

KfK 5438
Dezember 1994

**Das flugzeuggetragene
Fernerkundungsexperiment
MIPAS-FT: Auswertung und
Interpretation der arktischen
Meßkampagnen
1991/92 und 1992/93**

M. Höpfner
Institut für Meteorologie und Klimaforschung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Meteorologie und Klimaforschung

KfK 5438

**Das flugzeuggetragene
Fernerkundungsexperiment MIPAS-FT:
Auswertung und Interpretation der
arktischen Meßkampagnen
1991/92 und 1992/93¹**

Michael Höpfner

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

¹ Von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe genehmigte Dissertation

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0303-4003

Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit der Auswertung und Interpretation der Messungen, die mit dem flugzeuggetragenen Michelson-Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung (MIPAS-FT) in den Wintern 1991/92 und 1992/93 in der Nordpolarregion und in mittleren Breiten durchgeführt wurden. Dieses hochauflösende Spektrometer mißt in Aufwärtssondierung mit geneigtem Blickwinkel die im mittleren infraroten Spektralbereich emittierte Strahlung der Atmosphäre. Ziel war es, aus diesen Messungen Säulengehalte von Spurengasen abzuleiten und deren räumliche Struktur und zeitliche Entwicklung hinsichtlich ihrer Bedeutung für die Chemie des Ozonabbaus in der Stratosphäre zu interpretieren.

Im ersten Teil der Arbeit wurde die Strategie der Datenanalyse von den Rohdaten, nämlich den Interferogrammen, über die kalibrierten Spektren bis hin zu den Säulengehalten der Spurengase entwickelt. Dabei mußten viele für MIPAS-FT spezifische Detailprobleme gelöst werden. Am Anfang der Auswertekette stand die Kontrolle und die Mittelung der Interferogramme. Untersucht wurden die Auswirkungen unterschiedlicher Störungen, wie Wolken, Sprünge bei der Interferogrammabtastung, elektronische Störimpulse, sowie Rollbewegungen und Vibrationen des Flugzeugs. Einige dieser Probleme konnten durch Aus-sortieren und Korrektur der Rohinterferogramme gelöst werden. Es wurde auch gezeigt, daß die Effekte von Rollbewegungen, Vibrationen und periodischen Störimpulsen durch die Mittelung der Interferogramme, ähnlich dem spektralen Rauschen, unterdrückt werden. Aufgrund der Eigenstrahlung des Interferometers konnte keine der üblichen Methoden zur Phasenkorrektur von Interferogrammen eingesetzt werden. Deshalb wurde ein neues Verfahren zur Phasenbestimmung angewandt und dessen Wirksamkeit mit anderen Verfahren verglichen. Untersuchungen der Stabilität des Instruments und der Kalibrierung ergaben, daß eine nachträgliche Korrektur der durch Schwarzkörpermessungen kalibrierten Spektren notwendig war. Dazu wurde eine Methode ausgearbeitet, die anhand der im Spektralbereich vorkommenden CO₂-Linien eine Korrektur ermöglicht.

Zur Ableitung von Säulengehalten aus den kalibrierten Spektren wurde eine Auswertestrategie entwickelt, in die alle extern verfügbaren Informationen über die aktuelle Atmosphäre einfließen. Schließlich wurde das detaillierte Vorgehen bei der eigentlichen Inversionsrechnung festgelegt. In der Fehlerbetrachtung wurde die Fortpflanzung von verschiedenen Fehlerquellen auf den Gesamtfehler in den abgeleiteten Säulengehalten abgeschätzt. Die größten Fehlerquellen stellten dabei die radiometrische Kalibrierung, die ungenaue Kenntnis der Temperaturprofile und die Annahmen über die Form der Höhenverteilung der Spurengase dar.

Im zweiten Teil der Arbeit werden die abgeleiteten Säulengehalte der drei stratosphärischen Spurengase HNO₃, O₃ und ClONO₂ der Transall-Meßkampagnen während der Winter 1991/92 und 1992/93 dargestellt und diskutiert. Vor allem im Winter 1992/93 konnte ein interessanter Überblick über die chemische Entwicklung des Polarwirbels von der Konditionierungsphase über die kalte Periode bis hin zu seiner Auflösung gewonnen werden.

Herauszuheben ist dabei der zeitliche Verlauf von ClONO₂, der die chemischen Veränderungen am deutlichsten widerspiegelt. Dieses Spurengas zeigte 1992/93 im Inneren des Polarwirbels leicht erhöhte Werte im Dezember, niedrige Säulengehalte im Januar und einen extremen Anstieg bis zur endgültigen Wirbelauflösung im Frühjahr. Während der kalten Phase wurde eine Kragenstruktur von ClONO₂ mit höheren Werten im Randbereich des

Polarwirbels beobachtet. Erstmals wurde dabei eine starke Variabilität der ClONO_2 -Säulengehalte am Wirbelrand festgestellt, die auf chemische Ursachen zurückgeführt werden kann. Modellrechnungen der Universität Cambridge konnten dieses Ergebnis bestätigen. Die hohen ClONO_2 -Werte, die Ende März 1993 lokal begrenzt auch außerhalb des Polarwirbels nachgewiesen wurden, deuten auf eine inhomogen verlaufende Auflösungsphase des Polarwirbels hin.

Die Säulengehalte von HNO_3 zeigen eine im wesentlichen durch dynamische Vorgänge bestimmte Variation. Ausnahmen hiervon stellen die sehr hohen Werte Ende Januar 1993 dar, die auf eine fast vollständige Denoxifizierung der unteren Stratosphäre schließen lassen. Stark erniedrigte HNO_3 -Säulengehalte im Januar 1992, die im Polarwirbel bisher nur über der Antarktis gemessen wurden, deuten auf eine teilweise Entfernung der gasförmigen Salpetersäure durch Kondensation auf Partikeln von polaren Stratosphärenwolken oder Aerosolen hin.

The airborne remote sensing experiment MIPAS-FT: data analysis and interpretation of the arctic campaigns 1991/92 and 1992/93

This thesis deals with the data evaluation process and the interpretation of measurements performed in arctic and mid-latitudes by the airborne Michelson-Interferometer for Passive Atmospheric Sounding - Flugzeug Transall (MIPAS-FT) during the winter seasons 1991/92 and 1992/93. Sounding upward on a slant path through the atmosphere, the high-resolution spectrometer analyses the infrared radiation emitted by the trace constituents. The aim of this work was to deduce column amounts of trace gases from these measurements and to interpret their spatial structure and their temporal development with regard to their importance to the chemistry of stratospheric ozone reduction.

In the first part, the development of a strategy for the data analysis, starting with the raw data - the interferograms - and ending with the column amounts of trace gases, is described. During that process many specific problems had to be solved. In the beginning, the analysis consisted of quality-control and averaging of the interferograms. The effect of different interferences like clouds, errors in the digitalisation of the interferograms, electronic pulses, roll-angle movements or vibrations of the aircraft were examined. Some of these problems could be solved by singling out and correcting each interferogram. It was shown that the effects of roll-angle movements, vibrations and periodic pulses are suppressed, similar to the spectral noise by averaging. Due to the background-emission of the interferometer, it was not possible to use conventional methods of phase-correction of interferograms. Therefore, a new procedure for the determination of the phase was employed and compared with other methods. Besides, an examination of the stability of the instrument showed that a correction of the blackbody-calibrated spectra was necessary. For that purpose, a correction method using CO₂-lines was developed. In order to derive column amounts of trace constituents all available external information about the present atmospheric conditions was used. Finally, the detailed procedure of the inversion process was determined.

In order to estimate the error of the calculated column amounts, the contributions by many sources of error were evaluated. The main contributions are the radiometric calibration, the uncertainty of the temperature profile, and the assumptions made on the form of the height profile of the trace gases.

In the second part of this work the column amounts of the three stratospheric trace gases HNO₃, O₃ and ClONO₂ deduced from the Transall-campaigns in the winter seasons 1991/92 and 1992/93 are presented and discussed. During the winter 1992/93 an interesting overall view of the chemical development of the polar vortex, from its conditioning phase until its disintegration, has been obtained.

The chemical variation is most evidently reflected by the temporal development of ClONO₂ inside the vortex. This trace gas showed slightly enhanced values in December, very low column amounts in January, and an extreme increase in spring. During the cold period of the vortex a collar of ClONO₂, with higher values at the vortex edge, was observed. For the first time, a strong variability of the ClONO₂ column amounts at the vortex edge was noti-

ced and is explained by chemical processes. Model calculations carried out at the University of Cambridge confirmed this result. High column amounts of ClONO_2 which were found at some locations outside the polar vortex end of March 1993 indicate an inhomogenous disintegration of the polar vortex.

The observed variations of HNO_3 -column amounts are caused mainly by dynamic processes. One exception are very high values recorded in late January 1993 which indicate an almost complete denoxification of the lower stratosphere. Very low HNO_3 column amounts in January 1992, previously measured inside the vortex over Antarctica only, can be explained solely by the removal of gaseous nitric acid through condensation on polar stratospheric clouds or aerosols.

1. Einleitung	1
1.1 Dynamik und Chemie der Stratosphäre	3
1.2 Kurzbeschreibung des Experiments	8
1.3 Überblick über den Verlauf der Datenauswertung	9
2. Vom Interferogramm zum kalibrierten Spektrum	11
2.1 Interferogrammkontrolle und Mittelung	11
2.1.1 Sprünge im Zählsystem	12
2.1.2 Wolken	13
2.1.3 Impulsartige Störungen	15
2.1.4 Rollwinkel	18
2.1.5 Phasenfehler durch Vibrationen	20
2.2 Phasenkorrektur	21
2.2.1 Grundlagen	22
2.2.2 Hochaufgelöste Phasenfunktion	22
2.2.3 Methoden zur Phasenbestimmung	26
2.2.3.1 Phasenbestimmung aus Schwarzkörpermessungen	26
2.2.3.2 Differentielle Phasenbestimmung	27
2.2.3.3 Phasenbestimmung in der Ozonbande	29
2.2.4 Vergleich der Methoden	29
2.2.5 Korrektur 1- und 1 1/2-seitiger Interferogramme	32
2.2.5.1 1-seitige Interferogramme	34
2.2.5.2 1 1/2-seitige Interferogramme	36
2.3 Kalibrierung	37
2.3.1 Grundlagen	37
2.3.2 Kalibrierung 1991/92	38
2.3.3 Kalibrierung 1992/93	42
2.3.4 CO ₂ -Korrektur der Kalibrierung	43
2.3.5 Fehler in der Kalibrierung	44
2.3.5.1 Temperaturfehler	44
2.3.5.2 Emissionsgrad der Schwarzkörper	45
2.3.5.3 Nichtlineare Änderung der Gerätefunktion	46
3. Vom kalibrierten Spektrum zu Säulengehalten von Spurengasen	49
3.1 Simulation der Strahlungsübertragung	49
3.1.1 Das Vorwärtsrechenprogramm und die Liniendatenbank	49
3.1.2 Spurengasprofile	50
3.1.3 Temperatur-Profile	52
3.1.4 Flugzeugparameter	53
3.2 Apodisation und spektrale Auflösung	54
3.3 Die Inversionsrechnung	54
3.3.1 Spektralintervalle	54
3.3.2 Bestimmung von Säulengehalten	59

4. Fehlerbetrachtung	67
4.1 Überblick über die Fehlerquellen	67
4.2 Zusammenfassung der Fehler	67
4.3 Das Problem bei der Ozonauswertung	71
5. Messungen und Interpretation	73
5.1 Bisherige Messungen von HNO_3 und $ClONO_2$	73
5.1.1 HNO_3 bis 1991	73
5.1.2 HNO_3 in den arktischen Wintern 1991/92 und 1992/93	76
5.1.3 $ClONO_2$ bis 1991	77
5.1.4 $ClONO_2$ in den arktischen Wintern 1991/92 und 1992/93	78
5.1.5 NO_y und Cl_y	79
5.2 Zur Interpretation von Säulengehalten	80
5.3 Die Meteorologie der polaren Stratosphäre 1991/92 und 1992/93	84
5.3.1 Der Winter 1991/92	84
5.3.2 Der Winter 1992/93	85
5.4 Die Meßkampagnen der Winter 1991/92 und 1992/93	86
5.5 Die Datensätze der Winter 1991/92 und 1992/93	87
5.6 Diskussion der einzelnen Kampagnen	87
5.6.1 Die Meßkampagnen im Winter 1992/93	88
5.6.1.1 Kampagne 1 (4.12.92 - 8.12.92): Der frühwinterliche Polarwirbel	88
5.6.1.2 Kampagne 2 (27.1.93 - 5.2.93): Der kalte Polarwirbel	92
5.6.1.3 Kampagne 3 (5.3.93 - 12.3.93): Der Polarwirbel über dem Mittelmeer	101
5.6.1.4 Kampagne 4 (24.3.93 - 29.3.93): Der Polarwirbel kurz vor der Auflösung	108
5.6.2 Die Meßkampagnen im Winter 1991/92	118
5.6.2.1 Kampagne 2 (8.1.92 - 17.1.92): Der Polarwirbel Mitte Januar	118
5.6.2.2 Kampagne 3 (29.1.92 - 17.2.92): Der Polarwirbel nach der Erwärmung	123
5.6.2.3 Kampagne 4 (28.2.92 - 13.3.92): Der Polarwirbel im März	127
5.7 Zusammenfassung und Vergleich der Winter 1991/92 und 1992/93	130
Anhang A. Die potentielle Temperatur und die Ertelsche potentielle Vorticity	137
Anhang B. Der Chapman-, der ClO-ClO- und der ClO-BrO-Zyklus	139
Anhang C. Experimentelle Parameter im Winter 1991/92 und 1992/93	141
Anhang D. Phasenfehler durch Vibration	143
Anhang E. Die Parameter der differentiellen Phase	145
Anhang F. Das Programm zur Phasenkorrektur	147
Anhang G. Das Programm zur Kalibrierung	149
Anhang H. Die Strahlungsübertragung	151
Anhang I. Diskussion einzelner Fehlerquellen	153

I.1 Endliches Gesichtsfeld	153
I.2 Absoluter Elevationswinkel	154
I.3 Spektrale Auflösung	154
I.4 Temperaturprofil	155
I.5 Form der Vertikalverteilung der Spurengase	156
I.6 Spektroskopische Daten	157
I.7 Spektrales Rauschen, Störgaseinfluß und Nachweisgrenze von ClONO_2	157
I.8 Flughöhe	158
I.9 Genauigkeit des Strahlungsübertragungsprogramms	159
I.10 Aerosol	159
I.11 Kalibrierung	160
Anhang J. Datensatz Winter 1991/92	163
Anhang K. Datensatz Winter 1992/93	167
Abkürzungen, Funktionen und Symbole	171
Literaturverzeichnis	175

1. Einleitung

Nachdem sich die Erforschung der polaren Stratosphäre in der Mitte der achtziger Jahre im wesentlichen auf die Region der Antarktis konzentriert hatte, hat sich ab dem Ende dieses Jahrzehnts das Interesse zunehmend auf die Nordpolarregion verlagert. Wesentliche Fragen sind dabei, aus welchen Gründen es im arktischen Frühjahr nicht zu einem derart hohen Ozonverlust wie über dem Südpol kommt, ob eventuell in Zukunft mit einem vergleichbaren Effekt gerechnet werden muß und inwieweit die stark besiedelten Regionen der mittleren nördlichen Breiten mit einer Ausdünnung der Ozonschicht konfrontiert werden könnten. Um dem nachzugehen, fanden verschiedene Meßkampagnen, wie das Flugzeugexperiment AASE (Airborne Arctic Stratospheric Expedition) im Winter 1988/89 oder die CHEOPS (Chemistry of Ozone in the Polar Stratosphere)-Kampagnen (1987/88 und 1988/89), statt.

Von der Bundesrepublik Deutschland wurde das Ozonforschungsprogramm (OFP) ins Leben gerufen, in dessen Rahmen auch eine als Forschungsflugzeug umgebaute TRANSALL-C160 über mehrere Winter hinweg die chemische Zusammensetzung der polaren Stratosphäre erkunden sollte. Für den Einsatz eines Flugzeugs als Meßplattform sprachen die Flexibilität und die Reichweite. Dies ermöglicht die Erforschung der räumlichen und zeitlichen Variation von Spurengasen, die für den Ozonabbau relevant sind. So kann bei Flügen senkrecht zur Grenze des Polarwirbels die rasche Änderung der Zusammensetzung beobachtet werden, und aus den verschiedenen Meßkampagnen eines Winters lassen sich Aussagen über die zeitliche Entwicklung der polaren Stratosphäre von der Konditionierungsphase bis zur Auflösung des Polarwirbels im Frühjahr treffen. Langfristig besteht die Möglichkeit, die Entwicklung des Polarwirbels in verschiedenen Jahren zu vergleichen. Die Mobilität des Flugzeugs erlaubt darüber hinaus, besonders interessante meteorologische Situationen kurzfristig zu untersuchen.

Da die Transall mit ihrer maximalen Flughöhe von ca. 8 km nicht direkt den für die Ozonchemie wichtigen Höhenbereich der unteren Stratosphäre von ca. 15-25 km erreichen kann, war es nötig, sie mit Geräten zur Fernerkundung auszustatten (Abbildung 1.1). Die Wahl fiel dabei einmal auf ein LIDAR (LIght Detection And Ranging)-Gerät, das von der DLR (Deutschen Gesellschaft für Luft- und Raumfahrt) betrieben wird und Aerosol- bzw. Ozonprofile oberhalb des Flugzeugs liefert. Außerdem wurden von dem Institut für Umweltphysik der Universität Heidelberg und dem Max Planck Institut für Chemie in Mainz zwei DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy)-Geräte entwickelt und installiert. Hierbei handelt es sich um Spektrometer, die die Streustrahlung der Sonne im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich analysieren und zur Bestimmung von Säulengehalten wichtiger stratosphärischer Spurengase wie O_3 , NO_2 , OClO oder BrO dienen.

Das dritte Experiment, mit dessen Auswertung sich die vorliegende Arbeit befaßt, ist das MIPAS-FT (Michelson-Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung - Flugzeug Transall). Der zentrale Teil dieses Systems ist ein hochauflösendes Spektrometer für den mittleren infraroten Spektralbereich, das nach dem Prinzip eines Michelson-Interferometers arbeitet. Das Instrument gehört zu einer Serie von MIPAS-Geräten des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung (IMK) des Kernforschungszentrums und der Universität Karlsruhe, die von verschiedenen Plattformen aus betrieben werden (Fischer, 1992). Die Aufgabe von MIPAS-FT ist die Bestimmung der Säulengehalte von Spurengasen, d.h. der Anzahl der Moleküle in einer vertikalen Säule pro Einheitsfläche, oberhalb der Transall.

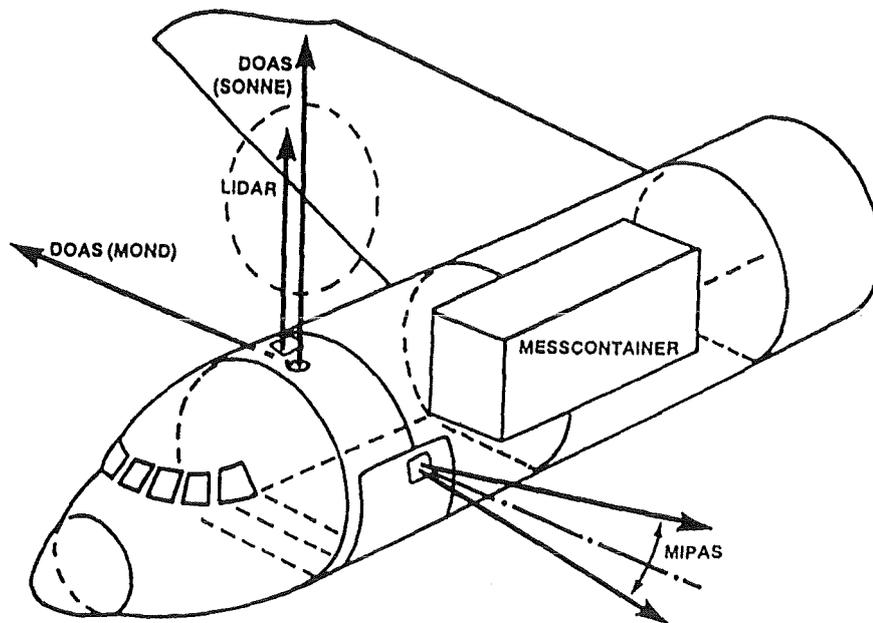


Abb. 1.1 Die Fernerkundungsexperimente LIDAR, DOAS-UV, DOAS-sichtbar und MIPAS auf der Transall.

MIPAS-FT hebt sich von bisherigen flugzeuggetragenen Interferometern, die der Erforschung der chemischen Zusammensetzung der Stratosphäre dienen, (z.B. *Toon et al., 1989; Coffey et al., 1989; Mankin et al., 1990; Toon et al., 1992b*) dadurch hervor, daß es die thermische Emission der Spurengase mißt. Damit entfällt die Sonne als Hintergrundstrahlungsquelle. Das Meßinstrument kann daher auch während der Polarnacht zum Einsatz kommen und erlaubt eine variable Flugplanung, die sich nicht nach dem Stand der Sonne richten muß. Im Vergleich mit anderen in Emission arbeitenden Spektrometern auf Flugzeugen (z.B. *Williams et al., 1982*) besitzt MIPAS-FT den Vorteil einer hohen spektralen Auflösung. Diese erlaubt die Identifikation und Quantifizierung von Spurengasen, die nur in engen Spektralbereichen Signaturen aufweisen, wie es beispielsweise bei ClONO_2 , einem wichtigen Reservoirgas für Chlor in der Stratosphäre, der Fall ist.

Bis zum jetzigen Zeitpunkt wurden in vier Wintern Meßkampagnen mit der Transall durchgeführt. Die Flüge im Winter 1990/91 dienten im wesentlichen der Erprobung der einzelnen Experimente. Im Winter 1991/92 fand im Rahmen der europäischen Meßkampagne EA-SOE (European Arctic Stratospheric Ozone Experiment) eine große Zahl von Flügen statt. Im darauffolgenden Jahr waren die Transall-Messungen von besonderer Bedeutung, da in diesem Zeitraum keine andere größere Meßkampagne durchgeführt wurde und der Winter aufgrund seiner lang anhaltenden tiefen Temperaturen in der Stratosphäre sehr interessant war. Die Flüge des vergangenen Winters 1993/94 und vor allem die des folgenden Winters 1994/95 sind in die zweite europäische Kampagne SESAME (Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment) eingebunden. Mit den Messungen 1994/95 wird das Transall-Projekt abgeschlossen werden.

Ausgehend von den Rohdaten der Messungen aus den Wintern 1991/92 und 1992/93 behandelt der erste, mehr technische Teil der vorliegenden Arbeit (Abschnitte 2-4) den Auswerteprozess bis hin zu den Säulengehalten und der Fehlerbetrachtung. Im zweiten Teil (Abschnitt 5) werden die Datensätze aus beiden Jahren dargestellt und diskutiert.

Um zu den Säulengehalten zu gelangen, mußten zahlreiche Einzelprobleme gelöst und die Lösungsstrategien in Rechenprogramme implementiert werden. Wesentliche Punkte waren dabei die Kontrolle der Einzelinterferogramme und eine Analyse möglicher Fehlerquellen. Dies wird in Kapitel 2.1 behandelt. Kapitel 2.2 befaßt sich mit der Entwicklung einer neuen Methode zur Phasenkorrektur koaddierter Interferogramme, die aufgrund des spezifischen Verhältnisses der verschiedenen Eigenstrahlungskomponenten des Instrumentes notwendig wurde. Wie Probleme bei der Kalibrierung der Spektren überwunden werden konnten, zeigt Kapitel 2.3. Der folgende Abschnitt 3 erläutert die Ableitung von Säulengehalten aus kalibrierten Strahldichtespektren, und in Abschnitt 4 schließt sich die Fehlerabschätzung an. Der fünfte Abschnitt widmet sich ausführlich der Darstellung und Interpretation der abgeleiteten Säulengehalte von HNO_3 , O_3 und ClONO_2 der einzelnen Kampagnen der Winter 1991/92 und 1992/93. Hier werden auch bisherige Messungen der Spurengase HNO_3 und ClONO_2 zusammengefaßt. Am Ende steht ein Vergleich der zeitlichen Entwicklung der in beiden Wintern gemessenen Säulengehalte.

Ergebnisse dieser Arbeit wurden im Rahmen folgender Zeitschriftenartikel veröffentlicht: *Weddigen et al., 1993; Blom et al., 1994a; Blom et al., 1994b; Chipperfield et al., 1994.*

1.1 Dynamik und Chemie der Stratosphäre

Dieses Kapitel hat zum Ziel, die Grundlagen der stratosphärischen Dynamik und Chemie kurz zusammenzufassen. Hierbei liegt das Schwergewicht auf den im wesentlichen im letzten Jahrzehnt im Zusammenhang mit der Erforschung des sogenannten Ozonlochs gewonnenen Erkenntnissen. Es soll gezeigt werden, welche Bedeutung den von MIPAS-FT gemessenen stratosphärischen Spurengasen, insbesondere HNO_3 und ClONO_2 , im Rahmen der aktuellen Forschung in diesem Bereich zukommt.

Die Stratosphäre wird definiert als der auf die Tropopause folgende Bereich der Atmosphäre mit einem positiven Temperaturgradienten. Ihre Obergrenze liegt in ungefähr 50 km Höhe. Die Untergrenze variiert mit der Tropopausenhöhe von ca. 7 - 9 km in den Polarregionen bis zu 18 km über den Tropen. Die aufgrund des Temperaturverlaufs stabile Schichtung der Stratosphäre hat eine lange Verweildauer von chemischen Komponenten zur Folge.

Das Temperaturprofil der Stratosphäre wird in erster Linie durch das Strahlungsgleichgewicht bestimmt. Die wichtigste Energiequelle ist dabei die Absorption von UV-Strahlung der Sonne durch Ozon sowie von Wärmestrahlung der Troposphäre und der Erdoberfläche im wesentlichen durch die Spurengase H_2O , CO_2 und O_3 . Die Abstrahlung der Energie erfolgt im Infraroten durch die gleichen Gase (*Ramanathan und Dickinson, 1979*). Ein Vergleich der Ergebnisse eines reinen Strahlungsmodells der Stratosphäre mit der realen Temperatur- und Windverteilung zeigt, daß die sommerliche Stratosphäre dem Zustand des Strahlungsgleichgewichts sehr nahe kommt, während die winterliche Hemisphäre stark davon abweicht (*z.B. Geller, 1993*). Die Unterschiede zeigen sich vor allem in den in der Realität wesentlich höheren Temperaturen der winterlichen Stratosphäre und der Nichtbeschreibung von Vertikalbewegungen und Meridionalflüssen im Modell. Die Ursachen für

diese Differenzen liegen in der Nichtberücksichtigung des Einflusses von sich vertikal aus der Troposphäre in die Stratosphäre fortpflanzenden Wellen. Die dominierende Rolle für die stratosphärische Dynamik spielen dabei die stationären planetarischen Wellen mit typischen Wellenlängen in der Größenordnung des Erddurchmessers (Wellenzahlen 1-3). Ihre Ursachen liegen in großskaligen Unregelmäßigkeiten der Orographie und der Temperaturverteilung der Erdoberfläche. Aus diesem Grund sind die planetaren Wellen wesentlich intensiver auf der Nord- als auf der Südhalbkugel ausgeprägt. Planetare Wellen breiten sich nur dann in die Stratosphäre aus, wenn dort Winde aus westlicher Richtung vorherrschen (*Charney und Drazin, 1961*). Da dies jedoch nur in der winterlichen Hemisphäre zutrifft, erklärt sich daraus die Abweichung der dortigen Stratosphäre vom Strahlungsgleichgewicht. Die planetaren Wellen spielen außerdem eine wichtige Rolle bei plötzlichen Erwärmungen des winterlichen Polarwirbels (s. u.).

