich für die vulkanische Größenverteilung; dies ist ein Effekt der großen Teilchenradien. Der spektrale Extinktionskoeffizient des H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Aerosols für die vulkanische Größenverteilung ist um mehr als zwei Größenordnungen größer als für die Hintergrundverteilung.





**Abbildung 9. Optische Parameter für verschiedene stratosphärische Aerosole.** Im oberen Bild sind die Extinktionskoeffizienten für das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol für zwei verschiedene Größenverteilungen (HG: Hintergrundverteilung, TD: vulkanische Verteilung nach Desher, 1994, siehe Abb. 7 auf Seite 17) und für NAT dargestellt. Die Extinktionskoeffizienten für das Hintergrund-Aerosol wurden mit dem Faktor 100 skaliert, um sie mit den anderen beiden Extinktionen zu vergleichen. Die untere Abbildung zeigt die dazugehörige Einfachstreu-Albedo als Funktion der Wellenzahl.

In der Regel sind die optischen Eigenschaften des stratosphärischen Aerosols auch eine Funktion der Höhe. Diese Höhenabhängigkeit wird je nach Meßprinzip des Aerosols als Vertikalprofil der Extinktion bei einer bestimmten Wellenlänge oder durch die

Angabe der Größenverteilung als Funktion der Höhe dargestellt. Das stratosphärische Hintergrund-Aerosol ist in der Regel durch einen exponentiellen Abfall der Extinktion gekennzeichnet. Jedoch können durch unterschiedliche Mischungs- und Transportvorgänge auch stark strukturierte Vertikalprofile entstehen.

### 3.4 Strahlungsübertragung im IR

Der Durchgang von elektromagnetischer Strahlung durch ein Volumenelement und die dabei auftretenden Veränderungen der Strahldichte werden durch die Strahlungsübertragungsgleichung (SÜG) beschrieben (siehe z.B. Chandrasekhar, 1960). Diese stellt eine Bilanzgleichung für die durch ein Volumenelement in den Raumwinkel  $\Omega$  gehende Strahlung dar.

Die integrale Form der SÜG nimmt für den Fall der Horizontsondierung im Emissionsmodus, d.h. bei Vernachlässigung der solaren Strahlung und Blickrichtung gegen den kalten Weltraum (d.h.:  $L_\nu(l_1 = \infty) = 0$ ) folgende Form an:

$$L_\nu(l_B) = \int_{l_1}^{l_B} \sigma_{a,\nu}(l') B_\nu(T(l')) e^{-\tau_\nu(l', l_B)} dl' + \frac{1}{4\pi} \int_{l_1}^{l_B} \sigma_{s,\nu}(l') \int_{4\pi} p_\nu(l', \Omega, \Omega') L_\nu(l', \Omega') d\Omega' e^{-\tau_\nu(l', l_B)} dl' \quad [3.8]$$

Die beim Beobachter  $l_B$  bei der Frequenz  $\nu$  empfangene spektrale Strahldichte  $L_\nu(l_B)$  setzt sich aus zwei Teilen, gegeben durch die beiden Summanden, zusammen:

Der erste Summand beschreibt die Emission der Atmosphäre am Ort  $l'$ , die auf dem Weg von  $l'$  zum Spektrometer bei  $l_B$  durch die Extinktion (d.h. Absorption und Streuung) geschwächt wird. Dabei ist  $B_\nu(T)$  die Planckfunktion,  $\sigma_{a,\nu}(l')$  der höhenabhängige monochromatische Volumenabsorptionskoeffizient und

$$\tau_\nu(l', l_B) = \int_{l'}^{l_B} \sigma_{ex,\nu}(l'') dl'' \quad [3.9]$$

die optische Dicke der Atmosphäre zwischen  $l'$  und der Beobachterposition  $l_B$ .

Der zweite Summand beschreibt die am Ort  $l'$  in die Richtung des Beobachters gestreute spektrale Strahldichte, die wiederum auf dem Weg zum Spektrometer durch Extinktion geschwächt wird.  $\sigma_{s,\nu}(l')$  ist der höhenabhängige monochromatische Volumen-

streukoeffizient,  $p_v(l', \Omega, \Omega')$  die Streufunktion, die angibt, welcher Anteil der Strahldichte  $L_v(l', \Omega')$  aus dem Raumwinkel  $\Omega'$  in den Raumwinkel  $\Omega$  gestreut wird.

Für den Fall, daß der Streukoeffizient  $\sigma_{s,v}$  gegen Null geht, verschwindet in Gl. [3.8] der zweite Summand und sie nimmt die Form an, die für die Horizontsondierung gegen den kalten Weltraum ohne Streuung gebräuchlich ist,

$$L_v(l_B) = \int_{l_1}^{l_B} B_v(T(l)) \frac{\partial \tau'_v(l)}{\partial l} dl \quad [3.10]$$

wobei  $\tau'_v$  die optische Dicke bezüglich der Absorption ist.

Die Einfachstreu-Albedo  $\omega_0 = \sigma_{s,v} / \sigma_{ex,v}$  ist also ein Maß dafür, ob Streuung berücksichtigt werden muß oder nicht. Aus Abb. 9 auf Seite 23 geht hervor, daß für das Hintergrund-Aerosol  $\omega_0$  im gesamten betrachteten Spektralbereich kleiner als 0.01 ist, d.h. für diesen Fall kann die Streuung bei der Berechnung der spektralen Strahldichten vernachlässigt werden. Dies ist nicht mehr der Fall für die vulkanische Größenverteilung, bei der  $\omega_0$  Werte von über 0.1 annimmt.

### 3.5 Einfluß von Aerosol auf hochaufgelöste Strahldichtespektren

Bei bekannten optischen Parametern des stratosphärischen Aerosols kann mit Hilfe eines geeigneten Strahlungsübertragungsmodells der Aerosolbeitrag zur spektralen Strahldichte berechnet werden.

Aus Abb. 9 auf Seite 23 kann man erkennen, daß sich die optischen Parameter des Aerosols im Gegensatz zu den Emissionslinien von Spurengasen nur langsam mit der Wellenzahl ändern, Der Aerosolbeitrag in einem hochaufgelösten Emissionsspektrum wird also die Charakteristik eines Kontinuums haben, das den Emissionsbanden der Spurengase überlagert ist. Aufgrund der Wellenzahlabhängigkeit der optischen Parameter des Aerosols wird sich auch das resultierende Aerosolkontinuum mit der Wellenzahl ändern, allerdings bezogen auf eine wesentlich größere Wellenlängen-Skala als die einzelnen Gasemissionslinien. Während für die Gasemissionslinien die Skala für die spektralen Strahldichteänderungen im Bereich von 0.01 bis 0.1  $\text{cm}^{-1}$  und damit in der Größenordnung des Auflösungsvermögens des Spektrometers liegt, ist die Skala für die spektralen Änderungen der Strahldichte durch das Aerosolkontinuum im Bereich von 5 – 20  $\text{cm}^{-1}$ , je nach spektraler Struktur des Aerosolkontinuums. Allerdings gibt es auch Spurengase, die breitbandige Emissionssignaturen im mittleren Infrarot besitzen, z.B.  $\text{N}_2\text{O}_5$  oder FCKW-11, für die die Unterscheidung von einem Aerosolkontinuum schwieriger ist.

Für die Berechnung von Strahldichtespektren wird in dieser Arbeit, wie auch für die Auswertung der Spurengasmischungsverhältnisse, die schon in Kapitel 2 erwähnte modifizierte FASCOD2-Version verwendet. Die Berechnung des Strahldichtebeitrags von Aerosolen, Wolken, usw. wird in FASCOD2 vom Unterprogramm LOWTRAN übernommen. Für die Berücksichtigung von Aerosolen, Wolken und anderen nicht gasförmigen Atmosphärenbestandteilen sind eine Reihe von standardisierten spektralen Extinktionskoeffizienten an festen Frequenzstützstellen im Wellenlängenbereich von 0.2 bis 300  $\mu\text{m}$  und Vertikalprofile der Extinktion bei 0.55  $\mu\text{m}$  enthalten. Die spektralen Aerosolextinktionskoeffizientenmodelle sind dabei so normiert, daß gilt:  $\sigma_{\text{ex}}(\lambda = 0.55 \mu\text{m}) = 1 \text{ km}^{-1}$ . Durch die Kombination dieser spektralen Aerosolextinktionskoeffizientenmodelle mit einem Vertikalprofil des Aerosolextinktionskoeffizienten bei  $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$  wird das Aerosolextinktionsprofil an einer beliebigen anderen Wellenlänge entsprechend dem spektralen Verlauf des Aerosolextinktionskoeffizienten skaliert. Streueffekte können mit FASCOD2/LOWTRAN nicht simuliert werden, deshalb hat die Einfachstreu-Albedo für Simulationen mit FASCOD2 keine Bedeutung.

Durch die begrenzte Anzahl von Aerosolfrequenzstützstellen für die LOWTRAN-Aerosolmodelle im mittleren Infrarot von insgesamt nur 11 Stützstellen im Bereich von 7 bis 13  $\mu\text{m}$  (dies entspricht im Durchschnitt einer spektralen Stützstelle pro 60  $\text{cm}^{-1}$ ), sind diese Modelle nur bedingt für eine ausreichend genaue Simulation des Aerosolbeitrags in hochaufgelösten Emissionsspektren geeignet. Für die Simulation von MIPAS-B-Spektren mit Aerosoleinfluß wurde deshalb das LOWTRAN-Aerosol-Frequenzraster durch ein auf den vom MIPAS-B-Instrument überdeckten Spektralbereich optimiertes Frequenzraster mit 45 spektralen Stützstellen zwischen 750 und 1400  $\text{cm}^{-1}$  (entsprechend einer spektralen Stützstelle pro 15  $\text{cm}^{-1}$ ) ersetzt. Gleichzeitig wurden variable spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten sowie anstelle der vorgesehenen standardisierten Vertikalprofile variable Vertikalprofile eingeführt.

Abb. 10 zeigt simulierte Emissionsspektren für ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol für zwei verschiedene Größenverteilungen sowie für ein NAT-Aerosol auf der Basis der in Abb. 9 auf Seite 23 abgebildeten Extinktionskoeffizienten. Die Rechnungen wurden für die Ballongeometrie (vgl. Abb. 1 auf Seite 6) für eine Tangentenhöhe von 11.3 km auf der Basis der abgeleiteten Spurengasmischungsverhältnisse durchgeführt. Für das Hintergrundaerosol mit Extinktionen in der Größenordnung von  $10^{-5} \text{ km}^{-1}$  ist kein signifikanter Aerosolbeitrag zur Strahldichte erkennbar. Für die vulkanische Größenverteilung mit Extinktionen in der Größenordnung von  $10^{-3} \text{ km}^{-1}$  ergibt sich ein deutlicher Aerosolkontinuumsbeitrag, dessen spektrale Struktur durch den spektralen Verlauf der Aerosolextinktionskoeffizienten gegeben ist. Für das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol (mittlere Abbildung) kann man z.B. eindeutig die relativen Maxima des Aerosolkontinuums bei 900  $\text{cm}^{-1}$ , 1050  $\text{cm}^{-1}$  und 1190  $\text{cm}^{-1}$  den entsprechenden Maxima des spektralen Extinktionskoeffizienten zuordnen. Durch die Wellenzahlabhängigkeit der Planckfunktion sind deren relative Höhen im Emissionsspektrum zu kleinen Wellenzahlen hin verschoben. Die Simulation für das NAT-Aerosol

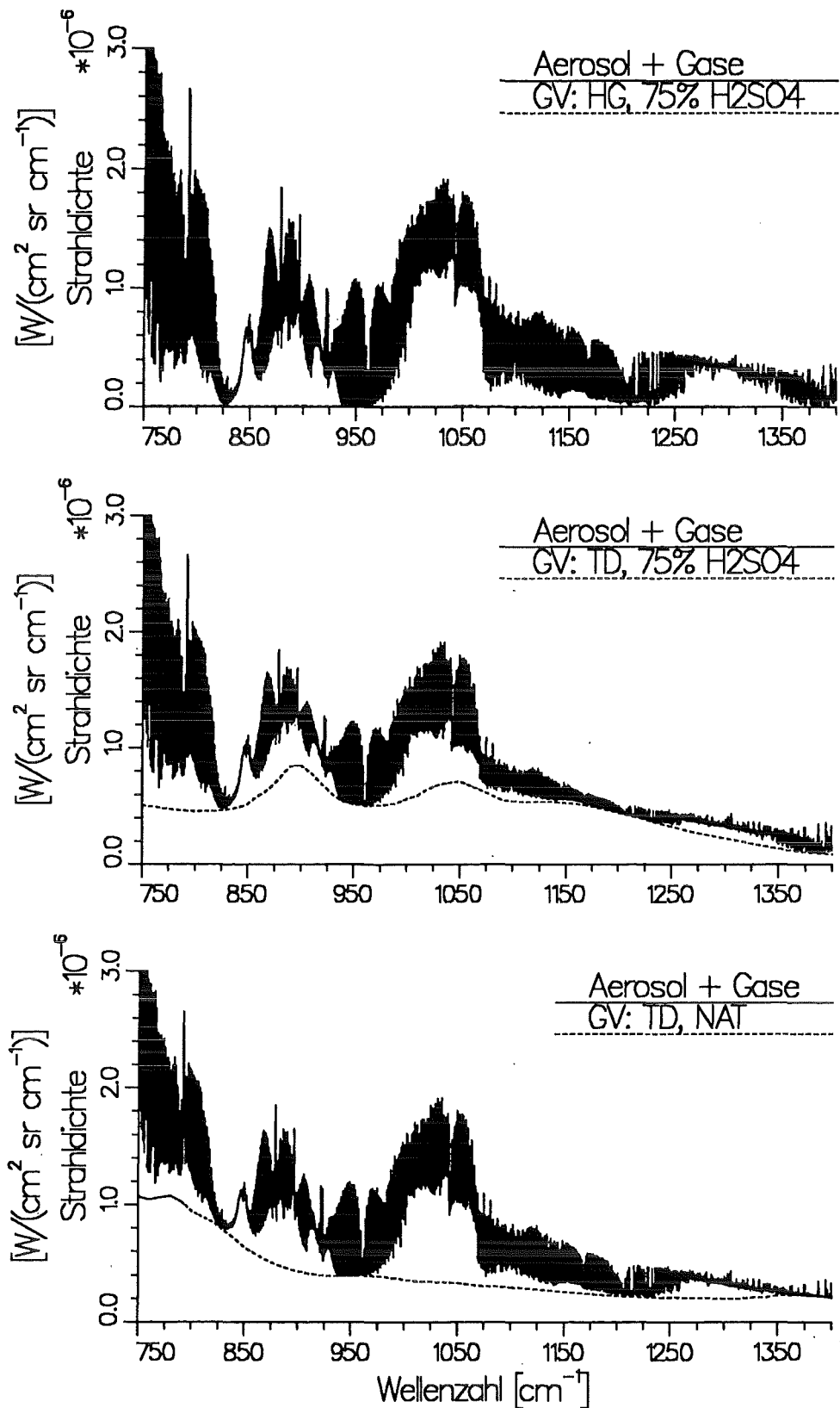


Abbildung 10. Simulierte Emissionsspektren für verschiedene Aerosoltypen. Es sind jeweils die Simulationen mit allen relevanten Spurengasen und Aerosol (durchgezogene Linien) und für das Aerosol allein (gestrichelte Linien) dargestellt. Die Bezeichnung der Aerosoltypen ist analog zu Abb. 9 auf Seite 23.

(untere Abbildung) unterscheidet sich deutlich vom  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol entsprechend der unterschiedlichen spektralen Struktur der Extinktionskoeffizienten.

## 4. Ableitung von Aerosolparametern aus Emissionsspektren

In Kapitel 3 wurde ausgehend von den mikrophysikalischen Eigenschaften des Aerosols dargelegt, wie diese Eigenschaften die spektrale Strahldichte am Eingang des Spektrometers beeinflussen. Damit ist unter gewissen einschränkenden Annahmen das sogenannte *direkte* Problem beschrieben (einschränkend in dem Sinne, als auf das Streuproblem noch nicht eingegangen wurde). Für die Fragestellung, wie aus Strahldichtemessungen Eigenschaften des Aerosols abgeleitet werden können, muß das *inverse* Problem gelöst werden. Im Gegensatz zum direkten Problem, wo eine bestimmte Parameterkombination zu einer bestimmten spektralen Strahldichte führt, ist dieser eindeutige Zusammenhang zwischen Strahldichte und Aerosolparameter für das inverse Problem nicht mehr gegeben, da wir es mit nichtlinearen Prozessen zu tun haben.

In Anlehnung an Abb. 6 auf Seite 16 bietet es sich an, die Inversion auf zwei Schritte aufzuteilen:

1. Ableitung von optischen Parametern aus spektralen Strahldichten, das bedeutet die Inversion der Strahlungsübertragungsgleichung.
2. Ableitung von mikrophysikalischen Parametern aus den im ersten Schritt abgeleiteten optischen Parametern. Dies erfordert die Inversion der Bestimmungsgleichungen dieser Parameter aus der Mie-Theorie.

### 4.1 Ableitung von optischen Parametern aus spektralen Strahldichten

#### 4.1.1 Vorbemerkungen zum Inversionsproblem

Um die optischen Eigenschaften des Aerosols aus Emissionsspektren zu bestimmen, muß der Einfluß dieser optischen Parameter auf die spektrale Strahldichte im verwendeten Strahlungsübertragungsmodell simuliert werden können.

Für die Auswertung der Spurengaskonzentrationen wurde, wie schon in Kapitel 2 dargelegt wurde, das Strahlungsübertragungsmodell FASCOD2 verwendet. Wie in den meisten existierenden Linie-für-Linie Strahlungsübertragungsmodellen, werden auch in FASCOD2 keine Streueffekte berücksichtigt, d.h. es wird angenommen, daß die Gesamt-extinktion gleich der Absorption ist. Für die Anwendung auf die Berechnung der Spurengasemission bzw. -absorption im mittleren Infrarot bedeutet dies, wenn die Aerosolkonzentration gering ist, keine wesentliche Einschränkung, da die Streuung an Molekülen im Infrarot ohne Bedeutung ist.

Für den Fall, daß Aerosolteilchen in der Sichtlinie des Spektrometers vorhanden sind, kann diese Annahme fehlerhaft sein. Insbesondere, wenn die Radien dieser Teilchen in die Größenordnung der Wellenlänge gelangen, können Streueffekte einen signifikanten

Beitrag zur spektralen Strahldichte liefern. In Kapitel 3 hatten wir gesehen, daß die Einfachstreueralbedo  $\omega_0$  ein Maß für den Anteil der Streuung an der Gesamtextinktion ist. Für das stratosphärische Hintergrundaerosol ist dieser Anteil kleiner als 1 % und kann deshalb ohne großen Fehler vernachlässigt werden. Jedoch kann für stratosphärische Bedingungen nach einem starken Vulkanausbruch der Streuanteil auf Werte von über 10% anwachsen.

Das bedeutet aber, daß für die Ableitung der optischen Parameter des Aerosols aus den Strahldichtespektren Streueffekte in der Strahlungsübertragung berücksichtigt werden sollten. Bis jetzt existiert kein Linie-für-Linie-Strahlungsübertragungsprogramm, das Streuung an Aerosolen berücksichtigt. FASCOD3 (Clough et al., 1988) enthält zwar einen Mehrfachstreualgorithmus von Isaacs et al. (1986, 1987), dieser kann jedoch für die Horizontsondierungsgeometrie nicht angewandt werden (Anderson, persönliche Mitteilung, 1993). Deshalb kann der Streueinfluß bei der Ermittlung optischer Aerosolparameter zunächst nicht berücksichtigt werden. Der dadurch eingeführte Fehler wird in einem späteren Schritt abgeschätzt und korrigiert (Kapitel 4.3).

Bei der Verwendung von FASCOD2 als Vorwärtsprogramm für die Ableitung optischer Parameter des Aerosols wird also zunächst die Absorption gleich der Extinktion gesetzt. Im folgenden wird der abgeleitete Aerosolparameter trotzdem *Extinktionskoeffizient* genannt, denn falls Streuung wirklich eine signifikante Rolle spielt, dann enthält der aus den gemessenen Strahldichte abgeleitete Extinktionskoeffizient implizit auch Streueffekte, d.h. ihn Absorptionskoeffizient zu nennen wäre noch weniger angemessen. Für die spätere Interpretation der abgeleiteten Extinktionskoeffizienten muß diese Tatsache berücksichtigt werden.

#### **4.1.2 Auswahl geeigneter Spektralintervalle**

Wie in Kapitel 2 schon ausgeführt wurde, erzeugen Aerosolteilchen in einem hochaufgelösten Infrarotemissionsspektrum ein schwach wellenzahlabhängiges Aerosolkontinuum. Um aus einem Infrarotspektrum Eigenschaften des Aerosols abzuleiten, muß zunächst die spektrale Strahldichte, die vom Aerosol stammt, getrennt werden von der spektralen Emission der sich ebenfalls im Sehstrahl befindenden Spurengase. Während die meisten Spurengase nur in ganz bestimmten Wellenzahlbereichen, in denen ihre Absorptionsbanden liegen, einen Beitrag zur spektralen Strahldichte liefern, trägt das Aerosol durch seine Kontinuumsemission im gesamten Spektralbereich zur Strahldichte bei.

Im Falle eines spektral hoch aufgelösten Strahldichtespektrums sind die einzelnen Emissionslinien der Spurengase voneinander separiert und die Sensitivität der spektralen Strahldichte auf das Aerosolkontinuum ist am größten in den Lücken zwischen diesen Emissionslinien. Es bietet sich deshalb an, den Aerosolbeitrag in solchen Lücken zu bestimmen.



Da die mikrophysikalischen Größen des Aerosols, die über den spektralen Extinktionskoeffizienten die spektrale Struktur des Aerosolkontinuums bestimmen, nicht bekannt sind, ist der spektrale Verlauf des Aerosolkontinuums *a priori* nicht bekannt. Aus einem Aerosolextinktionswert an einer spektralen Stützstelle kann deshalb noch nicht auf die Aerosolextinktion an einer entfernten Stelle im Spektrum geschlossen werden. Dies ist erst möglich, wenn Annahmen über die Größenverteilung und die Zusammensetzung des Aerosols gemacht werden.

Aufgrund der breitbandigen Struktur des Aerosolkontinuums kann man die Aerosolextinktion jedoch als lokal wellenzahlunabhängig annehmen. Lokal bezieht sich hier auf kleine Spektralintervalle von höchstens  $3\text{-}4\text{ cm}^{-1}$  spektraler Breite. In diesem Fall kann die Aerosolextinktion in kleinen Spektralbereichen, den sogenannten *Microwindows*, durch einen wellenzahlunabhängig angenommenen Extinktionskoeffizienten parametrisiert werden. Man kann sich also das Spektrum in viele kleine Spektralintervalle aufgeteilt vorstellen, wobei jedem dieser Spektralintervalle ein individueller lokal konstanter Aerosolextinktionskoeffizient zugeschrieben werden kann, der genau dem Beitrag des Aerosolkontinuums in diesem Spektralintervall entspricht.

Entsprechend kann man bei der Ableitung des Extinktionskoeffizienten aus den Strahl-dichtespektren vorgehen: Bei Beschränkung der Inversion auf kleine Microwindows kann ein lokal wellenzahlunabhängiger Extinktionskoeffizient angenommen werden. Für jedes Microwindow erhält man auf diese Weise dann individuelle Aerosolextinktionskoeffizienten, die für unterschiedliche Microwindows auch unterschiedliche Werte annehmen können. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, daß während der Ableitung der Aerosolextinktion noch keine Festlegung hinsichtlich der Art des Aerosoltyps erforderlich ist. Erst die Kombination der Einzelergebnisse für die verschiedenen Microwindows ergibt die spektrale Struktur der Aerosolextinktion.

Für die Auswahl der Spektralintervalle (Microwindows) sollten die folgenden Kriterien berücksichtigt werden:

1. Das gewählte Spektralintervall sollte möglichst sensitiv auf Änderungen der Aerosolextinktion in der jeweiligen Tangentenhöhe sein.
2. Der spektrale Abstand zwischen den einzelnen Microwindows sollte klein genug sein, um den spektralen Verlauf der Aerosolextinktion aufzulösen. Je nach Struktur des Aerosolkontinuums sind dazu Microwindows im Abstand von  $5\text{ bis }10\text{ cm}^{-1}$  notwendig.

Die erste Forderung ist, wie oben schon angedeutet wurde, am besten in spektralen Lücken zwischen zwei Gasemissionslinien erfüllt. Bei genügend guter spektraler Auflösung kann man im Prinzip jede dieser Lücken verwenden, soweit sie für die betrachtete Tangentenhöhe genügend sensitiv bezüglich Änderungen des Aerosolkontinuums ist. Dieser Ansatz wurde von Rinsland et al. (1994) angewandt, um aus hoch aufgelösten

Sonnenokkultationsspektren, die vom ATMOS<sup>15</sup>-Instrument während der ATLAS-1<sup>16</sup> Space Shuttle Mission im März 1992 gemessen wurden, die spektrale Aerosolextinktion im Wellenzahlbereich von 750 bis 3400  $\text{cm}^{-1}$  zu bestimmen. Die spektrale Auflösung des ATMOS-Instruments betrug 0.01  $\text{cm}^{-1}$  und die gewählten Aerosol-Microwindows hatten typische Breiten von 0.05  $\text{cm}^{-1}$ . Durch die Wahl derart kleiner Microwindows wurde eine sehr gute spektrale Auflösung der Wellenzahlabhängigkeit der Aerosolextinktion erreicht.

Eine Übertragung dieser kleinen Spektralintervalle auf die Emissionsspektren des MIPAS-B-Instruments ist schon wegen der deutlich schlechteren spektralen Auflösung von 0.073  $\text{cm}^{-1}$  nicht möglich. Durch die schlechtere spektrale Auflösung ist die Zahl der vom Einfluß von Spurengaslinien ungestörten spektralen Lücken deutlich vermindert. Vor allem in der niedrigsten betrachteten Tangentenhöhe von 11.3 km sind fast alle in Frage kommenden Spektralintervalle durch Linienflügel der benachbarten Spektrallinien beeinflusst.

Aufgrund der Nichtlinearität der Strahlungsübertragung wirkt sich das Aerosolkontinuum unterschiedlich auf das Linienzentrum einer Emissionslinie und auf eine Lücke zwischen Emissionslinien aus. Das relative Verhältnis der Strahldichten im Linienzentrum und außerhalb der Linie legt bei bekanntem Spurengasmischungsverhältnis den Beitrag des Kontinuums eindeutig fest. Aber auch wenn die Spurengasmenge nicht bekannt ist, ist das Zwei-Parameter-Inversionsproblem, bei dem Aerosolkontinuum und Gasmenge gleichzeitig bestimmt werden, eindeutig lösbar, wenn das Microwindow mindestens eine gut separierte Spektrallinie des emittierenden Spurengases enthält (Echle et al., 1995). In diesem Fall enthält die spektrale Struktur der Emissionslinie und deren Linienflügel die Information über die relativen Beiträge des Aerosolkontinuums und der Spurengasemission.

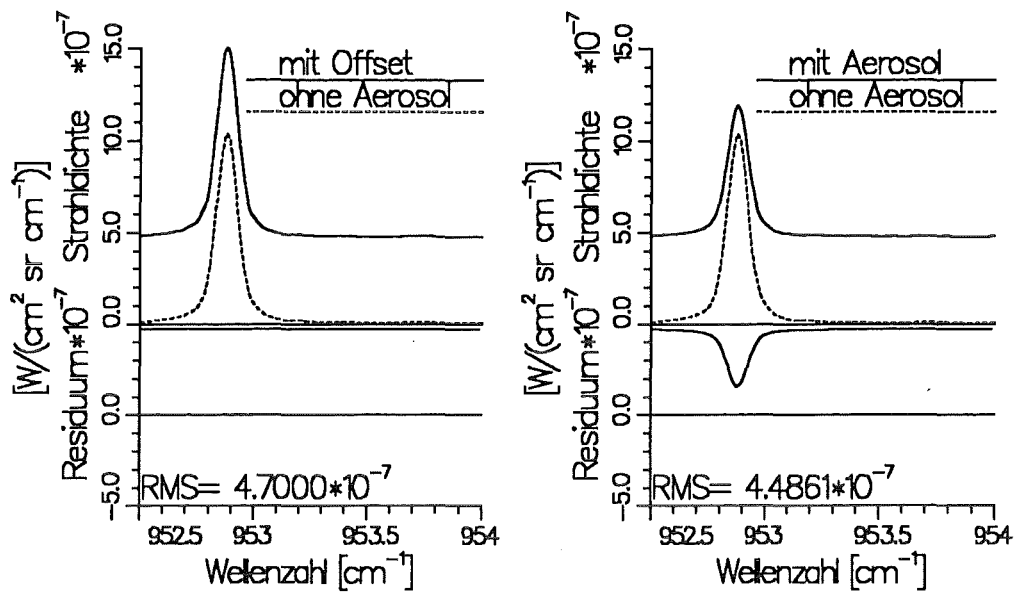
Diese Aussage läßt sich sogar noch erweitern hinsichtlich der Trennung der atmosphärischen Emissionen von einem additiven Offset, der bei der Kalibrierung des Spektrums durch eine falsche Annahme über die Eigenemission des Spektrometers auftreten kann. Da der additive Offset auf alle spektralen Stützstellen identisch wirkt, kann er in einem Microwindow mit gut separierter Spektrallinie durch keine Kombination von Aerosolkontinuum und Gasemission kompensiert werden und läßt sich deshalb unabhängig von diesen beiden Parametern bestimmen. Voraussetzung dafür ist, daß die Druckverbreiterung der Spektrallinien spektral aufgelöst werden kann oder zwei unterschiedlich starke Linien im Microwindow enthalten sind. Für MIPAS-B mit einer spektralen Auflösung von 0.073  $\text{cm}^{-1}$  (apodisiert) ist die erste Bedingung zumindest für die untere Stratosphäre

---

<sup>15</sup> Atmospheric Trace MOlecule Spectroscopy

<sup>16</sup> ATmospheric Laboratory for Applications and Science

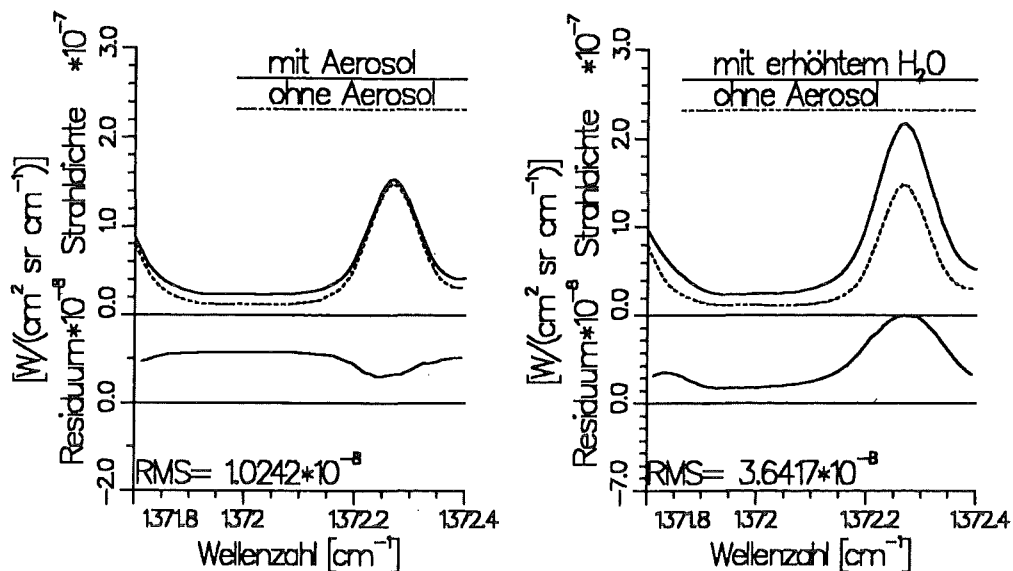
erfüllt. In Abb. 11 sind die unterschiedlichen Wirkungen eines Aerosolkontinuums und eines additiven Offsets auf eine CO<sub>2</sub>-Linie der CO<sub>2</sub>-Laserbande bei 952.9 cm<sup>-1</sup> dargestellt.



**Abbildung 11. Zur Unterscheidung von additivem Offset und Aerosolkontinuum.** Gezeigt wird der Einfluß eines additiven Offsets (linkes Bild) und eines Aerosolkontinuums (rechtes Bild) auf eine CO<sub>2</sub>-Linie.

Das Residuum (das ist die Differenz zwischen dem Spektrum mit Aerosol bzw. mit Offset und dem Spektrum ohne Aerosol) ist im Fall des Aerosolkontinuums im Linienzentrum deutlich kleiner als außerhalb der Linie. Im Gegensatz dazu wirkt sich der additive Offset auf das Linienzentrum und die Linienflügel bzw. in den Lücken zwischen Emissionslinien identisch aus. Wählt man nun das Microwindow zur Bestimmung der Aerosolextinktion so, daß keine Gasemissionslinie enthalten ist (z.B. 953.3 - 954.0 cm<sup>-1</sup>), könnte man Offset und Aerosolkontinuum nicht unterscheiden und Kompensationseffekte zwischen Offset und Aerosolextinktion wären die Folge, wenn bei der Inversion beide Größen anpaßbare Variablen wären. Wenn man aber das Microwindow so erweitert, daß eine Gasemissionslinie enthalten ist (z.B. 952.5 - 954.0 cm<sup>-1</sup>), ist das Inversionsproblem bei gleichzeitiger Anpassung von Offset und Aerosolextinktion eindeutig, aufgrund der unterschiedlichen Wirkung von Offset und Aerosolkontinuum auf die Spektrallinie.