Die Entstehung des polaren stratosphärischen Wirbels (im folgenden auch als Polarwirbel oder Vortex bezeichnet) beginnt im Herbst aufgrund fehlender Sonneneinstrahlung und der damit verbundenen Auskühlung der Polarregion. Er entwickelt sich polwärts von ca. 65°N bzw. 65°S in einer Höhe von 20-30 km.

Infolge der strahlungsbedingten Abkühlung kommt es in der Stratosphäre zu einem Absinken der Luft. Diabatische Absinkraten wurden beispielsweise von *Schoeberl et al. (1992)* aus den amerikanischen Flugzeugkampagnen AAOE (Airborne Antarctic Ozone Experiment) 1987 in der Antarktis und AASE 1989 in der Arktis bestimmt. Während der EASOE-Kampagne 1991/92 wurden anhand von Messungen des Höhenprofils von N₂O im Dezember Absinkraten von 100 -180 m/Tag innerhalb des arktischen Polarwirbels ermittelt (*Bauer et al., 1993*). Über den gesamten Winter hinweg war die Luft innerhalb des Vortex um ca. 7 km abgesunken.

Außerhalb des Wirbels wird die abgesunkene Luft infolge des Einflusses planetarer Wellen schnell mit Luft aus mittleren Breiten vermischt. Hierdurch ergeben sich Gradienten von langlebigen Spurengasen über die Vortexgrenze hinweg. Die Brechung von planetaren Wellen am Vortexrand führt zusätzlich zu einer Verstärkung dieser Gradienten (*McIntyre und Palmer, 1983*). Die scharfen Gradienten deuten darauf hin, daß die Luft innerhalb des Polarwirbels von der umgebenden Luft isoliert ist und daher keine oder nur wenig Durchmischung über die Vortexgrenze hinweg stattfindet. Die Frage nach dem Grad der Durchmischung ist noch nicht endgültig geklärt und daher Gegenstand der aktuellen Diskussion (*Schoeberl et al., 1992*).

Die vertikale Erstreckung der Luftmasse des Polarwirbels beginnt wenige Kilometer oberhalb der Tropopause und endet in einer Höhe von ca. 30 km. Dort schwächt sich der meridionale Temperaturgradient zwischen Pol und Äquator infolge des Wärmetransports durch Wellen ab (*Schoeberl und Hartmann, 1991*).

Der wesentliche Unterschied zwischen den Polarwirbeln der nördlichen und südlichen Hemisphäre besteht, wie oben erwähnt wurde, in der größeren Wellenaktivität im Norden. Diese kann im Laufe des Winters zu plötzlichen Stratosphärenerwärmungen führen und kann sich beispielsweise in einer zeitlich begrenzten Umkehrung des zonalen Temperaturgradienten zeigen. Der Wirbel wird dabei deformiert und vom Pol weg verschoben. Dabei führt die planetare Wellenaktivität zu einer verstärkten Erosion der Vortexgrenze. Eine wichtige Folge des intensiveren meridionalen Wärmetransports durch planetare Wellen bezüglich der Chemie des Ozonabbaus sind die höheren Temperaturen des nördlichen Polarwirbels. Dies wird weiter unten noch näher ausgeführt werden.

Im Frühling erfolgt bei Einsetzen der Erwärmung der polaren Stratosphäre durch Sonneneinstrahlung die Umstellung der stratosphärischen Dynamik auf die Sommerzirkulation mit vorherrschenden Ostwinden. Dieser Vorgang wird als endgültige Stratosphärenenerwärmung bezeichnet und äußert sich in einer extremen Zunahme der planetaren Wellenaktivität. Dadurch wird eine Auflösung des Wirbels in einzelne Teile bewirkt, die in mittlere Breiten transportiert werden. Diese Auflösung findet im Norden normalerweise im März oder April, auf der südlichen Hemisphäre jedoch manchmal erst im Dezember statt.

Zur Interpretation von Spurengasmessungen und zur Untersuchung der Dynamik des Polarwirbels wird häufig anstelle von Ortskoordinaten ein Koordinatensystem verwendet, dessen quasi horizontale Komponente durch die Ertelsche potentielle Vorticity (PV) und dessen Vertikalkomponente durch die potentielle Temperatur (θ) gegeben ist (Definitionen im Anhang A) (*Hoskins et al., 1985*). Da beides Erhaltungsgrößen bei adiabatischer und reibungsfreier Bewegung darstellen, bewegt sich ein Luftpaket auf einer Fläche konstanter potentieller Temperatur (Isentropen) entlang von Flußlinien konstanter PV. Bei der Entstehung des Polarwirbels verstärkt sich der Gradient der potentiellen Vorticity zwischen Äquator und Pol. Die Vortexgrenze auf einer isentropen Fläche wird daher häufig als der größte Gradient der PV definiert.

Die grundlegende Theorie über die Bildung und den Abbau von Ozon in der Stratosphäre wurde von *Chapman (1930)* veröffentlicht (Anhang B). Es stellte sich jedoch heraus, daß die damit berechneten Ozonkonzentrationen in der Stratosphäre zu hoch waren. In den 60iger und 70iger Jahren wurden deshalb verschiedene Zyklen vorgestellt, die einen homogenen katalytischen Abbau von Ozon bewirken.

Das Prinzip eines solchen Prozesses lautet folgendermaßen:



Dabei kann X beispielsweise OH (*Hampson, 1964*), NO (*Crutzen, 1971*), Cl (*Stolarski und Cicerone, 1974*) oder Br (*Wofsy et al., 1975*) sein.

Diese Radikale entstehen aus den sogenannten Quellgasen, d.h. langlebigen troposphärischen Spurengasen, wie N_2O , CH_4 , H_2O , FCKWs und Halone, die natürlichen oder antropogenen Ursprungs sind und von der Troposphäre in die Stratosphäre gelangen. Sie werden dort entweder durch Sonnenlicht photolytisiert oder durch angeregte $O(^1D)$ -Atome oxidiert. Die Konzentration aktiver Radikale in der unteren Stratosphäre ist jedoch unter normalen Bedingungen gering, da sie in inaktiven Molekülen, den sogenannten Reservoirgasen, gebunden sind. Die wichtigsten Reservoirgase für ClO_x ($Cl + ClO + 2Cl_2O_2$) und NO_x ($NO + NO_2 + NO_3$) sind HCl, $ClONO_2$ und HNO_3 . Sie werden in folgenden Reaktionen gebildet:



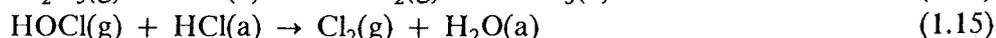
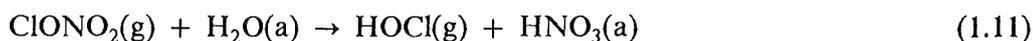
M ist dabei ein atmosphärisches Molekül oder Atom (meist N_2 oder O_2), das zur Energie- und Impulserhaltung beim Stoß nötig ist.

Die wichtigsten homogenen Rückreaktionen aus den Reservoirgasen in aktive Formen sind:



Die Entdeckung des Ozonlochs, also der raschen Ozonabnahme im September und Oktober in einer Höhe von 12 - 22 km über der Antarktis (*Farman et al., 1985*) und die darauffolgenden Erklärungsversuche führten zu der Erkenntnis, daß heterogene chemische Reaktionen an Oberflächen von polaren Stratosphärenwolken (PSC) eine wichtige Rolle spielen (*Toon et al., 1986, Crutzen und Arnold, 1986*). Diese Wolken entstehen infolge der tiefen Temperaturen im winterlichen Polarwirbel. Sie werden in zwei Klassen unterteilt: PSC-I und PSC-II. Die PSC-I Teilchen bestehen wahrscheinlich aus Kristallen von Salpetersäuretrihydrat (NAT), die bei Temperaturen unter ca. 195 K in der Stratosphäre thermodynamisch stabil sind. PSC-II Partikel bilden sich bei Temperaturen unter 187 K und bestehen im wesentlichen aus Wassereis.

Die wichtigsten heterogenen Reaktionen auf PSC-Oberflächen lauten:



Dabei bedeutet (g), daß das Molekül in der Gasphase vorliegt und (a), daß es auf der Teilchenoberfläche adsorbiert ist. Die Reaktionen (1.11), (1.12), (1.14) und (1.15) führen im polaren Winter zu einer Freisetzung von HOCl, Cl₂ und ClNO₂ aus den Reservoirgasen. Im Frühling werden diese Substanzen rasch photolysiert und in besonders schnellen, katalytischen Ozonabbauzyklen wirksam (Anhang B).

Die Reaktionen (1.12) - (1.14) führen durch die Bildung von HNO₃ zu einer zeitlich begrenzten Verarmung an NO_x im Reaktionsvolumen, der sogenannten Denoxifizierung. Zu einer längerfristigen Entfernung von NO_y (NO_x + 2N₂O₅ + HO₂NO₂ + ClONO₂ + HNO₃), der sogenannten Denitrifizierung, kommt es durch Kondensation von HNO₃ und anschließender Sedimentation. Diese Entfernung von Stickstoffverbindungen aus bestimmten Höhenbereichen führt dazu, daß dort kein NO₂ für die Reaktion mit ClO (1.6) zur Verfügung steht bzw. aus HNO₃ zurückgebildet werden kann. Dadurch kommt es indirekt zu einer Erhöhung der ClO-Konzentration.

Die Konstanten der angegebenen heterogenen Reaktionen wurden durch Labormessungen bestimmt (*Tolbert et al., 1987, Tolbert et al., 1988a, Tolbert et al., 1988b, Hanson und Ravishankara, 1991a, Hanson und Ravishankara, 1991b*). Dabei stellte sich heraus, daß die wesentliche Reaktion auf PSC-I Partikeln (1.12) ist. Auf PSC-II Teilchen spielt auch die Hydrolyse von ClONO₂ und N₂O₅ (1.11), (1.13) eine wichtige Rolle. Die Wassereisaerosole können außerdem sehr groß werden und sind deshalb für die Denitrifizierung der Stratosphäre verantwortlich.

Der wichtigste Unterschied zwischen dem arktischen und antarktischen polaren Vortex liegt, wie schon erwähnt wurde, in den höheren Temperaturen des nördlichen Polarwirbels.

Dies hat direkte Auswirkungen auf das Vorkommen von PSCs: in der Antarktis finden sich in der ersten Winterhälfte ausgedehnte PSC-I Felder. Ist die Auskühlung weit genug fortgeschritten, bilden sich auch Wolken vom Typ II, die zu einer Denitrifizierung führen. Über der Arktis treten zwar auch PSC-I Partikel auf, jedoch in geringerer räumlicher Ausdehnung als über dem Südpol. Die Temperaturen, die zur Bildung von Wassereiswolken führen, werden nur äußerst selten erreicht.

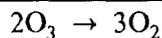
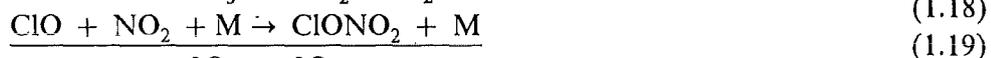
Messungen von aktiviertem Chlor (ClO) (*Waters et al., 1993*) haben gezeigt, daß trotz dem geringeren Vorkommen von PSCs der arktische Polarwirbel im Januar eine Chloraktivierung ähnlichen Ausmaßes wie die südliche Stratosphäre aufweist. Jedoch wurde keine dem südlichen Ozonloch vergleichbare Ozonabnahme im Frühjahr festgestellt.

Im Zusammenhang mit dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo im Jahr 1991 hat sich das Augenmerk auf heterogene Reaktionen an vulkanischen Aerosolen (Tröpfchen aus H₂SO₄ und Wasser im Verhältnis 3:1) gerichtet. Es hat sich herausgestellt, daß (1.13) unabhängig von der Temperatur oder der Schwefelsäurekonzentration die wichtigste Reaktion auf vulkanischen Aerosolen darstellt und damit indirekt zu dem beobachteten langfristigen Abwärtstrend von Ozon in mittleren Breiten (*Stolarski et al., 1991*) beitragen könnte (z.B.: *Solomon et al., 1993, Fahey et al., 1993, Hofmann et al., 1994*).

Als mögliche Erklärung für diesen globalen Ozonabbau sind folgende Faktoren in der Diskussion:

- die oben schon erwähnte Chloraktivierung direkt oder indirekt (Denoxifizierung) an Sulfat-Aerosolen
- die Verdünnung von ozonarmer Luft aus dem Polarwirbel mit Luft aus mittleren Breiten
- die Mischung chloraktivierter Luft aus dem Polarwirbel mit Luft von außerhalb und dortigem Ozonabbau
- die Chloraktivierung an PSCs außerhalb des Polarwirbels

Aus Modellrechnungen, die von *Toumi et al. (1993)* durchgeführt wurden, geht hervor, daß der ClONO₂-Zyklus, wenn die ClO-Konzentrationen in der Stratosphäre niedrig sind, einen wichtigen Teil des Ozonabbaus bewirken kann. Der Zyklus beginnt mit der Photolyse von ClONO₂ (Reaktion (1.10)). Es folgt:



Hierdurch kann es bei der Auflösung des Polarwirbels und Transport von ClONO₂-reicher Luft nach Süden in mittleren Breiten zum Ozonabbau kommen.

Im Zusammenhang mit den oben beschriebenen Reaktionsverläufen zeigt sich, daß die von MIPAS-FT gemessenen Reservoirgase HNO₃ und ClONO₂ wesentliche Substanzen bei heterogenen Prozessen an Aerosol/PSC-Oberflächen darstellen bzw. direkt zum stratosphärischen Ozonabbau beitragen können. In dem zeitlichen Verlauf von ClONO₂ innerhalb des Polarwirbels spiegelt sich die Aktivierung, d.h. die Freisetzung von reaktiven Chlorverbindungen aus den Reservoirsubstanzen, und deren Deaktivierung gegen Ende des Winters wider.

1.2 Kurzbeschreibung des Experiments

Der experimentelle Aufbau von MIPAS-FT soll hier anhand von Abbildung 1.2 zusammengefaßt werden. Zusätzlich sind wichtige Geräteparameter aus den Kampagnen der Winter 1991/92 und 1992/93 in der Tabelle in Anhang C aufgelistet.

Der zentrale Teil des Systems MIPAS-FT ist ein Interferometer, das nach dem Doppelpendelprinzip aufgebaut ist (*Fischer et al., 1983*). Das Instrument ist im vorderen Teil des Laderaums der Transall auf der in Flugrichtung linken Seite installiert. Die Strahlung aus der Atmosphäre erreicht das Gerät durch ein antireflektierend beschichtetes Infrarotfenster (2) im vorderen Ladetor des Flugzeugs (Abbildung 1.1) und wird mittels eines Umlenkspiegels (3) in das Interferometer eingekoppelt. Der Umlenkspiegel ist drehbar um eine horizontale Achse gelagert. Er dient zur Einstellung der Blickrichtung und wird auch als Scanspiegel bezeichnet. Die beiden Teilstrahlen laufen hinter dem Strahlteiler (8) jeweils über die am Pendel befestigten Kubusecken zu Retroreflektoren (5). Von dort werden sie zum Strahlteiler zurückreflektiert. Durch die Bewegung des Pendels wird die Weglängendifferenz der beiden Teilstrahlen erzeugt. Die Detektion des Interferogramms erfolgt nach einer Aufteilung in zwei Spektralbereiche mittels zweier Si:Ga Infrarotdetektoren (15). Diese Detektoren sind an der Unterseite eines Dewars angebracht und werden durch flüssiges Helium auf ca. 4.2 K gekühlt. Zur Messung der Weglängendifferenz und Definition der Abtastpunkte im Interferogramm wird bei (4) die Strahlung eines He-Ne-Lasers in das interferometrische System eingekoppelt. Das sogenannte Quadratursystem erlaubt die eindeutige Zählung der einzelnen Abtastpunkte und die Bestimmung der Pendelrichtung.

Sämtliche optische Elemente des Interferometers werden, bis auf den Scanspiegel, mittels Trockeneis auf ca. 200 K gekühlt. Dies dient der Minimierung der Eigenstrahlung der optischen Komponenten und daher der Reduzierung des Photonenrauschhintergrunds. Außerdem wird das Gerät mit Stickstoff gespült, um die Kondensation von Wasser auf dem hygroskopischen Strahlteiler zu verhindern. Durch diese Maßnahme wird auch erreicht, daß kein Störgas aus dem Inneren des Flugzeugs zur gemessenen Strahlung beiträgt. Zur Kalibrierung kann während des Flugs ein Schwarzkörper (1) von außen vor das Infrarotfenster geklappt werden. Das gesamte Interferometer ist zur Dämpfung der Vibrationen des Flugzeugs auf Gummidämpfern gelagert.

Die Antriebs- und Regelelektronik des Instruments befindet sich direkt neben dem Interferometer. Die Steuerung, Überwachung und Datenaufnahme aller an Bord der Transall arbeitenden Geräte wird von einer Meßkabine aus durchgeführt, die in der Mitte des Laderaums untergebracht ist. Die gemessenen Interferogramme werden zusammen mit externen Parametern, den sogenannten Housekeepingdaten, auf Magnetbändern aufgezeichnet.

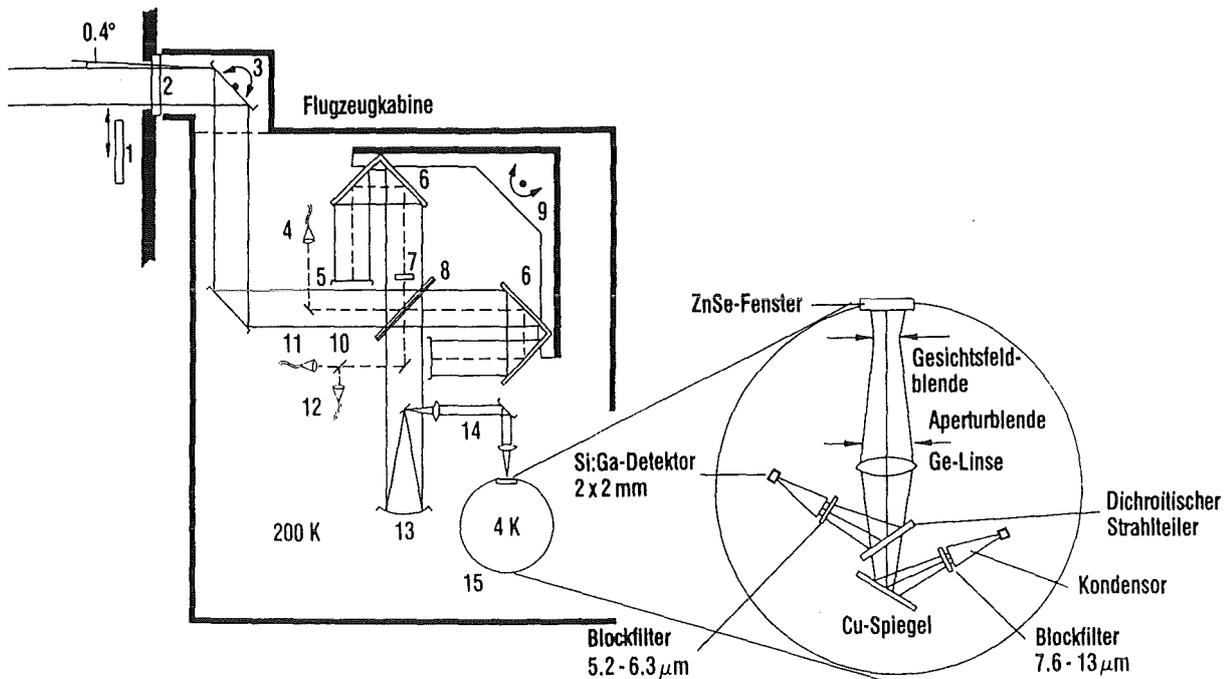


Abb. 1.2 Schematischer Aufbau des Experiments MIPAS-FT.

1: Schwarzkörper, 2: Infrarotfenster, 3: Scanspiegel, 4: He-Ne Laser, 5: Retroreflektor, 6: Tripel-Spiegelecken, 7: $\lambda/8$ -Verzögerungsplatte, 8: Strahlteiler, 9: Pendelstruktur, 10: Polarisierender Strahlteiler, 11, 12: Detektoren für Lasersignale, 13: Spiegel ($f=265$ mm), 14: Kameraoptik ($f_1=75$ mm, $f_2=100$ mm), 15: Detektordewar.

1.3 Überblick über den Verlauf der Datenauswertung

Die Strategie der Datenauswertung vom Interferogramm bis zur Interpretation von Säulengehalten ist in Abbildung 1.3 zusammengefasst. Die einzelnen Punkte werden in den im Bild angegebenen Kapiteln eingehend beschrieben.

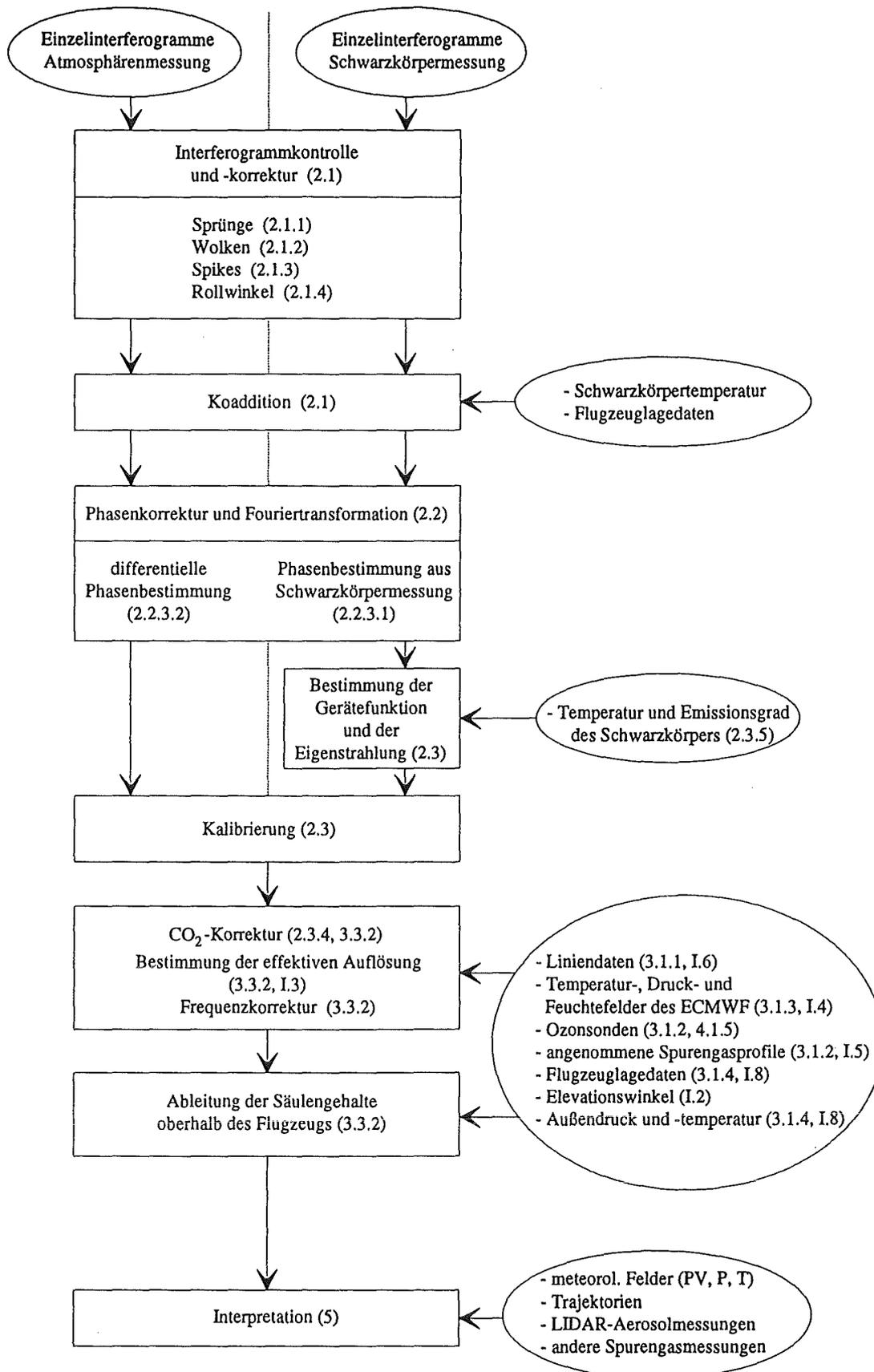


Abb. 1.3 Die Auswertekette von MIPAS-FT. In Klammern sind die Kapitel angegeben, in denen die jeweiligen Punkte beschrieben werden.

2. Vom Interferogramm zum kalibrierten Spektrum

2.1 Interferogrammkontrolle und Mittelung

Als primäres Datenprodukt liefert ein Interferometer die Cosinustransformierte der spektralen Intensitätsverteilung (des Spektrums) der einfallenden Strahlung. Diese, von der Wegdifferenz der beiden interferierenden Teilstrahlen abhängige Funktion wird als Interferogramm (IFG) bezeichnet:

$$I(x) = 2 \int_0^{\infty} S(\sigma) \cos(2\pi\sigma x) d\sigma \quad (2.1)$$

$I(x)$: Interferogramm

$S(\sigma)$: Spektrum

x : Wegdifferenz der Teilstrahlen

σ : Wellenzahl

Vorfaktoren des Integrals brauchen hier nicht berücksichtigt zu werden, da im Experiment nur relative Einheiten vorliegen. Durch den Faktor 2 wird lediglich das folgende komplexe Transformationspaar symmetrisch.

Spiegelt man das Spektrum $S(\sigma)$ an der y -Achse, so daß $S(-\sigma) = S(\sigma)$ gilt, so ergibt sich aus Gleichung (2.1):

$$I(x) = \int_{-\infty}^{\infty} S(\sigma) e^{i2\pi\sigma x} d\sigma \quad (2.2)$$

Das Spektrum folgt aus der Rücktransformation zu:

$$S(\sigma) = \int_{-\infty}^{\infty} I(x) e^{-i2\pi\sigma x} dx \quad (2.3)$$

Während der Messung wird das Interferogramm, gesteuert durch das Referenzinterferogramm eines He-Ne-Lasers, in konstanten Abständen abgetastet. Die derart digitalisierten Interferogramme werden bei MIPAS-FT während des Flugs einzeln auf Band abgespeichert und am Boden weiterverarbeitet. Das vorliegende Kapitel befaßt sich mit den ersten Schritten dieser Datenaufarbeitung, der Kontrolle und der Mittelung von Einzelinterferogrammen.

Die Interferogrammkontrolle dient dazu, fehlerbehaftete oder unbrauchbare Interferogramme zu erkennen und diese zu korrigieren bzw. vollständig aus der weiteren Auswertung auszuschließen. Die wichtigsten Störungen, die in der MIPAS-FT-Auswertung eine Aussonderung oder Korrektur von IFGs erforderten, waren Sprünge in der Zählung der Abtastpunkte eines Interferogramms (2.1.1), Wolken im Gesichtsfeld (2.1.2) und impulsartige Störungen im IFG, sogenannte Spikes (2.1.3).

Zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses einer Messung ist es allgemein üblich, Interferogramme zu mitteln. Das statistische Rauschen nimmt dadurch umgekehrt proportional zur Wurzel aus der Anzahl der gemittelten Interferogramme ab. Das in Strahldichteinheiten ausgedrückte absolute Rauschen eines mit MIPAS-FT gemessenen Einzelspektrums wurde anhand von Schwarzkörpermessungen am Boden bzw. während des Flugs ermittelt (Gulde, 1993) und betrug $8 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ bzw. $5 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ (Anhang C). Um das Rauschen auf unter $1 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ zu begrenzen, wie es zur Auswertung des Spurengases ClONO_2 notwendig ist, muß eine Mittelung von Interferogrammen erfolgen.

Wie in den folgenden Abschnitten gezeigt wird, wirkt sich die Koaddition nicht nur positiv auf das Signal-Rausch-Verhältnis aus, sondern dämpft auch Störungen, die im Einzelinterferogramm nicht oder nicht vollständig identifiziert und korrigiert werden können. Die wichtigsten Beispiele hierfür sind Spikes in der Nähe des Interferogrammmaximums (2.1.3), Rollwinkelschwankungen des Flugzeugs (2.1.4) und Abtastfehler im Interferogramm, die durch Vibrationen hervorgerufen werden (2.1.5).

2.1.1 Sprünge im Zählsystem

Um eine Mittelung von Interferogrammen durchführen zu können, ist es notwendig, daß diese phasenrichtig erfolgt. Dies bedeutet, daß Interferogrammpunkte gleicher Weglängendifferenz gemittelt ('koaddiert') werden. Das 'Quadraturssystem' des Interferometers ermöglicht im Prinzip eine solche Koaddition, da die einzelnen Abtastpunkte des Referenzlaserinterferogramms mitgezählt werden. Die Suche nach dem Interferogramm-Maximum als Koadditionsmarke entfällt daher.

Während den Meßkampagnen des Winters 1991/92 traten jedoch Zählfehler des Quadratursystems auf, die sich in einer Verschiebung des Maximums von bis zu mehreren hundert Abtastintervallen äußerten. Da vor dem Abspeichern der Interferogramme eine mathematische Datenreduktion erfolgte (z.B. *Forman et al., 1966*), war eine phasenrichtige Mittelung von Interferogrammen nicht mehr möglich. Daher wurde ab der 3. Kampagne im Februar 1992 keine Datenreduktion mehr durchgeführt, d.h. die IFG-Punkte liegen im Abtastabstand der Wellenlänge des He-Ne-Lasers von 632.8 nm vor. Eine Addition dieser Interferogramme konnte nun durch eine Verschiebung auf die Position des Maximums als Koadditionsmarke erfolgen.

Der Fehler, der bei der Mittelung von Interferogrammen entsteht, die maximal um ein Abtastintervall gegeneinander verschoben sind, wird als Jitterfehler bezeichnet. Seine Auswirkungen auf das Spektrum wurden von *Maucher (1992)* untersucht. Demnach ergibt sich eine Intensitätsabnahme zu höheren Wellenzahlen hin. Eine Anwendung der dort hergeleiteten Gleichung ergibt im Fall von MIPAS-FT eine Intensitätsabnahme von 0.6% über das Spektralintervall von 750 - 1300 cm^{-1} . Eine solche Abnahme der Intensität wird durch die in Kapitel 2.2 beschriebene Methode der CO_2 -Nachkalibrierung korrigiert und braucht daher nicht in der späteren Fehlerabschätzung berücksichtigt zu werden.

Während der Winterkampagne 1992/93 waren infolge eines wesentlich stabileren Gerätebetriebs praktisch keine Abtastsprünge mehr festzustellen, so daß die Interferogramme unter Anwendung der mathematischen Datenreduktion aufgezeichnet werden konnten und keine Verschiebung vor der Koaddition mehr nötig war.

2.1.2 Wolken

Bei einer Flughöhe der Transall von 6500 - 7500 m stellen hohe Wolken die wichtigste Einschränkung des Meßgebiets von MIPAS-FT dar. Eine Planung der Flugrouten unter Einbeziehung von Vorhersagen hoher Wolken konnte erst ab der dritten Kampagne 1991/92 erfolgen und wurde im Winter 1992/93 konsequent weitergeführt. Dies führte zu einer deutlichen Erhöhung der effektiven Meßzeit.

Bei der Koaddition von Interferogrammen ist es nötig, durch Wolken gestörte Messungen von wolkenfreien Meßzeiträumen zu trennen. Hierzu wurde die Tatsache ausgenutzt, daß sich Wolken ähnlich einem Graukörper verhalten und die integrale Strahldichte im Spektrum deutlich erhöhen. Dieser Sachverhalt spiegelt sich gemäß

$$I(0) = \int_{-\infty}^{\infty} S(\sigma) d\sigma \quad (2.4)$$

im IFG-Maximum wider.

Abbildung 2.1 zeigt einen typischen Verlauf der Höhe des Interferogrammaximums bei aufkommender Wolkenbedeckung. Die sich bei Koaddition der verschiedenen Bereiche ergebenden Spektren zeigt Abbildung 2.2.

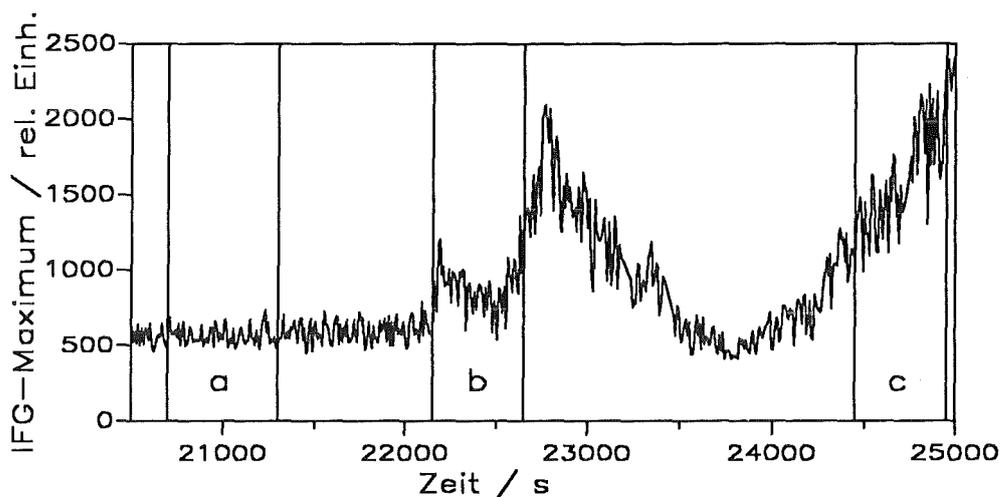
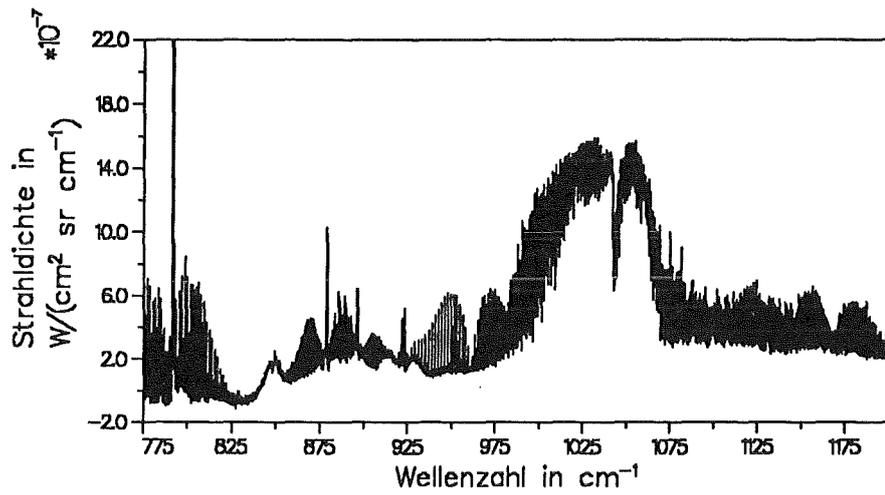
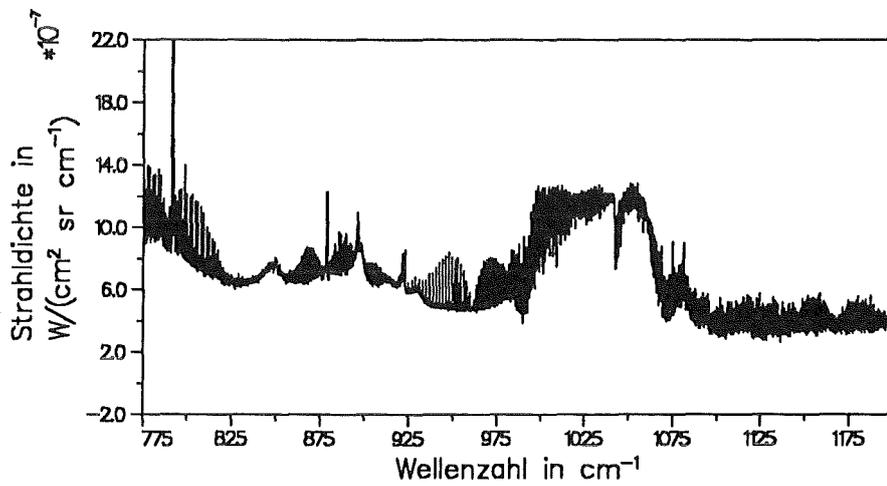


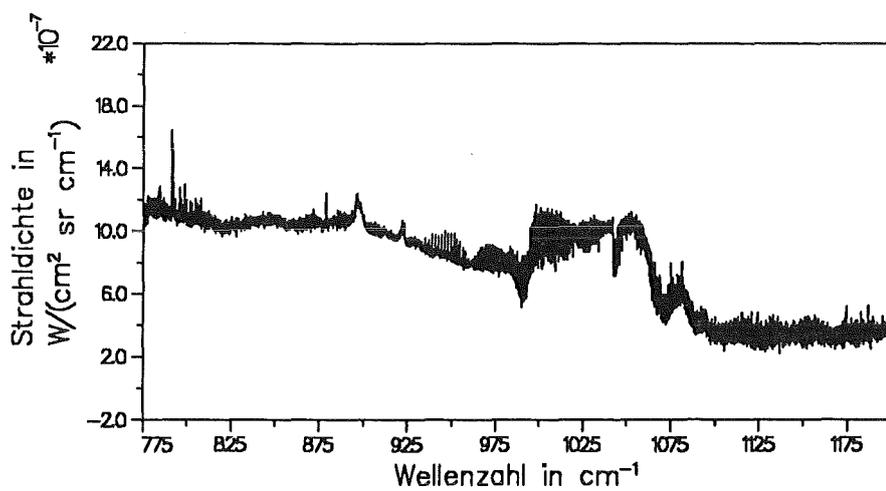
Abb. 2.1 Höhe der Interferogrammaxima des Flugs am 7.3.93 in der Zeit von 5:40:00 bis 7:00:00 GMT (Greenwich Mean Time). Die bei der Mittelung der Interferogramme aus den drei eingezeichneten Intervallen resultierenden Spektren zeigt Abb. 2.2.



2.2 a



2.2 b



2.2 c

Abb. 2.2 Kalibrierte Spektren aus koaddierten Interferogrammen der drei Intervalle in Abb. 2.1. 2.2 a entspricht dem wolkenfreien Zeitraum a. Die Spektren 2.2 b und 2.2 c resultieren aus den von Wolken gestörten Abschnitten b und c.

Treten Wolken nur vereinzelt auf, besteht bei Verwendung des Interferogrammmaximums als Auswahlkriterium die Gefahr, daß erst bei Weglängendifferenzen außerhalb ZPD (Zero Path Difference: $x=0$) Wolken in den Sehstrahl gelangen. Um dies zu vermeiden, wurden nur solche Intervalle zur Koaddition verwendet, bei denen das IFG-Maximum über lange Zeit konstant niedrig blieb, und daher die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Wolken gering war (z.B. Abbildung 2.2 a).

2.1.3 Impulsartige Störungen

Elektronische Einstreuungen rufen häufig impulsartige Störungen im Interferogramm hervor, die nur einzelne Abtastpunkte betreffen und deutlich aus dem eigentlichen Signal bzw. dem Rauschen hervortreten. Diese Störungen werden im folgenden als Spikes bezeichnet. Abbildung 2.3 zeigt einen einzelnen Spike, der den Dynamikbereich des Analog-Digital-Wandlers deutlich übersteigt und daher auch wesentlich größer als das IFG-Maximum ist, dessen Höhe hier bei ca. 800 relativen Einheiten liegt. Eine solche Störung mit dem Abstand x_0 von ZPD erzeugt im Spektrum eine Schwingung mit der Wellenlänge $1/x_0$, deren Amplitude proportional zur Höhe des Spikes ist. Es ist deshalb unbedingt notwendig, vor der Koaddition derartige Spikes aus dem Interferogramm zu entfernen.

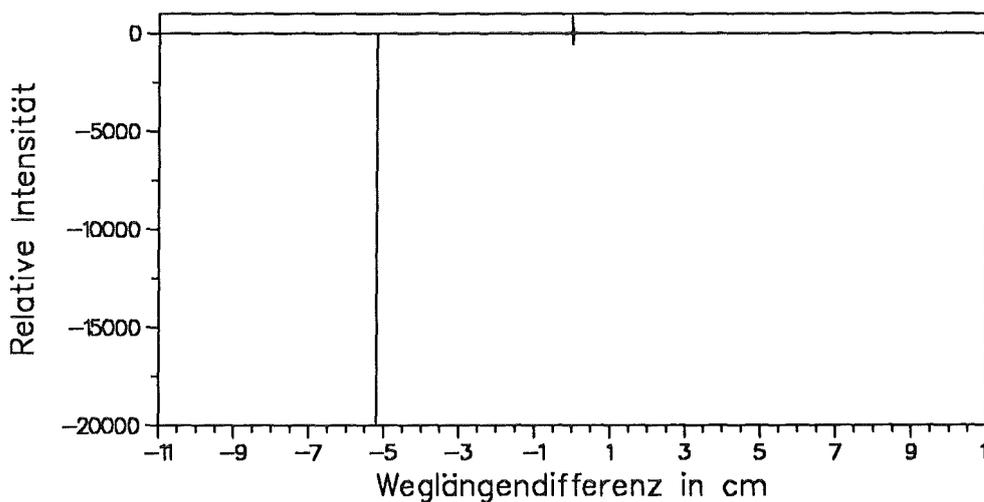


Abb. 2.3 Interferogramm vom 2.2.1993 mit hohem Spike.

Da es höchst unwahrscheinlich ist, daß ein einzelner Spike bei aufeinanderfolgenden Interferogrammen wieder am gleichen Punkt auftritt, nimmt bei der Koaddition der Effekt der Störung umgekehrt proportional zur Anzahl der gemittelten Interferogramme (K) ab.

Anders verhält es sich bei periodischen Störungen, wie sie während der Meßkampagnen des Winters 1992/93 beobachtet wurden. Hier traten häufig Spikes im Interferogramm auf, deren Ursache das gleichzeitig an Bord der Transall arbeitende LIDAR-Gerät war. Da dieses Instrument Laserimpulse mit einer Taktfrequenz von 5 Hz erzeugt, bilden die Störungen eine periodische Funktion, die dem eigentlichen Interferogramm überlagert ist (Abbildung 2.4). Der Abstand der Spikes beträgt bei einer Vorschubgeschwindigkeit von ca. 5 cm/s ungefähr 1 cm.

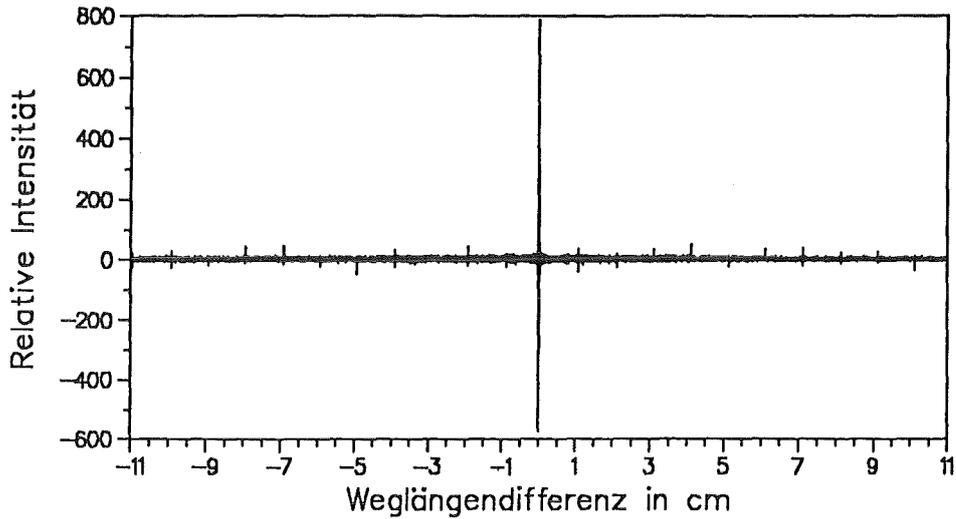


Abb. 2.4 Interferogramm vom 2.2.1993 mit periodischer 'LIDAR'- Störung. Der Abstand der Störimpulse beträgt ca. 1 cm.

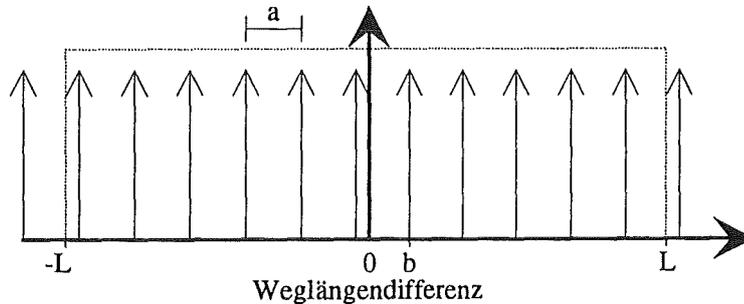


Abb. 2.5 Dirac-Kamm mit den Parametern a (Abstand der Störimpulse) und b ('Phase' bzgl. ZPD). L ist die maximale Weglängendifferenz.

Zur Beschreibung dieses Effekts und dessen Auswirkung auf das Spektrum soll hier ein IFG angenommen werden, welches aus positiven und äquidistanten Spikes besteht (Abbildung 2.5). Dies läßt sich durch die Diracsche Kammfunktion $\text{COMB}_a(x)$ darstellen, die durch eine Rechteckfunktion $\text{RECT}\left(\frac{x}{2L}\right)$ auf die Interferogrammlänge $2L$ beschränkt wird:

$$\begin{aligned}
 I_{sp}(x) &= \text{RECT}\left(\frac{x}{2L}\right) \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta(x - an - b) = \text{RECT}\left(\frac{x}{2L}\right) \text{COMB}_a(x - b) \\
 &\circ \rightarrow 2L \text{sinc}(2\pi L\sigma) \otimes \left[\frac{1}{a} \text{COMB}_{\frac{1}{a}}(\sigma) e^{-i2\pi b\sigma} \right] \\
 &= \frac{2L}{a} \int_{-\infty}^{\infty} \text{sinc}(2\pi L\xi) \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta(\sigma - \xi - \frac{n}{a}) e^{-i2\pi b(\sigma - \xi)} d\xi \\
 &= \frac{2L}{a} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left[\text{sinc}(2\pi L(\sigma - \frac{n}{a})) e^{-i2\pi b \frac{n}{a}} \right]
 \end{aligned} \tag{2.5}$$

$\circ \rightarrow$ bedeutet hierbei die Durchführung der Fouriertransformation und $\text{sinc}(x) = \sin(x)/x$. Der Realteil des berechneten Spektrums lautet:

$$S_{sp}(\sigma) = \frac{2L}{a} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left[\text{sinc}\left(2\pi L\left(\sigma - \frac{n}{a}\right)\right) \cos\left(2\pi b \frac{n}{a}\right) \right] \quad (2.6)$$

Wie aus der letzten Gleichung zu ersehen ist, besteht das Spektrum aus einer Reihe von sinc-Funktionen im Abstand $1/a$, die durch den Term $\cos(2\pi b \frac{n}{a})$ moduliert werden.

Bei nacheinander aufgenommenen Interferogrammen bleibt der Abstand der Spikes a konstant, während die Phase b variiert. Im folgenden wird davon ausgegangen, daß b eine gleichverteilte Zufallsgröße im Intervall $[0, a]$ ist. Das Störspektrum $S_{sp}^K(\sigma)$ nach der Koaddition von K Interferogrammen lautet dann:

$$S_{sp}^K(\sigma) = \frac{2L}{Ka} \sum_{i=1}^K \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left[\text{sinc}\left(2\pi L\left(\sigma - \frac{n}{a}\right)\right) \cos\left(2\pi b_i \frac{n}{a}\right) \right] \quad (2.7)$$

Diese Gleichung zeigt folgendes:

- Die Maxima der sinc-Funktionen befinden sich immer an den gleichen Stellen im Spektrum.
- Diese Funktionen werden moduliert durch den Term $\cos(2\pi b_i \frac{n}{a})$, der von b_i abhängt und daher eine Zufallsgröße mit dem Wertebereich $[-1, 1]$ ist.
- Da die statistische Unabhängigkeit der b_i vorausgesetzt wurde, ist die Höhe der sinc-Funktionen im koaddierten Spektrum proportional zu $\frac{1}{\sqrt{K}} \frac{L}{a}$.

Dieses Ergebnis bedeutet, daß Störungen des Spektrums durch periodische Spikes im Interferogramm bei der Koaddition wie Rauschen mit $1/\sqrt{K}$ vermindert werden. Allerdings ist dieses 'Rauschen' nicht spektral gleichverteilt, sondern an bestimmten Stellen des Spektrums lokalisiert.

Eine einfache und schnelle Methode der Spikekorrektur im rauschbestimmten Bereich des Interferogramms besteht darin, mittels einer Schwellenfunktion die Spikes zu detektieren. In unserem Fall umfaßt diese Funktion das gesamte Interferogramm bis auf den Bereich um ZPD von von -0.5 cm bis $+0.5$ cm, d.h. sie überdeckt 90-95% des Interferogramms. Bei Überschreiten der gesetzten Schwelle wird der gestörte Punkt auf einen Mittelwert der umgebenden Abtastpunkte gesetzt. Im zentralen Bereich des IFGs werden mit einer Schwellenfunktion allerdings nur diejenigen Spikes erfaßt, die über das IFG-Maximum hinausgehen. Solche Fälle werden von der Koaddition ausgeschlossen.

Die Einführung einer Schwellenfunktion in den angegebenen Intervallen entspricht (bei Erfassen aller gestörten Punkte) im obigen Formalismus einer Verminderung der Länge L des gestörten Interferogramms um ca. 90-95%. Wie aus Gleichung 2.5 zu ersehen ist, hat dies einen Rückgang der Amplitude des Störspektrums um den gleichen Prozentsatz zur Folge.

2.1.4 Rollwinkel

Die Sichtlinie von MIPAS-FT wird durch Drehen des Scanspiegels eingestellt (Kapitel 1.1). Der Winkel gegen die Horizontale mit positivem Vorzeichen nach oben wird im folgenden als Elevationswinkel bezeichnet und mit χ abgekürzt.

Da der Scanspiegel im Winter 1991/92 und in der meisten Zeit des Winters 92/93 nicht geregelt wurde, übertrug sich jede Rollbewegung (Winkeländerung um die Flugzeuglängsachse) der Transall auch auf den Blickwinkel von MIPAS. Abbildung 2.6 zeigt einen typischen Verlauf des Rollwinkels in hoher zeitlicher Auflösung. Charakteristisch ist eine Schwankungsperiode von ca. 7s, die durch den Autopiloten der Transall hervorgerufen wird.

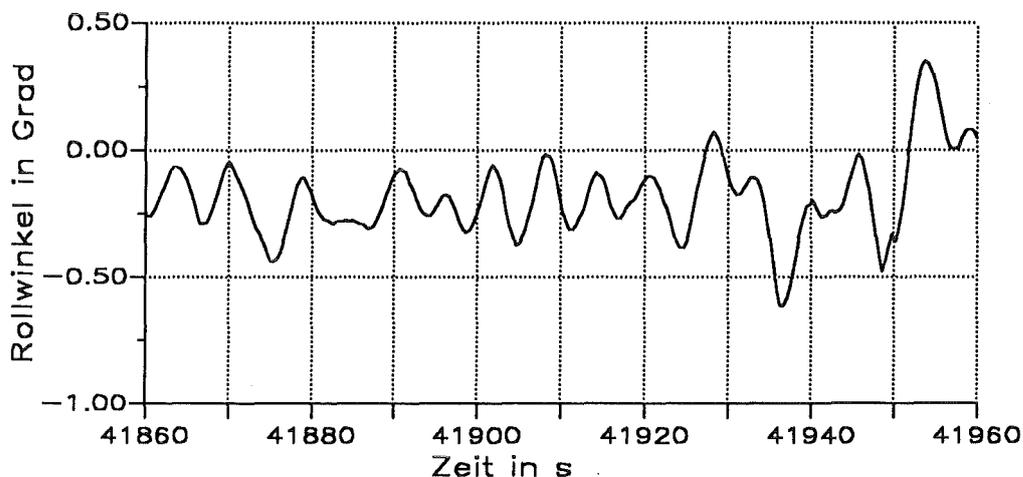


Abb. 2.6 Rollwinkel der Transall am 31.1.93 in der Zeit von 11:37:40 bis 11:39:20 GMT. Die Periode der Schwankungen beträgt ca. 7 s.

Gegen Ende der Winterkampagne 92/93 wurde eine Regelung zum Rollwinkelausgleich durch Nachführung des Scanspiegels implementiert. Da der Großteil der Daten jedoch ohne Rollwinkelausgleich gemessen wurde, wird im folgenden eine Abschätzung des Effekts auf das gemessene Spektrum bei der Koaddition durchgeführt.

Eine Variation des Blickwinkels während der Interferogrammaufnahme führt aufgrund der sich ändernden Strahlungsintensität zu einer Apodisation des Interferogramms (*Delbouille, 1992*). Es stellt sich die Frage, wie die entsprechende Apodisationsfunktion im Fall von MIPAS-FT aussieht.

Nimmt man in erster Näherung an, daß die Strahlungsintensität aus der Atmosphäre bei kleinen Rollwinkelschwankungen proportional zum Elevationswinkel ist und daß diese Schwankungen einen harmonischen zeitlichen Verlauf zeigen, so kann die Strahldichtevariation durch $A \cos(2\pi\nu_R t)$ beschrieben werden. A ist dabei die Proportionalitätskonstante. Die Rollwinkelfrequenz ν_R beträgt in unserem Fall 1/7 Hz. Für das gestörte Interferogramm erhält man nach dem Übergang von der Zeit- zur Weglängendifferenz im IFG folgenden Ausdruck:

$$I_R(x) = I(x) [1 - A \cos(2\pi\sigma_R x + \theta_R)] \quad (2.8)$$

θ_R : Phase des Rollwinkels bei ZPD

$\sigma_R = v_R/V = 1/35 \text{ cm}^{-1}$ mit der Vorschubgeschwindigkeit V von ca. 5 cm/s.

Nach Ausführen der Cosinustransformation erhält man das Spektrum:

$$\begin{aligned} S_R(\sigma) &= S(\sigma) - \frac{1}{2} A \cos \theta_R S(\sigma) \otimes [\delta(\sigma - \sigma_R) + \delta(\sigma + \sigma_R)] \\ &= S(\sigma) - \frac{1}{2} A \cos \theta_R [S(\sigma - \sigma_R) + S(\sigma + \sigma_R)] \end{aligned} \quad (2.9)$$

Dem ungestörten Spektrum sind also symmetrisch im Abstand $\pm\sigma_R$ zwei Duplikate überlagert, deren Stärke proportional zu $A \cos \theta_R$ ist. Dieser Effekt ist allgemein unter dem Begriff 'Geisterlinien' bekannt (z.B. *Delbouille, 1992*).

Da die Störungen, wie im Fall der periodischen Spikes, nicht synchron mit der Aufnahme des Interferogramms verlaufen, bleiben bei der Koaddition alle Parameter bis auf den Phasenwinkel θ_R gleich. Folgt man der Argumentation in Kapitel 2.1.3, so zeigt sich, daß die Geisterlinien im koaddierten Spektrum mit $1/\sqrt{K}$ zurückgehen.