Die unterschiedliche Wirkung der Änderung der Spurengasmenge im Vergleich zum Einfluß eines Aerosolkontinuums ist in Abb. 12 auf Seite 34 für ein Spektralintervall dargestellt, das eine H<sub>2</sub>O-Emissionslinie enthält. Im linken Teil ist die Wirkung eines Aerosolkontinuums dargestellt, während die rechte Hälfte den Einfluß der Erhöhung des H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnisses darstellt. Auch hier gilt: Wählt man ein Aerosol-Microwindow in der Lücke zwischen den Emissionslinien (z.B. 1371.9 - 1372.1 cm<sup>-1</sup>), können

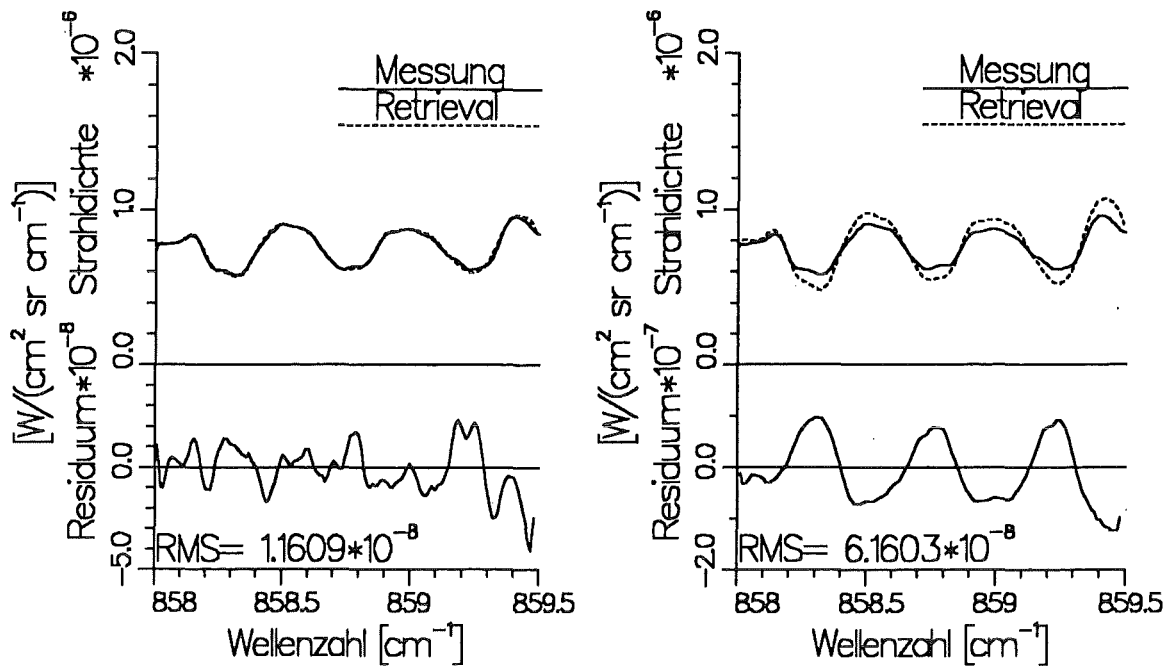


**Abbildung 12. Zur Unterscheidung von H<sub>2</sub>O-Linienflügelbeitrag und Aerosolkontinuum.** Dargestellt ist die Wirkung eines Aerosolkontinuums (linkes Bild) und eine Erhöhung des H<sub>2</sub>O-Mischungsverhältnisses (rechtes Bild) auf eine H<sub>2</sub>O-Linie. Man beachte die unterschiedliche Skalierung des Residuums.

die beiden Effekte nicht unterschieden werden. Eine Unterscheidung ist erst dann möglich, wenn man die H<sub>2</sub>O-Linie bei 1372.27 cm<sup>-1</sup> in die Analyse mit einbezieht.

Selbst wenn bei der Bestimmung des Aerosolextinktionskoeffizienten die Spurengasmischungsverhältnisse nicht gleichzeitig mit angepaßt werden müssen (z.B. weil sie aus einer früheren Analyse des Spektrums bekannt sind), ist die Einbeziehung von Spurengasemissionslinien in die Aerosol-Microwindows aus zwei Gründen vorteilhaft. Zum einen kann auf diese Weise die Information über das Aerosolkontinuum, die im Bereich der Linienflügel der Spurengasemissionslinien enthalten ist, für die Bestimmung der Aerosolextinktionskoeffizienten mit ausgenutzt werden. Dadurch können auch solche Lücken zwischen Spektrallinien verwendet werden, die von Linienflügeln benachbarter Spektrallinien beeinflusst sind. Andererseits ist durch die Einbeziehung einer Spektrallinie aufgrund des Residuums eine Qualitätskontrolle der besten Anpassung möglich. Anhand der spektralen Struktur des Residuums läßt sich entscheiden, ob die Annahme über die Gasmenge richtig ist, da Kompensationseffekte zwischen Aerosolemission und Gasemission zu einer systematischen Abweichung im Residuum führen.

Zur Demonstration dieses Effektes sind in Abb. 13 die Filtergebnisse zweier unterschiedlicher Retrievals der Aerosolextinktion in der Tangentenhöhe  $z_{\min} = 14.5$  km für ein Aerosol-Microwindow, das hauptsächlich HNO<sub>3</sub>-Signaturen enthält, dargestellt. In der linken Abbildung wurde bei der Anpassung das aus den Spektren bestimmte HNO<sub>3</sub>-Profil angenommen, während in der rechten Abbildung ein um 25 % erhöhtes HNO<sub>3</sub>-Profil angenommen wurde. In beiden Fällen ist bei der Inversionsrechnung der Aerosolextinktionskoeffizient einziger anzupassender Parameter. Das Inversionsprogramm versucht die erhöhte Spurengasemission (in diesem Fall HNO<sub>3</sub>) durch eine erniedrigte



**Abbildung 13. Beste Anpassung für normales und erhöhtes HNO<sub>3</sub>-Profil.** Das linke Bild zeigt das Best-Fit-Ergebnis für das normale HNO<sub>3</sub>-Profil, das rechte Bild entsprechend für das um 25 % erhöhte HNO<sub>3</sub>-Profil. In beiden Fällen ist der Aerosol-extinktionskoeffizient einziger variabler Parameter.

Aerosolextinktion zu kompensieren. Da aber die Änderung des Spurengasmischungsverhältnisses eine andere spektrale Charakteristik aufweist als die Änderung der Aerosolextinktion wird die Anpassung schlechter. Das Inversionsprogramm, das als Kriterium für die beste Anpassung nach der kleinsten mittleren Abweichung zwischen gemessenem und modelliertem Spektrum sucht, findet im Fall der falsch angenommenen und festgehaltenen Spurengaskonzentration einen Kompromiß, der die Strahldichten in den Lücken zwischen den Linien unterschätzt und in den Linienzentren überschätzt.

Für die Analyse der MIPAS-B-Emissionsspektren wurden deshalb die Microwindows zur Bestimmung der Aerosolextinktionskoeffizienten so ausgewählt, daß jedes Microwindow mindestens eine gut separierbare Spektrallinie eines emittierenden Spurengases enthält. Die Auswahl der Microwindows erfolgte auf der Basis simulierter Emissionsspektren. Durch Vergleich von Spektren, die für die selben Zustandsgrößen und Konzentrationsprofile sowie die gleiche Geometrie, jedoch einmal mit und einmal ohne Aerosol gerechnet wurden, kann der Einfluß des Aerosolkontinuums auf verschiedene Teile des Spektrums untersucht werden. Die ausgewählten Spektralbereiche haben typische Breiten von 1 - 3 cm<sup>-1</sup> und enthalten in der Regel mehr als eine Gasemissionslinie, um möglichst viel Information über das Aerosolkontinuum mit einzubeziehen.

Für die Ermittlung des spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten wurden in den beiden Spektralkanälen des MIPAS-B-Instrumentes insgesamt 60 Aerosol-Microwindows ausgewählt, 33 im Kanal 1 (750 - 980 cm<sup>-1</sup>) und 27 im Kanal 2 (1180 - 1380 cm<sup>-1</sup>). Die Intervalle

und die hauptsächlich beitragenden Spurengase sind in Tabelle 2 auf Seite 37 und Tabelle 3 auf Seite 38 aufgeführt.

#### 4.1.3 Bestimmung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten

Für die Ableitung der Aerosolextinktionskoeffizienten in den einzelnen zuvor definierten Microwindows kann nun genauso verfahren werden, wie bei der Bestimmung der Spurengasmischungsverhältnisse. Statt eines Aerosolmischungsverhältnisses oder einer Aerosolkonzentration wird jedoch zunächst der Aerosolextinktionskoeffizient abgeleitet. Zu einem Vertikalprofil der Aerosolextinktion gelangt man wie bei den Spurengasen durch Anwendung der Onion-Peeling-Methode. Das Profil des Aerosolextinktionskoeffizienten wird dabei jeweils nur in der Schicht über der Tangentenhöhe angepaßt und in allen anderen Schichten konstant gehalten, wobei die Ergebnisse der schon ausgewerteten oberen Tangentenhöhen übernommen werden. Für jedes der oben definierten Aerosol-Microwindows erhält man auf diese Weise ein individuelles Vertikalprofil des Aerosolextinktionskoeffizienten an der jeweiligen Frequenzstützstelle.

Die Volumenmischungsverhältnisse der in den beiden Spektralkanälen emittierenden Spurengase werden als bekannt vorausgesetzt. Die Vertikalprofile der wichtigsten Spezies wurden schon früher in einer separaten Analyse bestimmt (siehe Kapitel 2).

Für jedes der in Tabelle 2 auf Seite 37 und Tabelle 3 auf Seite 38 aufgelisteten Microwindows wurden Vertikalprofile des Aerosolextinktionskoeffizienten für die untersten sechs Tangentenhöhen (11.3 km, 14.5 km, 16.1 km, 18.9 km, 21.5 km und 25.1 km) abgeleitet. Obwohl nur für die unteren vier Tangentenhöhen erhöhte Aerosolextinktionen zu erwarten waren, wurden auch die Spektren für die Tangentenhöhen 21.5 km und 25.1 km in die Analyse mit einbezogen, um Auswirkungen durch falsche Annahmen über das Aerosolextinktionsprofil in diesen Höhen auf die Ergebnisse der unteren Tangentenhöhen auszuschließen.

Für die unteren drei Tangentenhöhen bei 11.3, 14.5 und 16.1 km ergaben sich deutlich erhöhte Aerosolextinktionskoeffizienten, während in der Tangentenhöhe bei 18.9 km nur für einen Teil der Microwindows ein signifikanter Aerosolbeitrag ermittelt wurde. Für die anderen Microwindows wurde die Nachweisgrenze für den Aerosoleinfluß in dieser Tangentenhöhe unterschritten. In den Spektren der Tangentenhöhen 21.5 km und 25.1 km konnte kein Aerosoleinfluß mehr festgestellt werden. Für die Microwindows im Bereich des Zentrums der CH<sub>4</sub>-Bande zwischen 1275 cm<sup>-1</sup> und 1325 cm<sup>-1</sup> konnten auch in den unteren vier Tangentenhöhen keine Extinktionskoeffizienten abgeleitet werden, da hier die Spektren aufgrund des starken CH<sub>4</sub>-Einflusses nicht mehr sensitiv auf Aerosolbeiträge sind.

MW - Nr.	Intervall [cm <sup>-1</sup> ]	Gasemissionsbeiträge
1	753.0 - 754.0	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub>
2	759.0 - 760.0	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub>
3	768.0 - 769.2	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, ClONO <sub>2</sub>
4	774.5 - 775.7	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub> , ClONO <sub>2</sub>
5	780.7 - 782.5	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub> , ClONO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub>
6	788.5 - 790.0	O <sub>3</sub> , ClONO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub>
7	800.3 - 802.0	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub> , ClONO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub>
8	815.0 - 816.2	CO <sub>2</sub> , ClONO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , F22
9	826.0 - 827.5	O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub> , F22
10	837.0 - 839.0	F11, O <sub>3</sub> , F22, CO <sub>2</sub>
11	844.0 - 848.0	F11, HNO <sub>3</sub> , OCS
12	858.0 - 859.5	HNO <sub>3</sub> , F11
13	867.5 - 869.0	HNO <sub>3</sub> , OCS
14	875.5 - 877.0	HNO <sub>3</sub> , F12
15	886.0 - 887.5	HNO <sub>3</sub> , F12, H <sub>2</sub> O
16	898.0 - 900.0	HNO <sub>3</sub> , F12
17	904.0 - 906.0	HNO <sub>3</sub> , F12
18	913.0 - 915.0	HNO <sub>3</sub> , F12
19	924.0 - 926.0	F12, CO <sub>2</sub>
20	928.0 - 930.0	CO <sub>2</sub>
21	934.0 - 936.0	CO <sub>2</sub>
22	938.0 - 939.5	CO <sub>2</sub>
23	941.5 - 943.5	CO <sub>2</sub>
24	945.0 - 947.0	CO <sub>2</sub>
25	950.0 - 952.0	CO <sub>2</sub>
26	953.5 - 955.5	CO <sub>2</sub>
27	957.0 - 959.0	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
28	960.5 - 962.5	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
29	964.0 - 965.5	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
30	967.0 - 968.5	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
31	970.0 - 971.5	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
32	974.0 - 975.5	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
33	976.5 - 978.0	CO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>

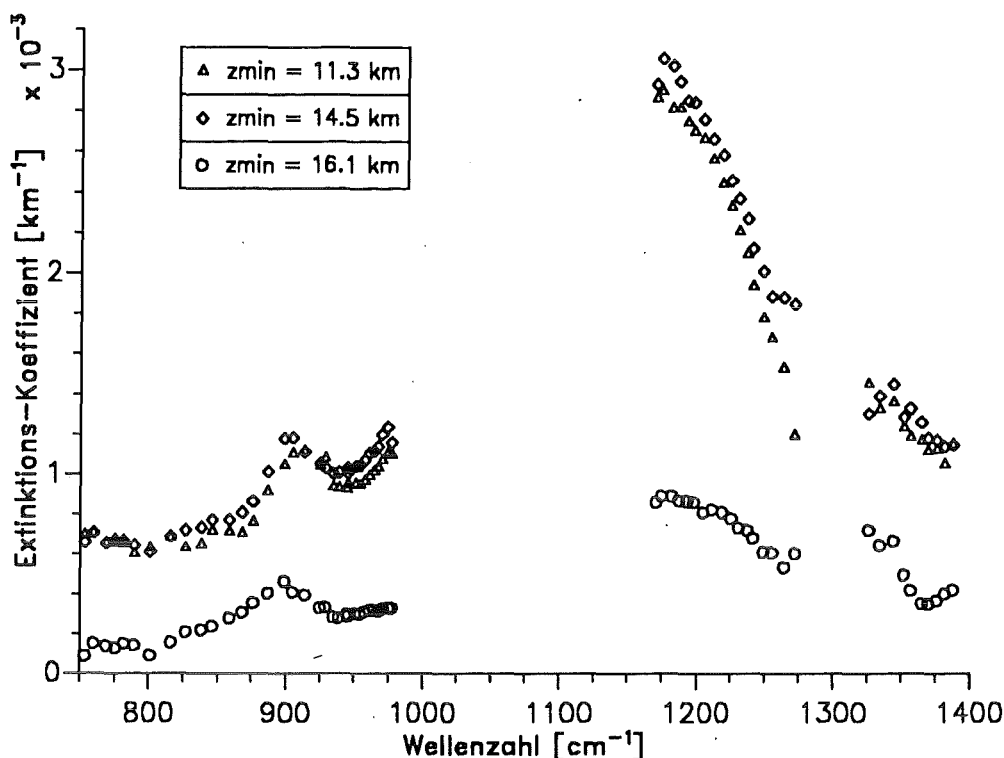
**Tabelle 2. Aerosol-Microwindows zur Ableitung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten im Kanal 1**

MW - Nr.	Intervall [cm <sup>-1</sup> ]	Gasemissionsbeiträge
1	1171.0 - 1173.0	O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O
2	1175.0 - 1178.0	O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub>
3	1182.5 - 1185.0	O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub>
4	1187.5 - 1189.0	O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub>
5	1193.5 - 1196.5	O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub>
6	1198.0 - 1201.0	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , O <sub>3</sub> , HNO <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O
7	1205.0 - 1208.0	N <sub>2</sub> O, O <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub>
8	1211.5 - 1217.0	CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O
9	1219.0 - 1221.5	CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O
10	1225.7 - 1229.0	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, HNO <sub>3</sub>
11	1225.7 - 1229.0	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
12	1237.5 - 1239.5	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
13	1241.5 - 1244.5	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , H <sub>2</sub> O
14	1249.0 - 1252.0	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
15	1255.5 - 1259.0	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
16	1264.0 - 1267.5	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub>
17	1272.0 - 1274.5	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub>
18	1278.0 - 1280.0	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , ClONO <sub>2</sub>
19	1284.0 - 1288.0	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , ClONO <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub>
20	1292.0 - 1295.0	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , ClONO <sub>2</sub>
21	1298.0 - 1300.0	CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, HNO <sub>3</sub>
22	1308.0 - 1311.0	N <sub>2</sub> O, HNO <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub>
23	1318.0 - 1321.0	HNO <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, H <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub>
24	1326.0 - 1330.0	CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O
25	1334.0 - 1337.0	CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O
26	1344.0 - 1346.5	CH <sub>4</sub> , HNO <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub>
27	1352.0 - 1355.0	CH <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub>
28	1357.0 - 1360.5	CH <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub>
29	1365.0 - 1368.0	CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
30	1370.0 - 1373.0	CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
31	1376.0 - 1380.0	CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
32	1382.0 - 1385.0	CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
33	1388.0 - 1390.0	CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O

Tabelle 3. Aerosol-Microwindows zur Ableitung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten im Kanal 2



In Abb. 14 sind die ermittelten spektralen Extinktionskoeffizienten für die tiefsten drei Tangentenhöhen als Funktion der Wellenzahl aufgetragen.



**Abbildung 14. Abgeleitete spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten als Funktion der Wellenzahl.**

Die Aerosolextinktionskoeffizienten für die verschiedenen Tangentenhöhen sind durch unterschiedliche Symbole dargestellt. Jedem Symbol entspricht das Ergebnis für ein Microwindow für eine Tangentenhöhe.

Die höchsten Aerosolextinktionskoeffizienten wurden für  $z_{\min} = 14.5 \text{ km}$  ermittelt, nur geringfügig kleinere Werte ergaben sich für  $z_{\min} = 11.3 \text{ km}$ . Oberhalb von 14.5 km nimmt die Aerosolextinktion stark ab, mit um einen Faktor 3 kleineren Werten in 16.1 km und ca. 30 mal kleineren Werten in 18.9 km (nicht abgebildet). Die dargestellten Extinktionskoeffizienten haben für alle drei Tangentenhöhen eine ähnliche spektrale Struktur mit relativen Maxima bei 900  $\text{cm}^{-1}$  und bei 1180  $\text{cm}^{-1}$ . Diese Struktur deutet bei einem Vergleich mit den in Abb. 9 auf Seite 23 gezeigten Mie-berechneten Aerosolextinktionskoeffizienten auf ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol hin (siehe auch Echle et al., 1996).

Welche Information bezüglich der Zusammensetzung und der Partikelgrößenverteilung in den ermittelten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten enthalten ist, hängt zunächst auch davon ab, wie signifikant die spektralen Strukturen wirklich sind. Deshalb wird im folgenden Abschnitt auf die Fehlerquellen bei der Bestimmung der Extinktionskoeffizienten eingegangen.

#### 4.1.4 Fehlerabschätzung

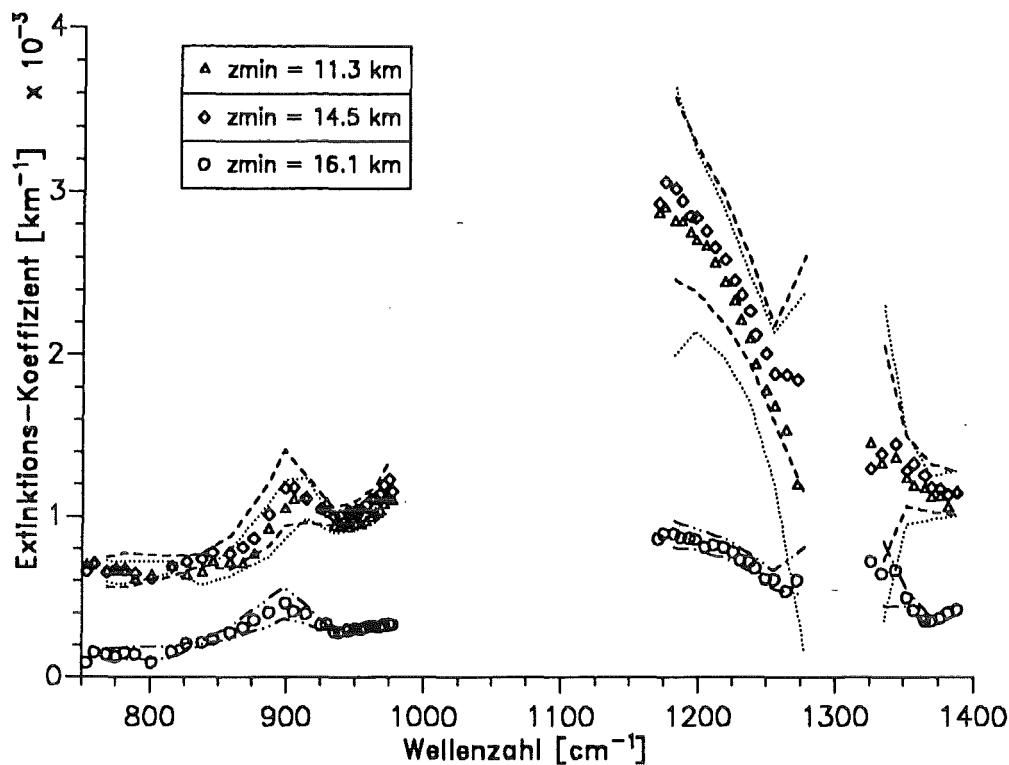
Für die Ableitung der in Abb. 14 abgebildeten Aerosolextinktionskoeffizienten wurde davon ausgegangen, daß sowohl atmosphärischen Parameter (Vertikalprofile der relevanten Spurengase und der Temperatur) entlang des optischen Wegs, als auch die Blickrichtung während der Messung bekannt sind. Diese wurden aus den Spektren durch Analyse der Emissionslinien der Spurengase abgeleitet (siehe v. Clarmann et al., 1993, 1995; Wetzel et al., 1995). Aufgrund von spektralem Rauschen, ungenauer Information über die Beobachtungsgeometrie und das Temperaturprofil, sowie der beschränkten Genauigkeit von spektroskopischen Liniendaten waren die abgeleiteten Spurengasprofile mit einem Fehler behaftet. Dieser hängt im einzelnen von der Tangentenhöhe und vom jeweiligen Spurengas ab und ist als  $1-\sigma$  Fehler in den oben genannten Veröffentlichungen angegeben.

Zur Untersuchung der Frage, wie sich Fehler in den Eingangsparametern auf die Genauigkeit der Bestimmung der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten auswirkt, wurden Sensitivitätsrechnungen durchgeführt. Dabei wurde durch Variation einzelner Atmosphärenparameter deren Sensitivität in den einzelnen Microwindows bestimmt. Folgende Fehlerquellen wurden berücksichtigt:

- Fehler in den Mischungsverhältnissen von  $O_3$ ,  $H_2O$ ,  $CH_4$ ,  $N_2O$ ,  $HNO_3$ ,  $N_2O_5$ ,  $ClONO_2$ , FCKW-11, FCKW-12, FCKW-22,  $CCl_4$  und  $CF_4$
- Fehler im Temperaturprofil
- Fehler in der Tangentenhöhe (d.h. dem optischen Weg durch die Atmosphäre)

Auf der Basis der Sensitivitätsrechnungen und Testretrievals sowie der  $1-\sigma$  Fehler der Eingangsparameter wurde der resultierende Fehler der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten in den einzelnen Microwindows für die drei untersten Tangentenhöhen bestimmt.

Die ermittelten Fehlerbereiche der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten sind in Abb. 15 für die drei Tangentenhöhen dargestellt. Während sich Fehler im Temperaturprofil und in der Tangentenhöhe, wenn auch in unterschiedlichem Ausmaß, auf alle Aerosol-Microwindows auswirken, sind die Microwindows jeweils nur von den Fehlern derjenigen Spurengase beeinflusst, deren spektrale Signaturen in den Microwindows enthalten sind (siehe Tabelle 2 auf Seite 37 und Tabelle 3 auf Seite 38). Die kleinsten Fehler erhält man erwartungsgemäß in den Spektralbereichen, in denen der Anteil der Spurengasemission am geringsten ist, d.h. in der  $CO_2$ -Laserbande um  $950\text{ cm}^{-1}$  und im Bereich um  $830\text{ cm}^{-1}$ . Insgesamt sind die ermittelten relativen Fehler im Kanal 1 ( $750 - 980\text{ cm}^{-1}$ ) deutlich geringer als im Kanal 2 ( $1180 - 1380\text{ cm}^{-1}$ ). Dies kann durch den größeren Störeinfluß der Spurengase im Kanal 2 erklärt werden. Dort sind es vor allem  $CH_4$ - und  $N_2O$ -Linien, die die Ermittlung der Aerosolextinktionskoeffizienten stören. Im Bereich des Zentrums der  $CH_4$ -Bande um  $1300\text{ cm}^{-1}$  werden die Fehler so groß, daß in diesem Bereich keine gesicherte Aussage über die Aerosolextinktion gemacht wer-



**Abbildung 15. Spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten und deren  $1\text{-}\sigma$  Fehlerbereiche.** Die abgeleiteten  $1\text{-}\sigma$  Fehlerbereiche für die verschiedenen Tangentenhöhen sind durch unterschiedliche Linientypen angezeigt: gepunktet: 11.3 km, gestrichelt: 14.5 km, strichpunktiert: 16.1 km.

den kann. Der Einfluß der  $\text{CH}_4$ - und  $\text{N}_2\text{O}$ -Linien nimmt aufgrund der stark mit der Höhe abnehmenden Mischungsverhältnisse für steigende Tangentenhöhen ab, so daß sich in 16.1 km für beide Kanäle ähnliche relative Fehler ergeben.

Aufgrund ähnlicher Fehlerfortpflanzungseffekte bei Microwindows, die Signaturen ein und desselben Spurengases enthalten, sind die Fehler zwischen bestimmten Microwindows korreliert. Die Korrelationen sind für benachbarte Microwindows, die von den gleichen Spurengasen beeinflusst werden am stärksten und nehmen in der Regel mit zunehmendem spektralem Abstand der Microwindows ab. Wegen dieser Korrelationen zwischen den Fehlern der Aerosolextinktionskoeffizienten in den einzelnen Microwindows, liegen fast alle abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten innerhalb des  $1\text{-}\sigma$  Fehlerbereichs um eine gedachte schwach wellenzahlabhängige Ausgleichskurve, der für unkorrelierte Fehler definitionsgemäß nur 67 % der Datenpunkte enthalten dürfte. Eine Angabe des unkorrelierten Fehleranteils ist demnach empirisch möglich, indem man den angegebenen Fehlerbereich soweit verringert, daß nur noch  $2/3$  der Datenpunkte im Fehlerbereich um eine gedachte Ausgleichskurve enthalten sind.

## 4.2 Bestimmung von Aerosolparametern aus spektralen Aerosolextinktionen

Die im vorhergehenden Abschnitt ermittelten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten zeigen eine spektrale Struktur, die auf ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol hindeutet. Dies bedeutet, daß die ermittelten Aerosolextinktionskoeffizienten Information über die Zusammensetzung des Aerosols enthalten. Desweiteren wurde schon in Kapitel 3 gezeigt, daß der Aerosolextinktionskoeffizient auch sensitiv auf die Größenverteilung ist (siehe Abb. 9 auf Seite 23). In diesem Abschnitt wird deshalb untersucht, welche Information über das Aerosol in den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten enthalten ist und wie man aus den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten diese Information extrahieren kann.

Wir hatten schon am Anfang dieses Kapitels darauf hingedeutet, daß das vorliegende Inversionsproblem die Inversion der Bestimmungsgleichung für den Volumenextinktionskoeffizienten aus der Mie-Theorie erfordert. Im folgenden soll nun die Mie-Theorie speziell für die Anwendung auf stratosphärische Aerosolpartikel im mittleren Infrarot näher beleuchtet werden.

### 4.2.1 Rayleigh-Limit der Mie-Theorie

Wie in Kapitel 3 schon ausgeführt wurde, beschreibt die Mie-Theorie die Wechselwirkung von elektromagnetischer Strahlung mit festen oder flüssigen kugelförmigen Teilchen, deren Radien von der gleichen Größenordnung sind wie die Wellenlänge der Strahlung. In unserem Fall haben wir es mit Infrarotstrahlung im Wellenlängenbereich von  $7 \mu\text{m}$  bis  $13 \mu\text{m}$  (das entspricht dem Wellenzahlbereich  $750 - 1400 \text{ cm}^{-1}$ ) zu tun, die mit Aerosolteilchen im Größenbereich von  $0.05 \mu\text{m}$  für stratosphärische Hintergrundbedingungen und bis max.  $3 \mu\text{m}$  für extreme vulkanische Bedingungen wechselwirken. Die Teilchenradien der in Frage kommenden Aerosole sind also kleiner als die Wellenlänge, für das stratosphärische Hintergrund-Aerosol sind sie sogar um ca. zwei Größenordnungen kleiner als die Wellenlänge.

Für Teilchen, deren Radien kleiner als die Wellenlänge sind, gilt das sogenannte *Rayleigh-Limit* der Mie-Theorie, für das besondere Beziehungen zwischen den optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften des Aerosols bestehen. Insbesondere gilt für stratosphärische Aerosolteilchen, deren Absorption im mittleren Infrarot nicht vernachlässigbar ist, daß die Aerosolextinktion proportional zum Teilchenvolumen ist (siehe Bohren and Huffman, 1983):

$$\sigma_{\text{ex}} \sim V \quad [4.1]$$

Diese Beziehung hat, wie wir weiter unten sehen werden, wichtige Konsequenzen für die Frage, welche Aerosolparameter aus den Extinktionskoeffizienten abgeleitet werden können.

Zunächst soll nun für den hier betrachteten Spektralbereich abgeschätzt werden, für welche Teilchenradien die Proportionalität zwischen Extinktion und Teilchenvolumen vorliegt. Für ein einzelnes kugelförmiges Teilchen mit dem Radius  $r$  ergibt sich die Beziehung [4.1] genau dann, wenn gilt:

$$\frac{q_{ex}(m, r, \lambda)}{\frac{4\pi}{3} r^3} \text{ ist unabhängig von } r \quad [4.2]$$

In der Praxis hat man es jedoch immer mit einer Vielzahl von Teilchen mit unterschiedlichen Radien zu tun von denen jedes zur Gesamtextinktion beiträgt. Für diesen Fall betrachten wir den Volumenextinktionskoeffizienten, wie er sich aus der Mie-Theorie für eine Teilchenpolydispersion mit einer Größenverteilung  $n(r)$  durch Kombination von Gl. [3.5] und [3.6] unter Berücksichtigung von [3.7] ergibt:

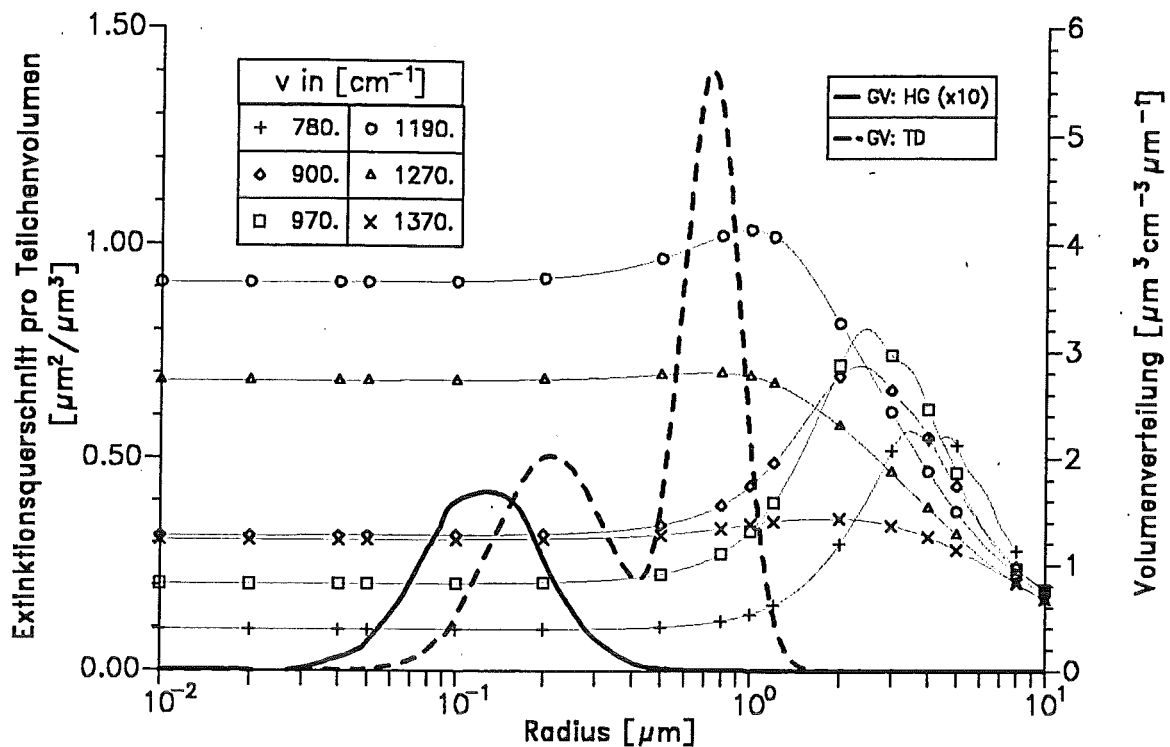
$$\sigma_{ex}(\lambda) = \int_0^{\infty} q_{ex}(m, r, \lambda) n(r) dr \quad [4.3]$$

Wir erweitern den Integranden nun mit dem Teilchenvolumen unter der Annahme von kugelförmigen Teilchen ( $V(r) = \frac{4\pi}{3} r^3$ ) und erhalten:

$$\sigma_{ex}(\lambda) = \int_0^{\infty} \left[ \frac{q_{ex}(m, r, \lambda)}{\frac{4\pi}{3} r^3} \right] \left[ \frac{4\pi}{3} r^3 n(r) \right] dr \quad [4.4]$$

In der ersten Klammer steht nun genau der Ausdruck aus Gleichung [4.2], während der zweite Klammersausdruck das Volumen aller Teilchen im Radiusintervall  $(r, r + dr)$  beschreibt.