Da in Realität der Intensitätsverlauf in Abhängigkeit vom Beobachtungswinkel nicht linear ist und zudem vom betrachteten Gas und damit von der Wellenzahl abhängt, wurden Simulationen mit gerechneten Spektren durchgeführt.

Der Ablauf einer Simulation verlief wie folgt:

- Vorwärtsrechnung eines Spektrums mit der realen Atmosphäre vom 2.2.93 um 17:31 GMT (Elevationswinkel 7.4° , max. Weglängendifferenz: 11 cm).
- Berechnung von 10 weiteren Spektren mit Elevationswinkeln jeweils im Abstand von 0.1° , die den Bereich $6.9^\circ - 7.9^\circ$ abdecken.
- Fouriertransformation dieser 11 Spektren.
- Aufbau eines gestörten IFGs unter der Annahme einer Rollwinkelperiode von 7s und der Aufnahmezeit für ein IFG von 4.4s durch Zusammenfügen aus einzelnen Stücken des jeweils zum gerade erreichten Winkel gehörigen IFGs.
- Koaddition solcher Interferogramme mit jeweils unterschiedlichem θ_R .
- Rücktransformation.
- Vergleich mit dem ungestörten Spektrum des mittleren Elevationswinkels 7.4° .

Abbildung 2.7 zeigt einen solchen Vergleich bei 150 Koadditionen. Die absolute Differenz beträgt im Maximalfall $10^{-9} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$, also ca. 0.3% bis maximal 0.5% der Linienhöhe.

Im Vergleich zu einem Rauschen von $1.0 \cdot 10^{-8} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ und zu anderen Fehlern, wie der Ungenauigkeit in der absoluten Kenntnis des mittleren Elevationswinkels (Kapitel 4), ist der Fehler durch Rollwinkelschwankungen in den in dieser Arbeit betrachteten Messungen zu vernachlässigen.

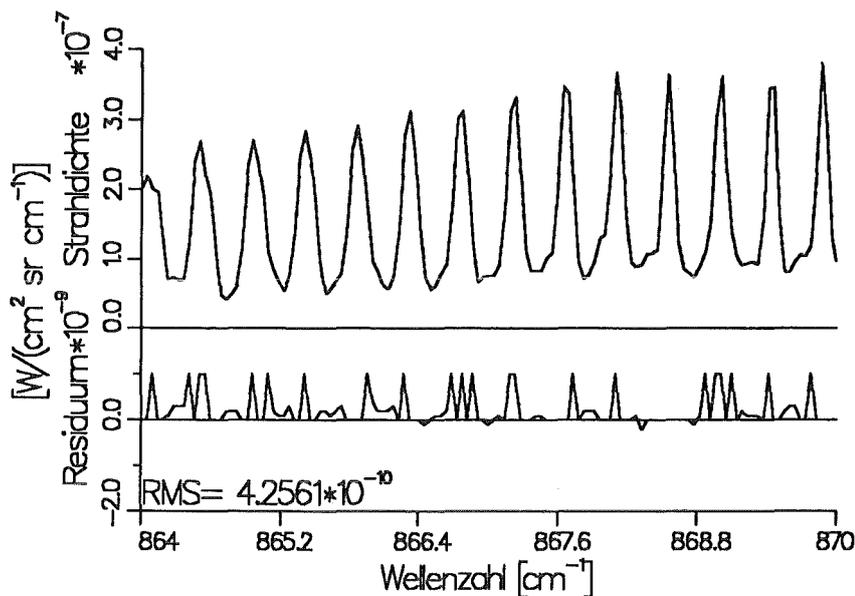


Abb. 2.7 Simulation von Rollwinkelschwankungen. Vergleich eines gestörten Spektrums (150 Koadditionen) mit einem ungestörten Spektrum (Elevationswinkel 7.4°). Gezeigt ist ein Spektralintervall, das im wesentlichen HNO_3 -Linien enthält und bei der Inversionsrechnung verwendet wurde. Wie man am Residuum (gestörtes - ungestörtes Spektrum) erkennt, beträgt die Differenz maximal 0.5% der Linienintensität, so daß die Spektren im oberen Bildteil nicht unterscheidbar sind.

2.1.5 Phasenfehler durch Vibrationen

In diesem Abschnitt soll untersucht werden, wie sich Vibrationen des Geräts während des Flugs auf die Interferogrammbastung und auf das Spektrum auswirken. Es wird sich zeigen, daß auch diese Störung bei der Koaddition wie zusätzliches, an bestimmten spektralen Stellen lokalisiertes Rauschen behandelt werden kann.

Die Vorschubgeschwindigkeit des Pendels weist während des Flugs starke Schwankungen um den nominellen Wert von 5.06 cm/s auf. Diese Abweichungen existieren nicht bei Bodenmessungen und werden daher allein durch die Vibrationen der Transall verursacht. Eine Frequenzanalyse der Pendelgeschwindigkeit zeigt ein Maximum bei 57 Hz (Gulde, 1994).

Schwankungen der Pendelgeschwindigkeit führen infolge von Laufzeitunterschieden zwischen den Kanälen des Referenz- und des Infrarotinterferogramms zu Ortsfehlern bei der Interferogrammbastung. Eine Analyse der Auswirkungen von Nichtlinearitäten in der Vorschubgeschwindigkeit wurde beispielsweise von Zachor (1977) durchgeführt. Ein sinusförmiger Abtastfehler des Interferogramms bewirkt im Spektrum das Auftreten von Nebenlinien im Abstand $m\sigma_p$ von der Hauptlinie, wobei m eine ganze Zahl und σ_p die Wellenzahl der Störschwingung ist. Diese beträgt in unserem Fall bei einer mittleren Pendelgeschwindigkeit von 5 cm/s : $57/5 \text{ cm}^{-1} = 11.4 \text{ cm}^{-1}$.

Die Höhe der m -ten Nebenlinie wird durch die Funktion $(-1)^m J_m(2\pi\sigma_0\Delta x)$ gegeben ($J_m(x)$: Besselfunktion erster Gattung, m -ter Ordnung). Dabei ist σ_0 die Wellenzahl der Spektrallinie und Δx die Verschiebung des Abtastpunkts im gestörten Interferogramm ($\Delta x = \Delta V \Delta t$, mit der Amplitude der Geschwindigkeitsvariation ΔV und dem Laufzeitunterschied Δt).

ΔV liegt im Flugbetrieb bei ca. 10% - 50% der nominellen Vorschubgeschwindigkeit. Die Abschätzung von Δt ist mit dem größten Fehler behaftet, da es hierfür keine direkten Messungen gibt. Unter der Annahme, daß der Wert ungefähr so groß ist wie die Differenz der

Gruppenlaufzeiten des Infrarot-Signalzweiges im betrachteten Wellenzahlbereich (Fergg, 1992, Fig. 2), kann man für $\Delta t = 5\mu\text{s}$ ansetzen. Die Höhe der ersten Nebenlinie beträgt hiermit 0.8% - 3.9% der Amplitude einer Spektrallinie bei 1000 cm^{-1} . Die Intensität der Hauptlinie nimmt dagegen nur um 0.006% - 0.16% ab.

Bei der Untersuchung der Auswirkung der Koaddition auf diesen Fehler ist zu beachten, daß sich die Phase Y_i der harmonischen Störung bei aufeinanderfolgenden Interferogrammen ändert (i ist der Laufindex der gemittelten Interferogramme). Das gestörte Interferogramm einer monochromatischen Linie der Wellenzahl σ_0 lautet dann:

$$I_i^g(x) = \cos[2\pi\sigma_0\{x - \Delta x \sin(2\pi\sigma_\beta x + Y_i)\}] \text{RECT}\left(\frac{x}{2L}\right) \quad (2.10)$$

mit der maximalen Weglängendifferenz L . (Der konstante Phasenfehler aufgrund der Laufzeitdifferenz braucht hierbei nicht berücksichtigt zu werden.)

Betrachtet man nur die Hauptlinien und die Nebenlinien 1. Ordnung, so ergibt sich als Realteil des gestörten Spektrums (Anhang D):

$$S_i^g(\sigma) = L J_0(\xi_i) J_0(\eta_i) \text{sinc}(2\pi(\sigma - \sigma_0)L) - L J_0(\xi_i) J_1(\eta_i) [\text{sinc}(2\pi(\sigma - \sigma_0 - \sigma_\beta)L) - \text{sinc}(2\pi(\sigma - \sigma_0 + \sigma_\beta)L)] \quad (2.11)$$

$$\xi_i = 2\pi\sigma_0\Delta x \sin Y_i$$

$$\eta_i = 2\pi\sigma_0\Delta x \cos Y_i$$

$J_0(x)$ ist eine gerade und $J_1(x)$ eine ungerade Funktion.

Geht man davon aus, daß Y_i bei den zu koaddierenden Interferogrammen eine Zufallsgröße ist, so sind die Werte der Amplituden der ersten Nebenlinien $J_0(\xi_i) J_1(\eta_i)$ ebenfalls zufällig um den Mittelwert 0 verteilt. Dies heißt, daß auch in diesem Fall bei der Mittelung von K Interferogrammen sich die Nebenlinien wie Rauschen verhalten und mit $1/\sqrt{K}$ zurückgehen. Nimmt man in unserem Beispiel 100 koaddierte IFGs an, so werden die ersten Nebenlinien auf 0.08% - 0.39% der Hauptlinie vermindert.

2.2 Phasenkorrektur

In diesem Kapitel soll gezeigt werden, welche Probleme bei der Anwendung der üblichen Methoden zur Phasenkorrektur von Interferogrammen aus MIPAS-FT Messungen auftreten. Die Ursache dieser Schwierigkeiten wird analysiert und die deshalb erforderlichen neuen Verfahren der Phasenbestimmung werden vorgestellt. Diese werden miteinander verglichen, um eine optimale Korrektur der Spektren durchführen zu können.

Im zweiten Teil werden die verschiedenen Arten der Interferogrammaufnahme diskutiert. Es soll gezeigt werden, welche Korrekturmethode jeweils angewandt werden können und welche Vor- und Nachteile sich ergeben.

2.2.1 Grundlagen

Eine Symmetriebetrachtung der Gleichung (2.3) zeigt, daß ein symmetrisches Interferogramm zu einem reellen Spektrum führt, wie es bei einem idealen Spektrometer der Fall wäre. In der Realität kommt es jedoch aufgrund von nichtlinearen Dispersionserscheinungen, Geschwindigkeitsschwankungen oder der digitalen Abtastung des Interferogramms zu Asymmetrien. Diese resultieren nach der Transformation in einem komplexen Spektrum:

$$S(\sigma) = S_r(\sigma) + iS_i(\sigma) = |S(\sigma)| e^{i\phi(\sigma)} \quad (2.12)$$

$S_r(\sigma)$: Realteil des komplexen Spektrums $S_i(\sigma)$: Imaginärteil des komplexen Spektrums $\phi(\sigma)$: Wellenzahlabhängiger Phasenfehler

Die Methoden der Phasenkorrektur bestehen im wesentlichen darin, das komplexe Spektrum durch eine Drehung in ein reelles zu transformieren. Dies kann im Spektralraum durch eine Multiplikation mit $e^{-i\phi(\sigma)}$ (Mertz, 1966) bzw. im Interferogrammraum durch eine Faltung mit $\text{FT}(e^{-i\phi(\sigma)})$ (Forman, 1966) geschehen (FT bedeutet dabei die Fouriertransformation):

$$|S(\sigma)| = S(\sigma) e^{-i\phi(\sigma)} \circ \circ I_{sym}(x) = I_{asym}(x) \otimes \text{FT}(e^{-i\phi(\sigma)}) \quad (2.13)$$

$I_{sym}(x)$ ist symmetrisch.

Bei der Aufnahme von sogenannten 'einseitigen' Interferogrammen wird das IFG nicht symmetrisch um das Maximum abgetastet. Es liegt vielmehr auf einer Seite mit voller und auf der anderen mit geringerer Wegdifferenz vor. Zur Phasenkorrektur benutzt man die niedrigaufgelöste Phase des kurzen, zweiseitigen Interferogramms. Dabei liegt die Annahme zugrunde, daß sich die Phase $\phi(\sigma)$ nur langsam mit der Frequenz ändert.

Bei der Aufnahme von zweiseitigen Interferogrammen kann man direkt $|S(\sigma)| = \sqrt{S_r(\sigma)^2 + S_i(\sigma)^2}$ berechnen. Außerdem kann das Phasenspektrum $\phi(\sigma) = \text{atan2}(S_i(\sigma), S_r(\sigma))$ mit voller Auflösung bestimmt werden. Die Funktion atan2 hat den Wertebereich von $-\pi$ bis π und entspricht der gleichnamigen Fortran-Routine. Sie hat gegenüber einer reinen Arcustangens-Bildung den Vorteil, daß eine eindeutige Zuordnung zu den Quadranten der komplexen Ebene möglich ist.

Eine derartige Berechnung des Betragsspektrums und der Phase bei Messungen mit MIPAS-FT wird im nächsten Kapitel gezeigt.

2.2.2 Hochaufgelöste Phasenfunktion

Der Großteil der Messungen von MIPAS-FT wurde im zweiseitigen Betrieb durchgeführt. Abbildung 2.8 und 2.9 zeigen die Phase $\phi(\sigma)$ und das Betragsspektrum $|S(\sigma)|$ einer solchen Messung.

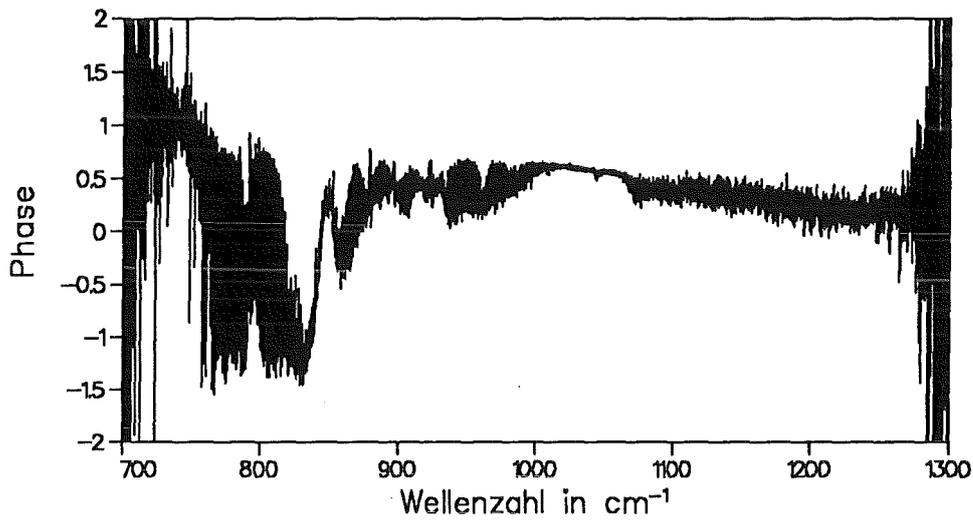


Abb. 2.8 Phasenspektrum einer Messung vom 6.12.92, 12:21 GMT. Man erkennt die spektral hochaufgelöste Struktur im Bereich niedriger Strahlungsintensität aus der Atmosphäre.

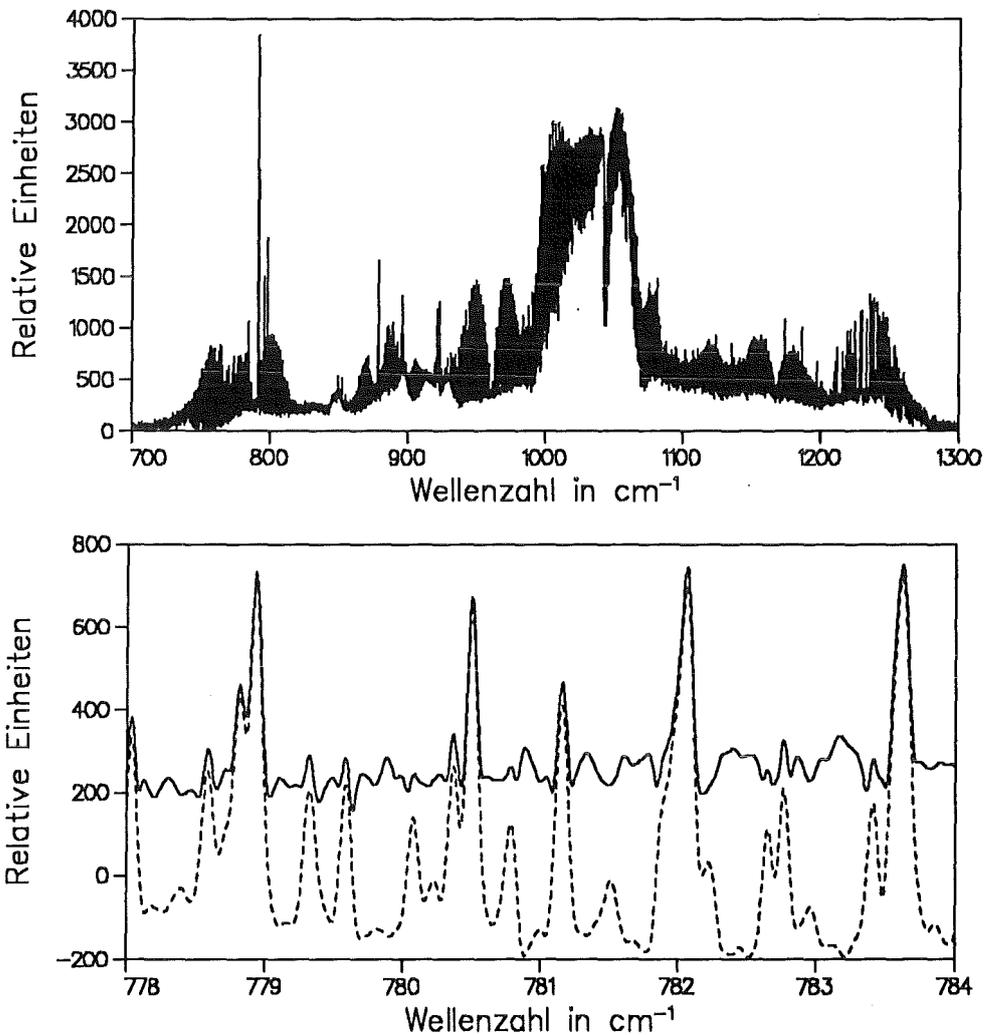


Abb. 2.9 Unkalibriertes Betragsspektrum einer Messung vom 6.12.92, 12:21 GMT (obere Abbildung). Die untere Abbildung zeigt ein Wellenzahlintervall mit deutlichen Abweichungen des Betragsspektrums (durchgezogen) vom optimal phasenkorrigierten Spektrum (gestrichelt).

Aus Abbildung 2.8 wird klar, daß sich $\phi(\sigma)$ keineswegs langsam mit der Wellenzahl ändert. Vielmehr finden sich in atmosphärischen Fensterbereichen, in denen die von außen kommende Strahldichte gering ist, spektral hochaufgelöste Strukturen. Diese können mit einzelnen Spektrallinien identifiziert werden. Im Bereich der Ozonbande um 1000 cm^{-1} , in der die Strahlung aus der Atmosphäre größer ist, wird der Phasenverlauf stetiger.

Das Betragsspektrum sieht auf den ersten Blick korrekt aus. Vergleicht man es jedoch mit einem mittels der weiter unten beschriebenen, neuentwickelten Methode phasenkorrigierten Spektrum (Abbildung 2.9, gestrichelte Linie), so fällt auf, daß Strukturen kleinerer Intensität nach oben gespiegelt ('umgeklappt') und in ihrer Intensität vermindert sind. Es ist außerdem bemerkenswert, daß dieses Umklappen nicht erst nahe der Nulllinie sondern schon beim Erreichen eines Sockels größer als Null (in diesem Beispiel bei ca. 200 relativen Einheiten) auftritt.

Dieses Verhalten läßt sich erklären, wenn man die Phasenlage der verschiedenen Anteile der Strahlung, die auf den Detektor fällt, betrachtet. Unter Vernachlässigung von Phasenfehlern ist dies in Abbildung 2.10 für eine bestimmte Wellenzahl in der komplexen Ebene dargestellt.

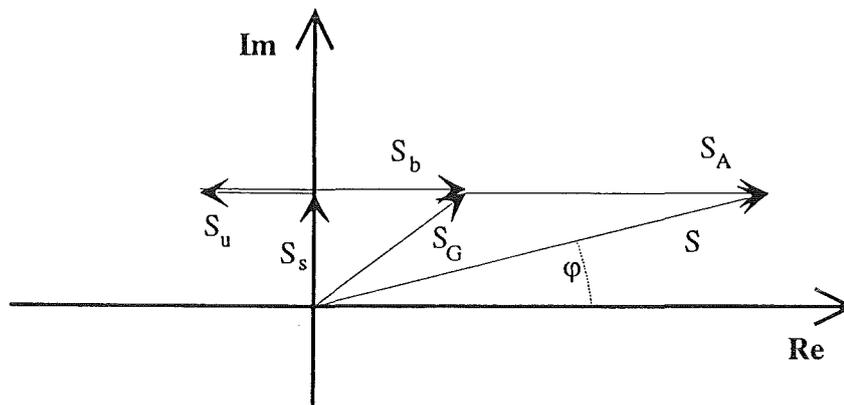


Abb. 2.10 Die verschiedenen Strahlungsanteile des komplexen Spektrums S bei einer bestimmten Wellenzahl.

$S_A(\sigma)$ ist die Strahlung, die von außen in das Interferometer gelangt, also die Strahlung der Atmosphäre bzw. eines Schwarzkörpers. Dieser Strahlungsanteil ist rein reell.

Der zweite Anteil von $S(\sigma)$ ist $S_G(\sigma)$, die gesamte Eigenstrahlung des Spektrometers. Dieser Vektor wird im allgemeinen parallel zu $S_A(\sigma)$, also als rein reell angenommen. Jedoch hat *Revercomb (1988)* gezeigt, daß es in bestimmten Fällen nötig ist, diesen Anteil als komplexe Größe anzusetzen.

$S_G(\sigma)$ kann in drei Strahlungsanteile zerlegt werden, die sich nach ihrer Herkunft und Phasenlage unterscheiden (*Weddigen, 1993*):

- $S_b(\sigma)$ Die Strahlung von der Eingangsoptik, bestehend aus Emissionen bzw. Reflexionen optischer Elemente zwischen Strahlteiler und Atmosphäre (IR-Fenster, Scanspiegel, Umlenkspiegel). Sie hat die gleiche Phase wie $S_A(\sigma)$.
- $S_u(\sigma)$ Die Strahlung von der Detektoroptik, die eine Phasendifferenz zu $S_A(\sigma)$ von π besitzt.

$S_i(\sigma)$ Ein rein imaginärer Anteil mit der Phasendifferenz $\pi/2$. In *Weddigen et al. (1993)* wurde gezeigt, daß die Emission des Strahlteilers einen imaginären Beitrag liefern könnte. Messungen von *Schlipper (1994)* ergaben, daß dieser Anteil bei MIPAS-FT auch unter Laborbedingungen auftritt, jedoch nicht allein durch eine Strahlteileremission erklärt werden kann.

Das hochaufgelöste Phasenspektrum und das eigenartige Verhalten des Betragsspektrums soll anhand der Abbildung 2.11 erklärt werden. S_G stellt wie in Abbildung 2.10 die Vektorsumme der Eigenstrahlungsanteile $S_b(\sigma)$, $S_u(\sigma)$ und $S_i(\sigma)$ des Interferometers dar. Man erkennt, daß hier im Gegensatz zu Abbildung 2.10 $|S_u(\sigma)| > |S_b(\sigma)|$ angenommen wird, wie es bei MIPAS-FT im Wellenzahlbereich unter ca. 830 cm^{-1} fast immer der Fall war. Auch der imaginäre Anteil $S_i(\sigma)$ ist von der gleichen Größenordnung. Man betrachte nun zusätzlich externe Strahlung, deren Intensität sich im Bereich einer Spektrallinie schnell mit der Wellenzahl ändert und sehr kleine Strahldichten in der Größenordnung des Geräteuntergrunds annehmen kann (S_{A1} , S_{A2} , ...). Zu erkennen ist, daß sich dann die Phase (ϕ_1 , ϕ_2 , ...) rasch ändert. Dies hat das beobachtete hochaufgelöste Phasenspektrum zur Folge. Nimmt nun $S_A(\sigma)$ so große Werte an, daß

$$S_s(\sigma) \ll S_A(\sigma) + S_b(\sigma) - S_u(\sigma) \quad (2.14)$$

so ist die Änderung von $\phi(\sigma)$ mit der Wellenzahl nur noch gering. Dies ist beispielsweise bei Schwarzkörpermessungen höherer Temperatur oder in der Ozonbande bei $9.6 \mu\text{m}$ der Fall.

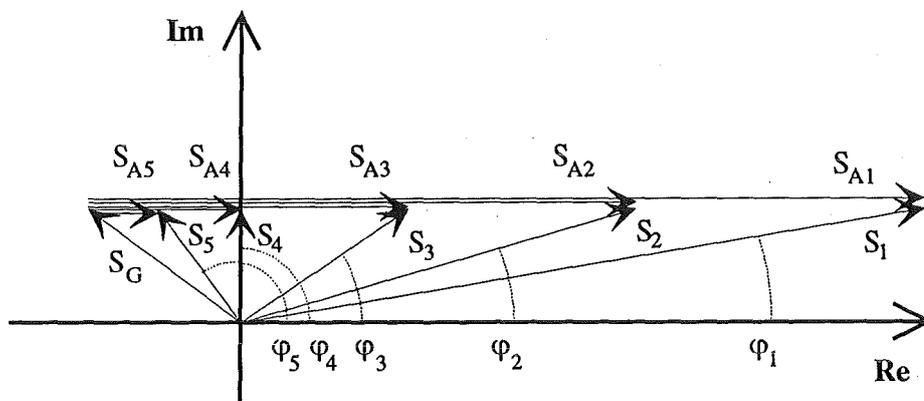


Abb. 2.11 Zur schnellen Variation der Phase und zum Umklappen von Linien im Betragsspektrum. Die Vektoren S_{Ai} gehen jeweils vom Endpunkt der Eigenstrahlung S_G aus.

Abbildung 2.11 verdeutlicht auch das Verhalten der Spektren bei Betragsbildung. Das oben beobachtete Umklappen tritt in Frequenzbereichen auf, in denen $|S_u(\sigma)| > |S_b(\sigma)|$. Wird nun der Anteil aus der Atmosphäre kleiner (S_{A1} , S_{A2} , ...), so nimmt der Betrag S_1 , S_2 , .. solange ab, bis $S_A + S_b = -S_u$ ist. Ein weiteres Abnehmen der Atmosphärenstrahlung bedeutet wieder eine Zunahme des Betrages (S_5) und somit ein Umklappen der Linie. Das Vorhandensein eines imaginären Anteils $S_i(\sigma)$ bewirkt, daß $|S(\sigma)|$ nicht Null wird. Sein minimaler Wert ist gleich $S_i(\sigma)$. Dies erklärt auch den beobachteten 'Sockel' unter den umgeklappten Bereichen.

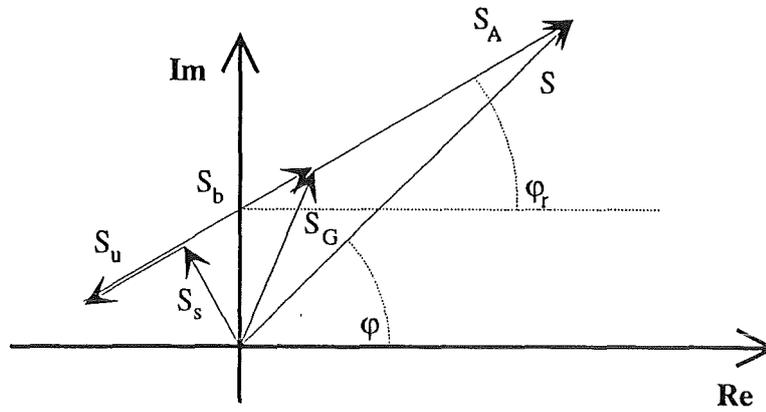


Abb. 2.12 Drehung aller Vektoren durch den zusätzlichen Phasenfehler $\phi_r(\sigma)$.

Den Effekt eines bisher vernachlässigten Phasenfehlers $\phi_r(\sigma)$ (durch digitalisierte Abtastung, usw. (s. oben)) veranschaulicht die Abbildung 2.12. Er hat zur Folge, daß $S(\sigma)$ und daher auch alle Vektoren, aus denen sich $S(\sigma)$ zusammensetzt, um diese Phase gedreht werden.

Eine optimale Phasenkorrektur beseitigt den Phasenfehler $\phi_r(\sigma)$, indem $S_A(\sigma)$ so gedreht wird, daß der Vektor parallel zur reellen Achse zu liegen kommt. Bei vielen Messungen mit Interferometern gilt (2.14), und es ist ausreichend, die Drehung um den Winkel $\phi(\sigma)$ durchzuführen. Wie oben gezeigt wurde, ist diese Voraussetzung bei MIPAS-FT nicht gegeben. Daher muß zur Phasenkorrektur die Phase $\phi_r(\sigma)$ bestimmt werden. Im folgenden werden hierzu verschiedene Methoden vorgestellt und verglichen.

2.2.3 Methoden zur Phasenbestimmung

2.2.3.1 Phasenbestimmung aus Schwarzkörpermessungen

Dieser Vorgehensweise zur Phasenkorrektur von Emissionsspektren liegt die Annahme zugrunde, daß sich die Phase $\phi_r(\sigma)$ zwischen einer Atmosphärenmessung und einer zeitlich naheliegenden Schwarzkörpermessung nicht ändert. Sie entspricht im wesentlichen der von *Revercomb et al. (1988)* benutzten Methode zur Korrektur und Kalibrierung von HIS (High-Resolution Interferometer Sounder)-Spektren.

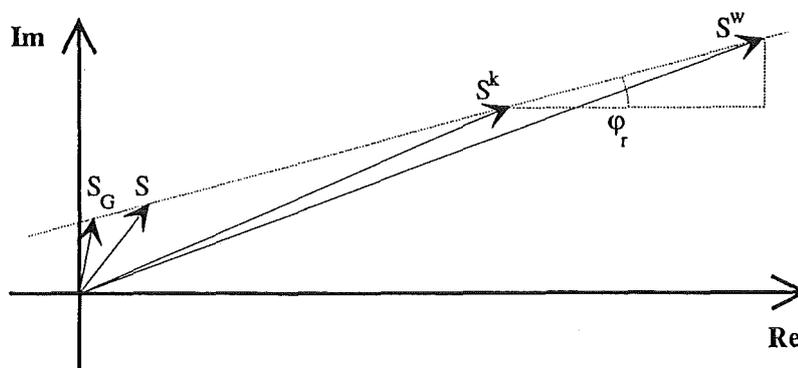


Abb. 2.13 Bestimmung der Phase $\phi_r(\sigma)$ aus Schwarzkörpermessungen. S^w und S^k sind die Spektren der Schwarzkörpermessung mit höherer und niedrigerer Temperatur. S_G ist der Geräteuntergrund und S ein Atmosphärenspektrum.

Die Phase $\phi_r(\sigma)$ berechnet sich für eine bestimmte Wellenzahlstützstelle σ gemäß (Abbildung 2.13):

$$\phi_r(\sigma) = \operatorname{atan} \frac{S_i^w(\sigma) - S_i^k(\sigma)}{S_r^w(\sigma) - S_r^k(\sigma)} \quad (2.15)$$

w und k bedeuten hierbei Schwarzkörpermessungen hoher bzw. niedriger Temperatur. Die Indizes r und i bezeichnen die Realteile und die Imaginärteile der Schwarzkörperspektren. Eine Phasenfunktion, die auf diese Art bestimmt wurde, wird im folgenden als 'Schwarzkörperphase' bezeichnet.

Hat man eine Schwarzkörpermessung mit lediglich einer Temperatur zur Verfügung, so kann man obige Gleichung auch auf Atmosphären- ($S(\sigma)$) und Schwarzkörpermessungen anwenden:

$$\phi_r(\sigma) = \operatorname{atan} \frac{S_i^w(\sigma) - S_i(\sigma)}{S_r^w(\sigma) - S_r(\sigma)} \quad (2.16)$$

$S^w(\sigma)$ muß dabei genügend groß sein. Dies ist immer dann erfüllt, wenn die Temperatur des Schwarzkörpers wesentlich höher ist als die Strahlungstemperatur der Atmosphäre.

Aus der Tatsache, daß $\lim_{S_A(\sigma) \rightarrow \infty} \phi(\sigma) = \phi_r(\sigma)$, kann man $\phi_r(\sigma)$ näherungsweise auch dann bestimmen, wenn die Strahlung des Schwarzkörpers $S_A(\sigma)$ viel größer als der imaginäre Anteil der Gerätestrahlung $S_i(\sigma)$ ist. Es gilt dann:

$$\phi_r(\sigma) \approx \operatorname{atan} \frac{S_i(\sigma)}{S_r(\sigma)} \quad (2.17)$$

2.2.3.2 Differentielle Phasenbestimmung

Diese Methode zur Bestimmung von $\phi_r(\sigma)$ verwendet Informationen aus starken Gradienten (bzgl. σ) der Strahldichte im Real- und Imaginärteil des Spektrums und setzt daher die Aufnahme von zweiseitigen Interferogrammen voraus (*Weddigen, 1992*). Es liegt darüberhinaus die Annahme zugrunde, daß sich die Phase $\phi_r(\sigma)$ nur langsam mit der Wellenzahl σ ändert.

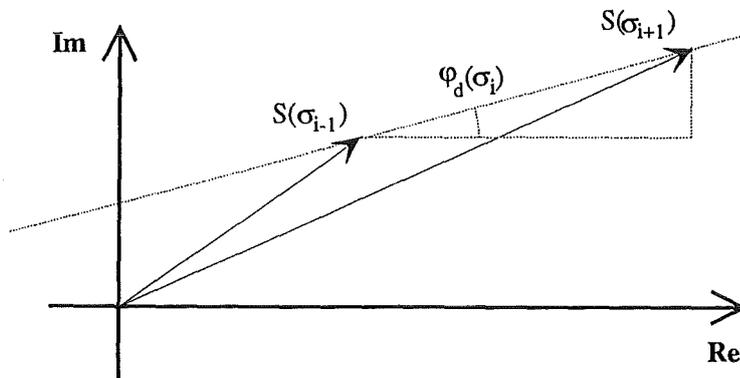


Abb. 2.14 Zur Bestimmung der Phase $\phi_d(\sigma)$. $S(\sigma_{i+1})$ und $S(\sigma_{i-1})$ sind die Werte des komplexen Spektrums bei benachbarten Stützstellen.

Unter dieser Voraussetzung gilt (Abbildung 2.14):

$$\phi_r(\sigma_i) \approx \phi_d(\sigma_i) \equiv \operatorname{atan} \frac{S_i(\sigma_{i+1}) - S_i(\sigma_{i-1})}{S_r(\sigma_{i+1}) - S_r(\sigma_{i-1})} \quad (2.18)$$

mit den aufeinanderfolgenden Wellenzahlstützstellen σ_{i-1} , σ_i und σ_{i+1} und dem Real- und Imaginärteil des Spektrums $S_r(\sigma)$ und $S_i(\sigma)$. $\phi_r(\sigma)$ ist in solchen Bereichen gut definiert, in denen sich die Strahldichte stark mit der Wellenzahl ändert, wie es in Linienflügeln der Fall ist. Man kann jedoch $\phi_d(\sigma)$ nicht direkt als Phase zur Korrektur verwenden, da sie durch spektrales Rauschen über den vollen Wertebereich von $-\pi/2$ bis $\pi/2$ streut. Es ist daher nötig, eine im voraus gewählte, nicht verrauschte Phasenfunktion $\phi'(\sigma_i)$ an diese differentielle Phase $\phi_d(\sigma_i)$ anzupassen. Dies geschieht durch eine Ausgleichsrechnung der vorgegebenen Phase $\phi'(\sigma_i)$ an $\phi_d(\sigma_i)$.

Zur stärkeren Wertung der Wellenzahlbereiche, in denen $\phi_d(\sigma_i)$ gut bestimmt ist, wird folgender Wichtungsfaktor berücksichtigt:

$$W(\sigma_i) = (S_r(\sigma_{i+1}) - S_r(\sigma_{i-1}))^2 + (S_i(\sigma_{i+1}) - S_i(\sigma_{i-1}))^2 \quad (2.19)$$

Hierdurch werden Wellenzahlintervalle, in denen sich der Real- und der Imaginärteil des Spektrums schnell ändern, stärker gewichtet.

$\phi'(\sigma)$ sei eine Phasenfunktion, die mit der Phase $\phi_r(\sigma)$ bis auf einen linearen Phasenfehler ($b\sigma$) und eine konstante Verschiebung (a) übereinstimmt. Das heißt:

$$\phi_r(\sigma) = \phi'(\sigma) + b\sigma + a \quad (2.20)$$

In der Ausgleichsrechnung ist nun folgende Funktion zu minimieren:

$$\chi^2 = \sum_i W(\sigma_i) [\phi_d(\sigma_i) - (\phi'(\sigma_i) + b\sigma + a)]^2 \quad (2.21)$$

Die eindeutigen Lösungen für a und b sind in Anhang E angegeben.

Es stellt sich jetzt die Frage, welche Funktion für $\phi'(\sigma)$ verwendet werden sollte. Bei einem rein linearen Phasenfehler, wie er durch einen konstanten Abtastfehler im Interferogramm verursacht wird, würde eine Gerade ausreichen. Gerätespezifische, nichtlineare Phasenfehler werden dabei jedoch außer acht gelassen. Deshalb erschien es sinnvoller, eine experimentell bestimmte Phasenfunktion zu verwenden, wie sie aus Schwarzkörpermessungen (Kapitel 2.2.3.1, Gleichung (2.16)) berechnet werden kann. Bei Verwendung dieser experimentellen Phase ergab sich eine bessere Anpassung als bei Verwendung einer Geraden. Dies äußerte sich in einem um mindestens 5% kleineren χ^2 . Außerdem waren im rein imaginären Anteil $S_i(\sigma)$ nach der Drehung mittels einer Geraden noch Linienstrukturen aus der Atmosphäre enthalten. Diese verschwanden bei Anwendung der experimentellen Phase (siehe dazu auch Kapitel 2.2.4). Dies unterstreicht die Notwendigkeit, für die Phase $\phi'(\sigma)$ eine aus Schwarzkörpermessungen bestimmte Funktion zu verwenden.

Eine Phasenfunktion, die nach der in diesem Kapitel beschriebenen Art berechnet wurde, wird im folgenden als 'differentielle Phase' bezeichnet.

2.2.3.3 Phasenbestimmung in der Ozonbande

Diese Methode zur Phasenbestimmung beruht auf der gleichen Näherung wie Gleichung (2.17), d.h. in Spektralbereichen hoher externer Strahldichte nähert sich die Phase $\phi(\sigma)$ der Phase $\phi_r(\sigma)$ an. Im langwelligen Spektralbereich von MIPAS-FT (750 - 1250 cm^{-1}) liegt das Intervall höchster Strahldichte in der Ozonbande zwischen 1000 cm^{-1} und 1080 cm^{-1} . Wie schon in Abbildung 2.8 zu sehen war, verläuft die Phase im Intervall der O_3 -Bande wesentlich stetiger als in den Bereichen niedrigerer Strahldichte. Zur Phasenbestimmung geht man wieder von einer vorgegebenen Phasenfunktion $\phi'(\sigma)$ (z.B. durch Schwarzkörpermessungen) aus und paßt die Parameter a und b aus (2.20) so an, daß im Bereich der Ozonbande eine optimale Übereinstimmung zwischen $\phi'(\sigma)$ und der Phasenfunktion $\phi(\sigma)$ des Meßspektrums besteht. Ein Beispiel einer derart bestimmten 'Ozonphase', wie sie im folgenden genannt wird, gibt Abbildung 2.15. Man erkennt, daß die Abweichung von der differentiellen Phase in weit von der Ozonbande entfernten Bereichen am größten ist. Der resultierende Fehler wird in Abschnitt 2.2.4 besprochen.

Die hier beschriebene Vorgehensweise benötigt keine 2-seitige Interferogrammaufnahme, da spektral hochaufgelöste Information nicht verwendet wird. Sie ähnelt der Phasenbestimmung, die normalerweise bei Fourierspektrometern Verwendung findet. Da dort Gleichung (2.14) gilt, kann die Phase $\phi(\sigma)$ direkt zur Korrektur übernommen werden.

2.2.4 Vergleich der Methoden

In diesem Abschnitt sollen die drei aufgeführten Methoden bezüglich ihrer Brauchbarkeit für die Phasenkorrektur der im Winter 1991/92 und 1992/93 mit MIPAS-FT gemessenen Interferogramme verglichen werden. Es wird sich zeigen, daß die Methode der differentiellen Phase die besten Ergebnisse liefert. Dies setzt voraus, daß die Interferogramme zweiseitig (bzw. 1 1/2-seitig, siehe Kapitel 2.2.5) aufgenommen werden, wie es in den beiden Wintern fast immer der Fall war. Lediglich in der zweiten Kampagne 1991/92 wurden Interferogramme noch einseitig gemessen.

Als Beispiel soll hier die Messung vom 6.12.1993, 12:21 GMT dienen. Deren Betragsspektrum und Phase waren schon in Abbildung 2.8 und 2.9 abgebildet. Diese Atmosphärenmessung wurde kurze Zeit nach einer Schwarzkörpermessung durchgeführt. Die Phasenfunktion aus dieser Kalibrierung wurde als Startwert $\phi'(\sigma)$ für die Ausgleichsrechnungen, die in Kapitel 2.2.3.2 und 2.2.3.3 beschrieben wurden, verwendet.

Die Methode aus Kapitel 2.2.3.1 konnte nicht direkt angewandt werden, da die Auflösung des Geräts zwischen der Schwarzkörper- und der Atmosphärenmessung verändert wurde. Dies führte zu einer Verschiebung des Anfangspunkts der mathematischen Filterung bezüglich ZPD und daher zu einem linearen Phasenfehler zwischen beiden Messungen. Dieser Phasenfehler wurde durch eine Drehung der Schwarzkörperphase um einen Winkel, der einem ganzzahligen Vielfachen der He-Ne-Laserwellenlänge entsprach, bereinigt.

Abbildung 2.15 zeigt das Phasenspektrum der drei Korrekturphasen zusammen mit dem Phasenverlauf des Atmosphärenspektrums.

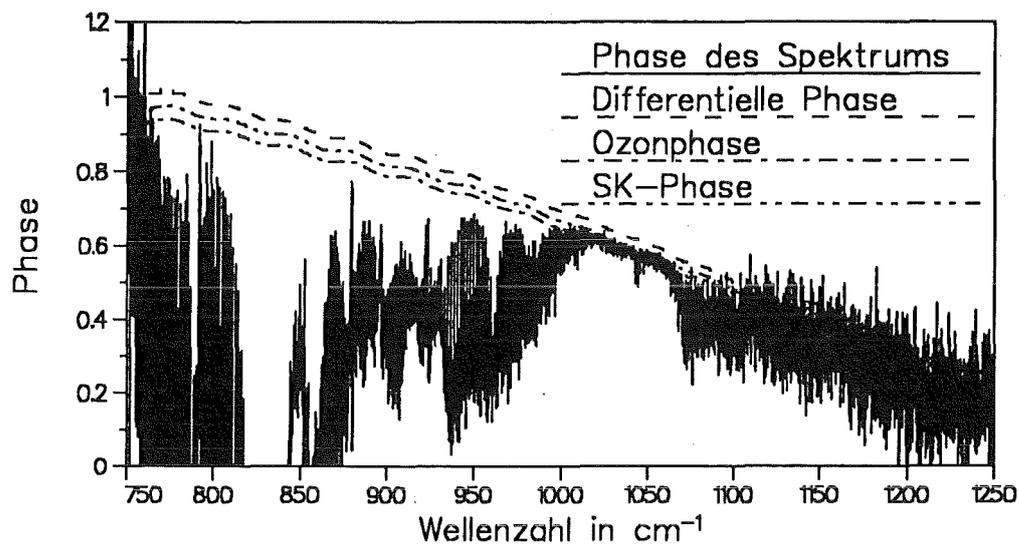


Abb. 2.15 Die Phase $\phi(\sigma)$ des Spektrums vom 6.12.92, 12:21 GMT, und die drei nach unterschiedlichen Methoden berechneten Korrekturphasen: Die 'Differentielle Phase' nach Kapitel 2.2.3.2, die 'Ozonphase' nach Kapitel 2.2.3.3 und die 'Schwarzkörperphase' nach Kapitel 2.2.3.1.

Mit jeder dieser drei Phasenfunktionen wurde das Atmosphärenspektrum mittels einer Drehung im Spektralraum phasenkorrigiert. Man erhält dadurch einen Imaginärteil $S_i(\sigma)$, der keine atmosphärischen Signaturen mehr enthalten dürfte. Der Realteil setzt sich zusammen aus der Atmosphärenstrahlung und der reellen Eigenstrahlung. In Abbildung 2.16 und 2.17 sind Real- und Imaginärteil, die sich aufgrund der verschiedenen Methoden zur Phasenkorrektur ergeben, im Vergleich dargestellt.

Die Differenz der Realteile zeigt, daß zu niedrigeren Wellenzahlen hin Unterschiede auftreten. Dabei weist das Spektrum, welches mittels der Ozonphase korrigiert wurde, die größten Abweichungen auf. Wie der Ausschnitt zeigt, betragen diese bis zu 2% der Linienhöhe. Eine Beurteilung, welche Korrekturmethode zu den besten Ergebnissen führt, kann deutlicher bei Betrachtung des resultierenden Imaginärteils vorgenommen werden. Abbildung 2.17 zeigt, daß der Imaginärteil bei den Methoden der Ozon- bzw. Schwarzkörperphase im Vergleich zur differentiellen Phase noch deutlich sichtbare Atmosphärenstrukturen besitzt. Diese atmosphärischen Linien finden sich besonders nach der Ozonkorrektur in großer Entfernung der $9.6 \mu\text{m}$ Ozonbande, wo die Funktion nicht mehr gut bestimmt ist.

Da die Methode der differentiellen Phase nach obigen Untersuchungen die besten Ergebnisse lieferte, wurde sie zur Korrektur aller zweiseitig aufgenommenen Interferogramme aus den Wintern 1992/93 verwendet. Beispiele zur Phasenkorrektur 1- (bzw. 1 1/2)- seitiger Interferogramme werden im folgenden Kapitel aufgeführt.

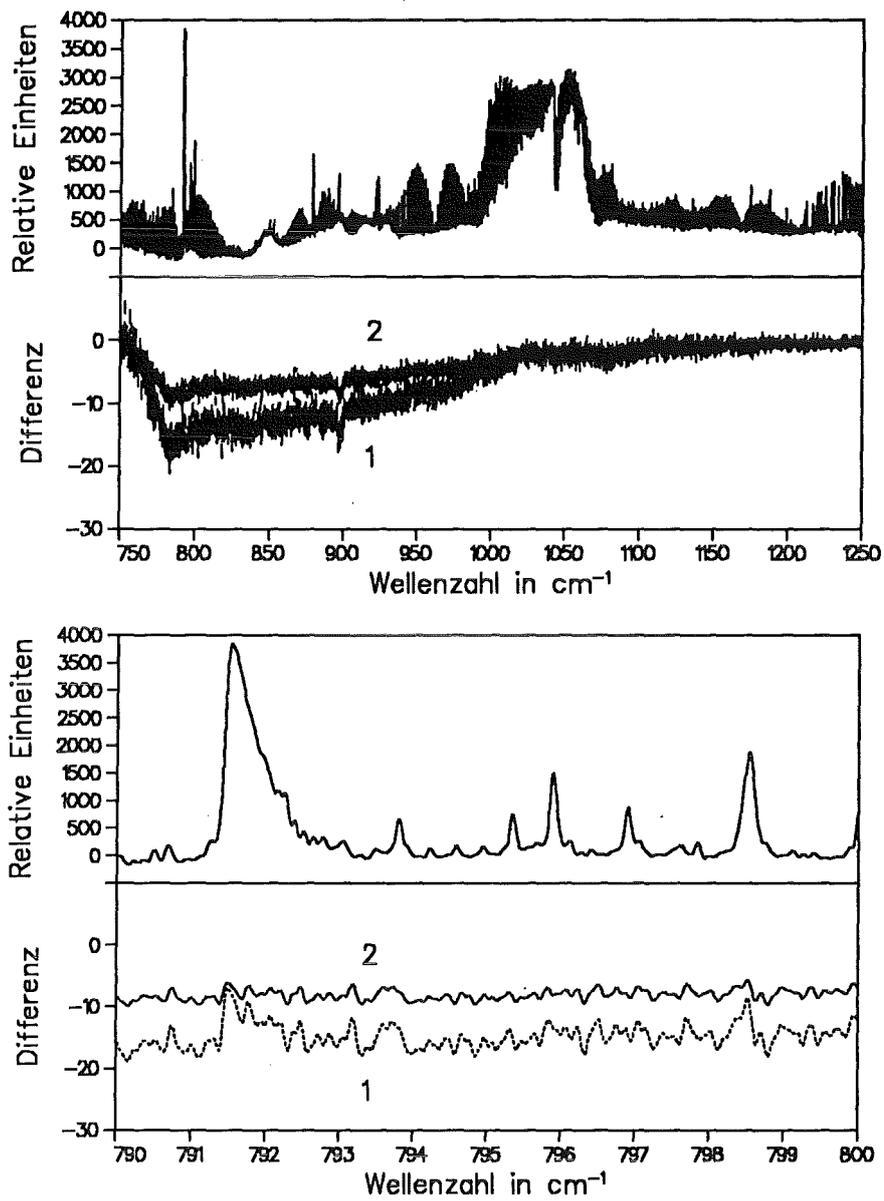


Abb. 2.16 Realteil des mittels der differentiellen Phase korrigierten Spektrums und die Differenzen zur Korrektur mittels 'Ozonphase' (1) und 'Schwarzkörperphase' (2).

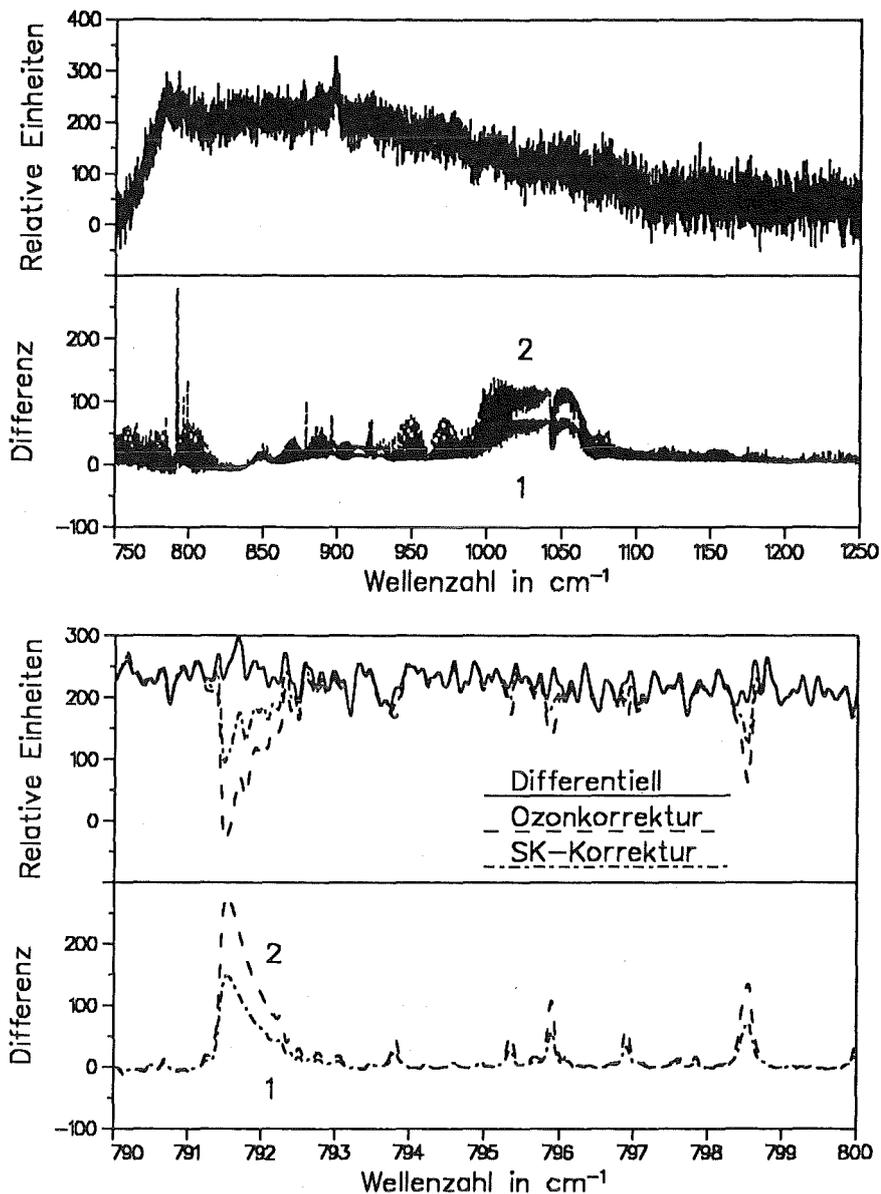


Abb. 2.17 Imaginärteil des mittels der differentiellen Phase korrigierten Spektrums und die Differenzen zur Korrektur mittels 'Ozonphase' (1) und 'Schwarzkörperphase' (2).

2.2.5 Korrektur 1- und 1 1/2-seitiger Interferogramme

Zu Beginn dieses Abschnitts soll erläutert werden, welche Probleme die Phasenkorrektur nach *Forman (1966)* bei Vorhandensein eines rein imaginären Anteils im Spektrum mit sich bringt. Es wird ein einfacher Ansatz zur Umgehung der Schwierigkeiten aufgezeigt und danach anhand zweier Beispiele die praktische Anwendung des Verfahrens dargestellt.

Als 'einseitig' wird im folgenden ein Interferogramm bezeichnet, das auf einer Seite von ZPD mit hoher und auf der anderen mit sehr geringer (0.1-0.01 cm) maximaler Wegdifferenz aufgezeichnet wurde. '1 1/2-seitig' heißt ein Interferogramm, das auf beiden Seiten zwar mit hoher, aber unterschiedlicher Wegdifferenz vorliegt.

Nach Gleichung 2.13 wird bei der Phasenkorrektur nach *Forman* das asymmetrische, einseitige Interferogramm mit der Fouriertransformierten von $e^{-i\phi(\sigma)}$ gefaltet, um ein symmetrisches Interferogramm zu erhalten. $\phi(\sigma)$ wird dabei aus dem kurzen zweiseitigen Interfe-

rogramm bestimmt. Nach der Faltung führt man eine Cosinustransformation aus. Dies ist gleichbedeutend mit der Spiegelung des langen IFG-Zweiges an der y-Achse (der kürzere Teil wird dabei nicht mehr berücksichtigt) und nachfolgender komplexer Fouriertransformation (siehe Abbildung 2.18). Da durch die Spiegelung das Interferogramm symmetrisiert wurde, ist das resultierende Spektrum reell.