In Abb. 16 auf Seite 44 ist das Verhältnis von Extinktionsquerschnitt zu Teilchenvolumen (Gl. [4.2]) für 6 verschiedene Wellenzahlen, die den Frequenz-Bereich des MIPAS-B-Instruments überdecken, als Funktion des Teilchenradius aufgetragen. Den Mie-Rechnungen liegt ein  $H_2SO_4$ -Aerosol mit 75 %  $H_2SO_4$ -Gewichtsanteil zugrunde. Bei sehr kleinen Teilchenradien ist der Extinktionsquerschnitt pro Teilchenvolumen unabhängig vom Teilchenradius. Ab einem bestimmten Teilchenradius, der durch die Frequenz bestimmt ist, wird die Funktion abhängig vom Radius und zwar unterschiedlich für verschiedene Frequenzen. Für die dargestellten Wellenzahlen tritt dieser Übergang bei Teilchenradien zwischen  $0.2 \mu m$  und  $0.5 \mu m$  ein. Dieser Grenzradius definiert den Teilchenradienbereich, in dem die Extinktion exakt proportional zum Teilchenvolumen ist. Allerdings zeigt die Abbildung, daß der Funktionsverlauf des Extinktionsquerschnitts pro Teilchen-



**Abbildung 16. Abschätzung zur Gültigkeit des Rayleigh-Limits.** Dargestellt ist die durch Gl. [4.2] gegebene Funktion, aufgetragen über den Teilchenradius bei 6 verschiedenen Wellenzahlen (gekennzeichnet durch unterschiedliche Symbole) für ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol mit 75 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsanteil (gepunktete Linien, Skala gegeben durch linke y-Achse). Gleichzeitig sind zwei Beispiele stratosphärischer Volumen-Größenverteilungen abgebildet (HG: Hintergrund-Aerosol, zur Verdeutlichung um Faktor 10 gestreckt, TD: vulkanische bimodale Größenverteilung nach T. Deshler (1994), siehe auch Abb. 7 auf Seite 17).

volumen oberhalb des Grenzzadius zunächst nur schwach mit dem Teilchenradius variiert, so daß der Gültigkeitsbereich des Rayleigh-Limits je nach Frequenz noch auf größere Teilchenradien von 0.4 bis 0.7  $\mu\text{m}$  ausgedehnt werden kann.

Zur Verdeutlichung, was diese Aussage für eine Partikelpolydispersion bedeutet, wurden in Abb. 16 die zwei Volumen-Größenverteilungen, die schon in Kapitel 3 verwendet wurden, eingezeichnet. Der Volumenextinktionskoeffizient an der Frequenzstützstelle  $\nu$  wird laut Gl. [4.4] berechnet als Integral über alle Teilchenradien des Produkts des Extinktionsquerschnitts pro Teilchenvolumen (gepunktete Linien in Abb. 16) und der Volumen-Größenverteilung (durchgezogene oder gestrichelte Linie). Die Volumen-Größenverteilung wirkt als eine Wichtung der Beiträge der Extinktion der Einzelteilchen zur Gesamttextinktion. Wenn nun das Maximum der Volumen-Größenverteilung in dem Radiusbereich liegt, in dem der Extinktionsquerschnitt pro Teilchenvolumen unabhängig vom Radius ist (dies ist z.B. für die stratosphärische Hintergrundverteilung der Fall), so ist der resultierende Volumenextinktionskoeffizient nur von der Fläche unter der Größenverteilungskurve, d.h. vom Gesamtvolumen abhängig, nicht jedoch von der Form der Größenverteilung. Nur dann, wenn das Maximum der Volumen-Größenverteilung bei Ra-

dien außerhalb des Rayleigh-Limits liegt (in unserem Fall größer als ca.  $0.5 \mu\text{m}$ ), enthält der Volumenextinktionskoeffizient auch Information über die Form der Größenverteilung. Dies sollte für die vulkanische Größenverteilung von Deshler (1994), gestrichelte Linie in Abb. 16 auf Seite 44, zumindest für den Mode mit den größeren Teilchen zutreffen.

Für die Bestimmung von Parametern einer Log-Normal-Größenverteilung aus spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten bedeutet dies, daß eine Aussage über die einzelnen Parameter nur getroffen werden kann, wenn ein signifikanter Anteil der Extinktion von Teilchen stammt, für die das Rayleigh-Limit nicht mehr zutrifft. Falls dies nicht der Fall ist, kann nur das Gesamtvolumen der Größenverteilung ermittelt werden.

#### 4.2.2 Inversionsmethode

Gleichung [4.3] ist im folgenden in einer erweiterten Form gegeben, die auch Mischungen verschiedener Aerosoltypen und verschiedener Moden zuläßt:

$$\sigma_{ex}(\lambda) = \sum_{i=1}^l \int_0^{\infty} q_{ex}(m_i, r, \lambda) n(r, r_i, s_i, N_i) dr \quad [4.5]$$

Die Summation erfolgt über die Moden einer Log-Normal-Verteilung (siehe Gl. [3.1]). Diese Form des Volumenextinktionskoeffizienten macht deutlich, daß sich Mischungen verschiedener Aerosoltypen mit verschiedenen Brechungsindizes  $m_i$  oder verschiedener Moden einer Log-Normal-Verteilung mit identischen  $m_i$ 's durch einfache Addition der einzelnen Volumenextinktionskoeffizienten ergeben.

Gegeben sind die aus den Messungen abgeleiteten Volumenextinktionskoeffizienten  $\sigma_{ex,m,mess}$  für ca. 50 Wellenzahlstützstellen, die den Positionen der Microwindows im Wellenzahlbereich von 750 bis  $1380 \text{ cm}^{-1}$  entsprechen (siehe Abb. 14 auf Seite 39). Aus diesen sollen die Parameter der Log-Normal-Verteilung  $N_i$ ,  $r_i$ , und  $s_i$  und die Zusammensetzung, die durch den komplexen Brechungsindex  $m$  gegeben ist, abgeleitet werden. Für das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol liegen Brechungsindizes im infraroten Spektralbereich für sechs verschiedene  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozentwerte zwischen 25 % und 95 % vor (Palmer and Williams, 1975). In diesem Fall ist es also möglich das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Mischungsverhältnis in der Lösung als anzupassenden Parameter zu wählen, indem die Brechungsindizes zwischen den diskreten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozenten interpoliert werden. Für andere Aerosoltypen (z.B. verschiedene Formen von PSC-Teilchen) können nur Mischungen durch Wichtung der jeweiligen Größenverteilung realisiert werden.

Aus ca. 50 Gleichungen der Form [4.5] sollen also 3 - 4 Aerosolparameter (für eine monomodale Größenverteilung) oder 5 - 8 Aerosolparameter (für eine bimodale Größen-

verteilung) abgeleitet werden. Da die Zahl der Gleichungen größer ist als die Anzahl der Unbekannten, handelt es sich um ein überdeterminiertes Inversionsproblem. Das bedeutet nicht zwangsweise, daß für das Inversionsproblem eine eindeutige Lösung existiert, denn es wird sich zeigen, daß viele der Gleichungen linear abhängig sind.

Die Gleichung [4.5] ist im allgemeinen nicht analytisch sondern nur numerisch-iterativ invertierbar. Dabei werden aus Schätzwerten für die Aerosolparameter spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten simuliert und mit den aus den Strahldichtespektren ermittelten Aerosolextinktionskoeffizienten verglichen. Aus den Differenzen der spektralen Extinktionskoeffizienten werden neue Aerosolparameter gewonnen, die im nächsten Iterationsschritt als verbesserte Schätzwerte für die Simulationsrechnungen dienen. Als Kriterium für die Güte der Anpassung dient die Wurzel der mittleren quadratischen Abweichung (RMS<sup>17</sup>) der gemessenen und berechneten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten:

$$\text{RMS} = \sqrt{\frac{1}{M} \sum_{m=1}^M (\sigma_{ex,m,mess} - \sigma_{ex,m,rech})^2} \quad [4.6]$$

Die Summation erfolgt über die Anzahl der Microwindows, für die die abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten bei der Bestimmung der Aerosolparameter berücksichtigt werden.

Zur Minimierung des RMS-Wertes wurde das Verfahren von Levenberg (1944) und Marquardt (1963) gewählt. Bei diesem Verfahren wird das folgende K-dimensionale Gleichungssystem gelöst:

$$\mathbf{D} = (\mathbf{A}^T \mathbf{A} + \lambda_M \mathbf{E})^{-1} \mathbf{A}^T \Delta \mathbf{S} \quad [4.7]$$

mit:

- A** Jacobi-Matrix:  $A_{m,k} = \frac{\partial \sigma_{ex,m}}{\partial P_k}$  mit  $m = 1, \dots, M$  und  $k = 1, \dots, K$
- A<sup>T</sup>** transponierte Matrix **A**
- D** Vektor der Parameteränderungen ( $D_1, \dots, D_K$ )
- E** Einheitsmatrix
- $P_k$  k-ter Parameter
- M** Anzahl der Meßwerte (Extinktionskoeffizienten)
- K** Anzahl der anzupassenden Parameter
- ΔS** M-dimensionaler Differenzvektor der gemessenen ( $\sigma_{ex,m,mess}$ ) und berechneten ( $\sigma_{ex,m,rech}$ ) spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten

---

<sup>17</sup> Root Mean Square



$\lambda_M$  Marquardt-Parameter

Das Levenberg-Marquardt-Verfahren zeichnet sich dadurch aus, daß es auch bei ungünstigen Startwerten der Parameter noch zum Ziel führt. Im Prinzip besteht das Levenberg-Marquardt-Verfahren aus einer Interpolation zwischen einem Gradienten-Verfahren, bei dem das Minimum des RMS-Wertes in der Richtung des negativen Gradienten gesucht wird, und einem Gauß-Newton-Verfahren, für das als Bedingung für eine minimale RMS-Abweichung deren partielle Ableitungen nach den Parametern Null gesetzt werden. Der Marquardt-Parameter  $\lambda_M$ , eine vom Benutzer vorgegebene positive reelle Zahl, bestimmt den Lösungsweg der Anpassung. Er verhindert bei großer Entfernung vom Minimum zu große Änderungen eines Parameters innerhalb eines Iterationsschrittes, für die lineare Extrapolationen unangemessen wären. Für große  $\lambda_M$  geht die Methode in das Gradienten-Verfahren über, während für kleine  $\lambda_M$  nach dem Minimumprinzip vorgegangen wird. Bei jeder Iteration wird  $\lambda_M$  entweder vergrößert oder verkleinert, je nachdem ob sich die RMS-Abweichung im Vergleich zum vorhergehenden Iterationsschritt verschlechtert oder verbessert hat.

Aus dem Vektor der Parameteränderungen **D** lassen sich bei jedem Iterationsschritt verbesserte Schätzwerte der anzupassenden Parameter ermitteln:

$$\mathbf{P}^j = \mathbf{P}^{j-1} + \mathbf{D} \quad [4.8]$$

mit:

**P** Vektor der anzupassenden Parameter ( $P_1, \dots, P_K$ )

*j* Zählindex für Iterationsschritte

Das in Gleichung [4.7] definierte Anpassungsverfahren hat den Nachteil, daß jeder einzelne Wert der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten mit dem selben Gewicht zur Lösung beiträgt. Für die spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten wurden in Abschnitt 4.1.4 jedoch Fehlerbalken bestimmt, die zeigen, daß die Zuverlässigkeit der Information über die Aerosolextinktion sich von Microwindow zu Microwindow ändert und daß die Fehler der einzelnen Microwindows korreliert sind. Bei der Suche nach der optimalen Lösung müssen deshalb die zuverlässigeren Extinktionswerte mehr gewichtet werden als diejenigen mit größerem Fehlerbalken, und auch die Korrelationen zwischen den einzelnen Microwindows müssen berücksichtigt werden. Dies erreicht man dadurch, daß man in Gleichung [4.7] eine ( $M \times M$ )-dimensionale Fehlermatrix **F**, die sogenannte *Varianz-Kovarianz-Matrix*, einfügt, auf deren Hauptdiagonalen die Quadrate der Standardabweichungen der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten und außerhalb der Hauptdiagonalen die Korrelationen der Fehler zwischen den einzelnen Microwindows stehen (siehe z.B. Clifford, 1973):

$$\mathbf{D} = (\mathbf{A}^T \mathbf{F}^{-1} \mathbf{A} + \lambda \mathbf{E})^{-1} \mathbf{A}^T \mathbf{F}^{-1} \Delta \mathbf{S} \quad [4.9]$$

mit:

- F** Fehler-Matrix:  $F_{m,m} = \sigma_m^2$  und  $F_{m,n} = \text{cov}(m,n)$  mit  $m,n = 1, \dots, M, m \neq n$   
 $\sigma_m$  Standardabweichungen der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten  
 $\text{cov}(m,n)$  Kovarianz der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten  $m$  und  $n$

Statt des in Gleichung [4.6] definierten ungewichteten RMS-Wertes muß in diesem Fall ein entsprechend gewichteter  $\text{RMS}_w$ -Wert minimiert werden:

$$\text{RMS}_w = \sqrt{\Delta \mathbf{S}^T \mathbf{F}^{-1} \Delta \mathbf{S}} \quad [4.10]$$

Der so definierte Least-Squares-Algorithmus hat den Vorteil, daß er implizit schon die Fehlerrechnung für die abzuleitenden Parameter enthält. Die  $(K \times K)$ -dimensionale Varianz-Kovarianz-Matrix **G** der abzuleitenden Parameter ergibt sich aus der Formel

$$\mathbf{G} = (\mathbf{A}^T \mathbf{F}^{-1} \mathbf{A})^{-1} \quad [4.11]$$

die schon in Gleichung [4.9] berechnet wird. Auf der Hauptdiagonalen der Matrix **G** stehen die Quadrate der Standardabweichungen der einzelnen Parameter, während außerhalb der Hauptdiagonalen die Kovarianzen zwischen den Parametern stehen. Der kritische Punkt bei dem Verfahren ist die Initialisierung der Varianz-Kovarianz-Matrix **F** der spektralen Extinktionen, die eine genaue Kenntnis der Korrelationen zwischen den Extinktionen der einzelnen Microwindows voraussetzt, in Abschnitt 4.1.4 aber auf eine quasi empirische Art abgeleitet wurde.

### 4.2.3 Eindeutigkeit des Inversionsproblems

Im Abschnitt 4.2.1 hatten wir gesehen, daß der Aerosolextinktionskoeffizient im Rayleigh-Limit nur vom Gesamtvolumen der Größenverteilung, nicht jedoch von deren Form abhängt. Für eine Log-Normal-Verteilung läßt sich das Integral der Volumenverteilung über alle Teilchenradien analytisch lösen (Apelblat, 1983, S. 27) und ergibt für eine monomodale Verteilung den folgenden Ausdruck:

$$V(r_1, s_1, N_1) = \frac{4\pi}{3} N_1 r_1^3 \exp\left[\frac{9}{2} s_1^2\right] \quad [4.12]$$

Die Gleichung zeigt, daß eine feste Volumendichte durch verschiedene Kombinationen der Parameter  $r_1$ ,  $s_1$  und  $N_1$  erreicht werden kann. Für das Inversionsproblem heißt dies, daß im Rayleigh-Limit keine eindeutige Lösung für die einzelnen Parameter existiert. Alle Parameterkombinationen, die dem Rayleigh-Limit entsprechen und das gleiche Volumen ergeben, sind gleichwertige Lösungen.

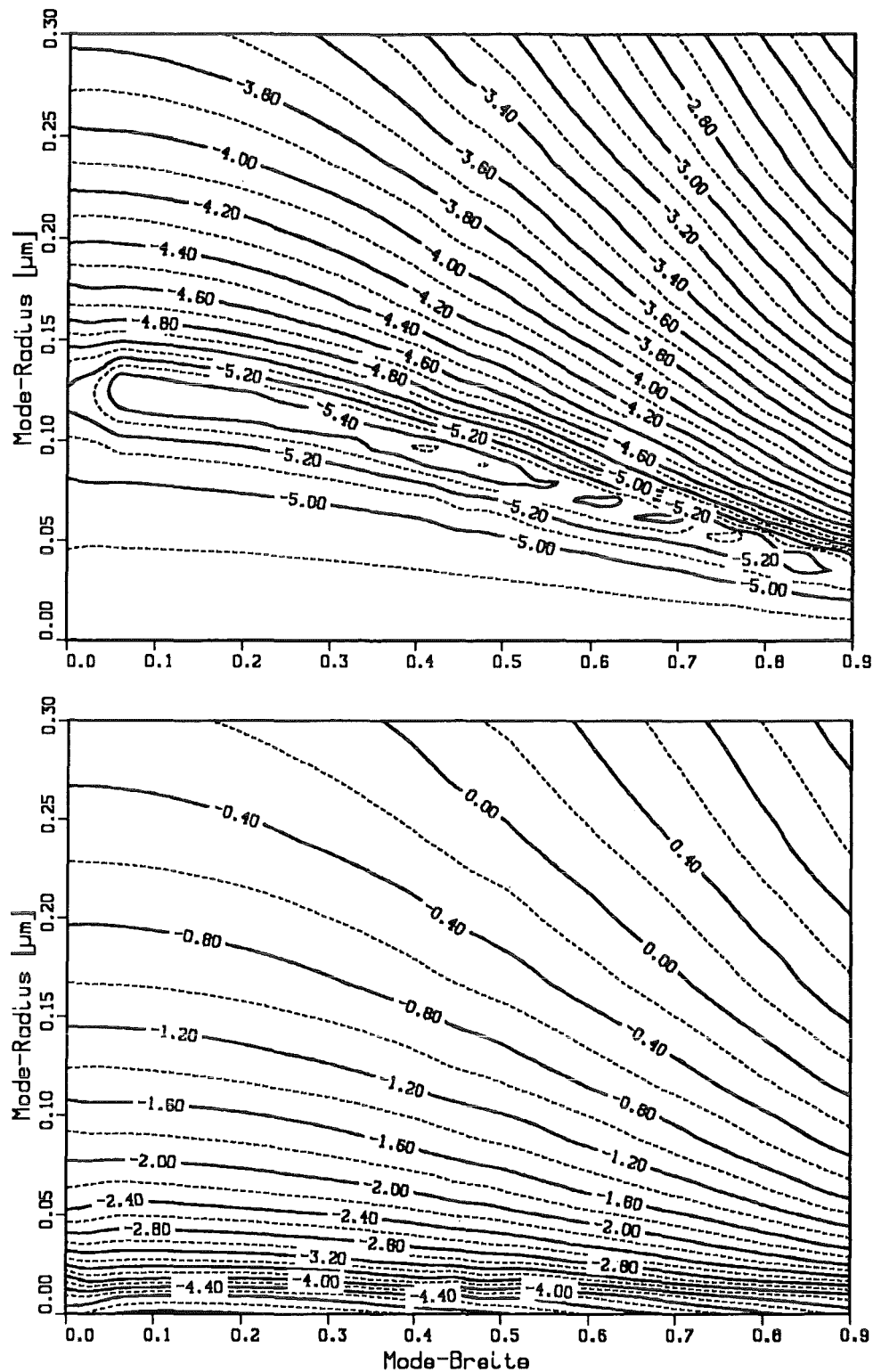


Abbildung 17. Korrelationen zwischen Mode-Breite und Mode-Radius für eine Hintergrund-Größenverteilung. Die obere Abbildung zeigt die 10-er Logarithmen der RMS-Abweichung der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten zwischen einer Referenzgrößenverteilung und verschiedenen Kombinationen des Mode-Radius und der Mode-Breite. Die untere Abbildung zeigt die 10-er Logarithmen der entsprechenden Volumendichten (Interpretation siehe Text).

Bei der Inversion von Gleichung [4.5] werden im Rayleigh-Limit also charakteristische Korrelationen zwischen den einzelnen Parametern der Größenverteilung auftreten. Abb. 17 auf Seite 49 zeigt eine derartige Korrelation im Parameterraum der Mode-Breite  $s_1$  und des Mode-Radius  $r_1$  für die stratosphärische Hintergrundverteilung. In der oberen Abbildung sind die 10-er Logarithmen der RMS-Werte (im Sinne von Gl. [4.6]) zwischen simulierten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten an den Referenzparametern  $r_1 = 0.08 \mu\text{m}$  und  $s_1 = 0.47$  und simulierten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten an beliebigen Stellen des  $(s_1, r_1)$ -Parameterraums aufgetragen. Die Teilchenzahldichte wurde für alle Rechnungen auf dem Referenzwert von  $N_1 = 5.0 \text{ cm}^{-3}$  festgehalten. In der unteren Abbildung sind die 10-er Logarithmen der resultierenden Volumendichten aufgetragen. Die abgebildeten RMS-Abweichungen zeigen außer dem Minimum am Referenzwert weitere Minima, die alle auf einer Linie liegen und ein Minimumtal quer über die Parameterfläche bilden. Es läßt sich aus der Abbildung nicht eindeutig ablesen, welche Parameterkombination dem Referenzwert entspricht (die scheinbar getrennten Minima im schmalen Tal sind ein Artefakt der Interpolation, die eine höhere Auflösung der Datenpunkte suggeriert). Die Verteilung der RMS-Minima zeigt eine Antikorrelation zwischen Mode-Radius und Mode-Breite. Eine erhöhte Mode-Breite kann bei festgehaltener Teilchenzahldichte durch einen erniedrigten Mode-Radius kompensiert werden. Der Vergleich mit den entsprechenden Volumendichten (untere Abbildung) zeigt, daß die Parameterkombinationen mit minimaler RMS-Abweichung alle der gleichen Volumendichte entsprechen. Die Antikorrelation zwischen Mode-Radius und Mode-Breite entspricht also genau einer Funktion  $r_1(s_1)$ , die man bei festgehaltenem Volumen und konstanter Teilchenzahldichte durch Auflösen von Gl. [4.12] nach  $r_1$  erhält.

Entsprechende Korrelationen existieren zwischen allen Parametern der Log-Normal-Größenverteilung. Im Rayleigh-Limit kann also keine Aussage über die einzelnen Parameter der Größenverteilung getroffen werden. Als einzige, die Größenverteilung charakterisierende Größe ist die Volumendichte eindeutig ableitbar.

In Abb. 18 ist die entsprechende Situation für eine vulkanische Größenverteilung dargestellt. Auch hier wurden für verschiedene Kombinationen von Mode-Breite und Mode-Radius die 10-er Logarithmen der RMS-Werte (obere Abbildung) und der entsprechenden Volumendichte berechnet. Der Referenzwert liegt in diesem Fall bei  $s_1 = 0.47$ ,  $r_1 = 0.72 \mu\text{m}$  und  $N_1 = 4 \text{ cm}^{-3}$ . Dies entspricht dem Mode mit den großen Teilchen einer Log-Normal-Verteilung, die von Hofmann und Rosen (1983) einen Monat nach Ausbruch des mexikanischen Vulkans El Chichón gemessen wurde. Auch in diesem Fall erkennt man eine Antikorrelation zwischen Mode-Breite und Mode-Radius, gegeben durch ein Minimumtal in der Parameterfläche. Die Minima entlang des Minimumtals sind jedoch nun mit zunehmender Entfernung vom Referenzwert weniger ausgeprägt. Dies bedeutet, daß für die zugrundeliegende Größenverteilung der spektrale Extinktionskoeffizient nicht nur von der Volumendichte abhängt, sondern auch Information über die Form der Größenverteilung enthält. Wie gut sich die einzelnen Parameter der Größenverteilung bestimmen lassen, hängt entscheidend davon ab, welcher Anteil

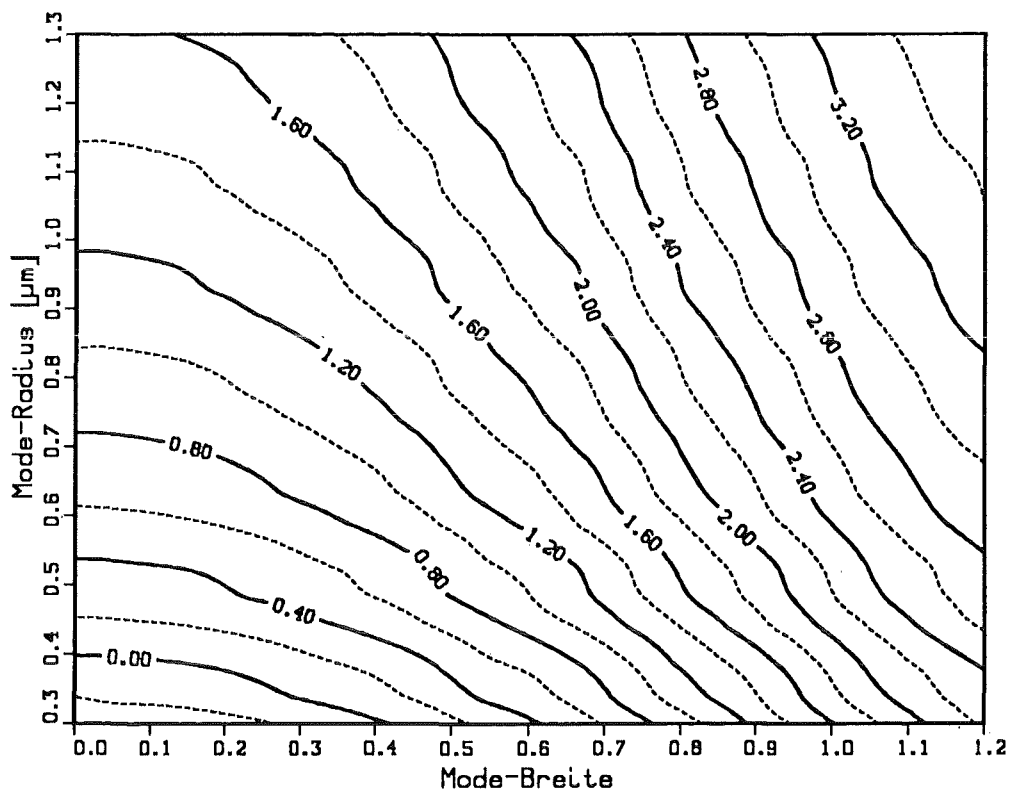
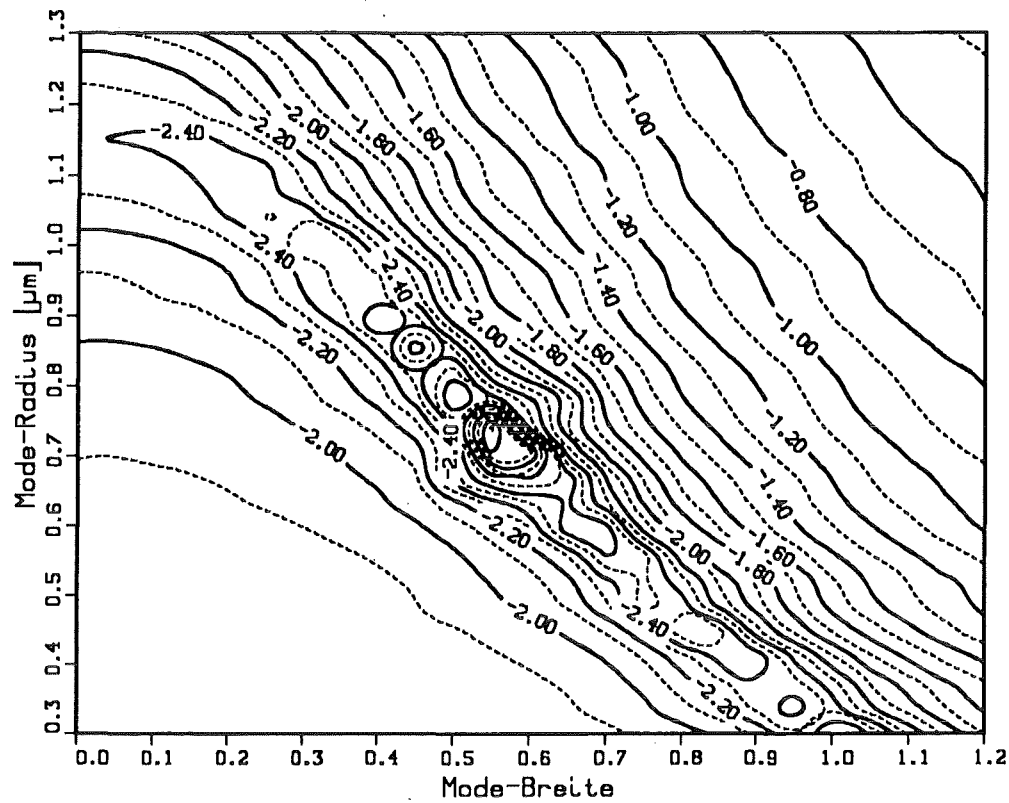


Abbildung 18. Korrelationen zwischen Mode-Breite und Mode-Radius für eine vulkanische Größenverteilung. (Beschreibung analog zu Abb. 17 auf Seite 49).

der beteiligten Teilchen außerhalb des Rayleigh-Limits liegt (siehe Abb. 16 auf Seite 44).

Neben der Größenverteilung bestimmt auch die Zusammensetzung den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten. Für ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol kann die Zusammensetzung als Funktion der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsanteile (in %) angegeben werden. Ob die Zusammensetzung des  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosols aus den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten ermittelt werden kann, hängt davon ab, ob es auch Korrelationen zwischen Parametern der Größenverteilung und der Änderung der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozentanteile geben kann.

Abb. 19 zeigt die 10-er Logarithmen der RMS-Abweichungen für variable Mode-Breiten und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozentanteile für die stratosphärische Hintergrundverteilung (obere Abbildung) und für die vulkanische Größenverteilung (untere Abbildung). Für beide Fälle liegt der Referenzwert der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozentanteile bei 75 %. Die Beispiele zeigen, daß unabhängig von der Größenverteilung der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozentanteil eine eindeutig bestimmbare Größe ist. Die Charakteristik der Änderung der spektralen Extinktion durch die Änderung der Zusammensetzung sind verschieden von denen durch Änderung eines Parameters der Größenverteilung. Korrelationen zwischen Parametern der Größenverteilung und des  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Anteils wurden nur in sehr begrenztem Ausmaß beobachtet.

Die hier gezeigten Beispiele für die Korrelation der einzelnen Parameter der Log-Normal-Größenverteilung beruhen auf simulierten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten. Sie berücksichtigten deshalb nicht die zusätzlichen Effekte, die aufgrund der Unsicherheiten der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten die Eindeutigkeit der Lösung beeinflussen. Bei der Inversion von Gleichung [4.5] müssen die Fehler der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten berücksichtigt werden, wie dies in Abschnitt 4.2.2 beschrieben wurde. Aufgrund dieser fehlerbehafteten Extinktionen und den starken Korrelationen zwischen den einzelnen Parametern der Log-Normal-Verteilung (auch wenn man sich am Rande oder außerhalb des Rayleigh-Limits der Mie-Theorie befindet) sind keine eindeutigen Aussagen über die einzelnen Parameter der Größenverteilung zu erwarten. Nur die chemische Zusammensetzung und die Volumendichte des Aerosols sind eindeutig ableitbar.

#### 4.2.4 Abgeleitete Aerosolparameter

Für die Bestimmung der mikrophysikalischen Aerosolparameter aus den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten wurden folgende Annahmen gemacht:

1. Das Aerosol besteht aus flüssigen  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen und enthält keine anderen chemischen Komponenten. Dann ist es möglich, den einzigen, die Zusammensetzung charakterisierenden Parameter, nämlich den  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsanteil, anzupassen.
2. Die Aerosolteilchen haben kugelförmige Gestalt. In diesem Fall bildet die Mie-Theorie die Basis für die Bestimmung der Aerosolparameter.