Wie in Kapitel 2.2.2 gezeigt wurde, besitzen Spektren, die mit MIPAS-FT gemessen wurden, auch imaginäre Anteile ($S_i(\sigma)$), die mit der beschriebenen Methode - Bestimmung von $\phi(\sigma)$ und Symmetrisierung - nicht korrigiert werden können. Dieses Problem kann dadurch gelöst werden, daß zur Korrektur die Phase $\phi_r(\sigma)$ verwendet wird. Nach der Faltung mit $FT(e^{-i\phi_r(\sigma)})$ ist der kurze zweiseitige Teil des Interferogramms wegen des imaginären Anteils des Spektrums nicht symmetrisch und darf auch nicht durch Spiegeln an der y-Achse symmetrisiert werden. Vielmehr wird nur der über das kurze zweiseitige Interferogramm hinausgehende Teil gespiegelt (siehe Abbildung 2.19). Das durch komplexe Transformation entstehende Spektrum besitzt einen Imaginärteil mit der spektralen Auflösung, die sich aus der Länge des 2-seitigen Interferogramms ergibt. Nur die höherfrequenten Anteile des Spektrums sind infolge der Symmetrisierung der längeren IFG-Hälfte rein reell. Die kleinere Auflösung des Imaginärteils reicht zur Beschreibung von $S_i(\sigma)$ aus, da darin keine spektral hochaufgelösten Strukturen vorkommen (*Weddigen, 1993*).

Diese Vorgehensweise hat den zusätzlichen Vorteil, daß Rauschen aus dem Imaginärteil nicht durch die Spiegelung an der y-Achse dem Realteil des Spektrums überlagert wird.

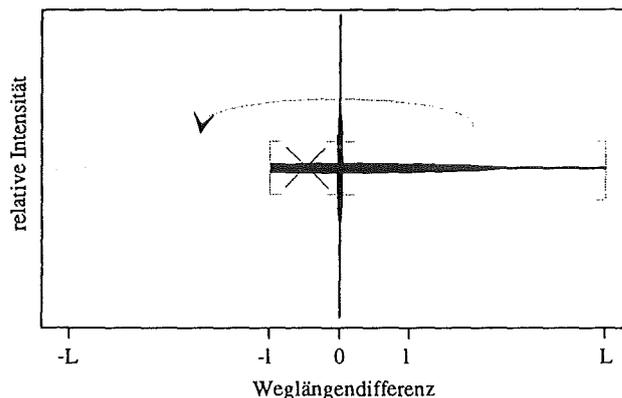


Abb. 2.18 Spiegelung des IFG-Zweiges $[0, L]$ bei der Phasenkorrektur nach *Forman (1966)*. Der kurze einseitige IFG-Zweig $[-1, 0]$ wird hierbei nicht berücksichtigt.

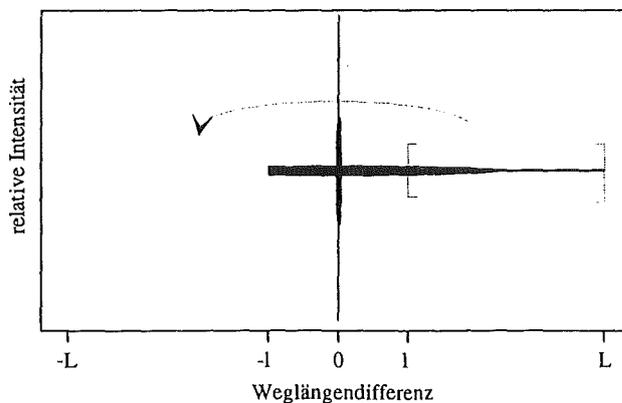


Abb. 2.19 Modifizierte Phasenkorrektur bei Vorhandensein eines rein imaginären spektralen Anteils. Spiegelung des längeren Interferogrammtails $[1, L]$ bei Erhaltung des 2-seitigen kurzen Interferogramms $[-1, 1]$.

2.2.5.1 1-seitige Interferogramme

In der zweiten Meßkampagne des Winters 1991/92 wurden einseitige Interferogramme aufgenommen. Ein Beispiel der Phasenkorrektur einer solchen Messung vom 12.1.1992, 12:06 GMT soll hier beschrieben werden. Das Interferogramm wurde mit einem Hub von $-0.063/+5.058$ cm, entsprechend einer apodisierten Auflösung von $14.1/0.175$ cm^{-1} , aufgenommen.

Es besteht nun das Problem, die Phase $\phi(\sigma)$ aus dem kurzen, 2-seitigen Interferogrammteil zu bestimmen. Die Methode der differentiellen Phase (Kapitel 2.2.3.2) kann hierzu nicht verwendet werden, da spektral hochaufgelöste Information fehlt. Man muß also auf die Phase einer naheliegenden Schwarzkörpermessung (2.2.3.1) oder auf die Ozonphase (2.2.3.3) zurückgreifen. Letzteres ist möglich, da die $9.6 \mu\text{m}$ Ozonbande eine breite Struktur darstellt, die auch in einem niedrigaufgelösten Phasenspektrum sichtbar ist (Abbildung 2.20).

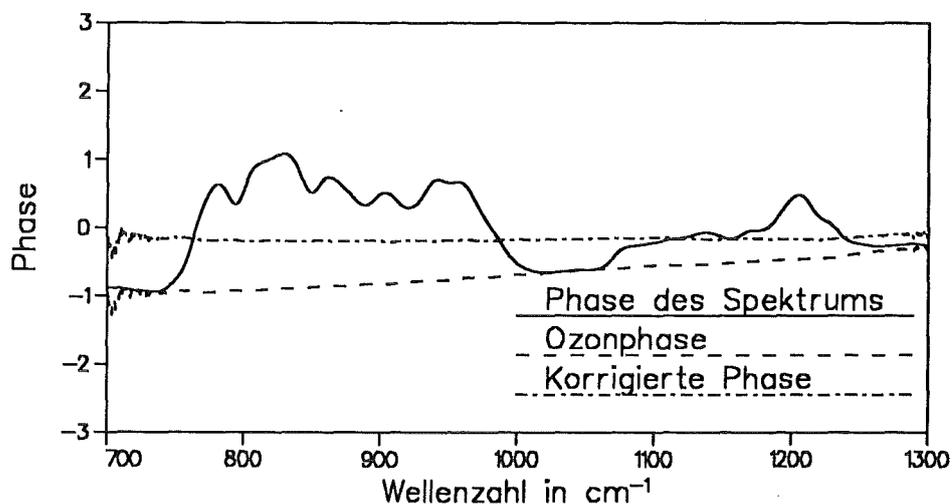


Abb. 2.20 Phase der einseitigen Messung von 12.1.92, 12:06 GMT, die im Ozonbereich angepaßte Korrekturphase und die mittels Vorwärtsrechnungen korrigierte Phasenfunktion.

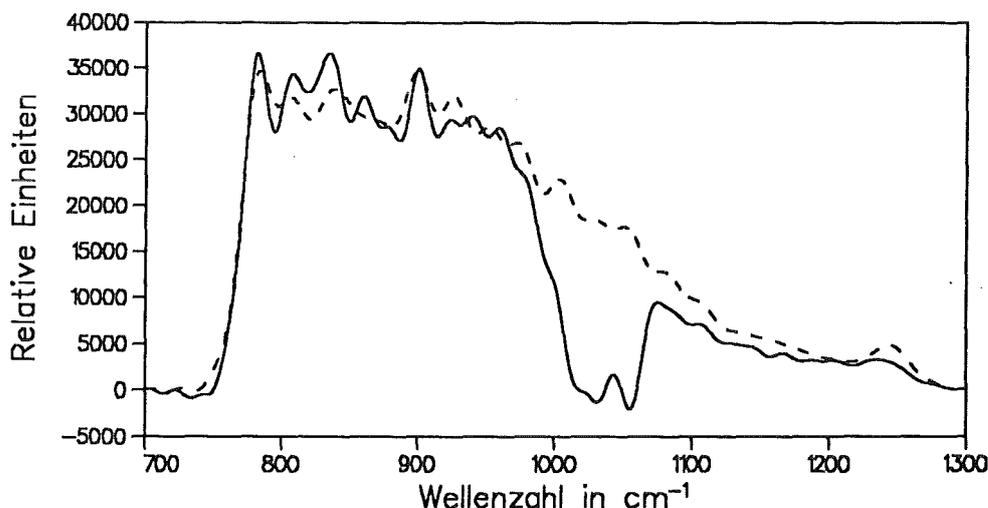


Abb. 2.21 Imaginärteile nach Korrektur mittels der Ozonphase (durchgezogen) und mittels der korrigierten Phase (gestrichelt).

Abbildung 2.20 zeigt die Phase des kurzen, 2-seitigen Interferogramms zusammen mit der im Ozonbereich angepaßten Phasenfunktion und einer weiteren Phase, deren Herleitung unten näher beschrieben wird. Der niedrigaufgelöste Imaginärteil des Spektrums nach der Korrektur mittels der Ozonphase ist in Abbildung 2.21 als durchgezogene Linie zu sehen. Die Struktur im Ozonbereich läßt vermuten, daß die Korrektur nicht optimal verlaufen ist.

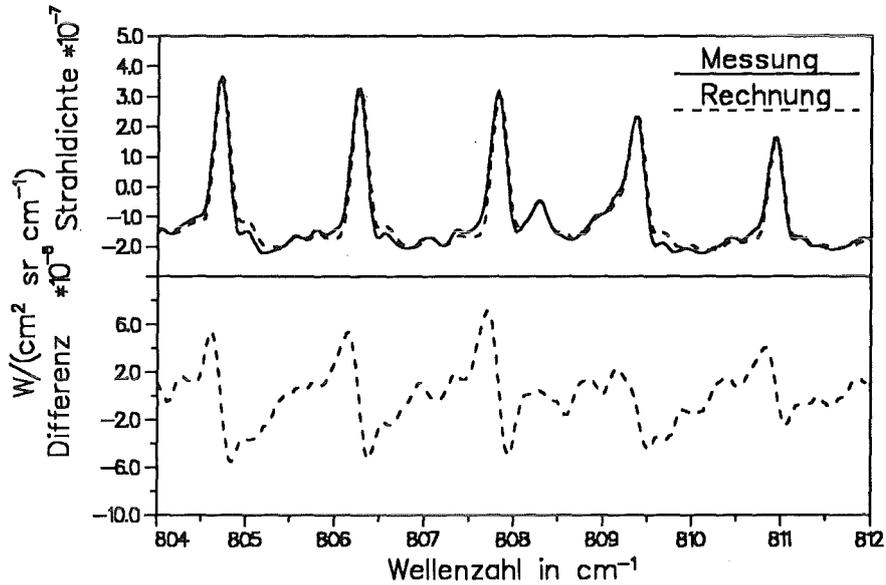


Abb. 2.22 Vergleich des anhand der Ozonphase korrigierten Spektrums mit der Rechnung in einem Bereich mit CO₂-Linien. Die Asymmetrie der Linien aufgrund der fehlerhaften Phasenkorrektur ist im Residuum deutlich zu erkennen.

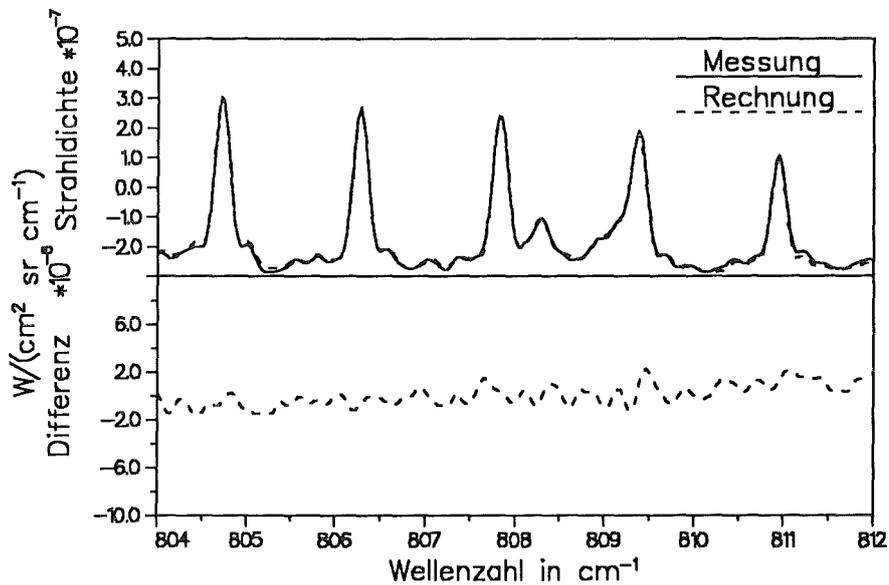


Abb. 2.23 Vergleich zwischen Rechnung und Messung nach einer weiteren Variation der Parameter a und b aus Gleichung (2.20).

Der Realteil wurde mit einem theoretisch berechneten Spektrum verglichen (Abbildung 2.22). Das Residuum zeigt deutliche Asymmetrien in den Spektrallinien, die auf eine fehlerhafte Phasenkorrektur zurückzuführen sind. Um die Linienform zu verbessern, wurden die

Parameter a und b in Gleichung (2.20) solange variiert, bis kaum noch Asymmetrien vorhanden waren (Abbildung 2.23). Auch die Struktur der Ozonbande im Imaginärteil war dann verschwunden (Abbildung 2.21, gestrichelte Linie).

Auf diese Art war es möglich, alle einseitigen Spektren der zweiten Kampagne im Januar 1991/92 zu korrigieren.

2.2.5.2 1 1/2-seitige Interferogramme

Das Beispiel im vorigen Kapitel hat die bei der Verwendung der Ozonphase als Korrektur auftretende Problematik verdeutlicht. Die Schwierigkeit bei der Phasenkorrektur einseitiger Interferogramme liegt demnach in der korrekten Bestimmung der Phase $\phi_s(\sigma)$. Um die Methode der differentiellen Phasenbestimmung anwenden zu können, muß spektral hochaufgelöste Phaseninformation vorhanden sein. Dies ist bei der 1 1/2-seitigen IFG-Aufnahme der Fall. Die Möglichkeit einer solchen Betriebsart des Interferometers war im Winter 1992/93 gegeben. Am 5.2.1993 wurden mit dieser Option Interferogramme mit $-11.2/+18.4$ cm maximaler Wegdifferenz gemessen. Dies entspricht einer apodisierten Auflösung von $0.079/0.048$ cm^{-1} . Aus dem zweiseitigen Interferogrammteil konnte die differentielle Phase bestimmt und damit unter Anwendung der in Kapitel 2.2.5 beschriebenen Methode das gesamte Interferogramm korrigiert werden. Zum Vergleich wurde mit dem 2-seitigen ($-11.2/+11.2$ cm) und dem höher aufgelösten 1 1/2-seitigen Spektrum eine vollständige Auswertung durchgeführt. Die Ergebnisse in den Säulengehalten der Spurengase unterschieden sich dabei um durchschnittlich weniger als 1%. Abbildung 2.24 zeigt den Vergleich zwischen dem niedrig- und dem hochaufgelösten Spektrum im Bereich des ν_4 Q-Zweiges von ClONO_2 .

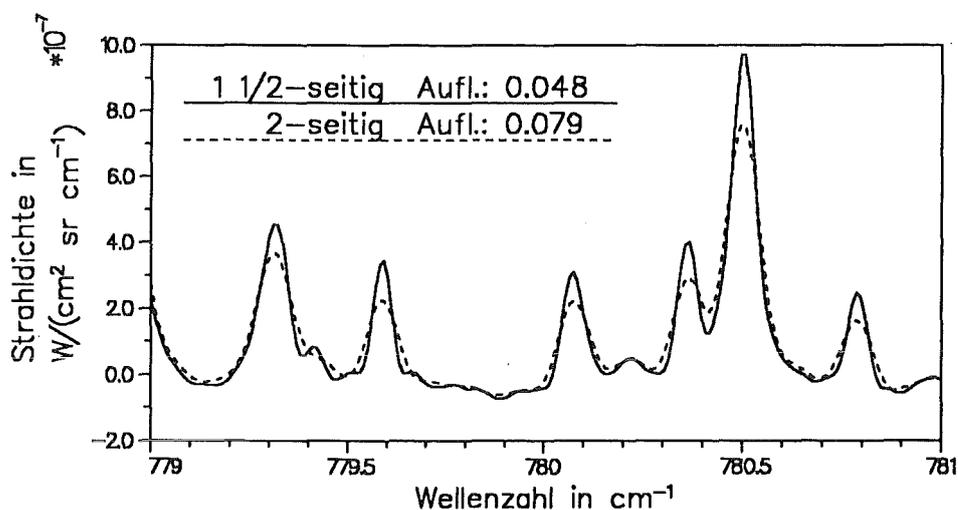


Abb. 2.24 Vergleich zwischen zwei Spektren, die aus einem 2-seitigen und einem 1 1/2-seitigen IFG berechnet wurden. Die Messung fand am 5.2.93 um 05:53 GMT statt.

Das letzte Beispiel zeigt, daß eine 1 1/2-seitige Interferogrammaufnahme zur Erhöhung der Auflösung prinzipiell möglich ist. Dies führt nicht zu einem Verlust an Meßzeit und einer damit verbundenen Erhöhung des Rauschens, da die kürzere Seite des Interferogramms bei der oben beschriebenen Methode mitberücksichtigt wird.

2.3 Kalibrierung

Nach der Fouriertransformation und Phasenkorrektur der Interferogramme liegen die Atmosphärenspektren in relativen Einheiten vor. Da die gemessenen Spektren zur Herleitung von Säulengehalten mit theoretisch berechneten Spektren der Atmosphäre verglichen werden, müssen erstere in absolute Strahldichtespektren überführt werden. Dieser Schritt in der Auswertekette wird als Kalibrierung bezeichnet.

Im ersten Abschnitt wird der allgemeine Formalismus der Kalibrierung dargestellt. Es schließt sich eine Beschreibung der unterschiedlichen Verfahren zur Kalibrierung in beiden Winterkampagnen 1991/92 und 1992/93 und einer neu entwickelten Korrekturmethode an. Eine Abschätzung der Fehler wird in Kapitel 2.3.5 durchgeführt.

2.3.1 Grundlagen

Im folgenden wird angenommen, daß nach der Drehung um die Phase $\phi_r(\sigma)$ (Kapitel 2.2.2) die gesamte Strahlung aus der Atmosphäre im Realteil $S(\sigma)$ des unkalibrierten Spektrums enthalten ist. Dann gilt für jede Wellenzahl:

$$S(\sigma) = r(\sigma)(L(\sigma) + L_0(\sigma)) \quad (2.22)$$

Hierbei sind $L(\sigma)$ die von außen kommende Strahlung und $L_0(\sigma)$ die Eigenstrahlung des Geräts in absoluten Strahldichteinheiten. $r(\sigma)$ ist die Gerätefunktion.

Entsprechend der Nomenklatur aus Kapitel 2.2.2 ergibt sich die von außen kommende Strahlung in relativen Einheiten zu:

$$S_A(\sigma) = r(\sigma)L(\sigma) \quad (2.23)$$

und die Eigenstrahlung zu:

$$S_0(\sigma) = S_b(\sigma) - S_u(\sigma) = r(\sigma)L_0(\sigma) \quad (2.24)$$

Um $L(\sigma)$ zu berechnen, ist es notwendig, $r(\sigma)$ und $L_0(\sigma)$ zu bestimmen. Dies erfolgt durch Schwarzkörpermessungen unter unterschiedlichen Temperaturen (T_w und T_k). Die Strahldichtespektren des Schwarzkörpers ($B_w(\sigma)$ und $B_k(\sigma)$) sind mittels der Planck-Funktion einfach zu berechnen. Im folgenden wird der Emissionsgrad des Schwarzkörpers mit 1 angenommen. Der Fall ungleich 1 wird in Kapitel 2.3.5.2 diskutiert.

Die Instrumentenfunktion $r(\sigma)$ lautet dann:

$$r(\sigma) = \frac{S_w(\sigma) - S_k(\sigma)}{B_w(\sigma) - B_k(\sigma)} \quad (2.25)$$

und die Eigenstrahlung (in relativen Einheiten):

$$S_0(\sigma) = r(\sigma)L_0(\sigma) = S_w(\sigma) - r(\sigma)B_w(\sigma) = S_k(\sigma) - r(\sigma)B_k(\sigma) \quad (2.26)$$

$S_w(\sigma)$ und $S_k(\sigma)$ sind hierbei die mittels der Phase aus Gleichung (2.15) korrigierten Spektren des Schwarzkörpers auf höherer bzw. niedrigerer Temperatur in relativen Einheiten.

2.3.2 Kalibrierung 1991/92

In der Winterkampagne 1991/92 konnte während der Meßflüge ein sich auf Außentemperatur befindlicher Schwarzkörper vor das Infrarotfenster im Flugzeugrumpf geklappt werden. Außerdem wurde nach fast jedem Flug eine Kalibrierung in der Flugzeughalle durchgeführt. Hierbei wurde ein als zylindrische Kavität ausgebildeter externer Schwarzkörper vor dem Infrarotfenster angebracht. Dieser Schwarzkörper konnte bis -75°C gekühlt und thermostatisiert werden.

Die einzelne Schwarzkörpermessung während des Flugs reicht nicht aus, um eine vollständige Kalibrierung durchzuführen. Bei Emissionsmessungen von Stratosphärenballons aus kann als zweiter Kalibrierpunkt eine 'Weltraummessung' mit sehr hohem Elevationswinkel verwendet werden. Eine solche Messung ergibt direkt den Geräteuntergrund $S_0(\sigma)$, da die Atmosphäre über dem Ballon keine wesentlichen Strahlungsbeiträge mehr liefert. Im Gegensatz dazu kann man die atmosphärische Strahlung von der Flughöhe der Transall aus auch bei großen Elevationswinkeln nicht vernachlässigen. Eine Messung mit hohem Elevationswinkel kommt daher als zweiter Kalibrierpunkt nicht in Frage. Aus diesem Grund mußte die Bodenkalisierung zur Bestimmung von $r(\sigma)$ und $S_0(\sigma)$ herangezogen werden. Diese Vorgehensweise hatte den Nachteil, daß damit die Gerätefunktion erst lange Zeit nach der Atmosphärenmessung bestimmt wurde. Auch mußte zur Durchführung einer Bodenkalisierung das Gerät oft neu justiert werden. Daher konnte keinesfalls von einer gleichbleibenden Justierung während eines Flugs und am Boden ausgegangen werden.

Um eine Kalibrierung und damit eine Auswertung der MIPAS-FT Messungen überhaupt zu ermöglichen, mußte ein Weg gefunden werden, die über eine Schwarzkörpermessung am Boden kalibrierten Spektren im nachhinein zu korrigieren. Damit stellte sich die Frage, wie die Gerätefunktion des Interferometers sich bei einer Neujustierung verändert. Diese erfolgt durch Einstellen eines der Retroreflektoren auf ein optimales Signal des He-Ne-Lasers. Die dazu notwendige Verkipfung des Spiegels wird über einen Schrittmotor erreicht. Dabei entspricht ein Schritt einer Winkeländerung um $0.87''$. Der Fall einer konstanten Spiegelverkipfung wird beispielsweise von *Chamberlain (1979)* für einen kreisförmigen Strahlquerschnitt mit dem Durchmesser $2R$ behandelt. Eine Dejustierung des Spiegels um den Winkel e bewirkt demnach eine Multiplikation des ungestörten Spektrums mit der Funktion:

$$D(\sigma) = \frac{J_1(4\pi\sigma Re)}{4\pi\sigma Re} \quad (2.27)$$

$J_1(x)$ ist die Besselfunktion erster Gattung und erster Ordnung. Dieser Faktor ist in Abbildung 2.25 für verschiedene Werte der Spiegelverkipfung abhängig von der Wellenzahl dargestellt.

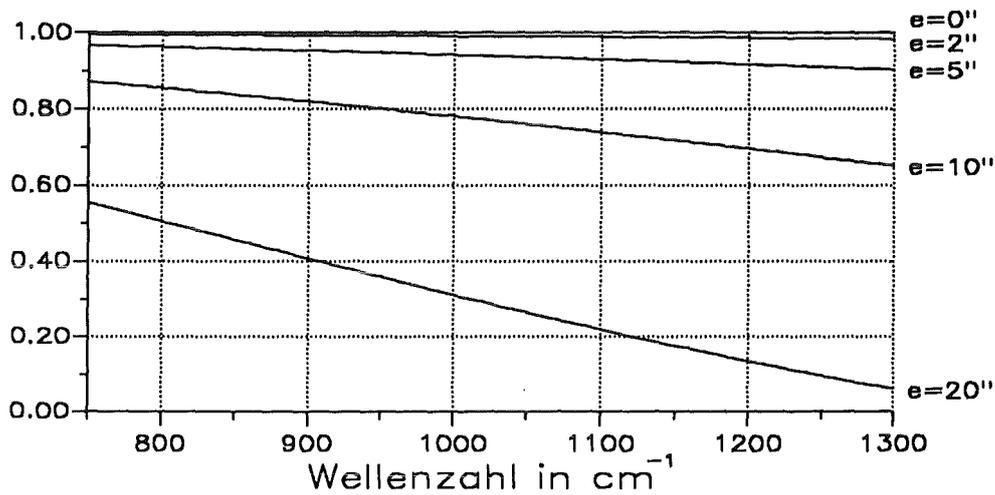


Abb. 2.25 Die Störfunktion $D(\sigma)$ in Abhängigkeit von der Wellenzahl für verschiedene Spiegeldejustierungen e . ($2R = 4.5 \text{ cm}$)

Betrachtet man zwei Kalibriermessungen mit unterschiedlicher Gerätejustierung (e_1 und e_2), so lautet der Quotient der Instrumentenfunktionen ($r_1(\sigma)$ und $r_2(\sigma)$):

$$\frac{r_1(\sigma)}{r_2(\sigma)} = \frac{D_1(\sigma)}{D_2(\sigma)} = \frac{J_1(4\pi\sigma R e_1) e_2}{J_1(4\pi\sigma R e_2) e_1} \quad (2.28)$$

Dieser Quotient wurde für unterschiedliche Werte von e_1 und e_2 berechnet und ist in Abbildung 2.26 aufgetragen. Man erkennt, daß eine Differenz zwischen den beiden Winkeln von bis zu ca. 10 Bogensekunden eine in erster Näherung lineare Änderung der Gerätefunktion mit der Wellenzahl bewirkt:

$$\frac{r_1(\sigma)}{r_2(\sigma)} \approx a + b\sigma \quad (2.29)$$

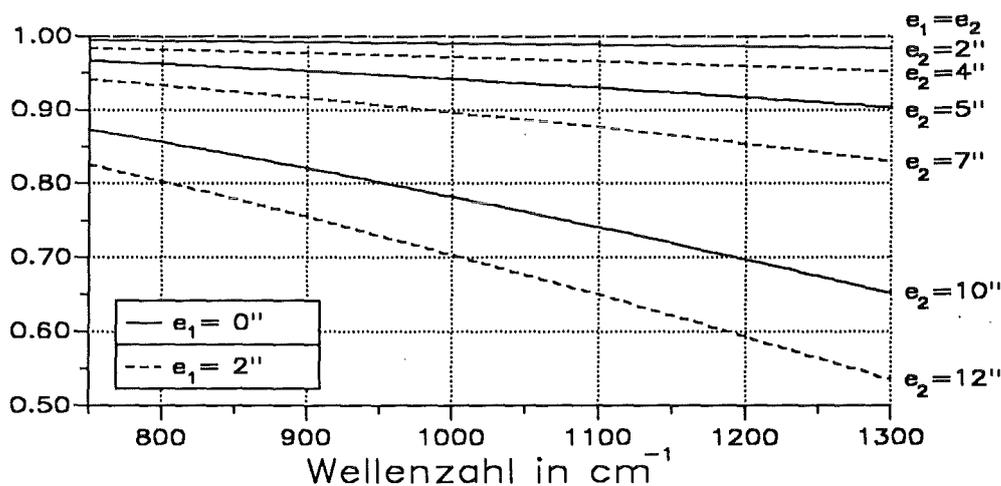


Abb. 2.26 Die Funktion $D_1(\sigma)/D_2(\sigma)$ für unterschiedliche Spiegelverkippen e_1 und e_2 . ($2R = 4.5 \text{ cm}$)

Um zu überprüfen, ob sich dieses Ergebnis auch in der Realität zeigt, wurde der Quotient aus den Gerätefunktionen, die bei verschiedenen Eichmessungen bestimmt wurden, gebildet. Abbildung 2.27 zeigt im oberen Teil die Instrumentenfunktionen zweier Bodenkali- brierungen und im unteren Teil deren Quotienten. Man erkennt hier ebenfalls eine lineare Ab- hängigkeit.

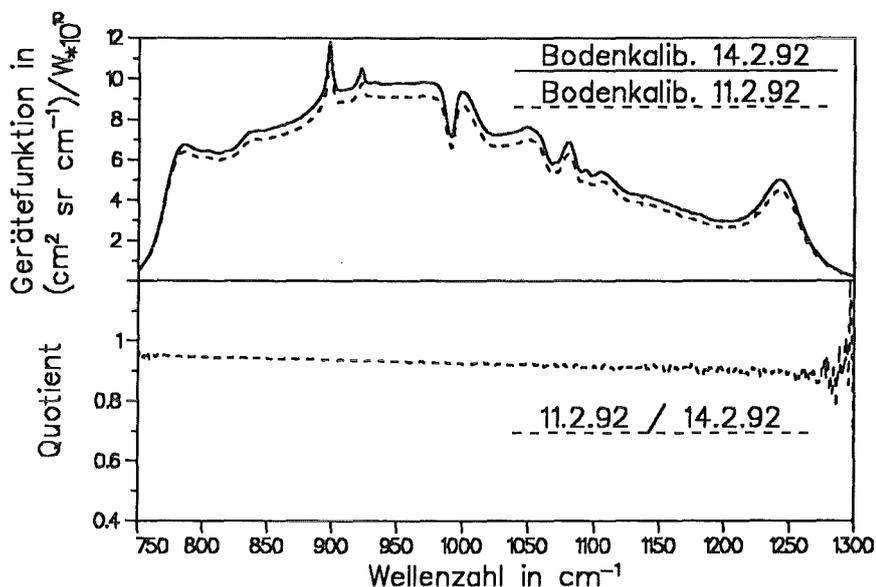


Abb. 2.27 Instrumentenfunktionen und Quotient zweier Bodenkali- brierungen im Februar 1992.

Ändert sich $r(\sigma)$ zwischen einer Flugzeugmessung und einer Bodeneichung nun in ähnlicher Weise? Dies konnte im Winter 1992/93 untersucht werden, da dort eine 2-Punkt-Eichung während des Flugs möglich war (siehe dazu Kapitel 2.3.3).

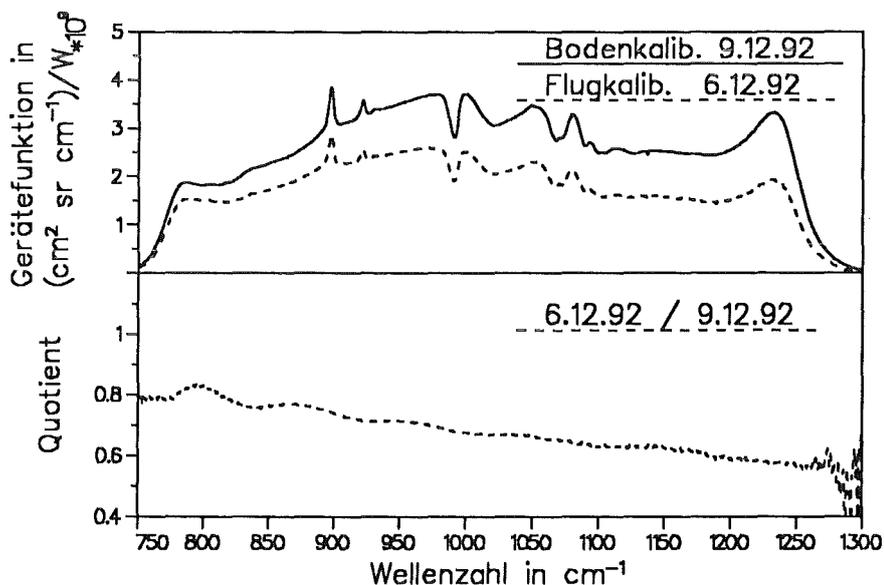


Abb. 2.28 Instrumentenfunktionen und Quotient einer Flug- und einer Bodenkali- brierung vom Dezember 1992.

In Abbildung 2.28 sind die Gerätefunktionen einer Flug- und einer Bodenkalibrierung zu sehen. Auch hier erkennt man wieder eine in erster Näherung lineare Abhängigkeit. (Fehler durch Nichtlinearitäten werden in Kapitel 2.3.5.3 untersucht.)

Diese Beobachtung eröffnet die Möglichkeit, eine nachträgliche Korrektur der mittels Schwarzkörpermessungen kalibrierten Atmosphärenspektren durchzuführen. Die dazu verwendete Methode wird in Abschnitt 2.3.4 näher besprochen.

Ein zusätzliches Problem tritt bei der Bestimmung der Eigenstrahlung $S_0(\sigma)$ auf. Abbildung 2.29 zeigt das Spektrum der Eigenstrahlung $S_0(\sigma)$, wie es aus einer Schwarzkörpermessung am Boden bestimmt wurde (gestrichelt), zusammen mit einem im Flug gemessenen Atmosphärenspektrum. Es ist deutlich zu erkennen, daß der Geräteuntergrund im Flug über große Bereiche des Spektrums kleiner ist als am Boden. Dieser Unterschied kann zunächst dadurch zustande kommen, daß, verglichen mit Flugbedingungen, bestimmte optische Elemente des Geräts bei der Kalibrierung am Boden andere Temperaturen aufweisen. Dies ist vor allem beim Infrarotfenster der Fall, das am Boden ca. 40-50°C wärmer ist als im Flug. Zum anderen kann Umgebungsstrahlung in das Gerät eingespiegelt werden, wenn der Emissionsgrad des Schwarzkörpers kleiner als 1 ist. Dieser Fehler wird zusammen mit dem durch eine ungenaue Temperaturbestimmung hervorgerufenen Fehler in Kapitel 2.3.5 diskutiert.

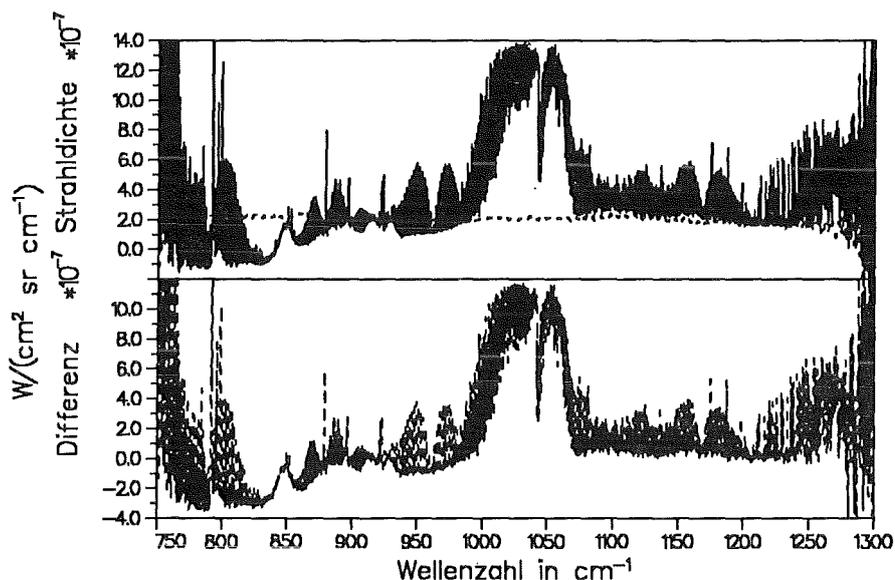


Abb. 2.29 Oben: Kalibriertes Spektrum $S(\sigma)/r(\sigma)$ (durchgezogen) und der Geräteuntergrund $L_0(\sigma)$ aus einer Schwarzkörpermessung am Boden (gestrichelt). Unten: Die Differenz, zeigt, daß $L_0(\sigma)$ in der Kalibrierung vor allem im vorderen Wellenzahlintervall zu groß ist, so daß das resultierende Spektrum negativ wird.

Es zeigt sich, daß es nicht möglich ist, aus Schwarzkörpermessungen am Boden die während des Flugs vorliegende Geräteeigenstrahlung $S_0(\sigma)$ zu bestimmen. Dies hat zur Folge, daß nur eine relative Kalibrierung der Atmosphärenspektren durchgeführt werden kann ($S(\sigma)/r(\sigma)$). Das derart kalibrierte Spektrum setzt sich additiv aus der Strahlung der Atmosphäre und der Eigenstrahlung des Instruments zusammen. Das Spektrum der Eigenstrahlung variiert im Gegensatz zur Strahlung aus der Atmosphäre nur langsam mit der Wellenzahl. Die Ableitung von Säulengehalten aus diesen nicht vollständig kalibrierten Atmo-

sphärenspektren ist trotzdem möglich, indem bei der Ausgleichsrechnung eine additive Strahldichtekonstante, die im folgenden als additiver Untergrund bezeichnet wird, als freier Parameter mit angepaßt wird (Kapitel 3.3.2).

Der Nachteil dieser Vorgehensweise besteht darin, daß ein breiter atmosphärischer Untergrund, wie er beispielsweise durch Hintergrundaerosol hervorgerufen wird, im gemessenen Spektrum nicht erkannt wird. Dies führt zu Fehlern in den Säulengehalten der Spurengase, falls der Untergrund in der Strahlungsübertragungsrechnung nicht berücksichtigt wird. In der Fehlerbetrachtung (Kapitel 4, Anhang I.10) wurde dies näher untersucht.

2.3.3 Kalibrierung 1992/93

Zur Winterkampagne 1992/93 wurde der während des Flugs mitgeführte Schwarzkörper mit einer Peltierkühlung ausgestattet (Piesch, 1993). Dadurch war es möglich, verschiedene Temperaturen am Schwarzkörper einzustellen. Eine Regelung erlaubte, die vorgewählte Temperatur über längere Zeit konstant zu halten. Daher konnten vollständige 2-Punkt-Kalibrierungen während des Flugs durchgeführt werden.

Wie in 2.3.2 schon ausgeführt wurde, verläuft der Quotient der Gerätefunktionen einer Kalibrierung am Boden und im Flug in erster Näherung linear mit der Wellenzahl. Hieraus wurde eine nachträgliche Korrektur der Kalibrierung entwickelt. Hat nun die Kalibrierung während des Flugs eine solche Korrektur überflüssig gemacht?

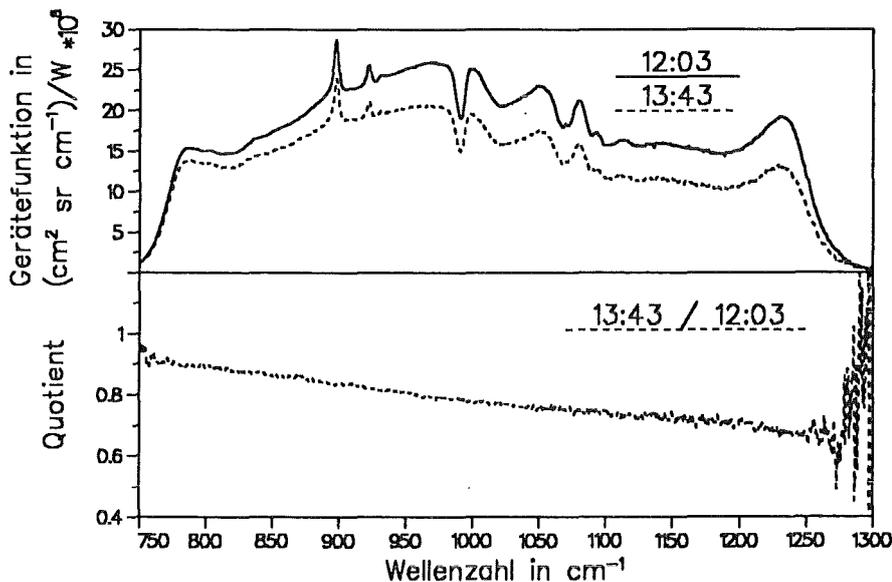


Abb. 2.30 Instrumentenfunktionen zweier Kalibrierungen während eines Flugs am 6.12.92. Das Gerät wurde in der Zwischenzeit nicht neu justiert.

Abbildung 2.30 vergleicht die Gerätefunktionen zweier Schwarzkörpermessungen vom 6.12.1992, die ca. 100 Minuten auseinander liegen. Zwischen diesen Messungen fand keine Justierung des Interferometers statt. Es ist deutlich, daß sich in der Zwischenzeit die Gerätefunktion verändert hat. Bei hohen Wellenzahlen macht dies bis zu 25% aus. Wie in Anhang I.11 gezeigt wird, führt eine Änderung der Instrumentenfunktion von 5% schon zu nicht mehr akzeptablen Fehlern in den abgeleiteten Säulengehalten. Daher wurde auch für

die Auswertung der Messungen des Winters 1992/93 die nachträgliche Korrektur (s.u.) durchgeführt und in der Fehlerbetrachtung berücksichtigt.

Bei der Bestimmung der Eigenstrahlung mittels der Kalibrierungen im Flug traten ähnliche Probleme auf wie bei den Schwarzkörpermessungen am Boden (siehe 2.3.2). Auch hier ist die berechnete Gerätestrahlung wesentlich größer, als es mit Atmosphärenmessungen zu vereinbaren wäre. Ein zu warmes Infrarotfenster fällt bei der Kalibrierung im Flug als Erklärung für diesen Befund aus. Allerdings kann wesentlich mehr Strahlung an der Oberfläche des Schwarzkörpers eingespiegelt werden, da dieser im Gegensatz zum Schwarzkörper am Boden nicht als Kavität ausgebildet ist. Eine grobe Abschätzung dieses Effekts wird in 2.3.5 gegeben.

Für die Auswertung der Messungen des Winters 1992/93 bedeutet dies, daß auch hier mit einem additiven Untergrund (siehe Kapitel 2.3.2) gerechnet werden muß.

2.3.4 CO₂-Korrektur der Kalibrierung

Es seien $r_A(\sigma)$ und $r_S(\sigma)$ die Instrumentenfunktionen während einer Atmosphären- bzw. während einer Schwarzkörpermessung. Setzt man voraus, daß

$$r_S(\sigma) = r_A(\sigma)(a + b\sigma) \quad (2.30)$$

so gilt für die Kalibrierung eines Atmosphärenspektrums $S(\sigma)$ nach Gleichung 2.23:

$$L(\sigma) + L_0(\sigma) = \frac{S(\sigma)}{r_S(\sigma)} (a + b\sigma) \quad (2.31)$$

Zur Bestimmung von a und b müssen bekannte Größen im Atmosphärenspektrum $L(\sigma)$ herangezogen werden. Da die Konzentration von CO₂ in der Atmosphäre gut bekannt ist, können Spektrallinien dieses Gases verwendet werden. Im Spektralbereich von MIPAS-FT befinden sich zwei CO₂-Banden (bei 800 cm⁻¹ und bei 950 cm⁻¹), die ca. 150 cm⁻¹ voneinander entfernt liegen und deshalb als Stützstellen für eine Korrekturfunktion dienen können. Man setzt bei dieser als 'CO₂-Korrektur' bezeichneten Nachkalibrierung des Spektrums das Temperatur-Druck-Profil der Atmosphäre als bekannt voraus (z.B. aus Radiosondendaten) und berechnet in den zwei CO₂-Bereichen CO₂(1) und CO₂(2) die Faktoren $a + b\sigma_{\text{CO}_2(1)}$ und $a + b\sigma_{\text{CO}_2(2)}$. Hieraus können a und b bestimmt und das gesamte Spektrum kann durch die Multiplikation mit $a + b\sigma$ korrigiert werden.

Durch diese lineare Korrektur des Spektrums wird der aus der Variabilität der Gerätefunktion resultierende Fehler, dessen starke Auswirkungen auf die Säulengehalte schon oben angesprochen wurde, vermindert. Die angenommene Gerade ist jedoch nur eine Näherung der wirklichen Änderung der Instrumentenfunktion. Nichtlineare Änderungen werden im nächsten Kapitel diskutiert.

Eine fehlerhafte Annahme des Temperatur-Druck-Profiles der Atmosphäre führt durch die lineare Fortsetzung der in den CO₂-Bereichen berechneten Korrekturfaktoren auf das gesamte Spektrum zu Fehlern in den Säulengehalten der auszuwertenden Gase. Diese Fehlerfortpflanzung muß daher in der Fehlerrechnung (Kapitel 4) berücksichtigt werden.

2.3.5 Fehler in der Kalibrierung

In diesem Abschnitt werden zuerst die Auswirkungen einer falsch angenommenen Temperatur und danach die eines fehlerhaften Emissionsgrads des Schwarzkörpers auf die Gerätefunktion $r(\sigma)$ und den Untergrund $L_0(\sigma)$ diskutiert. Die Genauigkeit der Annahme einer linearen Änderung der Gerätefunktion während des Flugs bzw. zwischen der Flug- und Bodenkalisierung, die als Grundlage für die CO₂-Korrektur dient, wird zum Schluß untersucht.

2.3.5.1 Temperaturfehler

Der relative Fehler $\Delta r(\sigma)/r(\sigma)$ durch die aufgrund einer ungenauen Temperaturmessung mit einem Fehler $\Delta B(\sigma)$ behafteten Planck-Funktion folgt aus 2.25 zu:

$$\frac{\Delta r(\sigma)}{r(\sigma)} = \frac{\sqrt{\Delta B_w(\sigma)^2 + \Delta B_k(\sigma)^2}}{B_w(\sigma) - B_k(\sigma)} \quad (2.32)$$

Der relative Fehler der Eigenstrahlung beträgt:

$$\frac{\Delta S_0(\sigma)}{S_0(\sigma)} = \frac{[S_w(\sigma) - S_k(\sigma)] \sqrt{[B_w(\sigma) \Delta B_k(\sigma)]^2 + [B_k(\sigma) \Delta B_w(\sigma)]^2}}{[B_w(\sigma) S_k(\sigma) - B_k(\sigma) S_w(\sigma)] [B_w(\sigma) - B_k(\sigma)]} \quad (2.33)$$

Nun soll der Fehler in der Temperaturmessung des externen Schwarzkörpers für die Kampagnen 1991/92 und des internen Schwarzkörpers für die Kampagnen 1992/93 abgeschätzt werden. Dabei müssen als wesentliche Punkte berücksichtigt werden: die Genauigkeit der Temperaturmessung, der Temperaturgradient zwischen dem Ort der Temperaturmessung und der strahlenden Oberfläche und die Homogenität der Temperaturverteilung auf der Oberfläche (Piesch, 1993). In Tabelle 2.1 sind diese Fehler aufgeführt.

Schwarzkörper	Fehler im T-Sensor	T-Gradient zur Oberfläche ($T_{real} - T_{mess}$)	T-Inhomogenität der Oberfläche
extern ¹	± 0.27 K	-	-
intern ²	± 0.23 K	+0.2 K ³	±0.2 K

¹ mittlere Schwarzkörpertemperatur: -60°C
² mittlere Schwarzkörpertemperatur: -40°C
³ Wärmeleitfähigkeit des Lacks: 0.18Wm⁻¹K⁻¹, Dicke der Lackschicht: 360 μm, Umgebungstemperatur: 263 K, Temperatur des Schwarzkörpers: 233 K

Tabelle 2.1 Temperaturfehler des externen und internen Schwarzkörpers.

Hieraus ergibt sich eine Unsicherheit in der Temperaturbestimmung für den externen Schwarzkörper von ±0.27 K und für den Flugschwarzkörper von 0.2 K±0.3 K.

Tabelle 2.2 zeigt den resultierenden Fehler in der Gerätefunktion und der Eigenstrahlung.

Schwarzkörper	$\frac{r(\sigma) - r'(\sigma)}{r(\sigma)}$ in %		$\frac{L_0(\sigma) - L'_0(\sigma)}{L_0(\sigma)}$ in %	
	800 cm ⁻¹	1200 cm ⁻¹	800 cm ⁻¹	1200 cm ⁻¹
extern	±1.9	±2.0	±11	±5
intern	-0.3±2.2	-0.4±2.2	-2.3±33	-1.2±19

Tabelle 2.2 Fehler in der Gerätefunktion und der Eigenstrahlung bei externen und internen Schwarzkörpermessungen durch ungenaue Temperaturkenntnis. Symbole ohne Strich sind wahre und gestrichene sind Werte, die mit einem Temperaturfehler behaftet sind.

2.3.5.2 Emissionsgrad der Schwarzkörper

In den bisherigen Betrachtungen wurde ein idealer, wellenzahlunabhängiger Emissionsgrad der Schwarzkörper von $\varepsilon(\sigma) = 1$ angenommen. In der Realität führt ein $\varepsilon(\sigma) < 1$ zu einer verminderten Schwarzkörperstrahlendichte $\varepsilon(\sigma)B(\sigma)$ und zu einer Einspiegelung von externer Strahlung L_{um} über den Schwarzkörper in das Interferometer. $S(\sigma)$ setzt sich also folgendermaßen zusammen:

$$S(\sigma) = r(\sigma)[\varepsilon(\sigma)B(\sigma) + L_0(\sigma) + (1 - \varepsilon(\sigma))L_{um}(\sigma)] \quad (2.34)$$

Die Gerätefunktion ergibt sich bei einer Schwarzkörpermessung (unter der Voraussetzung eines temperaturunabhängigen $\varepsilon(\sigma)$) zu:

$$r(\sigma) = \frac{S_w(\sigma) - S_k(\sigma)}{\varepsilon(\sigma)[B_w(\sigma) - B_k(\sigma)]} = \frac{r^{\varepsilon=1}(\sigma)}{\varepsilon(\sigma)} \quad (2.35)$$

Die Gleichung für die Eigenstrahlung lautet:

$$\begin{aligned} S_0(\sigma) &= r(\sigma)L_0(\sigma) = S_k(\sigma) - r(\sigma)\varepsilon(\sigma)B_k(\sigma) - r(\sigma)(1 - \varepsilon(\sigma))L_{um}(\sigma) \\ &= S_0^{\varepsilon=1}(\sigma) - r(\sigma)(1 - \varepsilon(\sigma))L_{um}(\sigma) \end{aligned} \quad (2.36)$$

Hierbei sind $r^{\varepsilon=1}(\sigma)$ und $S_0^{\varepsilon=1}(\sigma)$ die Gerätefunktion bzw. die Eigenstrahlung bei $\varepsilon(\sigma) = 1$. Berücksichtigt man, daß $\varepsilon(\sigma) < 1$, so vergrößert sich $r(\sigma)$ um den Faktor $\varepsilon(\sigma)^{-1}$, und $L_0(\sigma)$ wird um das additive Glied $(1 - \varepsilon(\sigma))L_{um}(\sigma)$ kleiner. Hat beispielsweise der verwendete Schwarzkörper einen Emissionsgrad von 0.98 und die Umgebung eine Temperatur von 273 K, so wird bei 900 cm⁻¹ eine Strahlendichte von ca. $1.5 \cdot 10^{-7} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ eingespiegelt. Dieser Wert ist vergleichbar mit der Eigenstrahlung des Instruments oder der Strahlendichte von gemessenen atmosphärischen Linien (siehe z.B. Abbildung 2.29).

Im folgenden wird der Emissionsgrad der verwendeten Schwarzkörper abgeschätzt. Im Falle des externen, zylinderförmig ausgebildeten Schwarzkörpers (Piesch, 1993) hängt der Emissionsgrad vom Verhältnis der Hohlraumlänge zum Radius der Eintrittsöffnung ($L/R = 8.02$) und dem Emissionsgrad des verwendeten Lacks ('3M Velvet') ab. Messungen der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) ergaben $\varepsilon(\sigma)$ -Werte des Lacks von 0.75 - 0.85 im Wellenzahlintervall 700 cm⁻¹ - 1200 cm⁻¹. Dies führt zu einem $\varepsilon(\sigma)$ des Hohlraumstrahlers von 0.995 - 0.997. Der im Flug mitgeführte Schwarzkörper ist eine mit dem Lack

'Herberts 1356-H' beschichtete Kupferplatte (Piesch, 1993). Messungen der PTB ergaben für dessen Emissionsgrad annähernd linear ansteigende Werte, von 0.956 bei 833 cm⁻¹ bis auf 0.973 bei 1250 cm⁻¹.

Da zum Zeitpunkt der Datenauswertung die Messungen der PTB noch nicht vorlagen, wurde zur Kalibrierung der Spektren des Winters 1991/92 für den externen Schwarzkörper ein Emissionsgrad von 1.0 und für den internen Schwarzkörper der Kampagnen 1992/93 $\varepsilon(\sigma) = 0.98$ zugrunde gelegt. Tabelle 2.3 zeigt eine Abschätzung der daraus resultierenden Fehler in der Gerätefunktion und der Eigenstrahlung. Die Umgebung wurde dabei als Planckscher Strahler der Temperatur 273 K simuliert ($L_{um}(\sigma) = B(\sigma, T = 273K)$).

Schwarzkörper	$\varepsilon(\sigma)$	$\frac{r(\sigma) - r'(\sigma)}{r(\sigma)}$ in %	$\frac{L_0(\sigma) - L'_0(\sigma)}{L_0(\sigma)}$ in %
extern	0.995 - 0.997	0.5 - 0.3	-12.0
intern	0.956 - 0.973	2.4 - 0.7	-93 - -64

Tabelle 2.3 Fehler bei der Bestimmung der Gerätefunktion und der Eigenstrahlung durch einen fehlerhaft angenommenen Emissionsgrad der Schwarzkörper. Die gestrichelten Variablen sind mit den fehlerhaften Emissionsgraden 1.0 für den externen bzw. 0.98 für den internen Schwarzkörper gerechnet.

Die letzte Spalte zeigt die große Unsicherheit bei der Bestimmung der Eigenstrahlung, insbesondere während der internen Kalibrierung der Flüge 1992/93. Um eine Korrektur der Eigenstrahlung durchführen zu können, müßten $\varepsilon(\sigma)$ und die Umgebungsstrahlung $L_{um}(\sigma)$ sehr genau bekannt sein. Da dies jedoch nicht der Fall ist, ist eine ausreichend genaue Bestimmung des Geräteuntergrunds $L_0(\sigma)$ nicht möglich. Deshalb ist eine entsprechend angepaßte Auswertestrategie (Kapitel 2.3.2) erforderlich.

2.3.5.3 Nichtlineare Änderung der Gerätefunktion

Um die Variation der Gerätefunktion aufgrund der Dejustierung während eines Flugs bzw. zwischen einer Flugmessung und einer Bodenkalibrierung zu korrigieren, wurde die in Kapitel 2.3.4 beschriebene CO₂-Korrektur bei der Auswertung aller Messungen der Kampagnen der Winter 1991/92 und 1992/93 angewandt. Auch Fehler in der Gerätefunktion, die durch eine ungenaue Kenntnis der Temperatur oder des Emissionsgrads des Schwarzkörpers zustande kommen (Tabellen 2.2 und 2.3), werden dadurch in erster Näherung korrigiert. Dies gilt für den Emissionsgrad, wenn $\varepsilon(\sigma)$ einen mit der Wellenzahl linearen Verlauf zeigt. Für die Beschichtung des internen Schwarzkörpers ist dies recht gut erfüllt. Der durch eine falsche Temperatur induzierte Fehler in der Gerätefunktion ist über den gesamten Spektralbereich annähernd konstant und wird daher gleichfalls durch die CO₂-Korrektur beseitigt.