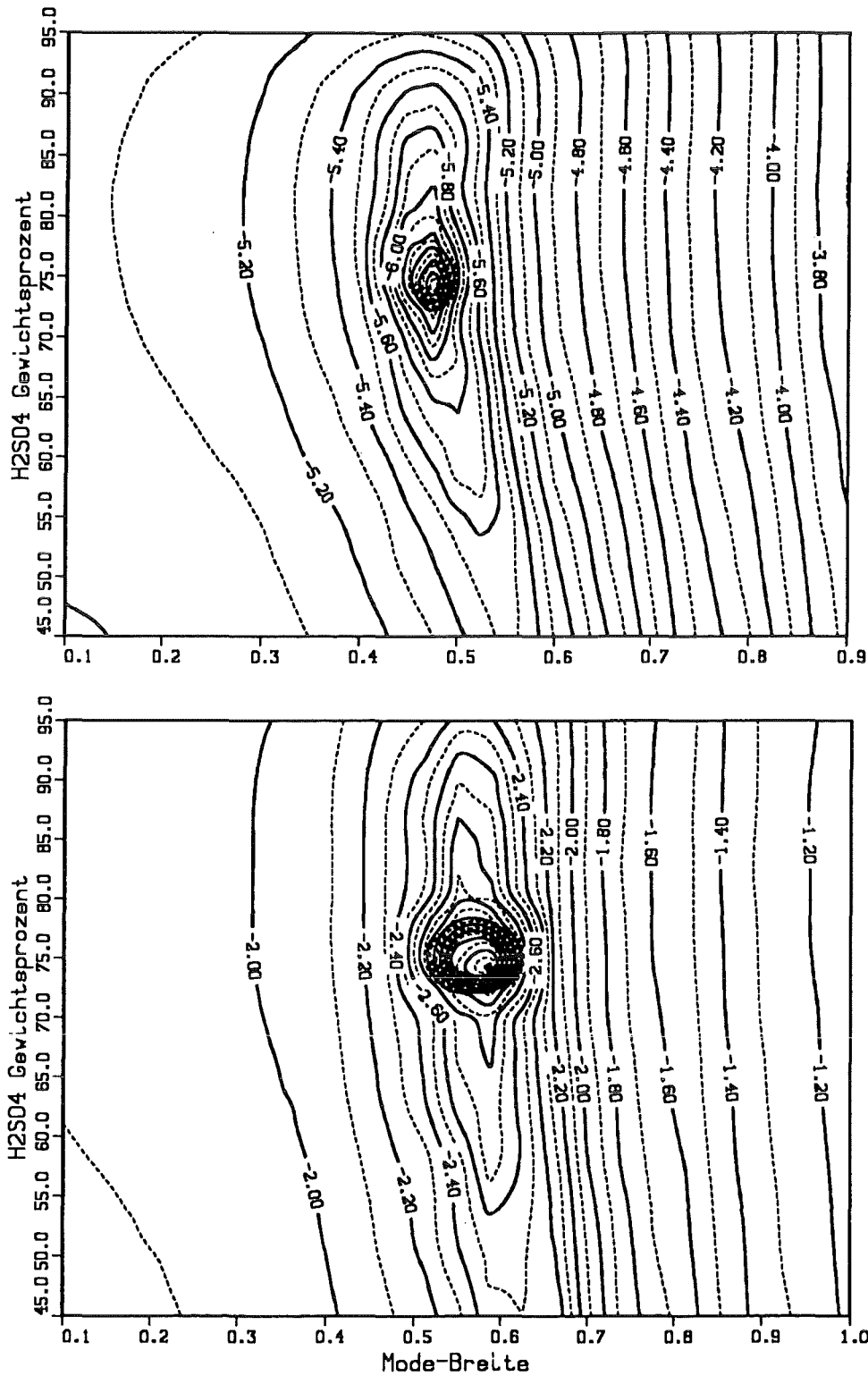


Abbildung 19. Korrelation zwischen Mode-Breite und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Mischungsverhältnis in Gewichtsprözent. Dargestellt sind jeweils die 10-er Logarithmen der RMS-Werte der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten zwischen einem Referenzfall und verschiedenen Kombinationen der Mode-Breite und des  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprözentanteils. Obere Abbildung: Hintergrund-Aerosol, untere Abbildung: vulkanisches Aerosol (Interpretation siehe Text).

Die erste Annahme läßt sich begründen mit der Tatsache, daß das Aerosol hauptsächlich vulkanischen Ursprungs ist und beim Transport in polare Breiten etwaige Ruß- oder Ascheanteile durch Sedimentation aus der Stratosphäre verschwinden (Pueschel et al., 1994). Mögliche polare stratosphärische Wolken können aufgrund der stratosphärischen Temperaturen von über 200 K ausgeschlossen werden. Die Kugelform der Aerosolteilchen kann im erwarteten Größenbereich von 0.01  $\mu\text{m}$  bis 2  $\mu\text{m}$  als gesichert angenommen werden, da es sich bei den herrschenden Temperaturen um flüssige Tröpfchen handelt, die quasi schweben und somit keiner geschwindigkeitsbedingten Deformation ausgesetzt sind.

Die Ableitung der Aerosolparameter wurde auf der Basis einer monomodalen Log-Normal-Größenverteilung durchgeführt, so daß als freie Parameter die Zusammensetzung (in Prozent  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsanteil, im weiteren Verlauf mit WEI bezeichnet), die Teilchenzahldichte  $N_1$ , der Mode-Radius  $r_1$  und die Mode-Breite  $s_1$  angepaßt wurden. Zwar zeigten *in situ* Messungen, daß für das Pinatubo-Aerosol eine bimodale Log-Normal-Verteilung der Wirklichkeit eher entspricht (Deshler, 1994), aber aufgrund der starken Korrelationen der Parameter der Log-Normal-Verteilung die bei einer bimodalen Verteilung durch zusätzliche Korrelationen zwischen den Parametern der beiden Moden verstärkt werden, und der prinzipiellen Unbestimmtheit der Kombination der einzelnen Parameter sind für eine bimodale Verteilung keine besseren Ergebnisse zu erwarten. Testrechnungen mit einer bimodalen Verteilung zeigten, daß sich für die Zusammensetzung und die Volumendichte keine signifikanten Unterschiede zur monomodalen Verteilung ergaben, dagegen zeigten die einzelnen Parameter der Log-Normal-Verteilung eine deutlich größere Abhängigkeit von den Anfangsschätzwerten.

Aufgrund der Korrelationen zwischen den einzelnen Parametern der Größenverteilung im Randbereich des Rayleigh-Limits können verschiedene Anfangsbedingungen zu unterschiedlichen Ergebnissen führen. Deshalb wurden die Inversionen für ein ganzes Ensemble verschiedener Startwerte der anzupassenden Parameter durchgeführt. Es wurden für jeden Parameter drei Anfangswerte definiert, die in Tabelle 4 aufgelistet sind.

	WEI [ % ]	$N_1$ [ $\text{cm}^{-3}$ ]	$r_1$ [ $\mu\text{m}$ ]	$s_1$
A	50	0.5	0.2	0.2
B	60	2.0	0.4	0.4
C	70	10.0	0.6	0.6

**Tabelle 4. Anfangswerte für anzupassende Aerosolparameter.** WEI =  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent.

Aus diesen Parametern wurden 21 verschiedene Kombinationen generiert, die als Startwerte für die Inversionsrechnungen dienten. Der Variationsbereich der verschiedenen



Lösungen gibt dann einen gewissen Aufschluß über die Eindeutigkeit der Kombination der einzelnen Parameter.

Abb. 20 zeigt die Ergebnisse der Aerosolretrievals aus den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten der drei hier untersuchten unteren Tangentenhöhen.

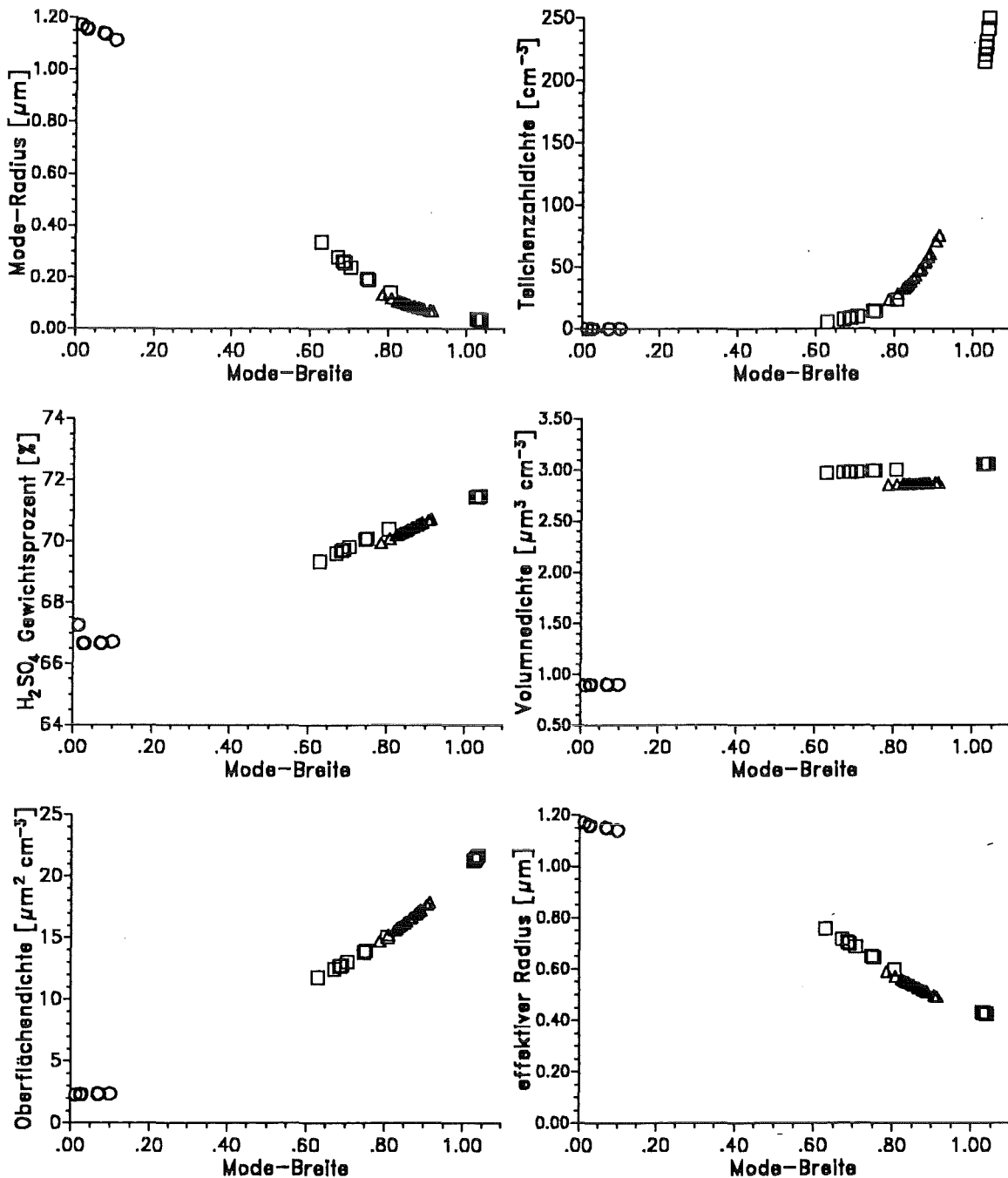


Abbildung 20. Ergebnisse der Aerosol-Retrievals als Funktion der Mode-Breite. Die Retrievalergebnisse für die verschiedenen Tangentenhöhen sind durch unterschiedliche Symbole dargestellt: 11.3 km ( $\Delta$ ), 14.5 km ( $\square$ ) und 16.1 km (O). Jedes Symbol repräsentiert eine Kombination von Anfangswerten.

Außer den Resultaten für die angepassten Parameter sind zusätzlich die resultierenden Volumen- und Oberflächendichten und der effektive Radius angegeben. Die Oberflächendichte kann für eine Log-Normal-Verteilung ebenso wie die Volumendichte direkt aus den Parametern der Größenverteilung berechnet werden:

$$A(r_1, s_1, N_1) = 4\pi N_1 r_1^2 \exp[2s_1^2] \quad [4.13]$$

Der effektive Radius  $r_{eff}$  ist definiert als Verhältnis des dritten Moments der Größenverteilung zum zweiten Moment; dieses Verhältnis läßt sich für die Log-Normal-Verteilung einfach durch die Volumendichte und Oberflächendichte ausdrücken:

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 n(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 n(r) dr} = \frac{3V}{A} \quad [4.14]$$

Alle Werte sind als Funktion der Mode-Breite aufgetragen, um die auftretenden Korrelationen sichtbar zu machen. Als wichtigstes Ergebnis läßt sich zunächst festhalten, daß die Volumendichte und die Zusammensetzung (d.h. der Gewichtsanteil von  $H_2SO_4$ ) für jede der drei Tangentenhöhen im Gegensatz zu den übrigen Parametern eine sehr geringe Variationsbreite aufweisen, also eindeutig bestimmt sind. Der  $H_2SO_4$ -Gewichtsanteil erreicht in 16.1 km Werte zwischen 66.6 und 67.3 %, in 14.5 km zwischen 69.3 und 71.5 % und in 11.3 km zwischen 69.9 und 70.7 %. Für die Volumina ergeben sich in 16.1 km Werte zwischen 0.89 und 0.90  $\mu m^3 cm^{-3}$ , in 14.5 km zwischen 2.97 und 3.06  $\mu m^3 cm^{-3}$  und in 11.3 km zwischen 2.83 und 2.86  $\mu m^3 cm^{-3}$ . Diese Ergebnisse bestätigen die Aussage, daß sich die Volumendichte und die Zusammensetzung unabhängig von der Größenverteilung als eindeutige Größen aus dem spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten ableiten lassen.

Für die beiden Parameter  $N_1$  und  $r_1$  erhält man die erwarteten Korrelationen mit der Mode-Breite. Die Korrelationen der Oberflächendichte mit der Mode-Breite ergibt sich aus der Antikorrelation von Mode-Radius und Mode-Breite und der Tatsache, daß das Verhältnis von Oberflächendichte zu Volumendichte mit sinkendem Teilchenradius zunimmt. Dieselbe Ursache hat die Antikorrelation von effektivem Radius mit der Mode-Breite.

Auffällig ist, daß in 16.1 km deutlich größere Mode-Radien erzielt werden als in den unteren beiden Tangentenhöhen. Obwohl die verschiedenen Lösungen für die unterschiedlichen Anfangswerte beinahe gleichwertig sind, ist doch für jede Tangentenhöhe eine Lösung durch die geringste quadratische Abweichung ausgezeichnet. Die  $RMS_w$ -Werte für die einzelnen Tangentenhöhen, die wegen ihrer unterschiedlichen Feh-

erwichtung nur innerhalb einer Tangentenhöhe verglichen werden können, haben in 16.1 km ein Minimum für die größten Radien, während in den beiden anderen Tangentenhöhen die besten Werte für die kleinsten Radien erreicht werden.

Wie in Abschnitt 4.2.2 schon angedeutet wurde, ergibt sich der Fehler der abgeleiteten Parameter aufgrund der fehlerbehafteten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten aus der Varianz-Kovarianz-Matrix  $\mathbf{G}$  der Parameter (Gl. [4.11]). Allerdings sind die daraus resultierenden Fehler der einzelnen Log-Normal-Parameter aufgrund der starken Korrelationen wenig aussagekräftig. Jedoch lassen sich mit dieser Matrix die resultierenden Fehler der aus den Log-Normal-Parametern abgeleiteten Aerosolparameter  $V(r_1, s_1, N_1)$ ,  $A(r_1, s_1, N_1)$  und  $r_{eff}(r_1, s_1, N_1)$  unter Berücksichtigung der Korrelationen nach einem einfachen Formalismus berechnen:

$$\Delta X = \sqrt{\mathbf{B}^T \mathbf{G} \mathbf{B}} \quad [4.15]$$

mit:

- $\Delta X$  Fehler des abgeleiteten Parameters ( $X$  steht für  $V$ ,  $A$ , oder  $r_{eff}$ )  
 $\mathbf{B}$  Vektor der partiellen Ableitungen des Parameters  $X$  nach den einzelnen Log-Normal-Parametern  $r_1$ ,  $s_1$ , und  $N_1$

In Tabelle 5 sind die Ergebnisse für die Zusammensetzung, Volumendichte, Oberflächendichte und den effektiven Radius und deren  $1-\sigma$  Fehler für die drei Tangentenhöhen aufgelistet.

	11.3 km	14.5 km	16.1 km
<b>Zusammensetzung in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> %</b>	70.3 ± 2.7	70.6 ± 3.0	66.9 ± 1.9
<b>Volumendichte in μm<sup>3</sup> cm<sup>-3</sup></b>	2.85 ± 0.14	3.02 ± 0.27	0.90 ± 0.03
<b>Oberflächendichte in μm<sup>2</sup> cm<sup>-3</sup></b>	16.3 ± 10.0	17.1 ± 10.7	2.31 ± 0.41
<b>effektiver Radius in μm</b>	0.53 ± 0.31	0.56 ± 0.34	1.16 ± 0.18

**Tabelle 5. Abgeleitete mikrophysikalische Parameter und  $1-\sigma$  Fehler**

Die angegebenen  $1-\sigma$  Fehler wurden mit Hilfe der Gleichung [4.15] berechnet. Für den Fehler der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Gewichtsprozente wurde angenommen, daß Korrelationen mit den Parametern der Log-Normal-Verteilung vernachlässigt werden können. Wie schon die Variationsbreiten für die einzelnen Aerosolparameter angedeutet hatten, sind die Zusam-

mensetzung und die Volumendichte nur mit einem kleinen Fehler behaftet. Dies läßt sich erklären mit der Tatsache, daß die Zusammensetzung vor allem durch den spektralen Verlauf der Aerosolextinktionskoeffizienten bestimmt ist, während die Volumendichte sensitiv auf die absoluten Werte der Aerosolextinktionskoeffizienten ist. Die großen Fehler für die Oberflächendichte und den effektiven Radius beruhen auf der Unbestimmtheit der einzelnen Parameter der Log-Normal-Verteilung im Bereich des Rayleigh-Limits.

In der Fehleranalyse nicht berücksichtigt sind systematische Fehler, die bei der Anpassung der gemessenen Aerosolextinktionskoeffizienten an simulierte Aerosolextinktionskoeffizienten entstehen. Abb. 21 auf Seite 59 zeigt die besten Anpassungen der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten in den drei verschiedenen Tangentenhöhen. Während in 16.1 km eine sehr gute Übereinstimmung der angepaßten mit den gemessenen Aerosolextinktionskoeffizient erreicht wird, erkennt man in den unteren beiden Tangentenhöhen eine systematische Abweichung im Bereich zwischen 850 und 910  $\text{cm}^{-1}$ . Im Falle solcher offensichtlich systematischer Residuen entspricht die Lösung nach der Methode der kleinsten Quadrate nicht exakt der physikalisch richtigen Lösung. Dadurch ergibt sich ein zusätzlicher Inversionsfehler, der in der obigen Fehlerbetrachtung nicht enthalten ist.

Eine Ursache für diese systematische Abweichung könnte in den Unsicherheiten der spektralen Brechungsindizes liegen, die für die Analyse der Aerosolextinktionskoeffizienten durch zweidimensionale Spline-Interpolation aus den Originaldaten von Palmer and Williams (1975) auf die abgeleiteten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozente und die Wellenzahlen der Aerosolextinktionskoeffizienten interpoliert wurden. Abgesehen davon wurden die Brechungsindizes bei einer Temperatur von 300 K gemessen, während für die MIPAS-B-Messungen in der unteren Stratosphäre Temperaturen zwischen 205 und 215 K ermittelt wurden. Dieser Effekt des Übergangs von Labortemperatur zu stratosphärischen Temperaturen auf die spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten im Infrarot wurde von Halperin and Murcray (1987) mit einer 5 %-gen homogenen Zunahme angegeben. Diese Zunahme wurde bei den Berechnungen der Aerosolextinktionskoeffizienten berücksichtigt. Im Gegensatz zu dieser Abschätzung zeigten Labormessungen von Anthony et al. (1995) an künstlich erzeugten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosolen bei tiefen Temperaturen deutliche Veränderungen der spektralen Struktur der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Absorptionspeaks.

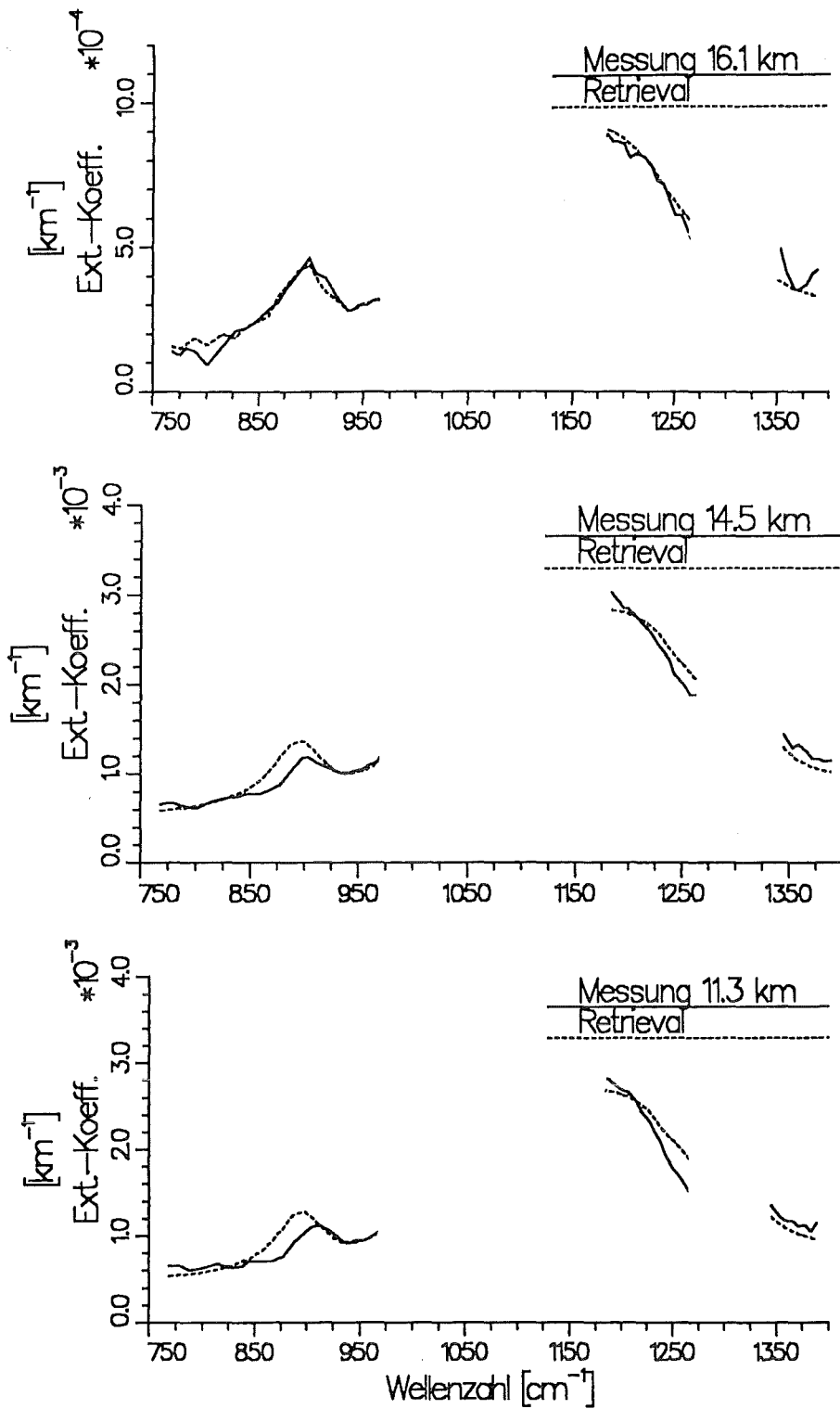


Abbildung 21. Beste Anpassungen der Aerosolextinktionskoeffizienten. Als 'Messung' werden hier die in Kapitel 4.1.3 aus den Strahldichtespektren ermittelten Aerosolextinktionskoeffizienten bezeichnet. Die gestrichelten Linien geben die bei der Ableitung der mikrophysikalischen Parameter angepassten theoretischen Aerosolextinktionskoeffizienten wieder. Zwischen 980 und 1180  $\text{cm}^{-1}$  und zwischen 1270 und 1330  $\text{cm}^{-1}$  wurden keine Aerosolextinktionskoeffizienten bestimmt (siehe Abb. 14 auf Seite 39).

### 4.3 Einfluß von Streuung

Bei der Inversion der Strahlungsübertragungsgleichung zur Bestimmung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten hatten wir von Streuung abgesehen, da in dem verwendeten Linie-für-Linie-Vorwärtsmodell FASCOD2 der Aerosolstreuoeffizient definitionsgemäß gleich Null gesetzt wird. Diese Annahme ist dann richtig, wenn sich bei Strahlungsübertragungsrechnungen mit und ohne Streuung unter Verwendung der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten identische spektrale Strahldichten ergeben. Falls sich die spektralen Strahldichten mit und ohne Streuung signifikant unterscheiden, so entsprechen die abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten nicht dem wirklichen Extinktionskoeffizienten, bei dem die Streueffekte entsprechend der vollständigen Strahlungsübertragungsgleichung (Gl. [3.8]) berücksichtigt werden. Wir nennen die ohne Berücksichtigung von Streuung abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten deshalb ab jetzt *Pseudoextinktionen*.

Bei Berücksichtigung von Streuung hängt der Einfluß des Aerosols auf die spektrale Strahldichte nicht nur vom Aerosolextinktionskoeffizienten ab, sondern auch von der Einfachstreu-Albedo  $\omega_0$  und der Streufunktion  $p$  (oder dem Asymmetrie-Parameter  $g$ ) ab. Dies konnte bei der Ableitung der Pseudoextinktionen nicht berücksichtigt werden, einerseits weil FASCOD2 die Streuung nicht simulieren kann, andererseits weil dazu *a priori* Informationen über diese optischen Eigenschaften des Aerosols notwendig gewesen wären. Im Abschnitt 4.2.4 konnten jedoch aus den Pseudoextinktionen mikrophysikalische Eigenschaften des Aerosols bestimmt werden, auf deren Grundlage die, für die Einbeziehung der Streuung notwendigen optischen Parameter  $\omega_0$  und  $g$  als Funktion der Wellenzahl mit Hilfe der Mie-Theorie berechnet werden können.

Das bisherige Vorgehen und die folgenden Schritte lassen sich deshalb folgendermaßen zusammenfassen:

1. In erster Näherung wurden Pseudoextinktionen ohne Berücksichtigung von Streuung bestimmt (siehe Abschnitt 4.1.3).
2. Aus diesen Pseudoextinktionen wurden in Abschnitt 4.2.4 mikrophysikalische Eigenschaften des Aerosols bestimmt, aus denen sich die *a priori* Information über die Streueigenschaften des Aerosols berechnen läßt.
3. Mit Hilfe eines Strahlungsübertragungsmodells, das Streuung an Aerosolen berücksichtigt, kann die Signifikanz des Streueffekts auf die spektrale Strahldichte abgeschätzt werden.
4. Auf der Basis systematischer Zusammenhänge zwischen spektraler Strahldichte und optischen Eigenschaften des Aerosols unter Einbeziehung von Streuung ergibt sich ein Korrekturverfahren, mit dem aus den Pseudoextinktionen die gesuchten Aerosolextinktionskoeffizienten berechnet werden können.

5. Aus den neuen Extinktionskoeffizienten können unter Anwendung des in Abschnitt 4.2.2 angegebenen Inversionsverfahrens die korrigierten mikrophysikalischen Parameter abgeleitet werden.
6. Bei Bedarf kann die Lösung durch Wiederholung der Schritte 4 und 5 iterativ angenähert werden.

Auf die einzelnen Schritte wird in den folgenden Abschnitten eingegangen.

#### **4.3.1 Optische Parameter des Aerosols auf der Basis der Pseudoextinktionen**

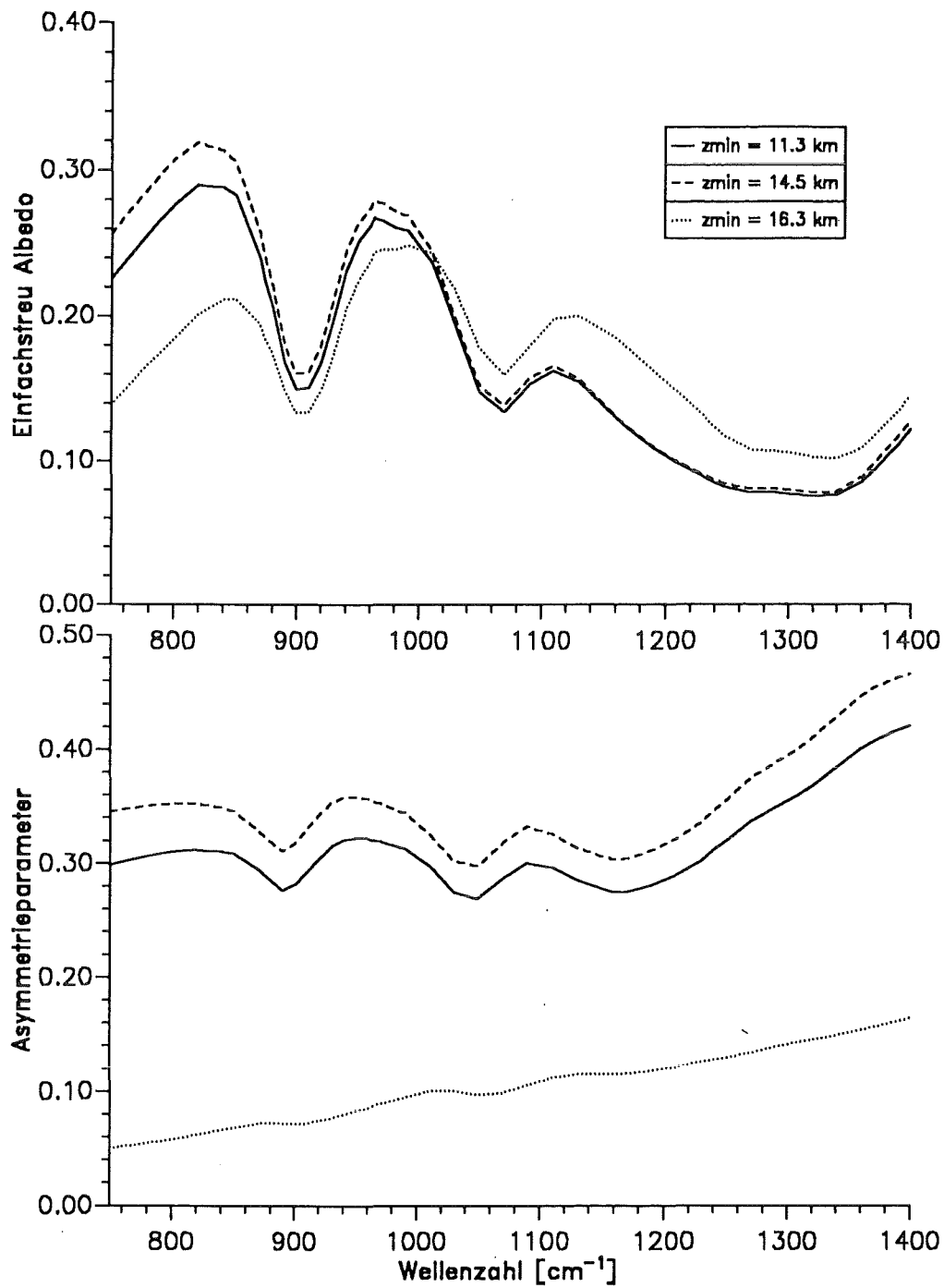
Aus den Pseudoextinktionen wurden in Abschnitt 4.2.4 die Zusammensetzung und Parameter einer Log-Normal-Verteilung abgeleitet, aus denen mit Hilfe der Mie-Theorie die Streueigenschaften des Aerosols, gegeben durch die Einfachstreu-Albedo  $\omega_0$  und den Asymmetrie-Parameter  $g$ , berechnet werden können. Diese Parameter können Aufschluß darüber geben, ob Streuung einen signifikanten Einfluß haben kann oder nicht. Der entscheidende Parameter ist in diesem Zusammenhang die Einfachstreu-Albedo, die den Anteil der Streuung an der Gesamtextinktion angibt. Der Asymmetrie-Parameter gibt Aufschluß, wie stark die Streuung in Vorwärtsrichtung ausgeprägt ist.

Die prinzipielle Unbestimmtheit der einzelnen Parameter der Log-Normal-Verteilung hat zur Folge, daß auch die resultierenden optischen Parameter eine gewisse Variationsbreite aufweisen. Für eine erste Abschätzung des Streueffekts wurden zur Berechnung der optischen Parameter für jede der drei Tangentenhöhen die Kombination der Log-Normal-Parameter verwendet, die die beste Anpassung an die Pseudoextinktionen ergaben. Die resultierenden Ergebnisse für die Einfachstreu-Albedo  $\omega_0$  und den Asymmetrie-Parameter  $g$  sind in Abb. 22 auf Seite 62 für die untersten drei Tangentenhöhen als Funktion der Wellenzahl aufgetragen. Beide Streuparameter sind stark von der Wellenzahl abhängig. Dies bedeutet, daß auch mögliche Streueffekte eine Funktion der Wellenzahl sind. Die Einfachstreu-Albedo erreicht Werte zwischen 0.08 und 0.32, das bedeutet, daß der Anteil des Streukoeffizienten am Extinktionskoeffizienten von 8 % bis 32 % reicht. Es ist deshalb zu erwarten, daß Streueffekte bei den Strahlungsübertragungsrechnungen eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielen.

#### **4.3.2 Abschätzung des Streueffekts mit MODTRAN3**

Der Effekt von Streuung an Aerosolen auf die gemessene spektrale Strahldichte kann nur mit Hilfe eines Strahlungstransportprogramms, das Mehrfachstreuung berücksichtigt, abgeschätzt werden. Aus Gleichung [3.8] in Kapitel 3.4 kann man erkennen, daß die Streuung zwei unterschiedliche Effekte auf die Strahldichte haben kann:

1. Schwächung der emittierten Strahlung durch Streuung aus der Beobachtungsrichtung.
2. Zusätzliche Strahlung durch Streuung in die Beobachtungsrichtung.



**Abbildung 22. Einfachstreu-Albedo und Asymmetrieparameter auf der Basis der Best-Fit-Aerosolparameter.** Für jede Tangentenhöhe (gekennzeichnet durch verschiedene Linientypen) wurden  $\omega_0$  (oberes Bild) und  $g$  (unteres Bild) durch Mie-Rechnungen aus den mikrophysikalischen Parametern bestimmt.

Welcher der beiden Effekte überwiegt, kann nicht ohne detaillierte Streurechnungen entschieden werden.

Da unseres Wissens kein Linie-für-Linie-Strahlungsübertragungsmodell existiert, das Mehrfachstreuung im Infrarot berücksichtigt, wurde für die Abschätzung von Streueffek-



ten der MODTRAN3<sup>18</sup>-Code verwendet. MODTRAN3 stammt wie LOWTRAN und FASCOD aus der Familie der Strahlungsübertragungsprogramme, die vom AFGL<sup>19</sup> entwickelt wurden. MODTRAN3, das eine Weiterentwicklung von LOWTRAN ist, erlaubt Transmissions- und Strahldichterechnungen mit einer spektralen Auflösung von  $\Delta\nu = 2 \text{ cm}^{-1}$ . Im Gegensatz zu Linie-für-Linie-Programmen, in denen der Strahldichtebeitrag jeder einzelnen Emissionslinie auf der Basis von Liniendaten berechnet wird, werden in MODTRAN (und auch in LOWTRAN) die Beiträge von Spurengasen durch Bandenmodelle approximiert. Der Vorteil von Strahlungsübertragungsmodellen auf der Basis von Bandenmodellen ist die große Rechengeschwindigkeit. Andererseits können damit keine spektral hochaufgelösten Messungen simuliert werden.

MODTRAN3 enthält in seiner aktuellen Version das Programmpaket DISORT<sup>20</sup> (Stamnes et al., 1988), das die Berücksichtigung von Mehrfachstreuung erlaubt.

Aufgrund der unterschiedlichen spektralen Auflösung der MIPAS-B-Messungen und der Rechnungen mit MODTRAN3 ist ein direkter Vergleich der spektralen Strahldichten nicht möglich. Deshalb kann der mit MODTRAN3 berechnete Effekt der Aerosolstreuung auf die Strahldichte nicht durch Vergleich mit den Meßspektren abgeschätzt werden. Jedoch ist die Berechnung der Aerosolextinktion in MODTRAN3 bei Vernachlässigung von Streuung identisch zu LOWTRAN und damit auch zu FASCOD2. Damit ist es möglich, auf der Basis der mit FASCOD2 abgeleiteten spektralen Pseudoextinktionskoeffizienten und den aus den MIPAS-Spektren bestimmten Spurengasprofilen, MODTRAN3-Spektren ohne Berücksichtigung von Streuung zu erzeugen, die den MIPAS-B-Messungen entsprechen. Diese, im folgenden *Referenzspektren* genannten, MODTRAN3-Spektren können dann direkt mit den MODTRAN3-Spektren, die unter Einbeziehung von Streueffekten berechnet wurden, verglichen werden. Die Änderung der spektralen Strahldichte durch Reduktion der spektralen Auflösung auf  $2 \text{ cm}^{-1}$  kann auf diese Weise getrennt werden von Effekten durch Aerosolstreuung.

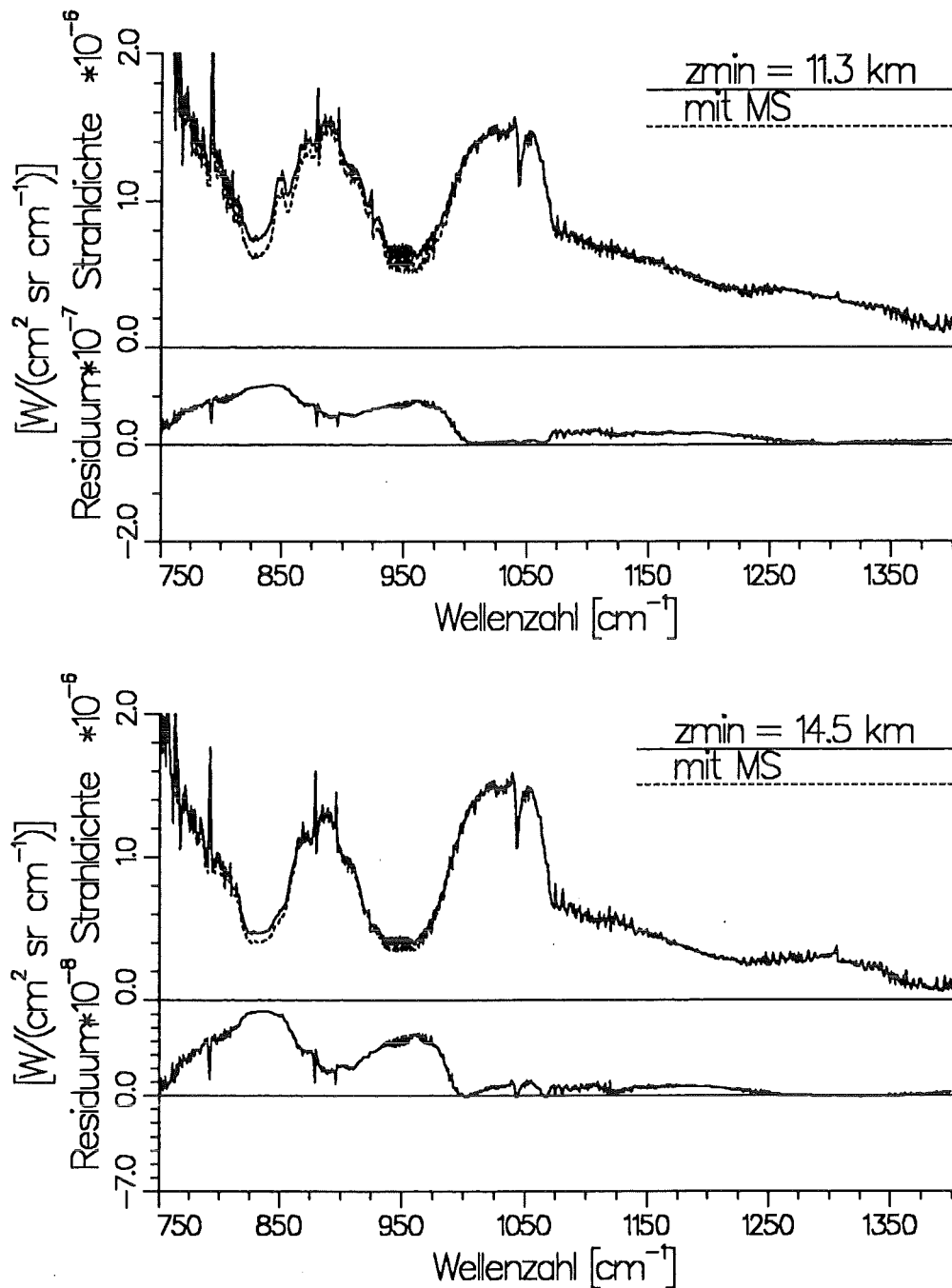
Auf der Basis der in Abb. 22 auf Seite 62 abgebildeten optischen Parameter und den dazugehörigen spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten wurden MODTRAN3-Rechnungen mit und ohne Streuung für die drei Tangentenhöhen durchgeführt. Die resultierenden spektralen Strahldichten mit und ohne Streuung werden in Abb. 23 auf Seite 64 für die einzelnen Tangentenhöhen miteinander verglichen. In allen drei Tangentenhöhen führt die Einbeziehung von Streuung zu einer Erniedrigung der spektralen Strahldichte. Der Streueffekt ist am stärksten in Spektralbereichen mit geringer Spurengasemission

---

<sup>18</sup> MODerate TRANsmission 3

<sup>19</sup> Air Force Geophysics Laboratory

<sup>20</sup> DIScrete Ordinate Radiative Transfer



**Abbildung 23. MODTRAN3-Rechnungen zur Abschätzung des Streueffekts.** Die Spektren ohne Streuung (durchgezogene Linie) und mit Streuung (gestrichelte Linien) sind im oberen Teil abgebildet, die Differenz (Spektrum ohne Streuung - Spektrum mit Streuung) ist im unteren Teil dargestellt.

(z.B. in den Intervallen  $825 - 850 \text{ cm}^{-1}$  und  $940 - 970 \text{ cm}^{-1}$ ). In den Zentren starker Gasabsorptionsbanden, z.B. der  $\text{O}_3$ -Bande bei  $1050 \text{ cm}^{-1}$ , ist der Effekt der Streuung sehr gering, da die gestreute Strahlung auf dem Weg zum Beobachter vom Spurengas absorbiert wird. Mit steigender Tangentenhöhe nimmt die Differenz der Spektren ohne Streuung und mit Streuung ab, entsprechend des kürzeren optischen Weges durch die Aerosolschicht, die, wie die abgeleiteten Pseudoextinktionen zeigen, mit der Höhe optisch

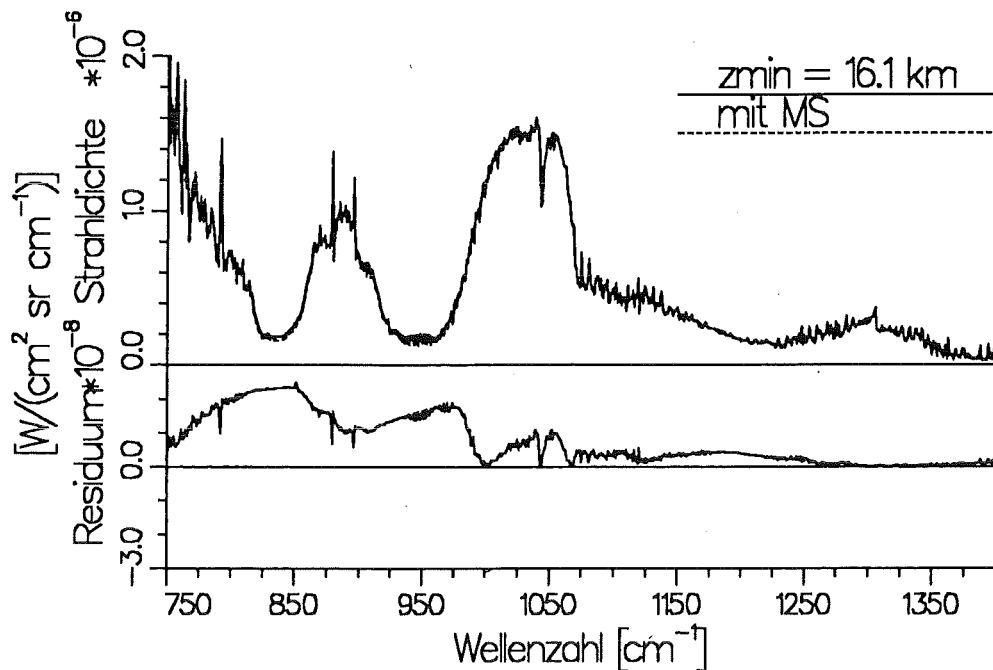


Abbildung 23. MODTRAN3-Rechnungen zur Abschätzung des Streueffekts. (Fortsetzung).

dünnere wird. Andererseits nimmt der relative Effekt der Streuung auf die Strahldichte von max. 10 - 15 % (bei 830  $\text{cm}^{-1}$ ) mit steigender Tangentenhöhe nur geringfügig ab.

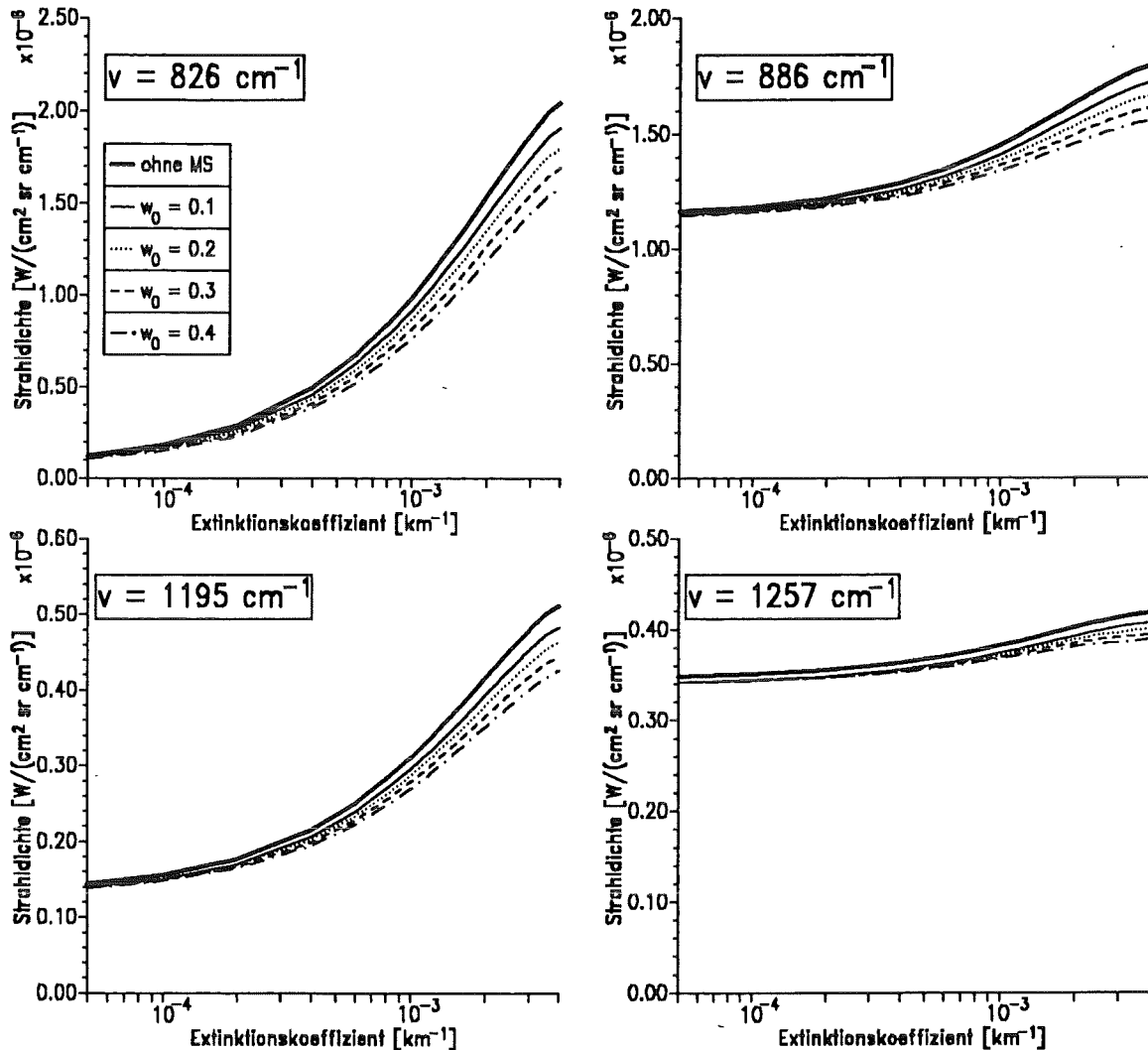
Der Streueffekt auf die Strahldichte ist sowohl wegen der Wellenzahlabhängigkeit der optischen Eigenschaften als auch aufgrund des spektral unterschiedlichen Einflusses der Spurengasabsorption eine Funktion der Wellenzahl. Umgekehrt bedeutet dies, daß sich der spektrale Verlauf des Aerosolextinktionskoeffizienten, der ohne Berücksichtigung von Streuung abgeleitet wurde, bei Einbeziehung der Streuung ebenfalls ändert. Diese Änderung der spektralen Aerosolextinktion hat natürlich auch Rückwirkungen auf die Ableitung der optischen und mikrophysikalischen Aerosolparameter. Bevor die Pseudoextinktionen einer Korrektur bezüglich des Streueffekts unterzogen werden können, muß zunächst untersucht werden, wie die Streuung von den optischen Parametern des Aerosols abhängt.

#### 4.3.3 Streuung in Abhängigkeit von optischen Parametern

Aus der Strahlungsübertragungsgleichung (SÜG, Gleichung [3.8]) geht hervor, daß der Streuanteil an der spektralen Strahldichte vom Streukoeffizienten  $\sigma_{s, \nu}$ , d.h. von der Einfachstreu-Albedo  $\omega_0$ , von der Streufunktion  $p_\nu$ , oder dem Asymmetrie-Parameter  $g$  und vom Anteil der Aerosolextinktion an der Gesamtextinktion abhängt.

Zur Untersuchung des Streuanteils der Strahldichte als Funktion von  $\omega_0$ ,  $g$  und  $\sigma_{ex}$  wurden für verschiedene spektrale Stützstellen im mittleren Infrarot für die MIPAS-B-Ballon-geometrie mit  $z_{\min} = 11.3$  km MODTRAN3-Rechnungen mit und ohne Streuung durchgeführt. Dabei wurde eine homogene Aerosolschicht zwischen 11.3 und 16.1 km angenom-

men, deren optische Parameter im erwarteten Wertebereich variiert wurden. Für die Spurengasmischungsverhältnisse wurden die abgeleiteten Vertikalprofile eingesetzt. Abb. 24 auf Seite 66 zeigt an vier verschiedenen spektralen Stützstellen die Strahldichte als Funktion des Aerosolextinktionskoeffizienten für verschiedene Werte der Einfachstreu-Albedo  $\omega_0$  bei festgehaltenem Asymmetrie-Parameter  $g = 0.3$ .



**Abbildung 24. Streueffekt für variables  $\omega_0$  als Funktion des Aerosolextinktionskoeffizienten.** Vergleich der Strahldichten ohne Streuung (dicke durchgezogene Linie) mit Strahldichten mit Streuung für verschiedene  $\omega_0$  bei konstantem  $g = 0.3$ .

In allen dargestellten Fällen ist die Strahldichte ohne Streuung bei konstantem Aerosolextinktionskoeffizienten größer als mit Streuung. Für sehr kleine Aerosolextinktionskoeffizienten verschwindet der Streueffekt und die Strahldichte wird vor allem durch die Spurengasemission bestimmt, die für die verschiedenen spektralen Stützstellen unterschiedlich stark ist. Für wachsenden Aerosolextinktionskoeffizienten wird der Einfluss von  $\omega_0$  auf die empfangene Strahldichte zunehmend größer. Dabei bewirkt die Zunahme des Streuanteils an der Aerosolextinktion bei konstantem Aerosolextinktionskoeffizienten

ten eine Abnahme der spektralen Strahlidichte. Dieser Zusammenhang zwischen  $\omega_0$  und der Strahlidichte deutet darauf hin, daß bei den angenommenen Bedingungen der Schwächungseffekt der Streuung den Anteil der zusätzlich in die Beobachtungsrichtung gestreuten Strahlung überwiegt.

Gleichzeitig erkennt man, daß für eine festgehaltene spektrale Strahlidichte der Effekt durch Streuung zu einer Erhöhung des Aerosolextinktionskoeffizienten im Vergleich zum Fall ohne Streuung führt. Auch dieser Effekt ist umso größer, je größer die Einfachstreu-Albedo ist. Für die Korrektur der Pseudoextinktionen bedeutet dies, daß die Berücksichtigung von Streueffekten eine Erhöhung der Aerosolextinktionskoeffizienten bewirkt.

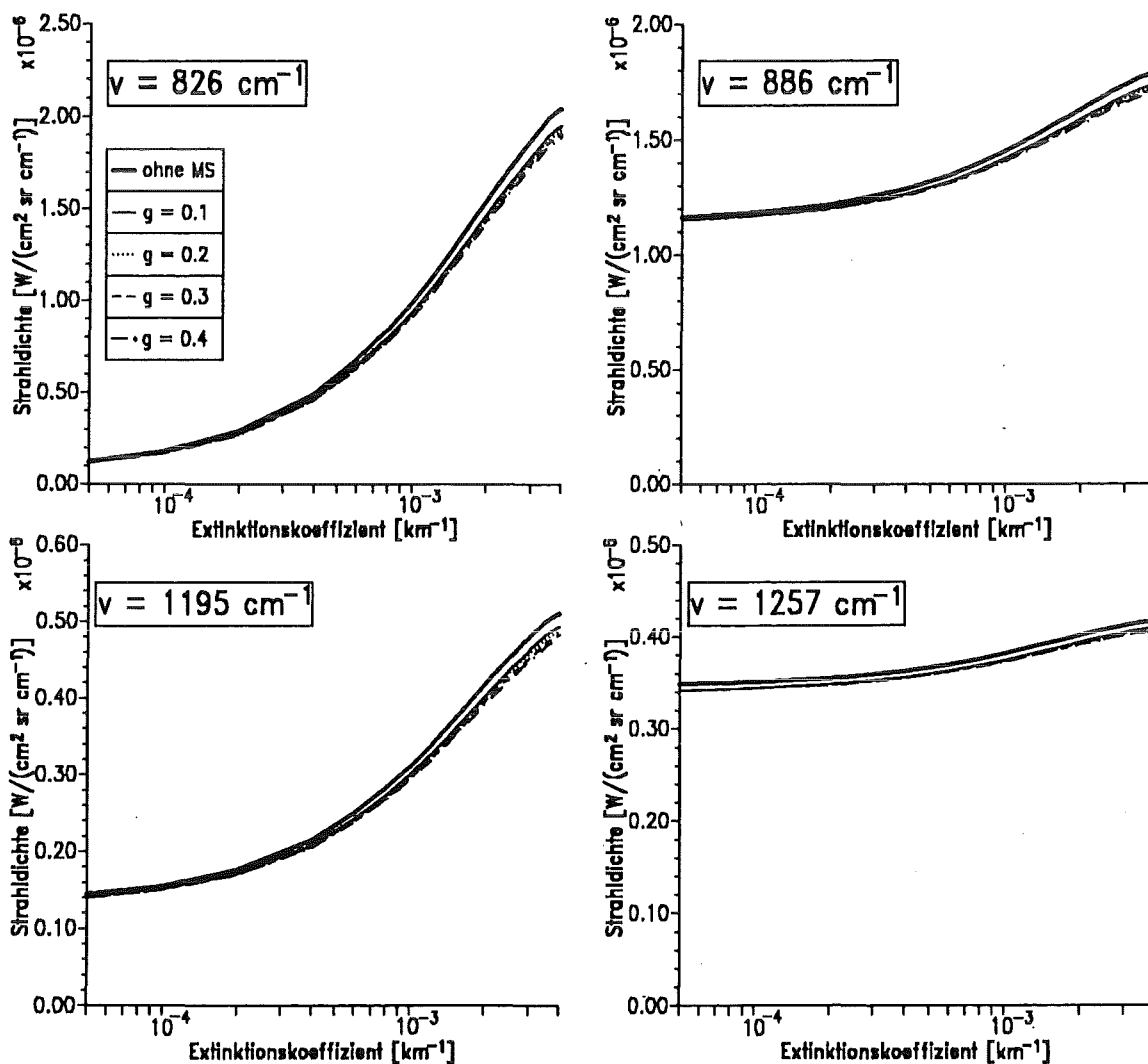
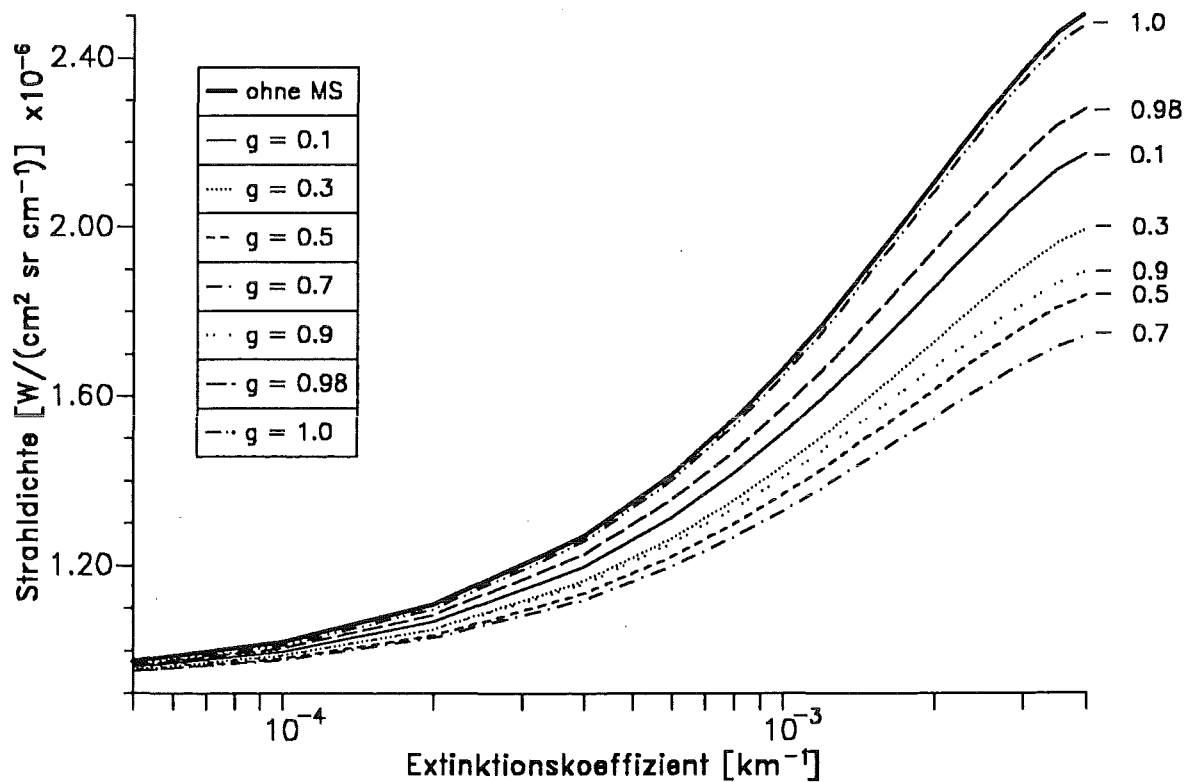


Abbildung 25. Streueffekt für variable  $g$  als Funktion des Aerosolextinktionskoeffizienten. Vergleich der Strahlidichten ohne Streuung (dicke durchgezogene Linie) mit Strahlidichten mit Streuung für verschiedene  $g$  bei konstantem  $\omega_0 = 0.2$ .

Die Variation des Asymmetrie-Parameters bewirkt eine Änderung der Winkelverteilung der Streustrahlung zwischen den extremen Bedingungen  $g = 0$  (isotrope Streuung) und  $g = 1$  (Streuung unter  $0^\circ$ , d.h. keine Streuung). Abb. 25 zeigt Streurechnungen für variable Asymmetrie-Parameter bei konstanter Einfachstreu-Albedo  $\omega_0 = 0.2$ . Auch hier bewirkt die Einbeziehung der Streuung bei konstantem Aerosolextinktionskoeffizienten eine Erniedrigung der Strahldichte. Die Erhöhung des Asymmetrie-Parameters führt zu kleineren Strahldichten, wobei die Änderung der Strahldichte durch Variation des Asymmetrie-Parameters im Vergleich zu entsprechenden Änderungen von  $\omega_0$  gering ist.

Die Abnahme der Strahldichte bei Erhöhung des Asymmetrie-Parameters erscheint widersprüchlich, wenn man dieses Verhalten auf Werte von  $g = 1$ , das dem Fall ohne Streuung entsprechen sollte, extrapoliert. Rechnungen für Asymmetrie-Parameter zwischen 0.5 und 1.0 zeigen jedoch, daß sich diese Abhängigkeit ab Werten von ca. 0.7 (abhängig vom Aerosolextinktionskoeffizienten und der Wellenzahl) umkehrt und sich für Werte nahe bei 1.0 wirklich dem Fall ohne Streuung annähert. In Abb. 26 sind diese Rechnungen bei  $775 \text{ cm}^{-1}$  für  $\omega_0 = 0.5$  dargestellt.



**Abbildung 26. Variation des Asymmetrie-Parameters.** Vergleich der Strahldichten ohne Streuung (dicke durchgezogene Linie) mit Strahldichten mit Streuung für  $g$  im Bereich von 0.1 bis 1.0 für  $\omega_0 = 0.5$ .

#### 4.3.4 Korrektur der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten

Aus den im letzten Abschnitt beschriebenen Zusammenhängen zwischen den optischen Parametern des Aerosols und dem Streueffekt auf die spektrale Strahldichte läßt sich ein Korrekturverfahren für die Pseudoextinktionen herleiten. Diese Korrektur ist notwendig, da die Pseudoextinktionen ohne Berücksichtigung von Streuung bestimmt wurden. Gesucht sind nun diejenigen spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten, die unter Annahme der hergeleiteten optischen Eigenschaften des Aerosols, bei Berücksichtigung von Streuung zur gleichen spektralen Strahldichte führen wie die Pseudoextinktionen ohne Berücksichtigung von Streuung.

Abb. 27 auf Seite 70 zeigt anhand eines schematischen Flußdiagramms den Ablauf der einzelnen Schritte des Korrekturverfahrens. Auf der Basis der Pseudoextinktionen werden mit MODTRAN3 ohne Berücksichtigung von Streueffekten die Referenzspektren berechnet, die für den direkten Vergleich mit MODTRAN3-Streurechnungen wie gemessene Spektren behandelt werden können (siehe Abschnitt 4.3.2). Ausgehend von den ohne Einbeziehung von Streuung abgeleiteten spektralen Pseudoextinktionen und den daraus bestimmten mikrophysikalischen Parametern werden die optischen Parameter des Aerosols  $\omega_0$  und  $g$  als Funktion der Wellenzahl bestimmt. Auf der Basis dieser Parameter werden mit MODTRAN3 spektrale Strahldichten mit und ohne Streuung für den erwarteten Wertebereich des Aerosolextinktionskoeffizienten berechnet (analog zu dem Vorgehen in Abschnitt 4.3.3). Nun werden diejenigen Aerosolextinktionskoeffizienten durch Interpolation bestimmt, für die die spektralen Strahldichten mit und ohne Streuung den Referenzstrahldichten entsprechen. Das Verhältnis der ermittelten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten mit und ohne Streuung ergibt den wellenzahlabhängigen Korrekturfaktor für die ursprünglich ohne Streuung abgeleiteten Pseudoextinktionen. Auf der Basis der korrigierten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten werden nun wieder mikrophysikalische Parameter abgeleitet.

Da sich mit der Änderung der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten auch die resultierenden mikrophysikalischen und optischen Parameter des Aerosols verändern, muß das Korrekturverfahren mehrmals iterativ durchlaufen werden. Die Iteration muß so lange wiederholt werden, bis die korrigierten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten und die daraus resultierenden Parameter der Log-Normal-Größenverteilung und Zusammensetzung konvergieren.

Die Korrektur der Aerosolextinktionskoeffizienten wurde für jede der drei Tangentenhöhen durchgeführt. Da dieses Verfahren auf Strahlungsübertragungsrechnungen beruht, können die einzelnen Tangentenhöhen nicht isoliert betrachtet werden. Testrechnungen zeigten jedoch, daß die Strahldichte selbst bei Berücksichtigung von Streuung nicht signifikant von der Aerosolschicht unterhalb der Tangenschicht abhängt. Deshalb bietet es sich an, die Korrektur der Aerosolextinktionskoeffizienten in einem Onion-Peeling-Modus durchzuführen. Dabei wird zunächst mit der höchsten Tangentenhöhe

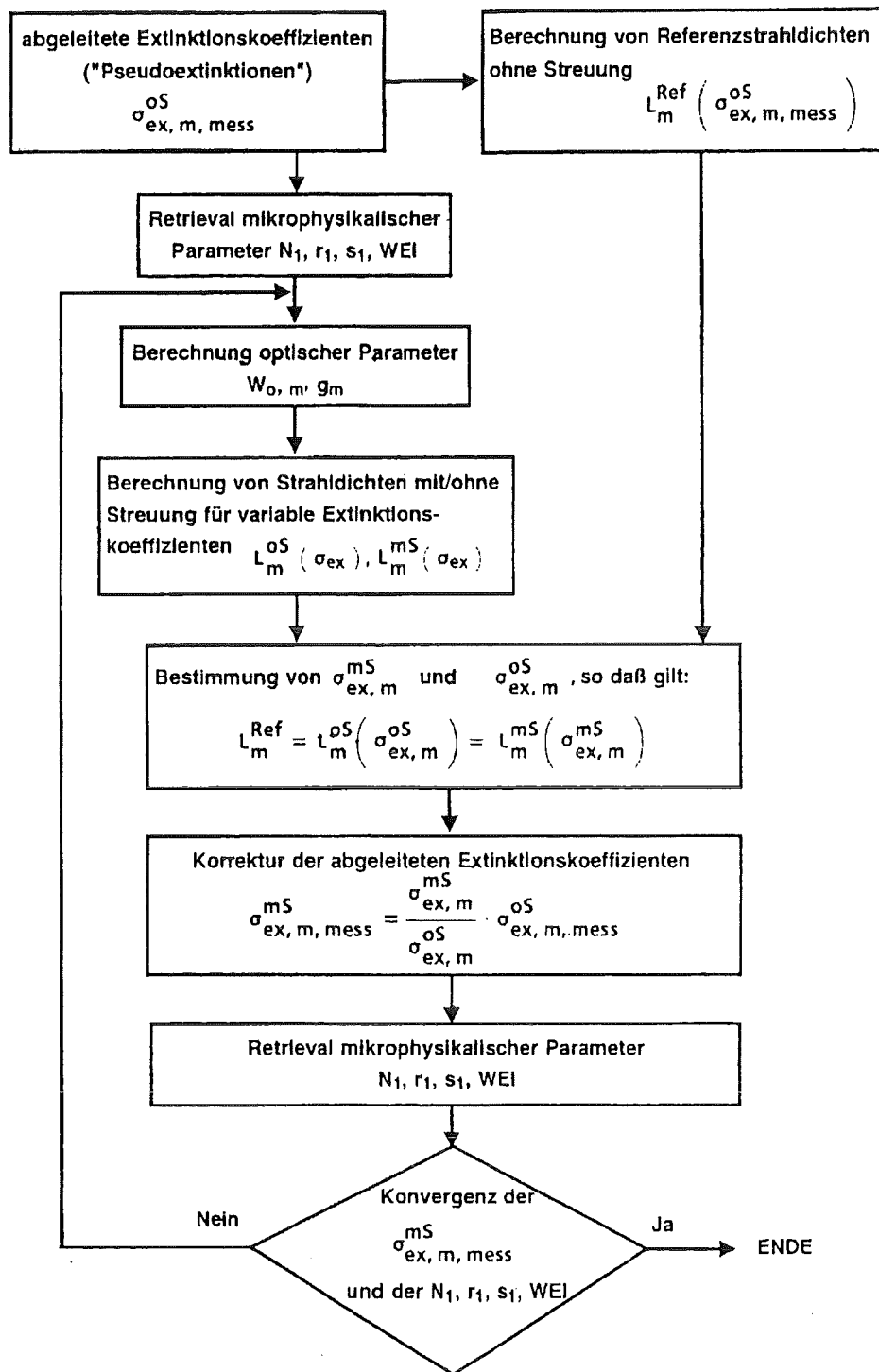


Abbildung 27. Schematischer Ablauf der Korrektur der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten

( $z_{min} = 16.1$  km) begonnen und die Ergebnisse bei der Korrektur der Aerosolextinktionskoeffizienten für die nächstuntere Tangentschicht berücksichtigt. Auf diese Weise wurden die spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten für die einzelnen Tangentehöhen sukzessive von oben nach unten der Streukorrektur unterzogen.



Das Korrekturverfahren führte schon nach zwei (in 16.1 km) bzw. drei (in 14.5 und 11.3 km) Iterationsschritten zu einer befriedigenden Konvergenz, wobei einschränkend bemerkt werden muß, daß das Ergebnis eine gewisse Streubreite aufweist, die durch die prinzipielle Unsicherheit in den abgeleiteten Parametern der Größenverteilung begründet ist.

Die abgeleiteten Korrekturfaktoren geben einen Hinweis, wie die ohne Berücksichtigung von Streuung abgeleiteten Pseudoextinktionen interpretiert werden können. Insbesondere kann gezeigt werden, unter welchen Bedingungen die Pseudoextinktionen als Absorptionskoeffizienten aufgefaßt werden können. Die Aerosolextinktionskoeffizienten unter Berücksichtigung von Streuung sind mit den Pseudoextinktionen durch die folgende Beziehung verknüpft:

$$\sigma_{ex,m,mess}^{mS} = f_m \sigma_{ex,m,mess}^{oS} \quad [4.16]$$

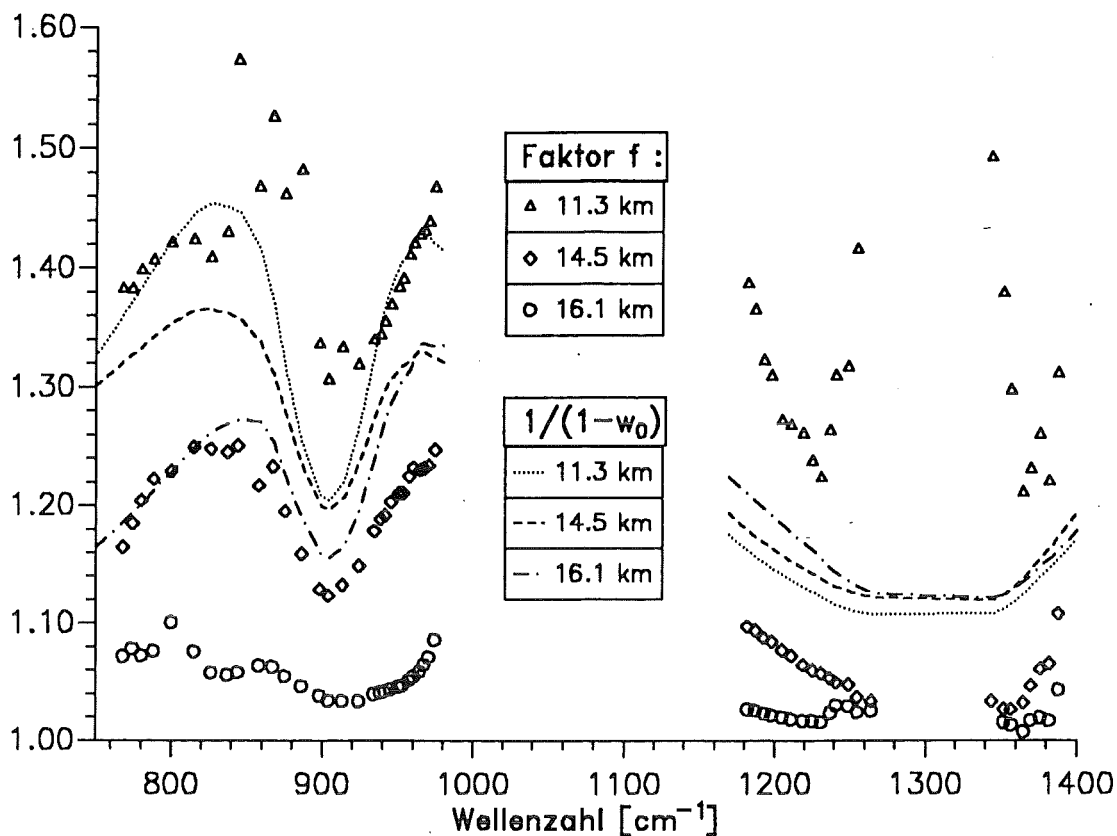
$f_m$  ist hier der Korrekturfaktor an der spektralen Stützstelle  $m$ . Wenn man nun annimmt, daß  $\sigma_{ex,m,mess}^{oS}$  mit dem Absorptionskoeffizienten  $\sigma_{abs,m,mess}$  übereinstimmt, so muß wegen  $\sigma_{abs,m,mess} = (1 - \omega_{0,m}) \sigma_{ex,m,mess}^{mS}$  folgende Beziehung gelten:

$$f_m = \frac{1}{(1 - \omega_{0,m})} \quad [4.17]$$

In Abb. 28 auf Seite 72 sind die Korrekturfaktoren  $f_m$  und die auf der Basis der abgeleiteten Größenparameter berechneten Werte von  $1/(1 - \omega_{0,m})$ , die im folgenden mit  $\tilde{\omega}_0$  bezeichnet werden, für die drei verschiedenen Tangentenhöhen dargestellt.

In allen drei Tangentenhöhen ist der Korrekturfaktor größer als Eins. Dies bedeutet, daß die ohne Berücksichtigung von Streuung abgeleiteten Pseudoextinktionskoeffizienten den wirklichen Aerosolextinktionskoeffizienten unterschätzen. Der Faktor hat die größten Werte in der untersten Tangentenhöhe und nimmt mit steigender Tangentenhöhe ab. Dies läßt sich leicht erklären mit der Tatsache, daß der optische Weg durch die Aerosolschicht mit sinkender Tangentenhöhe und damit auch die Wahrscheinlichkeit von Streueffekten zunimmt. Die Korrekturfaktoren sind abhängig von der Wellenzahl. Dies ergibt sich zum einen aus der Wellenzahlabhängigkeit der optischen Parameter  $\omega_0$  und  $g$ , aber auch durch den unterschiedlichen Einfluß der Spurengasabsorption in den einzelnen Microwindows, der auch die Streustrahlung beeinflusst.

Der Vergleich der Korrekturfaktoren mit  $\tilde{\omega}_0$  für die einzelnen Tangentenhöhen zeigt eine bemerkenswerte Systematik. In den oberen beiden Tangentenhöhen sind die Korrekturfaktoren an allen spektralen Stützstellen größer als  $\tilde{\omega}_0$ . Dies bedeutet nach Gleichung [4.17], daß bei der Interpretation der Pseudoextinktionen als Absorptionskoeffizienten dieser überschätzt werden würde. In 11.3 km wird für die meisten Microwindows der



**Abbildung 28. Vergleich der Korrekturfaktoren mit  $\tilde{\omega}_0$ .** Die verschiedenen Symbole geben die Korrekturfaktoren für die einzelnen Microwindows in den 3 Tangentenhöhen wieder. Die Werte für  $\tilde{\omega}_0$ , dargestellt durch verschiedene Linientypen, wurden aus den nach der Streukorrektur bestimmten optischen Parametern berechnet.

umgekehrte Fall beobachtet, d.h. daß die Korrekturfaktoren größer als  $\tilde{\omega}_0$  sind. Nur in den Spektralbereichen 800 - 840  $\text{cm}^{-1}$  und 930 - 970  $\text{cm}^{-1}$  ist der Korrekturfaktor kleiner oder gleich  $\tilde{\omega}_0$ . Dies sind genau die Spektralbereiche, in denen der Einfluß der Spurengasabsorption am geringsten ist. Dagegen nimmt der Korrekturfaktor dort die größten Werte an, wo auch die Absorption durch Spurengase im Microwindow am stärksten ist (z.B. im  $\text{HNO}_3$ -Bereich um 880  $\text{cm}^{-1}$  und im Bereich der  $\text{CH}_4$ -Bande bei 1250  $\text{cm}^{-1}$  und 1350  $\text{cm}^{-1}$ ). Das bedeutet, daß die Interpretation der Pseudoextinktionskoeffizienten als Absorptionskoeffizienten bei großen optischen Dicken wo Sättigungseffekte auftreten zur Unterschätzung des Absorptionskoeffizienten führt, während bei geringen optischen Dicken dieser überschätzt wird.

#### 4.3.5 Rückwirkungen auf mikrophysikalische Parameter

Die Korrektur der Aerosolextinktionskoeffizienten unter Berücksichtigung von Streuung bei der Inversion der Strahlungsübertragungsgleichung hat auch Auswirkungen auf die abgeleiteten mikrophysikalischen Parameter. In Tabelle 6 auf Seite 74 sind die Parameter jeweils mit und ohne Berücksichtigung von Streuung für die drei Tangentenhöhen aufgelistet. Gegeben sind jeweils die Parameter und ihre 1- $\sigma$  Fehler, die aus den Feh-

lern der Pseudoextinktionen resultieren. Ebenfalls aufgelistet sind die Variationsbereiche der Ergebnisse, wie sie sich für unterschiedliche Startwerte bei den Retrievals ergaben. Diese Variationsbreite zeigt, wie zuverlässig die vom Anpassungsverfahren gefundene Lösung ist.

Der Vergleich der Variationsbreiten der Parameter mit und ohne Streuung zeigt, daß sich bei Berücksichtigung der Streuung für fast alle Parameter in den einzelnen Tangentenhöhen die Variationsbreite verringert. Dieser Effekt kann der Tatsache zugeschrieben werden, daß der Mode-Radius bei Berücksichtigung von Streuung zu größeren Radien verschoben wird und das Inversionsproblem dadurch in dem Sinne eindeutiger wird, daß ein signifikanter Anteil der Aerosolteilchen in den Radiusbereich gelangt, in dem das Rayleigh-Limit der Mie-Theorie nicht mehr gültig ist. Dies ist auch erkennbar an der Änderung des effektiven Radius, der in allen Höhen signifikant zunimmt. Außerdem werden die Residuen der Anpassung kleiner, was bedeutet, daß die Lösung nach der Methode der kleinsten Quadrate der wahren Lösung näher kommt.

Auf die resultierende Zusammensetzung hat der Streueffekt nur einen sehr geringen Einfluß und deshalb ändern sich die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozentage in den einzelnen Tangentenhöhen nicht signifikant. Die Änderung der Volumendichte bei Berücksichtigung der Streuung hängt sehr stark von der Tangentenhöhe ab. In 11.3 km ergibt sich eine Erhöhung der Volumendichte um ca. 30 % während sie sich in 14.5 km nur um ca. 8 % ändert. Noch geringer ist die Erhöhung um 1 - 3 % in 16.1 km. Diese Abnahme des Streueffekts auf die Volumendichte mit steigender Tangentenhöhe ist eine direkte Folge der entsprechenden Abnahme der Streukorrekturfaktoren in den jeweiligen Höhen.

Die angegebenen  $1-\sigma$  Fehler für die einzelnen Parameter wurden, wie für die aus den Pseudoextinktionskoeffizienten abgeleiteten mikrophysikalischen Parameter, mit Hilfe von Gl. [4.15] berechnet. Dabei wurde angenommen, daß der relative Fehler der einzelnen spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten und deren Korrelationen durch die Streukorrektur nicht geändert werden. Zusätzliche Fehlerquellen durch mögliche Unsicherheiten des Mehrfachstreualgorithmus in MODTRAN3 konnten nicht berücksichtigt werden, da entsprechende Informationen über die Genauigkeit des Programms in der Anwendung auf Horizontemissionsmessungen im mittleren Infrarot bis zum Abschluß der Arbeit nicht vorlagen.

		11.3 km	14.5 km	16.1 km
Zusammensetzung in H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> %	oS	70.3 ± 2.7 (69.9 - 70.7)	70.6 ± 3.0 (69.3 - 71.5)	67.0 ± 1.9 (66.6 - 67.3)
	mS	68.8 ± 3.1 (68.4 - 69.4)	70.1 ± 3.2 (69.5 - 70.5)	66.0 ± 2.0 (66.0 - 66.1)
Volumendichte in μm <sup>3</sup> cm <sup>-3</sup>	oS	2.85 ± 0.14 (2.84 - 2.86)	3.02 ± 0.27 (2.97 - 3.06)	0.90 ± 0.03 (0.890 - 0.901)
	mS	3.66 ± 0.19 (3.65 - 3.67)	3.23 ± 0.14 (3.20 - 3.25)	0.927 ± 0.04 (0.926 - 0.929)
Oberflächendichte in μm <sup>2</sup> cm <sup>-3</sup>	oS	16.3 ± 10.0 (14.6 - 17.7)	17.1 ± 10.7 (11.8 - 21.7)	2.3 ± 0.41 (2.28 - 2.37)
	mS	15.8 ± 7.2 (14.7 - 16.4)	12.0 ± 4.9 (10.8 - 12.9)	2.34 ± 0.72 (2.33 - 2.37)
effektiver Radius in μm	oS	0.53 ± 0.31 (0.48 - 0.58)	0.56 ± 0.34 (0.42 - 0.75)	1.16 ± 0.18 (1.14 - 1.17)
	mS	0.70 ± 0.30 (0.63 - 0.75)	0.81 ± 0.30 (0.75 - 0.89)	1.19 ± 0.33 (1.18 - 1.19)
Teilchenzahldichte in cm <sup>-3</sup>	oS	21.9 - 73.6	5.4 - 249.5	0.13 - 0.15
	mS	10.2 - 30.0	3.9 - 12.5	0.13 - 0.14
Mode-Radius in μm	oS	0.06 - 0.12	0.028 - 0.28	1.11 - 1.17
	mS	0.10 - 0.20	0.15 - 0.31	1.15 - 1.19
Mode-Breite	oS	0.78 - 0.91	0.63 - 1.04	0.014 - 0.073
	mS	0.73 - 0.85	0.65 - 0.80	0.027 - 0.093

Tabelle 6. Ergebnisse der mikrophysikalischen Parameter ohne und mit Streuung. Zusätzlich sind die 1-σ Fehler und die Variationsbereiche (in Klammern) gegeben. Für die Parameter der Log-Normal-Verteilung sind nur die Variationsbereiche angegeben. oS: ohne Streuung, mS: mit Streuung

## 5. Einordnung der Ergebnisse

### 5.1 Vergleich der Aerosolextinktionskoeffizienten mit CLAES-Daten

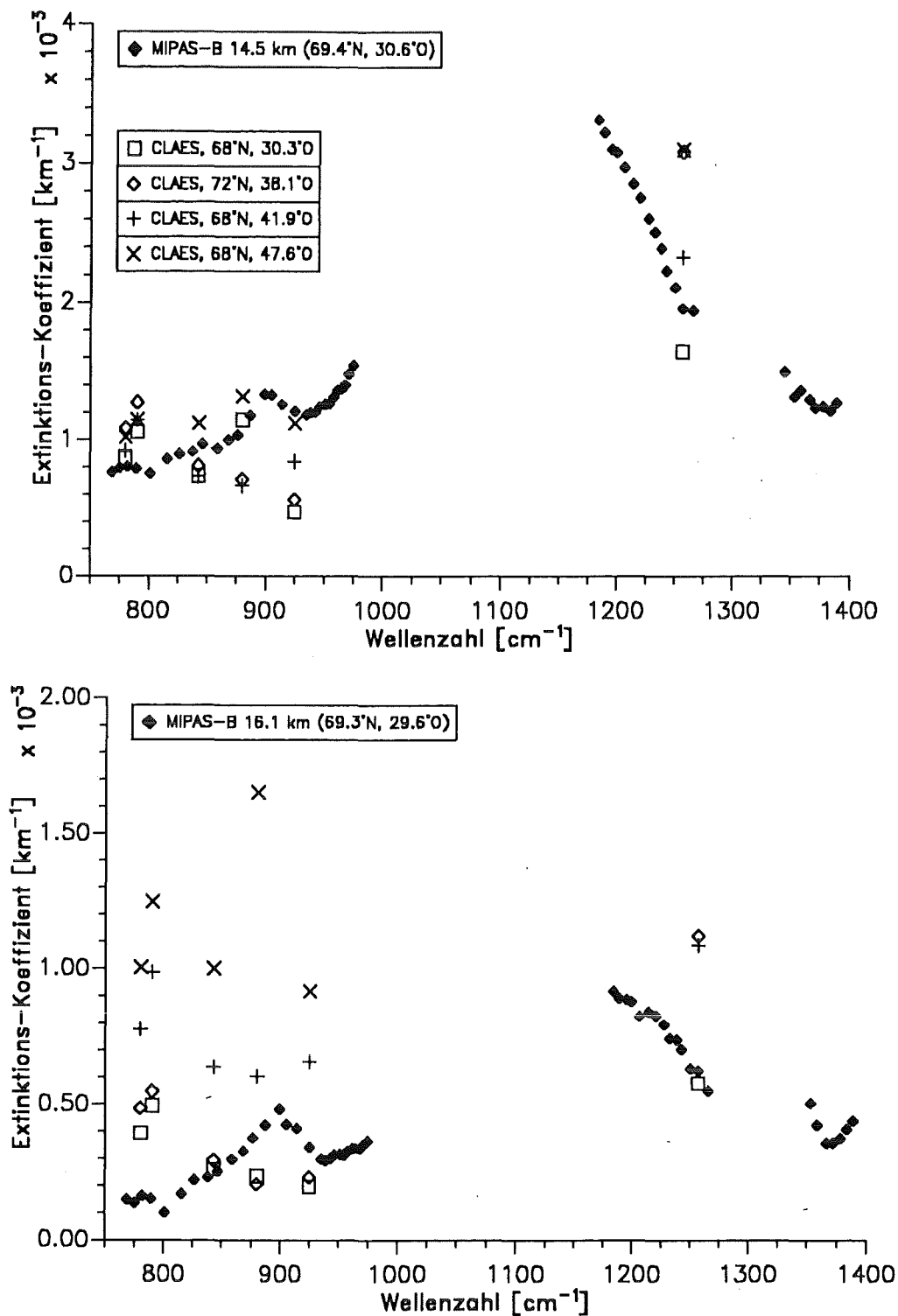
Für den direkten Vergleich von stratosphärischen Aerosolextinktionskoeffizienten im mittleren Infrarot am Ort und zur Zeit der MIPAS-B-Messungen stehen lediglich Daten von CLAES (Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer) auf dem amerikanischen Forschungssatelliten UARS zur Verfügung. Das CLAES-Instrument mißt wie MIPAS-B im Horizontsondierungsmodus die Infrarotemission der Stratosphäre, allerdings nur in acht verschiedenen spektralen Kanälen mit einer durchschnittlichen spektralen Breite von  $5 \text{ cm}^{-1}$  und einer spektralen Auflösung von ca.  $0.25 \text{ cm}^{-1}$  (Roche et al., 1993a). Für diese Arbeit sind vor allem die Spektralkanäle interessant, die auch im MIPAS-B-Spektralbereich enthalten sind. Dies sind die Kanäle bei 780, 790, 843, 880, 925 und  $1257 \text{ cm}^{-1}$ . Aus den Strahldichtemessungen in diesen Spektralkanälen wurden neben Vertikalprofilen von verschiedenen stratosphärischen Spurengasen (siehe Kumer et al., 1993, Roche et al., 1993b) auch Aerosolextinktionskoeffizienten abgeleitet (Mergenthaler et al., 1993, Roche et al., 1994).

Für den Vergleich der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten wurden vier CLAES-Beobachtungen ausgewählt, die zeitlich und räumlich den MIPAS-B-Messungen am nächsten lagen und auch für entsprechende Tangentenhöhen vorliegen. Allerdings reichen die CLAES-Extinktionsprofile nur hinunter bis zu einer tiefsten Tangentenhöhe bei ca. 14 km, so daß für die MIPAS-B-Aerosolextinktionskoeffizienten in 11.3 km keine Vergleiche angestellt werden konnten. Die geographischen Daten der herangezogenen CLAES-Daten sind zusammen mit den entsprechenden Daten des MIPAS-B-Fluges in Tabelle 7 angegeben.

	Datum	Uhrzeit	Breite	Länge	$z_{\min}$
MIPAS-B	14./15. 3.	23:00 - 1:00	69.5 ° N	30.8 ° O	14.5, 16.1 km
CLAES	14. 3.	10:50	68.0 ° N	47.6 ° O	14.2, 16.6 km
CLAES	15. 3.	2:39	68.0 ° N	30.3 ° O	14.6, 16.9 km
CLAES	15. 3.	2:40	72.0 ° N	38.1 ° O	14.2, 16.5 km
CLAES	15. 3.	10:52	68.0 ° N	41.9 ° O	14.5, 16.5 km

**Tabelle 7. Geographische Daten der MIPAS-B- und CLAES-Messungen.** Die Breiten- und Längenangaben beziehen sich auf die Tangentepunkte.

In Abb. 29 auf Seite 76 sind die MIPAS-B-Aerosolextinktionskoeffizienten (nach Streukorrektur, siehe Kap. 4.3.4.) für die Tangentenhöhen in 14.5 und 16.1 km zusammen mit den entsprechenden CLAES-Daten der oben genannten Spektralkanäle dargestellt. Die präsentierten CLAES-Aerosolextinktionskoeffizienten beruhen auf Einzelmessungen ohne zeitliche oder räumliche Mittelung, im Gegensatz zu den MIPAS-B-Extinktionen,

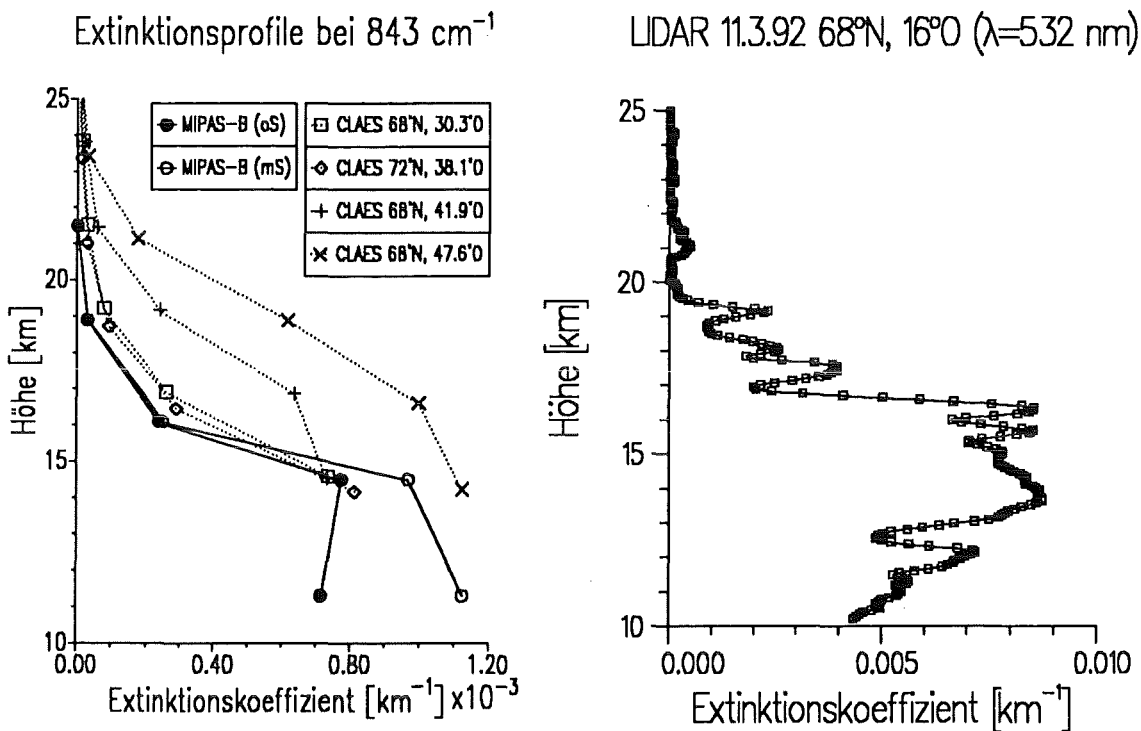


**Abbildung 29. Vergleich der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten mit CLAES-Extinktionen.** Obere Abbildung: MIPAS-B-Aerosolextinktionskoeffizienten (nach Streukorrektur) und CLAES-Extinktionen für 14 km, untere Abbildung: entsprechend in 16 km Tangentenhöhe.

die aus Spektren gewonnen wurden, für die 70 - 120 Einzelmessungen zeitlich integriert wurden. In 14.5 km stimmen die CLAES-Aerosolextinktionskoeffizienten mit den MIPAS-B-Daten recht gut überein. In 16 km trifft dies nur für die beiden, den MIPAS-B-Messun-

gen zeitlich und räumlich am nächsten gelegenen CLAES-Messungen der Aerosolextinktionskoeffizienten zu. Für die beiden weiter entfernten CLAES-Messungen ergeben sich deutlich höhere Extinktionen, die nicht mit den MIPAS-B-Messungen in Einklang gebracht werden können (auf diesen Unterschied wird weiter unten noch eingegangen). Der spektrale Verlauf der CLAES-Aerosolextinktionskoeffizienten läßt im Gegensatz zu den MIPAS-B-Daten keinen eindeutigen Schluß auf ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol zu. Lediglich das Verhältnis der Extinktionen bei  $1257\text{ cm}^{-1}$  zu den Extinktionen bei kleineren Wellenzahlen deutet auf ein  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol hin. Der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Absorptionspeak bei  $900\text{ cm}^{-1}$  ist in 14 km nur in den CLAES-Messungen bei  $30.3^\circ\text{O}$  und  $47.6^\circ\text{O}$  angedeutet.

Die CLAES-Aerosolmessungen weisen auf eine hohe räumliche Variabilität des Aerosols in der polaren Stratosphäre hin. Dies ist gut erkennbar, wenn man Vertikalprofile des Extinktionskoeffizienten einer festen spektralen Stützstelle für die verschiedenen Beobachtungsorte vergleicht. In Abb. 30 sind die CLAES-Aerosolextinktionskoeffizienten bei  $843\text{ cm}^{-1}$  sowie die MIPAS-B-Ergebnisse für das spektral nächstgelegene Aerosol Microwindow bei  $846\text{ cm}^{-1}$  (mit und ohne Berücksichtigung von Streuung) als Funktion der Tangentenhöhe gegeben.



**Abbildung 30.** Extinktionsprofil bei  $843\text{ cm}^{-1}$  im Vergleich mit einem LIDAR-Profil. Linke Abbildung: Gegenüberstellung der Extinktionsprofile von MIPAS-B und CLAES; rechte Abbildung: LIDAR-Extinktionsprofil bei  $532\text{ nm}$ , abgeleitet aus einem Rückstreuprofil mit konstantem Extinktions- zu Rückstreuverhältnis (LIDAR-Ratio) von  $25.0\text{ sr}$  (siehe Wirth et al., 1994).

Sowohl für MIPAS-B als auch CLAES ist die vertikale Auflösung der Extinktionsprofile im wesentlichen durch den Abstand der Tangentenhöhen gegeben, in beiden Fällen ca.

2.5 km beträgt. Zur Verdeutlichung, wie stark das Aerosolprofil in Wirklichkeit strukturiert sein kann, ist in der rechten Abbildung ein Extinktionsprofil abgebildet, das 3 Tage vor dem MIPAS-B-Flug vom DLR<sup>21</sup>-LIDAR auf der Transall in der Nähe von Kiruna aufgenommen wurde (Wirth et al., 1994).

Die beiden dem MIPAS-B-Flug am nächsten liegenden CLAES-Messungen zeigen eine gute Übereinstimmung mit dem MIPAS-B-Aerosolprofil. Dies trifft sowohl für die Form des Profils mit der starken Abnahme der Aerosolextinktion oberhalb von 14 km als auch für die absoluten Extinktionswerte zu. Mit zunehmender geographischer Entfernung vom MIPAS-B-Meßort nimmt das CLAES-Aerosolprofil im Höhenbereich zwischen 16 und 20 km deutlich zu. Diese Zunahme des Extinktionskoeffizienten läßt sich mit der Lage des stratosphärischen Polarwirbels zum Zeitpunkt der Messungen erklären. Abb. 31 zeigt die Lage des Polarwirbels am 15. März um 12:00 Uhr UTC anhand der Analyse der potentiellen Wirbelstärke auf einer Niveauläche der potentiellen Temperatur von 400 K aus ECMWF<sup>22</sup>-Daten (Pyle et al., 1994). Für diese Niveauläche, die einer durchschnittlichen Höhe von 14.8 km entspricht, liegt die Grenze des Polarwirbels bei einer potentiellen Wirbelstärke von  $15 (\pm 3) 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ K kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$  (Bauer et al., 1994). Während die MIPAS-B-Messung und die CLAES-Messungen bei 30.3 °O in der Nacht zum 15. März (siehe Tabelle 7 auf Seite 75) innerhalb des stratosphärischen Wirbels liegen, befinden sich die CLAES-Messungen bei 38.1 °O und 41.9 °O, sowie bei 47.6 °O am Rande bzw. außerhalb des Polarwirbels. Da die Luftmasse innerhalb des Wirbels durch Abkühlung und seitliches Ausströmen am Unterrand mit der Zeit absinkt, ist das Aerosol-extinktionsprofil dort gegenüber der Luft außerhalb des Wirbels nach unten verschoben. Die abgebildete LIDAR-Messung am 11.3. 1992 wurde ebenfalls im Randbereich des Polarwirbels aufgenommen was deutlich am starken Abbruch des Extinktionsprofils oberhalb von 17 km zu erkennen ist.

## **5.2 Einordnung der abgeleiteten Zusammensetzung**

Aus Mangel an gemessenen Daten wird für die Zusammensetzung stratosphärischer H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Aerosole in vielen Fällen eine Lösung von H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> in Wasser mit 75 % H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Gewichtsanteil angenommen. Steele and Hamill (1981) zeigten anhand theoretischer Untersuchungen, daß der H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Gewichtsanteil von H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>O-Lösungen bei Gleichgewichtsbedingungen in der Stratosphäre eine Funktion der Temperatur und des Wasserdampfpartialdrucks ist. Auf der Basis dieses Zusammenhang bietet sich für die MIPAS-B-Messungen die Möglichkeit, die aus den Aerosolextinktionskoeffizienten abgeleiteten H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Gewichtsprozentage einer Selbstkonsistenzprüfung mit den ebenfalls aus den MIPAS-B-Messungen bestimmten Wasserdampf- und Temperaturprofil zu unterziehen.

---

<sup>21</sup> Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt

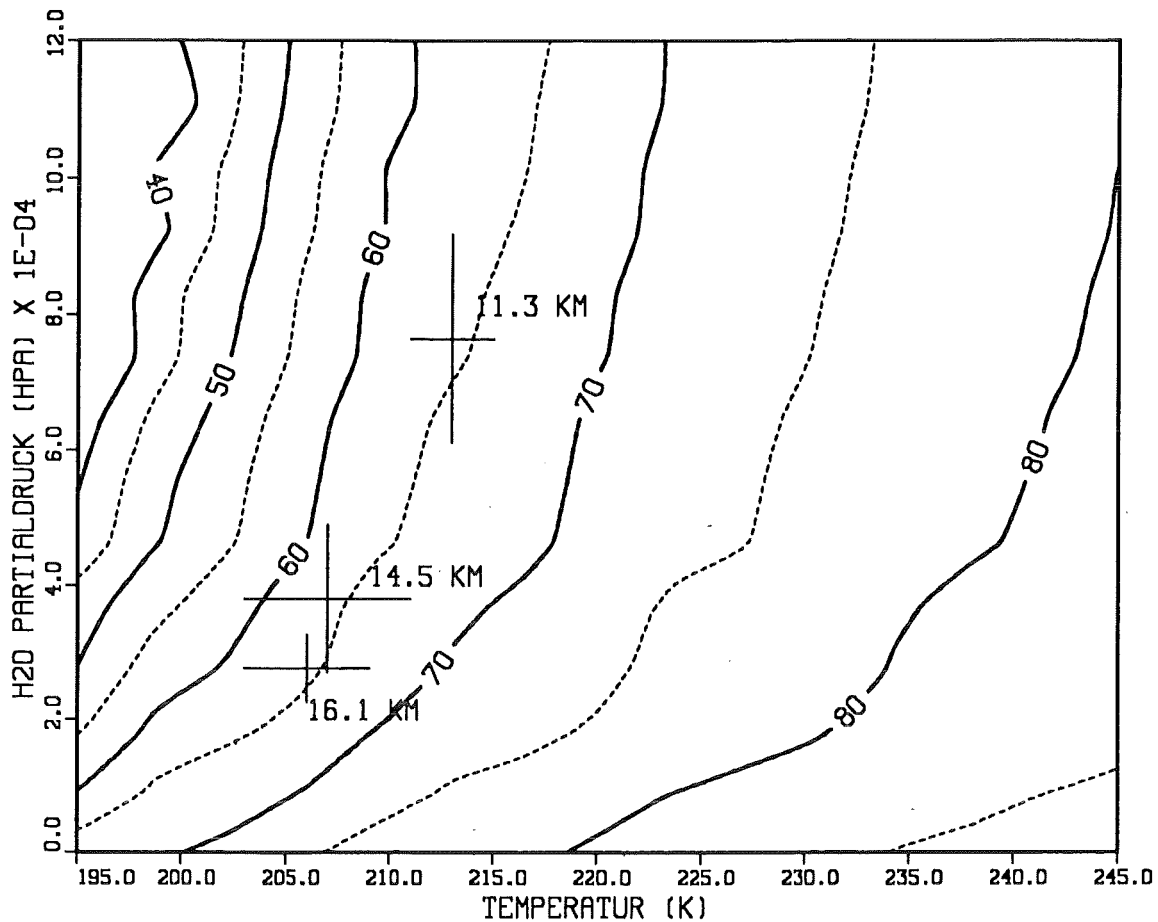
<sup>22</sup> European Center of Medium Range Weather Forecasts





**Abbildung 31. Potentielle Wirbelstärke über Nordeuropa am 15. März 1992.** Dargestellt sind die Niveaulinien der potentiellen Wirbelstärke auf der 400 K Fläche der potentiellen Temperatur. Die geographische Lage der MIPAS-B-Messung (ausgefüllter Kreis) und der CLAES-Messungen (Kreuze) sind ebenfalls eingezeichnet.

In Abb. 32 auf Seite 80 ist der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsanteil in Prozent als Funktion des Wasserdampfpartialdrucks und der Temperatur aufgetragen. Für stratosphärische Bedingungen kann der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsanteil Werte zwischen 40 und 80 % annehmen. Ebenfalls angegeben sind die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent des Aerosols, die man in den drei untersten Tangentenhöhen bei Anwendung der Rechnungen von Steele and Hamill aus den Temperaturen und Wasserdampfpartialdrücken in den jeweiligen Tangentenhöhen erhalten würde. Die Größe der Kreuze entspricht dem angegebenen Fehlerbereich für die Temperatur und den Wasserdampfpartialdruck. In 11.3 km ergäben sich auf diese Weise 63 - 67 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , in 14.5 km 59 - 67 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und in 16.1 km 61 - 67 %  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Demgegenüber stehen die aus den Aerosolextinktionskoeffizienten abgeleiteten Gewichtsprozent (siehe Tabelle 6 auf Seite 74) von 68.8 ( $\pm 3.1$ ) % in 11.3 km, 70.1 ( $\pm 3.2$ ) % in 14.5 km und 66.0 ( $\pm 2.0$ ) % in 16.1 km. Im Rahmen der Fehlergrenzen ergibt sich für alle drei Tangentenhöhen eine gute Übereinstimmung der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent für die beiden voneinander unabhängigen Bestimmungsmethoden.



**Abbildung 32.**  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent als Funktion von Temperatur und  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdruck. Die Kreuze geben die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent an, die aufgrund des  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdrucks und der Temperatur in der jeweiligen Tangentenhöhe bestimmt wurden. Die Größe der Kreuze entspricht dem  $1-\sigma$  Fehler der Temperatur und des  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdrucks. Die aus den spektralen Extinktionen abgeleiteten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Prozente sind nicht eingezeichnet, da sie unabhängig vom  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdruck und der Temperatur bestimmt wurden und deshalb nicht als Funktion dieser Parameter darstellbar sind.

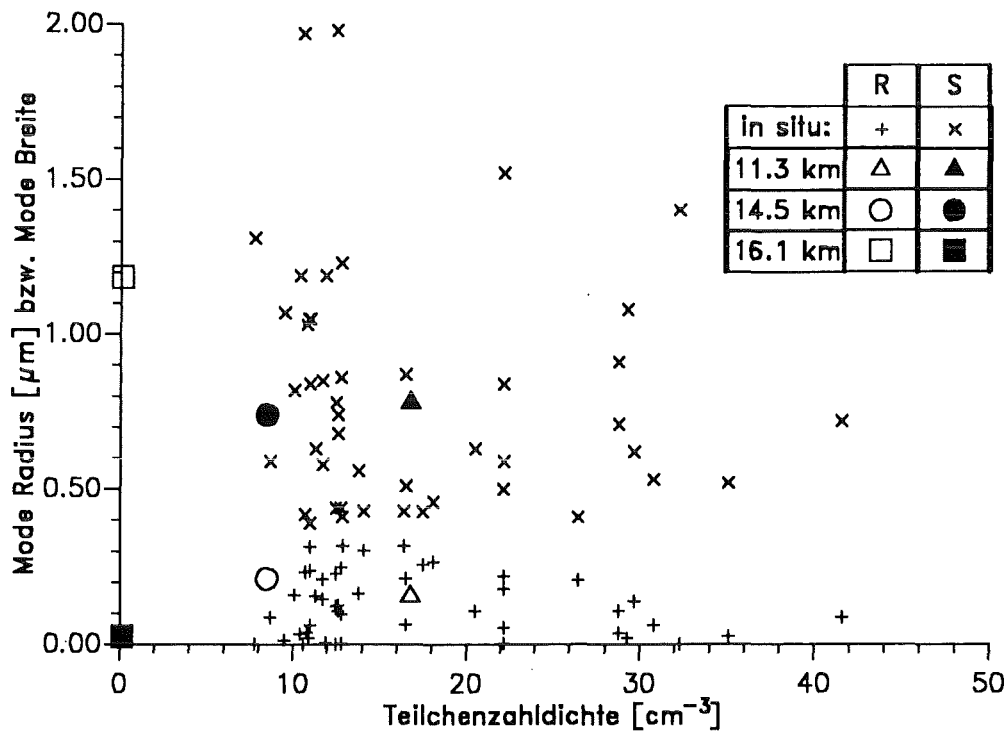
### 5.3 Vergleich der abgeleiteten Größenparameter mit *in situ* Messungen

Der Vergleich der aus den MIPAS-B-Messungen abgeleiteten Aerosolgrößenparameter mit anderen Messungen ist aus zwei Gründen sehr schwierig und damit auch nur bedingt aussagekräftig. Einerseits sind diese Aerosolparameter sehr variabel und stark von den herrschenden Bedingungen und von Durchmischungsvorgängen abhängig. Deshalb ist es nicht möglich, aus Messungen dieser Parameter zu einem bestimmten Ort und Zeitpunkt auf deren Werte an einem anderen Ort und Zeitpunkt zu schließen. Andererseits wurden in der Zeit des MIPAS-B-Flugs keine *in situ* Messungen von Aerosolen in der arktischen Stratosphäre durchgeführt. Ein direkter Vergleich, wie er für die Extinktionen durchgeführt wurde, ist deshalb für die Größenparameter nicht möglich. Es kann nur abgeschätzt werden, inwieweit die gewonnenen Ergebnisse konsistent im

Rahmen der Variabilität anderer Messungen in der arktischen Stratosphäre im Winter 1991/92 sind.

Für einen derartigen Vergleich der Aerosolgrößenparameter bieten sich vor allem die *in situ* Aerosolmessungen an, die T. Deshler (1994) an vier Tagen im Januar und Februar 1992 bei Ballonaufstiegen in Kiruna gewonnen hat. Dabei wurden mit einem optischen Teilchenzähler die Profile der Teilchenkonzentration des Aerosols in acht verschiedenen Größenklassen mit Radien zwischen  $0.15 \mu\text{m}$  und  $10 \mu\text{m}$  gemessen. Durch Anpassung von mono- oder bimodalen Log-Normal-Verteilungen an die gemessenen Konzentrationsprofile wurden Vertikalverteilungen der entsprechenden Parameter für die Log-Normal-Verteilung abgeleitet. Für den Vergleich mit den MIPAS-B-Aerosolparametern wurden nur die monomodalen Größenverteilungen herangezogen.

Abb. 33 zeigt die Log-Normal-Parameter der *in situ* Messungen und der MIPAS-B-Messungen jeweils als Funktion der Teilchenzahldichte.

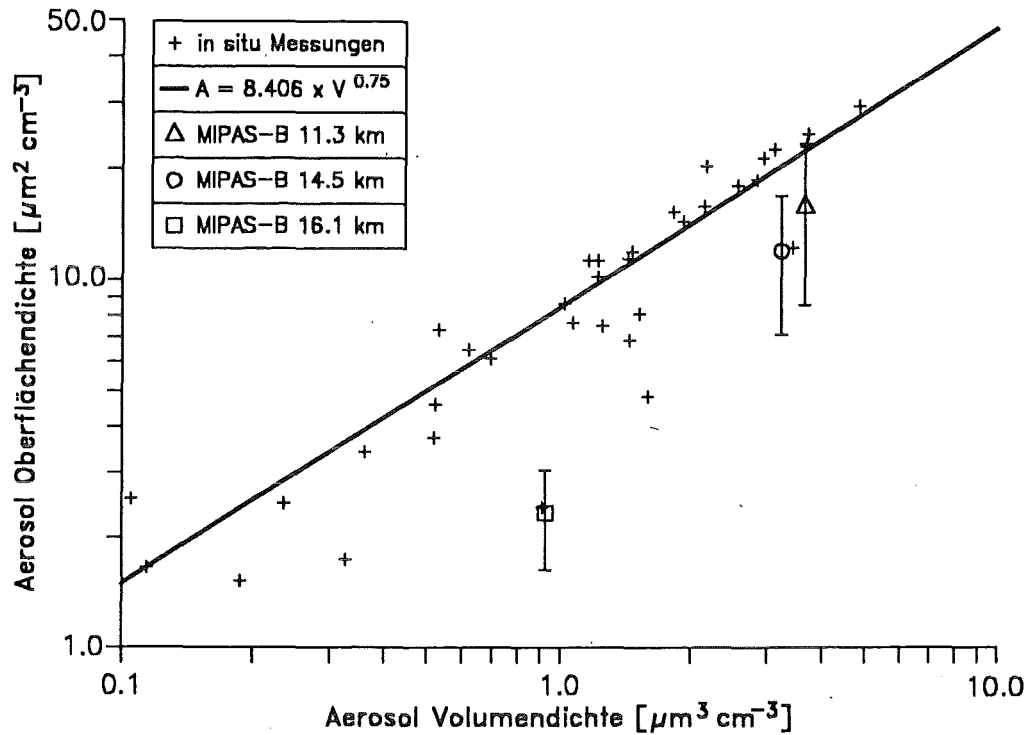


**Abbildung 33. Vergleich der Log-Normal-Parameter mit *in situ* Messungen.** Der Mode-Radius (R) und die Mode-Breite (S) sind als Funktion der Teilchenzahldichte dargestellt. Die *in situ* Log-Normal-Parameter beruhen auf Partikelzähler-Messungen in Höhen zwischen 12 und 23 km von Deshler (1994), an die eine monomodale Log-Normal-Verteilung angepaßt wurde.

Für die *in situ* Ergebnisse ergeben sich Mode-Radien die nicht größer als  $0.35 \mu\text{m}$  werden. Entsprechend erhält man Mode-Breiten, die in den weitaus meisten Fällen größer als 0.4 sind und in Extremfällen Werte bis knapp 2.0 erreichen. Die MIPAS-B-Ergebnisse für die beiden unteren Tangentenhöhen in 11.3 und 14.5 km fügen sich sehr gut in die

beobachtete Variabilität der *in situ* Messungen ein. Aus dem Rahmen fallen die Ergebnisse für 16.1 km. Dort wird ein sehr großer Mode-Radius von  $1.18 \mu\text{m}$  in Verbindung mit einer unrealistisch kleinen Breite der Verteilung und sehr kleiner Teilchenzahldichte ermittelt.

In Abb. 34 ist für die oben gezeigten Parameter der Log-Normal-Verteilung die Oberflächendichte als Funktion der Volumendichte aufgetragen.



**Abbildung 34. Vergleich der Oberflächen- und Volumendichten mit *in situ* Messungen.** Die Oberflächendichte ist gegeben als Funktion der Volumendichte. Die *in situ* Messungen wurden im Januar/Februar 1992 von Deshler (1994) in Kiruna aufgenommen. Die offenen Symbole zeigen die MIPAS-B-Ergebnisse. Zusätzlich sind die Fehlerbereiche für die Oberflächendichte angezeigt. Die durchgezogene Linie zeigt den empirischen Zusammenhang zwischen Oberflächendichte und Volumendichte, der aus Partikelzähler-Messungen des Pinatubo-Aerosols in mittleren Breiten (Deshler et al., 1992, 1993) ermittelt wurde (Grainger et al., 1995).

Aus einer großen Zahl von *in situ* Messungen von Teilchenkonzentrationen des Pinatubo-Aerosols in mittleren Breiten und den daraus bestimmten Log-Normal-Parametern (Deshler et al., 1992, 1993) konnte ein empirischer Zusammenhang zwischen Volumendichte und Oberflächendichte abgeleitet werden (Grainger et al., 1995), der in der Abbildung als durchgezogene Linie gegeben ist. Der Vergleich mit den *in situ* Messungen in Kiruna zeigt, daß der für mittlere Breiten gefundene Zusammenhang auch auf die arktische Stratosphäre anwendbar ist.

Die Ergebnisse der MIPAS-B Messungen in 11.3 und 14.5 km entsprechen innerhalb der Fehlergrenzen dem empirisch gefundenen Zusammenhang für die Oberflächendichten. Die Fehlerbalken für die Volumendichten sind nicht eingezeichnet; sie sind so klein, daß sie die Größe der Symbole nicht übertreffen. In der Tangentenhöhe 16.1 km ergibt sich bei gegebener Volumendichte eine zu kleine Oberflächendichte. Dies ist durch den großen Mode-Radius und dem damit verbundenen vergleichsweise kleinen Verhältnis von Oberfläche und Volumen der als kugelförmig angenommenen Teilchen erklärbar. Die Volumendichte für sich allein betrachtet (ohne Berücksichtigung der entsprechenden Oberflächendichte) ergibt auch für die Tangentenhöhe in 16.1 km einen, im Rahmen der bei den *in situ* Messungen beobachteten Variabilität, realistischen Wert.



## 6. Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

Die MIPAS-B-Messungen vom 14./15. März 1992 in Kiruna sind beeinflusst von einer hohen stratosphärischen Aerosolkonzentration, die vom Ausbruch des Vulkans Pinatubo (Philippinen) im Juni 1991 stammt. Der Aerosolbeitrag zeigt sich vor allem in den Emissionsspektren der drei unteren Tangentenhöhen 11.3 km, 14.5 km und 16.1 km als breitbandiges Kontinuum. Das Ziel dieser Arbeit war es, den Informationsgehalt dieser Messungen bezüglich optischer und mikrophysikalischer Eigenschaften des Aerosols zu untersuchen und ein Verfahren zu entwickeln, diese Information aus den Meßdaten abzuleiten.

Im ersten Teil der Arbeit wurden die physikalischen Zusammenhänge zwischen mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften stratosphärischer Aerosole und deren Auswirkungen auf hochaufgelöste Strahldichtespektren im mittleren Infrarot beschrieben. Es wurde gezeigt, wie die mikrophysikalischen Parameter, d.h. die Zusammensetzung und Größenverteilung der Aerosolteilchen, durch die Mie-Theorie unter Annahme von kugelförmigen Teilchen die optischen Parameter, d.h. die spektralen Extinktionskoeffizienten und die Einfachstreu-Albedo, bestimmen. Der Einfluß spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten auf Emissionsspektren für die Horizontsondierungsgeometrie wurde zunächst ohne Berücksichtigung von Streueffekten dargestellt. Es zeigt sich, daß das stratosphärische Hintergrund-Aerosol nur einen sehr geringen Beitrag zur spektralen Strahldichte liefert, während für vulkanische Bedingungen die Aerosolemission zu einem breitbandigen Kontinuum führt, das sowohl von der Zusammensetzung als auch von der Größenverteilung der Aerosolpartikel abhängt.

Es wurde eine Methode entwickelt, um aus eigens für die Analyse des Aerosolkontinuums ausgewählten kleinen, über den gesamten von MIPAS-B überdeckten Spektralbereich verteilten, Spektralintervallen Aerosolextinktionskoeffizienten zu bestimmen. Die Methode erfordert keine *a priori* Information über physikalische Eigenschaften des Aerosols, da der Aerosolextinktionskoeffizient für die einzelnen Aerosolmicrowindows als lokal wellenzahlunabhängig angenommen werden kann. Die ausgewählten Aerosolmicrowindows enthalten mindestens eine separierte Spurengasemissionlinie, so daß prinzipiell eine simultane Ableitung des Aerosolextinktionskoeffizienten, der Spurengasemission und eines additiven Offsets möglich ist. Trotz dieser prinzipiellen Möglichkeit der Korrektur einer fehlerhaften Offsetkalibrierung, erfordert die Ableitung des spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten eine genaue Kalibrierung, sowohl bei der Bestimmung des additiven Offsets als auch insbesondere bei der Skalierung der Spektren, da diese Eichunsicherheiten Auswirkungen auf die Fehler der Aerosolextinktionskoeffizienten haben, die sehr groß werden, wenn man in den Bereich der Nachweisgrenze des Aerosolkontinuums gelangt.

Die Anwendung des Verfahrens auf die MIPAS-B-Emissionsspektren ergab spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten in den beiden MIPAS-B-Spektralkanälen von

750 – 980 $\text{cm}^{-1}$  und 1180 - 1380  $\text{cm}^{-1}$  für die drei unteren Tangentenhöhen. Deren spektraler Verlauf zeigt Maxima der Extinktion bei 900  $\text{cm}^{-1}$  und 1180  $\text{cm}^{-1}$ , die eindeutig auf ein Schwefelsäure-Aerosol hinweisen. Für die Tangentenhöhe in 18.9 km können Aerosolextinktionskoeffizienten nur in der Umgebung der Extinktionsmaxima bei 900  $\text{cm}^{-1}$  und 1180  $\text{cm}^{-1}$  bestimmt werden, außerhalb dieser Maxima ist das Aerosolkontinuum unterhalb der Nachweisgrenze. Letzteres gilt auch für die darüberliegenden Tangentenhöhen bei 21.5 km und 25.1 km, in denen kein signifikanter Aerosoleinfluß feststellbar ist. Diese Ergebnisse lassen den Schluß zu, daß für stratosphärische Hintergrundbedingungen der Aerosolbeitrag in Emissionsspektren unterhalb der Nachweisgrenze liegt und die Methode zur Bestimmung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten nicht mehr anwendbar ist.

Die Auswirkung der Unsicherheiten der Spurengasmischungsverhältnisse, des Temperaturprofils und der Kenntnis der Blickrichtung auf die Genauigkeit der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten wurden in einer Fehlerrechnung untersucht. Dabei stellte sich heraus, daß die Fehler für die einzelnen Microwindows miteinander korreliert sind. Da mit der derzeit bestehenden Auswertesoftware eine direkte Bestimmung der Varianz-Kovarianz-Matrix für die korrelierten Fehler der Aerosolextinktionskoeffizienten nicht möglich ist, wurden die Korrelationen anhand einer empirischen Fehlerabschätzung bestimmt. Eine verbesserte Fit-Methode, die korrelierte Fehler besser berücksichtigt, wird derzeit entwickelt.

Bei der Untersuchung des Informationsgehaltes der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten wurde festgestellt, daß für stratosphärisches Aerosol bei der Analyse im mittleren Infrarot in den meisten Fällen das Rayleigh-Limit der Mie-Theorie gültig ist. Für diesen Fall enthält der spektrale Verlauf des Aerosolextinktionskoeffizienten keine oder nur geringe Information über die einzelnen Parameter einer Log-Normal-Verteilung. Jedoch lassen sich Volumendichte und Zusammensetzung der Aerosolteilchen eindeutig bestimmen.

Zur Ableitung der mikrophysikalischen Eigenschaften aus den spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten wurde ein Least-Squares-Anpassungsverfahren entwickelt, mit dem unter Berücksichtigung der korrelierten Fehler die Zusammensetzung in  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent und Parameter einer Log-Normal-Verteilung bestimmt werden können. Für die Parameter der Log-Normal-Verteilung ergeben sich bei der Auswertung der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten typische Korrelationen und Antikorrelationen, die in der prinzipiellen Unsicherheit der einzelnen Parameter aufgrund des Rayleigh-Limits der Mie-Theorie begründet sind. Dagegen können die Volumendichte und die Zusammensetzung des Pinatubo-Aerosols in den drei Tangentenhöhen 11.3 km, 14.5 km und 16.1 km mit einer Unsicherheit von weniger als 10 % bestimmt werden.

Die aufgrund der abgeleiteten mikrophysikalischen Parameter mit Hilfe der Mie-Theorie berechneten Streuparameter deuten auf einen nicht zu vernachlässigenden Streuanteil

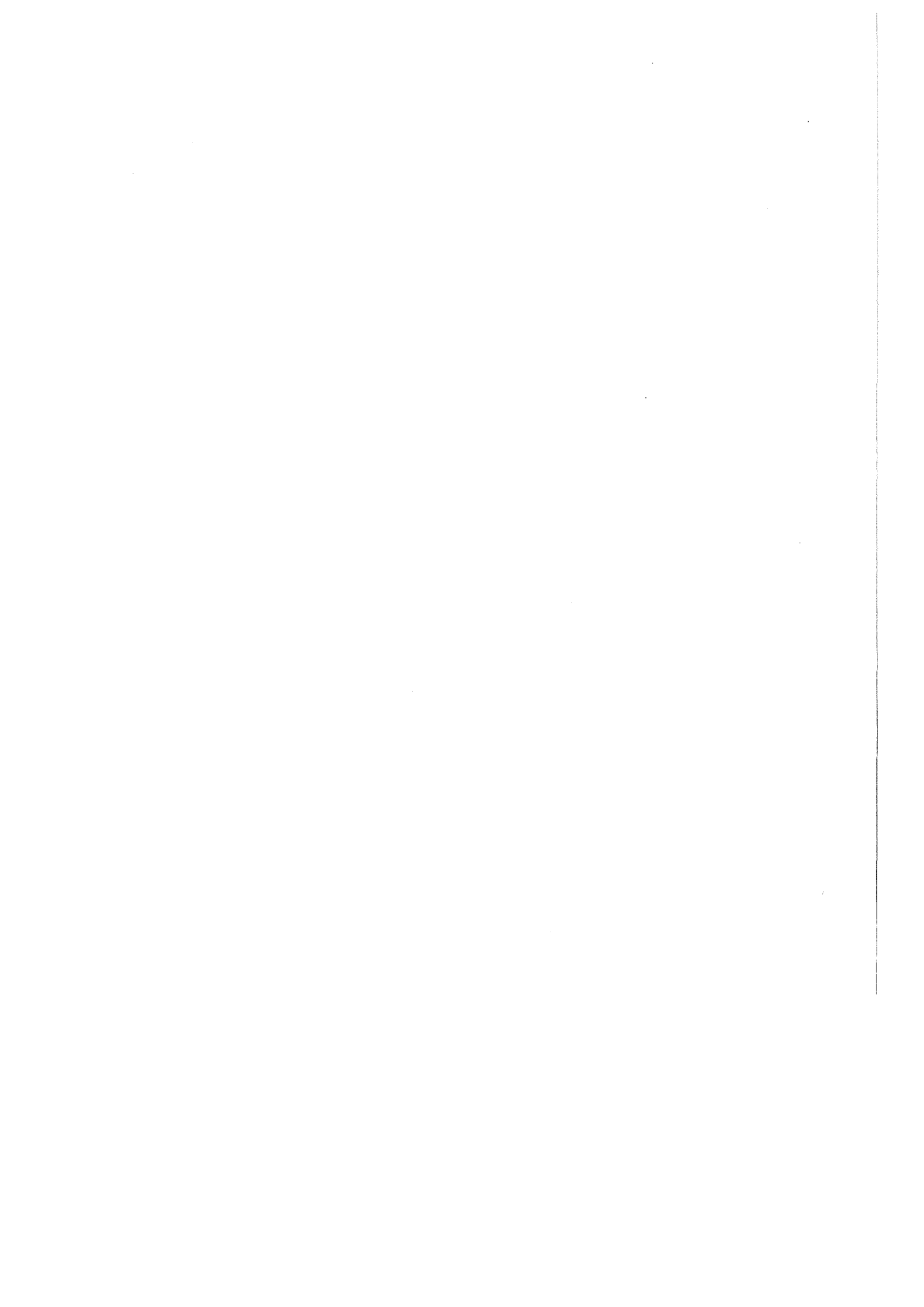


hin. Mit einem Mehrfachstreuungsprogramm wurde der Effekt von Streuung an Aerosolteilchen für die MIPAS-B-Messungen nachgewiesen. Es zeigt sich, daß bei Vernachlässigung von Streuung die abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten unterschätzt werden. Deshalb wurde ein Korrekturverfahren für die abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten entwickelt, um den Effekt der Mehrfachstreuung zu berücksichtigen. Diese Korrektur führt zur Erhöhung der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten von 5 - 10 % in 16.1 km bis hin zu 20 - 50 % in 11.3 km. Die Korrektur hat vor allem Rückwirkungen auf die abgeleiteten Log-Normal-Parameter während sich die ermittelte Zusammensetzung nicht signifikant ändert.

Die Charakteristik des Streueffekts zeigt, daß für den Fall der MIPAS-B-Meßgeometrie die Berücksichtigung von Streuung bei der Simulation zu niedrigeren Strahldichten führt als ohne Streuung. Dies kann damit erklärt werden, daß der Effekt der Herausstreuung von Strahlung aus dem optischen Pfad den Effekt durch Einstreuung von Strahlung in die Richtung des Beobachters deutlich überwiegt. Der erstgenannte Effekt läßt sich auch in einem Linie-für-Linie-Strahlungsmodell berücksichtigen, indem eine zusätzliche Schwächung durch den Aerosolstreuungskoeffizienten parametrisiert und damit zwischen Aerosolabsorption und Aerosolextinktion unterschieden wird. Im Gegensatz dazu werden in den meisten existierenden Linie-für-Linie-Programmen Extinktionskoeffizient und Absorptionskoeffizient automatisch gleichgesetzt. Ein entsprechender Algorithmus soll bei der Neuentwicklung eines Strahlungsübertragungsmodells berücksichtigt werden.

Der Vergleich der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten mit Daten des auf dem amerikanischen Forschungssatelliten UARS betriebenen Infrarotspektrometers CLAES zeigt eine gute Übereinstimmung. Die abgeleiteten  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Gewichtsprozent sind konsistent mit der Temperatur und dem Wasserdampfpartialdruck in der polaren Stratosphäre. Die ermittelten Volumendichten für die einzelnen Tangentenhöhen fügen sich gut in die bei *in situ* Messungen gewonnenen Größenverteilungen.

Die Anwendung der vorgestellten Methode zur Bestimmung von optischen und mikro-physikalischen Aerosolparametern auf Infrarotemissionsspektren, die durch polare stratosphärische Wolken (PSC) beeinflusst sind, ist unter der Einschränkung möglich, daß die stratosphärischen Wolken in den Schichten, die vom optischen Pfad durchlaufen werden, als horizontal homogen angenommen werden können. Die PSCs, die in der Arktis beobachtet werden, haben meistens eine geringe räumliche Ausdehnung, so daß die geforderte horizontale Homogenität nur in Ausnahmefällen gewährleistet werden kann. In diesem Fall müßte das Vorwärtsmodell die Strahlungsübertragung auch für horizontal inhomogene Schichten berechnen können. Außerdem muß berücksichtigt werden, daß PSC-Teilchen im allgemeinen nicht als kugelförmig angesehen werden können und deshalb die Voraussetzung für die Anwendung der Mie-Theorie nicht mehr gegeben ist.



## Liste der Symbole und Abkürzungen

### Abkürzungen

AFGL	Air Force Geophysics Laboratory
ATLAS	Atmospheric Laboratory for Applications and Science
ATMOS	Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy
CLAES	Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer
DISORT	Discrete Ordinate Radiative Transfer
DLR	Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt
EASOE	European Arctic Stratospheric Ozone Experiment
ECMWF	European Center for Medium Range Weather Forecast
FASCOD2	Fast Atmospheric Signature Code 2
FASCOD3	Fast Atmospheric Signature Code 3
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoff
ISAMS	Improved Stratospheric and Mesospheric Sounder
LIDAR	Light Detection and Ranging
LOWTRAN	Low Transmission
MIPAS	Michelson Interferometer für passive atmosphärische Sondierung
MIPAS-B	MIPAS - Ballonversion
MODTRAN3	Moderate Transmission 3
NAT	Nitric Acid Trihydrat
PSC	Polar Stratospheric Cloud
RAT	Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles
RMS	Root Mean Square
RMS <sub>w</sub>	fehlergewichtete RMS
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SÜG	Strahlungsübertragungsgleichung
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite

### Symbole

<b>A</b>	Jacobi Matrix (Dimension: $M \times K$ )
$A_{m,k}$	Elemente der Jacobi Matrix
<b>A</b>	Oberflächendichte einer Log-Normal-Verteilung
<b>A<sup>t</sup></b>	transponierte Jacobi Matrix (Dimension: $K \times M$ )
<b>B</b>	Vektor der partiellen Ableitung eines Parameters nach den Log-Normal-Parametern

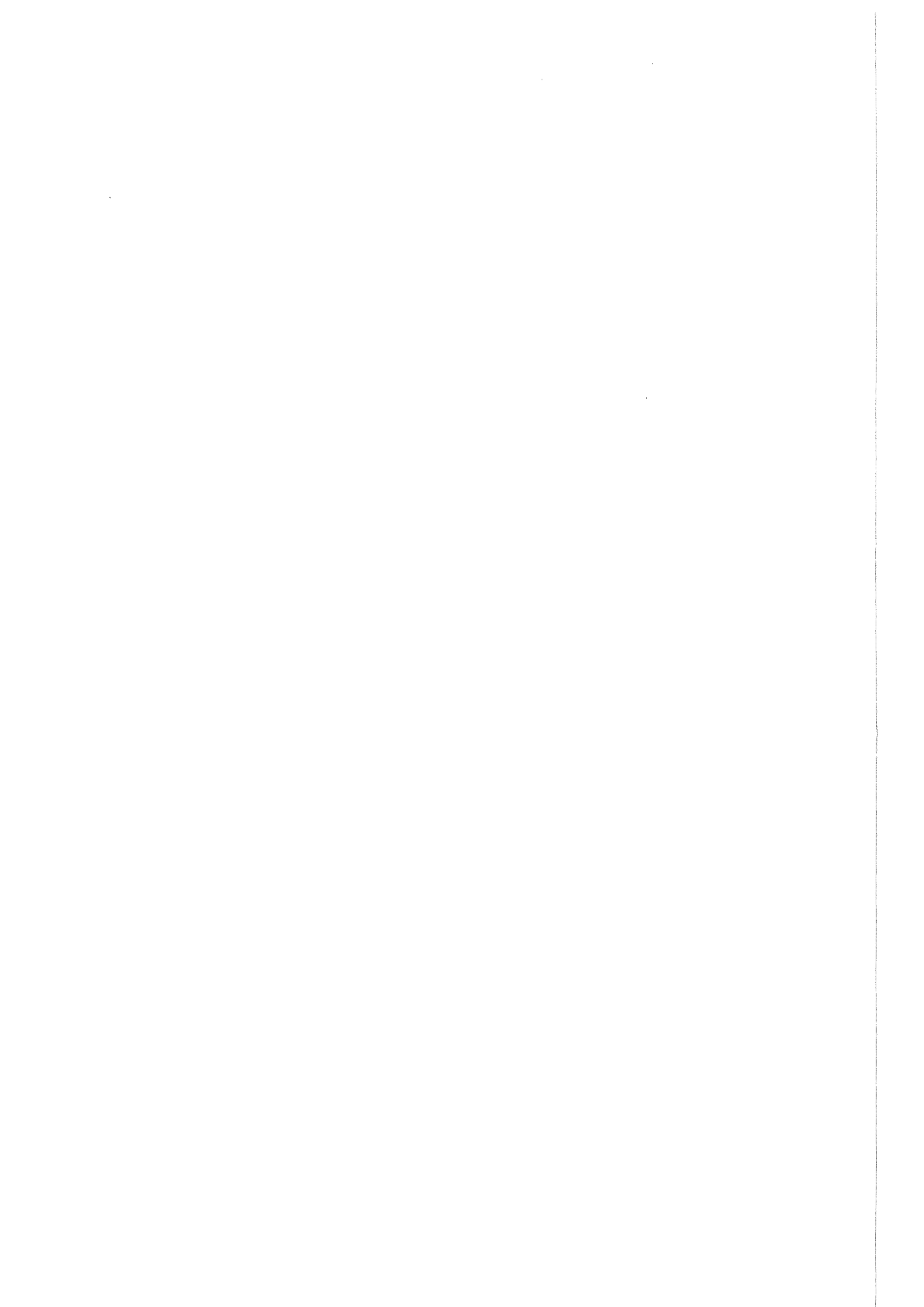
$B_{\nu}(T)$	Planckfunktion
<b>D</b>	Vektor der Parameteränderungen (Dimension: $K$ )
$dl$	infinitesimales Wegelement
$dr$	infinitesimales Radiusintervall
$d\Omega$	infinitesimaler Raumwinkel
<b>E</b>	Einheitsmatrix (Dimension: $K \times K$ )
$f_m$	Streukorrekturfaktor für spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten
<b>F</b>	Varianz-Kovarianz Matrix der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten (Dimension: $M \times M$ )
<b>G</b>	Varianz-Kovarianz Matrix der mikrophysikalischen Parameter (Dimension: $K \times M$ )
$g$	Asymmetrie-Parameter
$i$	Zählindex für Moden der Log-Normal-Verteilung
$l$	Anzahl der Moden der Log-Normal-Verteilung
$j$	Zählindex für Iterationen
$k$	Zählindex für variable Parameter
$K$	Anzahl der variablen Parameter
$L_{\nu}$	spektrale Strahldichte
$l_B$	Beobachterposition
$M$	Anzahl der spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten
$m$	Zählindex für spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten
$m(\lambda)$	komplexer Brechungsindex
mS	mit Streuung
$n(r)$	Teilchengrößenverteilung oder Radius-Verteilung
$N_i$	Gesamtzahl der Teilchen des $i$ -ten Modes im Einheitsvolumen
oS	ohne Streuung
$P_k$	$k$ -ter Parameter
<b>P<sup>j</sup></b>	Vektor der variablen Parameter der $j$ -ten Iteration (Dimension: $K$ )
$p_{\nu}$	Streuungsfunktion
$T$	Temperatur
$q_a$	Absorptionsquerschnitt
$q_{ex}$	Extinktionsquerschnitt
$q_s$	Streuquerschnitt
$r$	Radius von kugelförmigen Aerosolteilchen
$r_{eff}$	effektiver Radius
$r_i$	Peak-Radius des $i$ -ten Modes

$\Delta S$	Differenzvektor der gemessenen und berechneten spektralen Aerosolextinktionskoeffizienten (Dimension: $M$ )
$s_i$	"Breite" des $i$ -ten Modes
$z_B$	Beobachterhöhe
$z_{min}$	Tangentenhöhe
$V$	Volumendichte einer Größenverteilung
$WEI$	$H_2SO_4$ -Gewichtsprozent
$\lambda$	Wellenlänge
$\lambda_M$	Marquardt-Parameter
$\omega_0$	Einfachstreu-Albedo
$\tilde{\omega}_0$	$1 / (1 - \omega_0)$
$\Omega$	Raumwinkel
$\phi$	Elevationswinkel
$\sigma$	Standardabweichung
$\sigma_{a, v}$	Volumenabsorptionskoeffizient
$\sigma_{ex, v}$	Volumenextinktionskoeffizient
$\sigma_{ex, m, mess}$	im $m$ -ten Microwindow gemessener Volumenextinktionskoeffizient
$\sigma_{ex, m, rech}$	für das $m$ -te Microwindow berechneter Volumenextinktionskoeffizient
$\sigma_{s, v}$	Volumenstreuoeffizient
$\tau_v$	optische Dicke
$\theta$	Streuwinkel



## Abbildungsverzeichnis

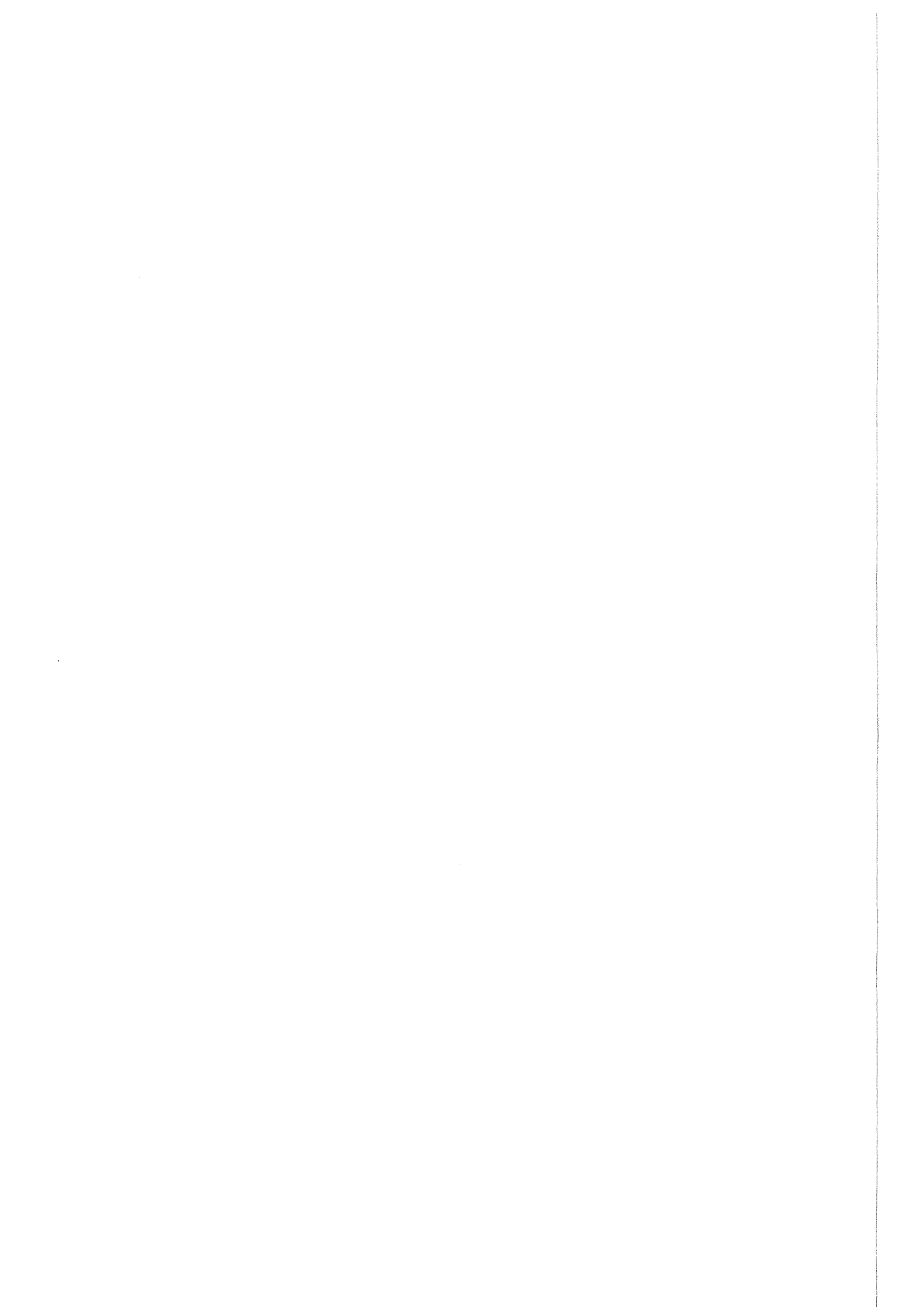
1.	Geometrie der Horizontsondierung	6
2.	Sequenz von MIPAS-B-Spektren im Kanal 1	10
3.	Vergleich des Meßspektrums im Kanal 1 mit einem simulierten Spektrum (ohne Aerosol)	11
4.	Sequenz von MIPAS-B-Spektren im Kanal 2	13
5.	Vergleich des Meßspektrums im Kanal 2 mit einem simulierten Spektrum (ohne Aerosol)	14
6.	Physikalische Eigenschaften von Aerosolen und ihre Zusammenhänge	16
7.	Anzahl- und Volumenverteilung typischer stratosphärischer Aerosole	17
8.	Komplexe Brechungsindizes für verschiedene stratosphärische Aerosole	20
9.	Optische Parameter für verschiedene stratosphärische Aerosole	23
10.	Simulierte Emissionsspektren für verschiedene Aerosoltypen	27
11.	Zur Unterscheidung von additivem Offset und Aerosolkontinuum	33
12.	Zur Unterscheidung von H <sub>2</sub> O-Linienflügelbeitrag und Aerosolkontinuum	34
13.	Beste Anpassung für normales und erhöhtes HNO <sub>3</sub> -Profil	35
14.	Abgeleitete spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten als Funktion der Wellenzahl	39
15.	Spektrale Aerosolextinktionskoeffizienten und deren 1- $\sigma$ Fehlerbereiche	41
16.	Abschätzung zur Gültigkeit des Rayleigh-Limits	44
17.	Korrelationen zwischen Mode-Breite und Mode-Radius für eine Hintergrund-Größenverteilung	49
18.	Korrelationen zwischen Mode-Breite und Mode-Radius für eine vulkanische Größenverteilung	51
19.	Korrelation zwischen Mode-Breite und H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> -Mischungsverhältnis in Gewichtsprozent	53
20.	Ergebnisse der Aerosol-Retrievals als Funktion der Mode-Breite	55
21.	Beste Anpassungen der Aerosolextinktionskoeffizienten	59
22.	Einfachstreu-Albedo und Asymmetrieparameter auf der Basis der Best-Fit-Aerosolparameter	62
23.	MODTRAN3-Rechnungen zur Abschätzung des Streueffekts	64
24.	Streueffekt für variables $\omega_0$ als Funktion des Aerosolextinktionskoeffizienten	66
25.	Streueffekt für variable $g$ als Funktion des Aerosolextinktionskoeffizienten	67
26.	Variation des Asymmetrie-Parameters	68
27.	Schematischer Ablauf der Korrektur der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten	70
28.	Vergleich der Korrekturfaktoren mit $\tilde{\omega}_0$	72
29.	Vergleich der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten mit CLAES- Extinktionen	76
30.	Extinktionsprofil bei 843 cm <sup>-1</sup> im Vergleich mit einem LIDAR-Profil	77
31.	Potentielle Wirbelstärke über Nordeuropa am 15. März 1992	79
32.	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> -Gewichtsprozent als Funktion von Temperatur und H <sub>2</sub> O-Partialdruck	80
33.	Vergleich der Log-Normal-Parameter mit in situ Messungen	81
34.	Vergleich der Oberflächen- und Volumendichten mit in situ Messungen	82





## Tabellen

1. Parameter für zwei Beispiele stratosphärischer Aerosolgrößenverteilungen .	17
2. Aerosol-Microwindows zur Ableitung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten im Kanal 1 . . . . .	37
3. Aerosol-Microwindows zur Ableitung spektraler Aerosolextinktionskoeffizienten im Kanal 2 . . . . .	38
4. Anfangswerte für anzupassende Aerosolparameter . . . . .	54
5. Abgeleitete mikrophysikalische Parameter und $1-\sigma$ Fehler . . . . .	57
6. Ergebnisse der mikrophysikalischen Parameter ohne und mit Streuung . . . . .	74
7. Geographische Daten der MIPAS-B- und CLAES-Messungen . . . . .	75



G.P. ADRIAN, M. BAUMANN, T. BLUMENSTOCK, H. FISCHER, A. FRIEDLE, L. GERHARDT, G. MAUCHER, H. OELHAF, W. SCHEUERPFUG, P. THOMAS, O. TRIESCHMANN, and A. WEGNER; First results of ground-based FTIR measurements of atmospheric trace gases in north Sweden and Greenland during EASOE; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, 1343 - 1346 (1994)

G.A. d'ALMEIDA, P. KÖPKE, and E.P. SHETTLE; Atmospheric aerosols: global climatology and radiative characteristics; A. Deepak Publishing, Hampton, VA (1991)

G. ANDERSON, Persönliche Mitteilung (1993)

S.E. ANTHONY, R.T. TISDALE, R.S. DISSELKAMP, M.A. TOLBERT, and J.C. WILSON; FTIR studies of low temperature sulfuric acid aerosols; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 22, No. 9, 1105 - 1108 (1995)

A. APELBLAT; Table of definite and infinite integrals; *Physical Sciences Data 13*, Elsevier Scientific Publ. Comp. (1983)

S. ASANO and M. SATO; Light scattering by randomly oriented spheroidal particles; *Appl. Opt.*, Vol. 19, 962 - 974 (1980)

R. BAUER, A. ENGEL, H. FRANKEN, E. KLEIN, G. KULESSA, C. SCHILLER, U. SCHMIDT, R. BORCHERS, and J. LEE; Monitoring the vertical structure of the Arctic vortex over northern Scandinavia during EASOE: Regular N<sub>2</sub>O profile observations; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, 1211 - 1214 (1994)

C.E. BLOM, H. FISCHER, N. GLATTHOR, T. GULDE, and M. HÖPFNER; Airborne measurements during the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment: Column amounts of HNO<sub>3</sub> and O<sub>3</sub> derived from FTIR emission sounding; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No.13, 1351 - 1354 (1994)

C.F. BOHREN and D.R. HUFFMAN; Absorption and Scattering of Light by Small Particles; Wiley-Interscience Publication, John Wiley & Sons, New York (1983)

P. BURKERT, F. FERGG, and H. FISCHER; A compact high-resolution Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS); *IEEE Trans. Geosci. Remote Sensing*, Vol. GE-21, 345 - 349 (1983)

M. CARLOTTI; Global Fit Approach to the Analysis of Limb-Scanning Atmospheric Measurements; *Appl. Opt.*, Vol. 27, No. 15, 3250 - 3254 (1988)

S. CHANDRASEKHAR; Radiative Transfer; Dover Publications Inc., New York (1960)

M. CHIN and D.D. DAVIS; A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosol; *J. Geophys. Res.*, Vol. 100, No. D5, 8993 - 9005 (1995)

T. von CLARMANN; Die Bestimmung von Mischungsverhältnissen stratosphärischer Spurengase aus Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich; Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK), KfK 4698 (1990)

T. von CLARMANN, H. FISCHER, F. FRIEDL-VALLON, A. LINDEN, H. OELHAF, Ch. PIESCH, and M. SEEFELDNER; Retrieval of Stratospheric O<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub> and ClONO<sub>2</sub>-Profiles from 1992 MIPAS-B Limb Emission Spectra: Method, Results and Error Analysis; J. Geophys. Res., Vol. 98, D11, 20495 - 20506 (1993)

T. von CLARMANN; RAT: A Computational Tool for Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles from Infrared Spectra; Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK), KfK 5423 (1994)

T. von CLARMANN, A. LINDEN, H. OELHAF, H. FISCHER, F. FRIEDL-VALLON, Ch. PIESCH, M. SEEFELDNER, W. VÖLKER, R. BAUER, A. ENGEL, and U. SCHMIDT; Determination of the Stratospheric Organic Chlorine Budget in the Spring Arctic Vortex from MIPAS-B Limb Emission Spectra and Air Sampling Experiments; J. Geophys. Res., Vol. 100, D7, 13979 - 13997 (1995)

A.A. CLIFFORD; Multivariate Error Analysis, A handbook of error propagation and calculation in many-parameter systems; Applied Science Publishers Ltd, London (1973)

S.A. CLOUGH, F.X. KNEIZYS, E.P. SHETTLE, and G.P. ANDERSON; Atmospheric Radiance and Transmittance: FASCOD2; in Proceedings of the Sixth Conference on Atmospheric Radiation, 13-16 May 1986, Williamsburg VA., 141 - 144 (1986)

S.A. CLOUGH, F.X. KNEIZYS, G.P. ANDERSON, E.P. SHETTLE, J.H. CHETWYND, L.W. ABREU, L.A. HALL, and R.D. WORSHAM; FASCOD3: Spectral Simulation; in: Current Problems in Atmospheric Radiation, Proceedings of the International Radiation Symposium, Lille, France, 18-24 August 1988, Deepak Publishing, 372 - 375 (1988)

M.P. McCORMICK and R.E. VEIGA; SAGE II measurements of early Pinatubo Aerosols; Geophys. Res. Lett., Vol. 19, No. 2, 155 - 158, (1992)

M.P. McCORMICK; Initial Assessment of the Stratospheric and Climatic Impact of the 1991 Mount Pinatubo Eruption: Prologue; Geophys. Res. Lett., Vol. 19, No. 2, 149 (1992)

M.P. McCORMICK, L.W. THOMASON, and C.R. TREPTE; Atmospheric effects of the Mt Pinatubo Eruption; Nature, Vol. 373, 399 - 404 (1995)

P.J. CRUTZEN; The possible importance of OCS for the sulfate layer of the stratosphere; Geophys. Res. Lett., Vol. 3, 73 - 76 (1976)

P.J. CRUTZEN and F. ARNOLD; Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere, A major cause for the springtime 'ozone hole'; Nature, Vol. 324, 651 - 655 (1986)

T. DESHLER, D.J. HOFMANN, B.J. JOHNSON, and W.R. ROZIER; Balloon-borne measurements of the Pinatubo aerosol size distribution and volatility at Laramie, Wyoming during the summer of 1991; Geophys. Res. Lett., Vol. 19, No. 2, 199 - 202 (1992)

- T. DESHLER, B.J. JOHNSON, and W.R. ROZIER; Balloonborne measurements of Pinatubo aerosol during 1991 and 1992 at 41 °N: Vertical profiles, size distribution and volatility; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 20, No. 12, 1435 - 1438 (1993)
- T. DESHLER; In Situ Measurements of Pinatubo Aerosol over Kiruna on four Days between 18 January and 13 February 1992; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, 1323 - 1326 (1994)
- G. ECHLE, H. OELHAF, and A. WEGNER; Measurement of Atmospheric Parameters with MIPAS; Final Report, ESTEC Contract 9597/91/NL/SF (1992)
- G. ECHLE, H. OELHAF, and A. WEGNER; On the Potential of I.R. Limb Emission Spectroscopy for the Measurement of the Stratospheric Composition; *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, Vol. 52, No. 3/4, 253 - 265 (1994)
- G. ECHLE, H. OELHAF, T. von CLARMANN, M. SCHMIDT, J.-M. FLAUD, and R. ZANDER; Definition of Spectral Intervals for the Retrieval of Trace Gas Concentrations from MIPAS Limb Emission Spectra (Microwindows Study); Final Report, ESTEC Contract 10993/94/NL/PR (1995)
- G. ECHLE, T. von CLARMANN, and H. OELHAF; A technique for retrieving mid-IR extinction coefficients of stratospheric aerosols from limb emission spectra; Air pollution research report 56, Proceedings of the 3rd European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Sept. 1995, Schliersee, publ. by the European Commission, 823 - 826 (1996)
- H. FISCHER; Remote Sensing of Atmospheric Trace Gases; *Interdisciplinary Science Reviews*, Vol.18, No. 3, 185 - 191 (1993)
- A. GOLDMAN and R.S. SAUNDERS; Analysis of Atmospheric Infrared Spectra for Altitude Distribution of Atmospheric Trace Constituents - I: Method of Analysis; *J. Quant. Spectroscop. Radiat. Transfer*, Vol. 21, No. 2, 155 - 162 (1979)
- R.G. GRAINGER, A. LAMBERT, F.W. TAYLOR, J.J. REMEDIOS, C.D. RODGERS, M. CORNEY, and B.J. KERRIDGE; Infrared absorption by volcanic stratospheric aerosols observed by ISAMS; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 20, No. 12, 1283 - 1286 (1993)
- R.G. GRAINGER, A. LAMBERT, C.D. RODGERS, F.W. TAYLOR, and T. DESHLER; Stratospheric aerosol effective radius, surface area and volume estimated from infrared measurements; *J. Geophys. Res.*, Vol. 100, No. D8, 16507 - 16518 (1995)
- W.B. GRANT, E.V. BROWELL, J. FISHMAN, V.C. BRACKETT, R.E. VEIGA, D. NGANGA, A. MINGA, B. CROS, C.F. BUTLER, M.A. FENN, C.S. LONG, and L.L. STROWE; Aerosol-associated changes in tropical stratospheric ozone following the eruption of Mount Pinatubo; *J. Geophys. Res.*, Vol. 99, No. D4, 8197 - 8211 (1994)
- B. HALPERIN and D.G. MURCRAY; Effect of volcanic aerosols on stratospheric radiance at wavelengths between 8 and 13  $\mu\text{m}$ ; *Appl. Opt.*, Vol. 26, No. 11, 2222 - 2235 (1987)
- D.H. HOFMANN and J.M. ROSEN; Sulfuric Acid Droplet Formation and Growth in the Stratosphere after the 1982 Eruption of El Chichon; *Science*, Vol. 222, 325 - 327 (1983)

M. HÖPFNER; Das flugzeuggetragene Fernerkundungsexperiment MIPAS-FT: Auswertung und Interpretation der arktischen Meßkampagnen 1991/92 und 1992/93; Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK), KfK 5438 (1994)

H.C. van de HULST; Light Scattering by Small Particles; Dover, New York (1981)

R.G. ISAACS, W.-C. WANG, R.D. WORSHAM, and S. GOLDENBERG; Multiple Scattering Treatment for Use in the LOWTRAN and FASCODE Models; AFGL-TR-86-0073, Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom Air Force Base, MA (1986)

R.G. ISAACS, W.-C. WANG, R.D. WORSHAM, and S. GOLDENBERG; Multiple scattering LOWTRAN and FASCODE models; Appl. Opt., Vol. 26, Nr. 7, 1272 - 1281 (1987)

H. JÄGER; The Pinatubo eruption cloud observed by LIDAR at Garmisch-Partenkirchen; Geophys. Res. Lett., Vol. 19, No. 2, 191 - 194 (1992)

C.E. JUNGE, C.W. CHAGNON, and J.E. MANSON; Stratospheric Aerosols; J. Meteor., Vol. 18, 81 - 108 (1961)

C.E. JUNGE; Air Chemistry and Radioactivity; International Geophysics Series, Vol. 4, Academic Press, New York (1963)

A.R. MACKENZIE, M. KULMALA, A. LAAKSONEN, and T. VESALA; On the theories of type 1 polar stratospheric cloud formation; J. Geophys. Res., Vol. 100, No. D6, 11275 - 11288 (1995)

F.X. KNEIZYS, E.P. SHETTLE, W.O. GALLERY, J.H. CHETWYND Jr., L.W. ABREU, J.E.A. SELBY, S.A. CLOUGH, and R.W. FENN; Atmospheric Transmittance/Radiance: Computer Code LOWTRAN6, AFGL-TR-83-0187, Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom Air Force Base, MA (1983)

J.B. KUMER, J.L. MERGENTHALER, and A.E. ROCHE; CLAES CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> (F 12) global data; Geophys. Res. Lett., Vol. 20, No. 12, 1239 - 1242 (1993)

T.G. KYLE; Atmospheric Transmission, Emission and Scattering; Pergamon Press, Oxford (1991)

A. LAMBERT, R.G. GRAINGER, J.J. REMEDIOS, C.D. RODGERS, M. CORNEY, and F.W. TAYLOR; Measurement of the evolution of the Mt. Pinatubo aerosol cloud by ISAMS; Geophys. Res. Lett., Vol. 20, No. 12, 1287 - 1290 (1993)

A. LEVENBERG; A method for the solution of certain non-linear problems in least squares; Quart. Appl. Math., Vol. 2, 164 - 168 (1944)

W.G. MANKIN, M.T. COFFEY, and A. GOLDMAN; Airborne Observations of SO<sub>2</sub>, HCl, and O<sub>3</sub> in the Stratospheric Plume of the Pinatubo Volcano in July 1991; Geophys. Res. Lett., Vol. 19, No. 2, 179 - 182 (1992)

D.W. MARQUARDT; An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters; J. Soc. Indust. Appl. Math., Vol. 11, No. 2, 431 - 441 (1963)

S.T. MASSIE, P.L. BAILEY J.C. GILLE, E.C. LEE, J.L. MERGENTHALER, A.E. ROCHE, J.B. KUMER, E.F. FISHBEIN, J.WATERS, and W.A. LAHOZ; Spectral Signatures of Polar Stratospheric Clouds and Sulfate Aerosol; *J. Atmos. Sci.*, Vol. 51, No. 20, 3027 - 3044 (1994)

J.L. MERGENTHALER, J.B. KUMER, and A.E. ROCHE; CLAES South-Looking Aerosol Observations for 1992; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 20, No. 12, 1295 - 1298 (1993)

J.L. MERGENTHALER, J.B. KUMER, and A.E. ROCHE; CLAES observations of Mt. Pinatubo stratospheric aerosol; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 22, No. 24, 3497 - 3500 (1995)

G. METZIG; OPTIMA: Berechnung der optischen Eigenschaften einzelner Mie-Partikeln mit homogener oder schalenförmiger Struktur; Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK), KfK Report 3678 (1984)

G. MIE; Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen; *Ann. Physik*, Vol. 4, 377 - 445 (1908)

V.R. OBERBECK, E.F. DANIELSEN, K.G. SNETSINGER, G.V. FERRY, W. FONG, and D.M. HAYES; Effect of the Eruption of El Chichón on Stratospheric Aerosol Size and Composition; *Geophysical Research Letters*, Vol. 10, No. 11, 1021 - 1024 (1983)

H. OELHAF, T. von CLARMANN, H. FISCHER, F. FRIEDL-VALLON, Ch. FRITZSCHE, A. LINDEN, Ch. PIESCH, M. SEEFELDNER, and W. VÖLKER; Stratospheric ClONO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> profiles inside the Arctic vortex from MIPAS-B limb emission spectra obtained during EASOE; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, 1263 -1266 (1994)

H. OELHAF, T. von CLARMANN, H. FISCHER, F. FRIEDL-VALLON, C. KEIM, G. MAUCHER, C. SARTORIUS, M. SEEFELDNER, O. TRIESCHMANN, G.WETZEL, and M. WÖLFEL; Remote Sensing of the Arctic stratosphere with the new balloon-borne MIPAS-B2 instrument; Air pollution research report 56, Proceedings of the 3rd European Workshop on Polar Stratospheric Ozone Sept. 1995, Schliersee, publ. by the European Commission, 270 - 275 (1996)

K.F. PALMER and D. WILLIAMS; Optical Constants of Sulfuric Acid: Application to the Clouds of Venus ?; *Appl. Opt.*, Vol. 14, 208 - 219 (1975)

J.B. POLLACK, O.B. TOON, E.F. DANIELSEN, D.J. HOFMANN, and J.M. ROSEN; The El Chichón Volcanic Cloud: An Introduction; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 10, No. 11, 989 - 992 (1983)

R.F. PUESCHEL, P.B. RUSSELL, D.A. ALLEN, G.V. FERRY, K.G. SNETSINGER, J.M. LIVINGSTON, and S. VERMA; Physical and optical properties of the Pinatubo volcanic aerosol: Aircraft observations with impactors and a Sun-tracking photometer; *J. Geophys. Res.*, Vol. 99, No. D6, 12915 - 12922 (1994)

J.A. PYLE, N.R.P. HARRIS, J.C. FARMAN, F. ARNOLD, G. BRAATHEN, R.A. COX, P. FAUCON, R.L. JONES, G. MEGIE, A. O'NEILL, U. PLATT, J.-P. POMMEREAU, U. SCHMIDT, and F. STORDAL; An Overview of the EASOE Campaign; *Geophys. Res. Lett.*, Vol. 21, No. 13, 1191 - 1194 (1994)

H. QUENZEL and H. MÜLLER; Optical Properties of Single Mie Particles: Diagrams of Intensity- Extinction- Scattering- and Absorption Efficiencies; Universität München - Meteorologisches Institut, Wissenschaftliche Mitteilung Nr. 34 (1978)

C.A. REBER, C.E. TREVETHAN, R.J. McNEAL, and M.R. LUTHER; The Upper Atmospheric Research Satellite (UARS) Mission; J. Geophys. Res., Vol. 98, No. D6, 10643 - 10647 (1993)

W.J. REBURN, J.J. REMEDIOS, J. BALLARD, B.N. LAWRENCE, and F.W. TAYLOR; Measurements of stratospheric NO<sub>2</sub> by the Improved Stratospheric and Mesospheric Sounder; Geophys. Res. Lett., Vol. 20, No. 12, 1231 - 1234 (1993)

C.P. RINSLAND, G.K. YUE, M.R. GUNSON, R. ZANDER, and M.C. ABRAMS; Mid-Infrared Extinction by Sulfate Aerosols from the Mt Pinatubo Eruption; J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, Vol. 52, Nr. 3/4, 241 - 252 (1994)

A.E. ROCHE, J.B. KUMER, J.L. MERGENTHALER, G.A. ELY, W.G. UPLINGER, J.F. POTTER, T.C. JAMES, and L.W. STERRITT; The Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer (CLAES) on UARS: Experiment Description and Performance; J. Geophys. Res., Vol. 98, No. D6, 10763 - 10775 (1993a)

A.E. ROCHE, J.B. KUMER, and J.L. MERGENTHALER; CLAES observations of ClONO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> in the Antarctic stratosphere between June 15, and September 17, 1992; Geophys. Res. Lett., Vol. 20, No. 12, 1223 - 1226, (1993b)

A.E. ROCHE, J.B. KUMER, J.L. MERGENTHALER, R.W. NIGHTINGALE, W.G. UPLINGER, G.A. ELY, F. POTTER, D.J. WUEBBLES, P.S. CONNELL, and D.E. KINNESON; Observations of Lower-Stratospheric ClONO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, and Aerosol by the UARS CLAES Experiment between January 1992 and April 1993; J. Atmos. Sci., Vol. 51, No. 20, 2877 - 2902 (1994)

J.M. RODRIGUEZ, M.K.W. KO, N.D. SZE, C.W. HEISEY, G.K. YUE, and M.P. McCORMICK; Ozone response to enhanced heterogeneous processing after the eruption of Mt. Pinatubo; Geophys. Res. Lett., Vol. 21, No. 3, 209 - 212 (1994)

K. STAMNES, S.-C. TSAY, W. WISCOMBE, and K. JAYAWEERA; Numerically stable algorithm for discrete-ordinate radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media; Appl. Opt., Vol. 27, 2502 - 2509 (1988)

H.M. STEELE and P. HAMILL; Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulphuric acid-water droplets in the stratosphere; J. Aerosol Sci., Vol. 12, 517 - 529 (1981)

B. STEIN, M.D. GUASTA, J. KOLENDA, M. MORANDI, P. RAIROUX, L. STEFANUTTI, J.P. WOLF, and L. WÖSTE; Stratospheric aerosol size distribution from multispectral LIDAR measurements at Sodankylä during EASOE; Geophys. Res. Lett., Vol. 21, No. 13, 1311 - 1314 (1994)

L.W. THOMASON; A Diagnostic Stratospheric Aerosol Size Distribution Inferred from SAGE II Measurements; J. Geophys. Res., Vol. 96, No. D12, 22501 - 22508 (1991)



- O.B. TOON, M.A. TOLBERT, B.G. KOEHLER, A.M. MIDDLEBROOK, and J. JORDAN; Infrared optical constants of H<sub>2</sub>O ice, amorphous nitric acid solutions, and nitric acid hydrates; J. Geophys. Res., Vol. 99, No. D12, 25631 - 25654 (1994)
- R.P. TURCO, R.C. WHITTEN, and O.B. TOON; Stratospheric Aerosols: Observation and Theory; Rev. Geophys. Space Phys., Vol. 20, No. 2, 233 - 279 (1982)
- J.R. WAIT; Scattering of a plane wave from a circular dielectric cylinder at oblique incidence; Can. J. Phys., Vol. 33, 189 - 195 (1955)
- A. WEGNER; Auswertung und Interpretation von bodengebundenen Absorptionsmessungen im infraroten Spektralbereich mit MIPAS-LM; Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 5631 (1995)
- G. WETZEL, Persönliche Mitteilung (1991)
- G. WETZEL, T. von CLARMANN, H. OELHAF, and H. FISCHER; Vertical profiles of N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> along with CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, and H<sub>2</sub>O in the late arctic winter retrieved from MIPAS-B infrared limb emission measurements; J. Geophys. Res., Vol. 100, No. D11, 23173 - 23181 (1995)
- R.C. WHITTEN (Ed.); The Stratospheric Aerosol Layer; Topics in Current Physics, Vol. 28, Springer Verlag Heidelberg (1982)
- M. WIRTH, G. EHRET, P. MÖRL, and W. RENGER; Two dimensional stratospheric aerosol distributions during EASOE; Geophys. Res. Lett., Vol. 21, No. 13, 1287 - 1290 (1994)
- C. YEH; Backscattering cross section of a dielectric elliptical cylinder; J. Opt. Soc. Am., Vol. 55, 309 - 314 (1965)