Als Kalibrierfehler müssen in der Fehlerbetrachtung also nicht die in den Tabellen 2.2 und 2.3 aufgeführten Fehler, sondern es muß die Abweichung des Quotienten der Gerätefunktionen bei unterschiedlicher Justierung von der angenommenen Linearität (Gleichung 2.31) angegeben werden. Um diese Nichtlinearitäten zu quantifizieren, wurden mittlere Gerätefunktionen $\bar{r}(\sigma)$ sowohl für alle Bodenkalibrierungen der Kampagne im Februar 1991/92 als auch für verschiedene Kalibrierungen während der Flüge im Winter 92/93 berechnet. Dann wurden die Quotienten der einzelnen Funktionen zu der jeweils mittleren Instrumentenfunktion gebildet:

$$quo_i(\sigma) = \frac{r_i(\sigma)}{\bar{r}(\sigma)} \quad (2.37)$$

Diese Quotienten sollten im Idealfall linear von σ abhängen. Ein Maß für die Abweichung von der Linearität ergibt sich, wenn an den Wellenzahlstützstellen der CO₂-Korrektur (800 cm⁻¹ und 940 cm⁻¹) durch jeden Quotienten eine Gerade $g_i(\sigma) = a_i + b_i\sigma$ mit $g_i(800\text{cm}^{-1}) = quo_i(800\text{cm}^{-1})$ und $g_i(940\text{cm}^{-1}) = quo_i(940\text{cm}^{-1})$ gelegt und der RMS-Wert aller Differenzen gebildet wird:

$$RMS(\sigma) = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [quo_i(\sigma) - g_i(\sigma)]^2 \right]^{0.5} \quad (2.38)$$

N: Anzahl der Kalibriermessungen.

Abbildung 2.31 zeigt die Funktion $RMS(\sigma)$ für die Bodenkali­brierungen der dritten Meßkampagne 1991/92 und für Kalibrierungen während der Flüge am 6.12.1992 und am 10.3.1993. Man erkennt, daß am Boden die Linearität der Änderung der Gerätefunktionen im vorderen Wellenzahlbereich gut gegeben ist. Die Nichtlinearität der Quotienten liegt im Bereich von 770 cm⁻¹ bis 1000 cm⁻¹ bei unter 0.5%. Von 1000 cm⁻¹ bis 1250 cm⁻¹ steigt $RMS(\sigma)$ auf maximal 3% an. Während der Flüge erreichen die Abweichungen im vorderen Wellenzahlintervall 1% und stellen somit kaum eine Verschlechterung der Verhältnisse am Boden dar. Im Intervall von 1000 cm⁻¹ bis 1250 cm⁻¹ steigen jedoch die Fehler auf bis zu 10% an.

Die Auswirkung dieser nichtlinearen Änderung der Gerätefunktion auf die Genauigkeit der Säulengehalte einzelner Gase wird in Kapitel 4 untersucht. Da die am meisten interessierenden stratosphärischen Gase O₃, HNO₃ und ClONO₂ Signaturen bei niedrigeren Wellenzahlen besitzen, hat der Anstieg der Nichtlinearitäten ab 1000 cm⁻¹ auf ihre Auswertung keinen Einfluß.

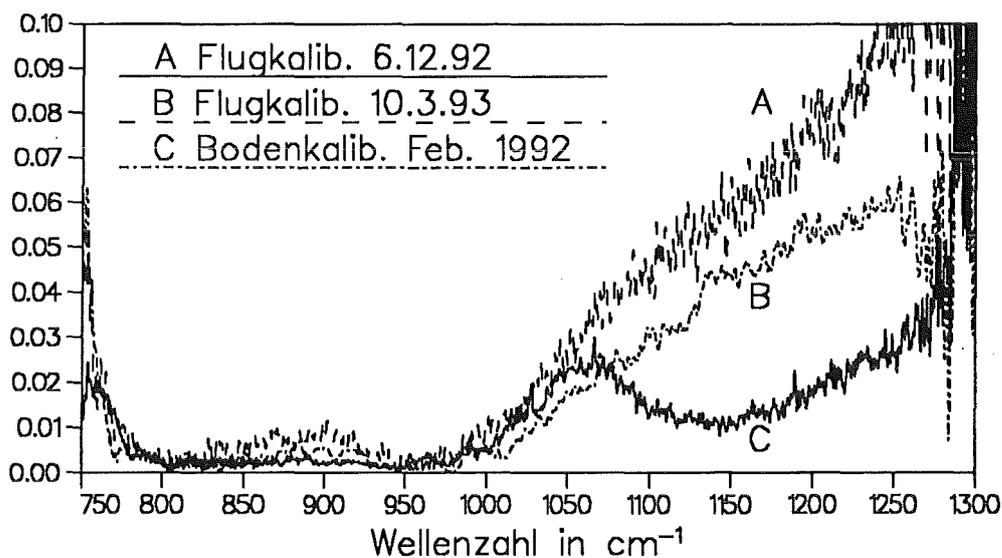


Abb. 2.31 Vergleich der Abweichung des Quotienten der Instrumentenfunktionen von der Linearität am Beispiel der Bodenkali­brierungen im Februar 1992 und zweier Flüge der Winterkampagnen 1992/93.

3. Vom kalibrierten Spektrum zu Säulengehalten von Spurengasen

Nach dem bisher beschriebenen Verlauf der Auswertung liegen die Meßdaten in Form kalibrierter Strahldichtespektren vor. Diese Spektren werden zur Berechnung vom Säulengehalten in einer Inversionsrechnung mit theoretisch berechneten Spektren verglichen. Zu deren Bestimmung ist es nötig, die Strahlungsübertragung (Anhang H) in der Atmosphäre zu modellieren. Das hierzu verwendete Programm wird zusammen mit der benötigten Liniendatenbank in Kapitel 3.1 behandelt. Um eine Unterbestimmtheit des Inversionsproblems zu vermeiden, ist es wichtig, die Anzahl der zu bestimmenden Parameter möglichst gering zu halten. Daher ist es nötig, die am Ort und zur Zeit der Messung herrschenden Atmosphärenparameter so realistisch wie möglich zu simulieren. Es müssen dabei alle verfügbaren Informationen über die Atmosphäre und die Meßbedingungen verwendet werden. Im einzelnen betrifft dies die Form der Vertikalverteilung der Spurengase (3.1.2), das Temperatur- und Druckprofil der Atmosphäre (3.1.3) und die Flugzeugparameter (3.1.4). Kapitel 3.2 befaßt sich mit der verwendeten Apodisationsfunktion zur Unterdrückung der Nebenschwingungen von Spektrallinien. Die zur Bestimmung der Spurengase ausgesuchten Spektralintervalle werden in Kapitel 3.3.1 und das konkrete Vorgehen bei der Herleitung der Säulengehalte wird in Kapitel 3.3.2 beschrieben.

3.1 Simulation der Strahlungsübertragung

3.1.1 Das Vorwärtsrechenprogramm und die Liniendatenbank

Wegen der hohen Auflösung des Spektrometers ist es zur Simulation der Strahlungsübertragung in der Atmosphäre erforderlich, ein spektral hochauflösendes Rechenprogramm zu verwenden. Diese Anforderung wird von sogenannten Linie-für-Linie Programmen erfüllt, die die Absorption und Emission von Strahlung jedes (in der Datenbank enthaltenen) Molekülübergangs berücksichtigen. Am Institut standen hierfür zwei verschiedene Programme zur Auswahl: FASCOD2 (Fast Atmospheric Signature CODE 2, *Clough et al., 1986*) und SCAIS (Simulation Code for Infrared Spectra, *Redemann, 1984; v. Clarmann, 1986; Adrian, 1993*). Beiden Programmen ist gemeinsam, daß zur Simulation der Strahlungsübertragung Näherungen benutzt werden (*v. Clarmann, 1990*), so etwa die Verwendung einer kugelsymmetrisch geschichteten Atmosphäre mit konstanten Atmosphärenparametern innerhalb einer Schicht, die Rechnung mit einem infinitesimal kleinen Öffnungswinkel (siehe dazu auch Anhang I.1), die Absorption eines in einer Schicht emittierten Photons frühestens in der nächsten Schicht, die Annahme eines lokalen thermodynamischen Gleichgewichts, die Vernachlässigung von Line-Mixing-Effekten und verschiedene Näherungen bei der Berechnung der Absorptionskoeffizienten.

Der wesentliche Unterschied zwischen den zwei Programmen besteht darin, daß FASCOD2 mehr Parametrisierungen und Näherungen benutzt als SCAIS, wodurch in hohem Maße Rechenzeit eingespart wird. Aus diesem Grund wurde die gesamte Auswertung mit FASCOD2 durchgeführt. Um ein Maß für die durch eine ungenaue Simulation der Spektren hervorgerufenen Fehler zu erhalten, wurden für einige charakteristische Fälle Vergleichsrechnungen mit beiden Programmen durchgeführt. Die Ergebnisse dieses Vergleichs sind in Anhang I.9 beschrieben.

Die benötigten Liniendaten der verschiedenen Moleküle wurden der Datenbank HITRAN-92 entnommen (*Rothmann et al., 1992*). In dieser Datenbank sind auch Absorptionsquerschnitte von schweren Molekülen enthalten, für die keine Liniendaten vorliegen. Hierbei handelt es sich beispielsweise um verschiedene FCKW's und um für die Ozonchemie wichtige stratosphärische Spurengase, wie ClONO₂ und N₂O₅ (*Massie und Goldman, 1992*). Die verwendete Version von FASCOD2 ermöglichte es, nach einer Modifizierung durch *Wetzel (1993)* auch mit Absorptionskoeffizienten zu rechnen.

Die Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit der Absorptionsquerschnitte erfolgt für die FCKW's und für ClONO₂ auf unterschiedliche Weise. Die Absorptionsquerschnitte der FCKW's liegen in der Datenbank bei bis zu sechs Temperaturstützstellen im Bereich von 293 K - 203 K vor. Die Interpolation auf eine bestimmte Temperatur und eine bestimmte Wellenzahl wird mittels einer zweidimensionalen Splinefunktion durchgeführt (*Wetzel, 1993*). Die Absorptionskoeffizienten von ClONO₂ liegen in der Datenbank bei lediglich zwei Temperaturen vor (296 K und 213 K) (*Ballard et al., 1988*). Zur Interpolation auf andere Temperaturen wurde ein $a/T + b$ Gesetz verwendet. Diese Abhängigkeit wurde aus Messungen von *Davidson (1987)* empirisch hergeleitet (*Stiller, 1994*).

Die Genauigkeit der verwendeten Liniendaten und deren Einfluß auf den Fehler in den berechneten Säulengehalten wird in Anhang I.6 untersucht.

3.1.2 Spurengasprofile

Da bei der Ausgleichsrechnung das Höhenprofil des Volumenmischungsverhältnisses des auszuwertenden Spurengases mit einem Faktor multipliziert wird (Kapitel 3.3.2), ist die Form des Vertikalprofils ein wichtiger Ausgangsparameter bei der Berechnung von Säulengehalten. Es ist daher nötig, möglichst realistische Startprofile für die Ausgleichsrechnung zu verwenden.

Im folgenden werden zuerst die Höhenprofile der drei hauptsächlich ausgewerteten stratosphärischen Gase Ozon (O₃), Chlornitrat (ClONO₂) und Salpetersäure (HNO₃) besprochen. Im Anschluß daran folgen Wasser (H₂O), Kohlendioxid (CO₂) und die troposphärischen Spurengase Distickstoffoxid (N₂O), Methan (CH₄) und F12 (CCl₂F₂).

O₃: Für Ozon wurde das jeweils zur Flugroute zeitlich und räumlich nächstliegende Sondenprofil verwendet. Dabei wurde bei nicht über die Vortexgrenze führenden Flügen das gleiche Profil bei allen auszuwertenden Spektren benutzt. Bei Flügen über die Vortexgrenze hinweg, d.h. wenn starke Gradienten in den Profilen von stratosphärischen Spurengasen zu erwarten waren, wurde teilweise mit zwei Ozonsondenprofilen gerechnet, die aus Sondaufstiegen innerhalb und außerhalb des Polarwirbels resultierten.

ClONO₂: Wie Messungen des MIPAS-Ballongeräts während der EASOE-Kampagne ergaben, kann ClONO₂ stark unterschiedliche Profile in der arktischen Stratosphäre annehmen (*v. Clarmann et al., 1993*) (Abbildung 3.1). Dabei zeigten sich im März 1992 stark erhöhte Konzentrationen im Höhenbereich um 20 km. Um diese großen Unterschiede im Verlauf des Winters zu berücksichtigen, wurde bis zu Beginn des Auftretens erhöhter ClONO₂-Säulengehalte innerhalb des Polarwirbels mit dem Januar- und später mit dem Märzprofil der MIPAS-Ballonmessungen von 1992 gerechnet. Bei Flügen außerhalb des Polarwirbels wurde das Januar-Profil angewandt, aber auch Testrechnungen mit einem Standardprofil für mittlere Breiten durchgeführt. Die dabei aufgetretenen Unterschiede waren immer kleiner als der Meßfehler (Anhang I.5).

HNO₃: Für dieses Spurengas wurde bei allen Messungen, abgesehen von Südflügen außerhalb des Polarwirbels, ein Standardprofil für polare Breiten im Winter aus *Echle (1992)* (Abbildung 3.1) benutzt. Bei Südflügen kam das in der gleichen Studie enthaltene Profil für mittlere Breiten zur Anwendung.

H₂O: Das Wasserdampfprofil wurde aus den vorhandenen Feldern des ECMWF (European Centre for Medium-range Weather Forecasts) (siehe Kapitel 3.1.3) auf den Ort und Zeitpunkt jeder einzelnen Messung interpoliert (*Glatthor, 1992*). Oberhalb 10 hPa wurde der Wert von 10 hPa übernommen. Ein Beispiel eines solchen Profils zeigt Abbildung 3.1.

Die Höhenprofile der übrigen Gase wurden aus *Echle (1992)* entnommen. Die Profile von CO₂, N₂O, CH₄, F11 und F12 zeigt Abbildung 3.1.

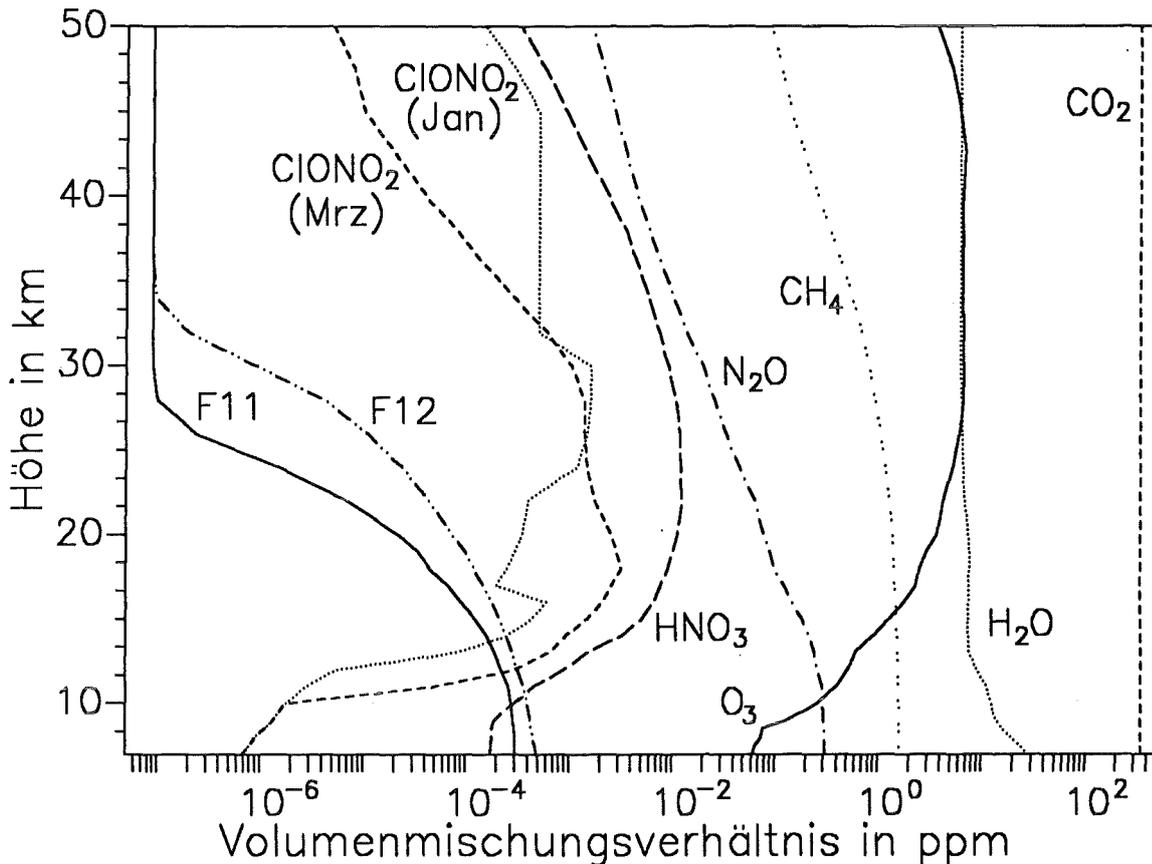


Abb. 3.1 Bei der Herleitung von Säulengehalten aus MIPAS-FT-Messungen verwendete Höhenprofile verschiedener Spurengase. Für ClONO₂ sind die Profile dargestellt, die mit dem MIPAS-Ballongerät am 13.1.1992 und am 15.3.1992 innerhalb des Polarwirbels gemessen wurden.

Um abschätzen zu können, welche Atmosphärensichten den größten Beitrag zum gemessenen Signal beisteuern, sind in Abbildung 3.2 für die einzelnen Gase Beitragsfunktionen (siehe Anhang H) angegeben.

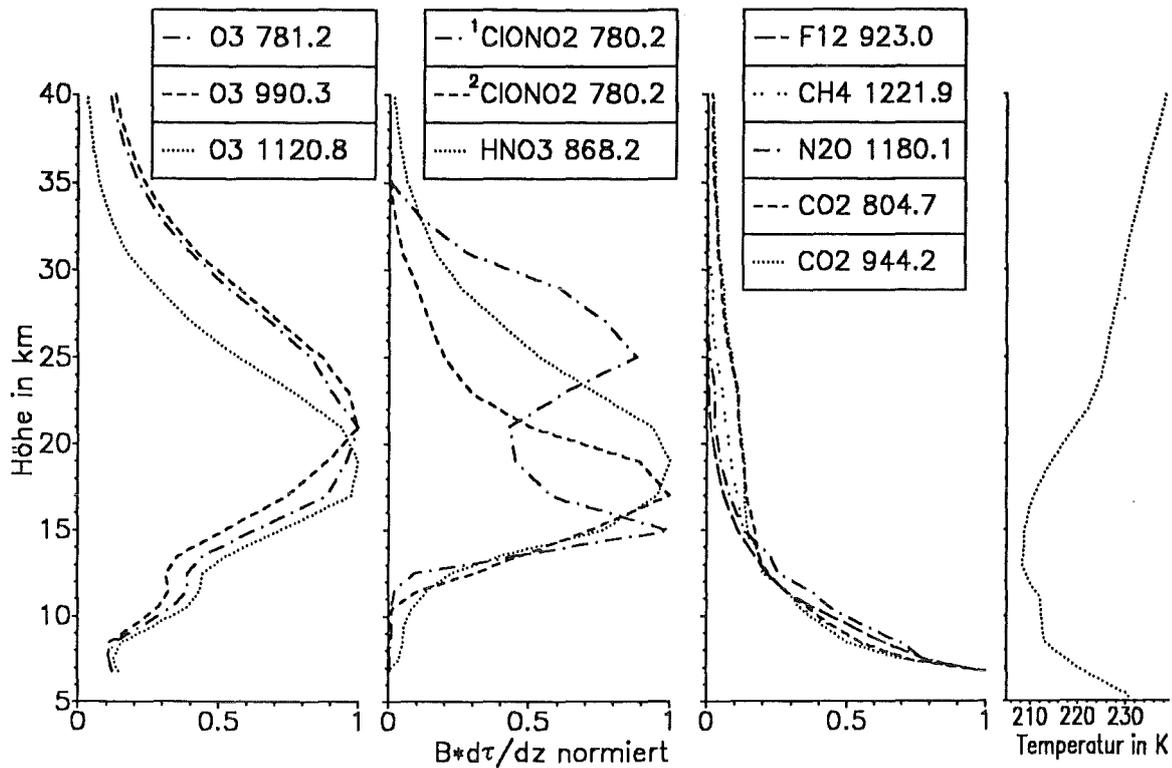


Abb. 3.2 Normierte Beitragsfunktionen ausgewerteter Spurengase und zugehöriges Temperaturprofil vom 25.3.1993, 18:47 GMT. Die Angaben hinter den Gasnamen beziehen sich auf die Linienzentren. Die spektrale Auflösung betrug 0.08 cm^{-1} . (¹ClONO₂: Januar-Profil und ²ClONO₂: März-Profil aus Abbildung 3.1)

3.1.3 Temperatur-Profile

Wegen der starken Temperaturabhängigkeit von Emissionsmessungen ist es notwendig, bei der Strahlungsübertragungsrechnung das Temperaturprofil der Atmosphäre am Meßort und zur Meßzeit möglichst genau zu kennen. Als Grundlage der Bestimmung von Temperatur-Druck-Profilen dienten Analysefelder des ECMWF. In diesen Analysen liegen im Abstand von 6 Stunden Druck, Temperatur, geopotentielle Höhe und relative Feuchte mit einem horizontalen Gitterabstand von $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ auf 14 Druckstufen von 1000 hPa bis 10 hPa vor. Diese Felder wurden auf den mittleren Ort und die mittlere Zeit jedes auszuwertenden Spektrums interpoliert (Glatthor, 1992). Dabei wurden Temperatur, Druck und relative Feuchte entlang des schrägen Sichtstrahls durch die Atmosphäre berechnet. Oberhalb 10 hPa wurde das ECMWF-Profil mittels eines Standard-Temperaturprofils fortgesetzt. Einen typischen Verlauf der Temperaturprofile vom 25.3.1993 entlang der Flugstrecke von Kiruna nach Spitzbergen zeigt Abbildung 3.3. Eine Abschätzung der Auswirkungen von Ungenauigkeiten im Temperaturprofil auf die Ergebnisse wird in Anhang I.4 vorgenommen.

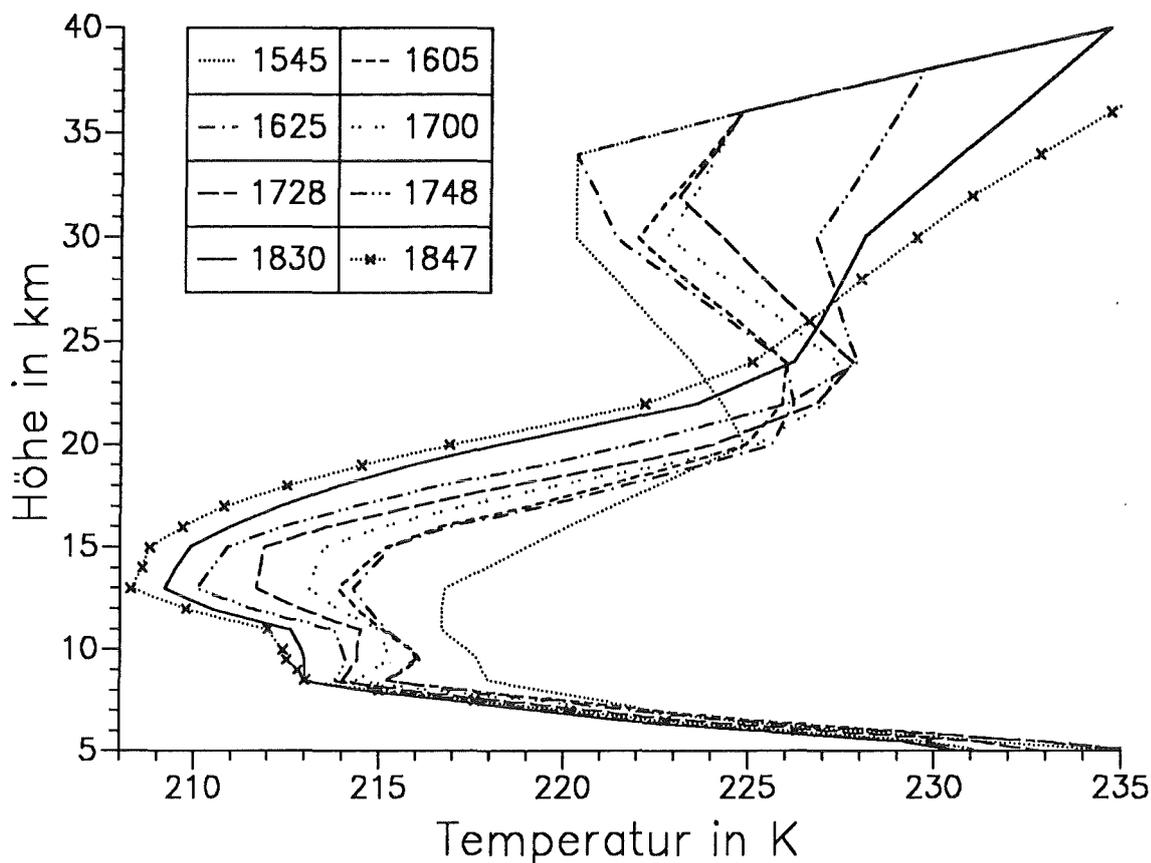


Abb. 3.3 Temperaturprofile oberhalb des Flugniveaus für Messungen am 25.3.1993 von 15:45 bis 19:00 GMT.

3.1.4 Flugzeugparameter

Die drei wesentlichen in die Inversionsrechnung eingehenden Flugzeuglagedaten sind das Heading, d.h. die azimuthale Richtung der Flugzeuglängsachse, der Rollwinkel und die Flughöhe der Transall. Diese Daten werden während der Messung zusammen mit den Interferogrammen auf Band aufgezeichnet bzw. in korrigierter Form nachträglich zur Verfügung gestellt. Die drei Parameter dienen zur Definition des geometrischen Verlaufs der Sichtlinie des Spektrometers in der Atmosphäre.

Aus dem Heading erhält man durch Abzug von 90° den Azimutwinkel des Sehstrahls von MIPAS-FT.

Der Rollwinkel wird zur Korrektur des Elevationswinkels benötigt. Dies wird in Anhang I.2 näher erläutert.

Es hat sich gezeigt, daß die in den Flugzeugparametern enthaltene Flughöhe für die Rechnungen zu ungenau ist, da sie nicht den primären Meßparameter Außendruck wiedergibt, sondern eine Höhe, die aus diesem Druck mittels einer Standardatmosphäre ermittelt wird. Die Differenz zur wahren Flughöhe kann dabei einige hundert Meter betragen. Zur Auswertung der Spektren wurde daher der korrigierte Außendruck verwendet und daraus über die ECMWF-Daten die wahre Flughöhe berechnet. Die Fehler, die durch eine ungenaue Messung des Außendrucks entstehen, werden in Anhang I.8 untersucht.

3.2 Apodisation und spektrale Auflösung

Die endliche Länge des gemessenen Interferogramms begrenzt die Auflösung des Spektrometers. Mathematisch läßt sich dieser Sachverhalt durch die Multiplikation eines theoretisch unendlich langen Interferogramms $I(x)$ mit einer Rechteckfunktion der Länge $2L$ beschreiben (L ist hierbei die maximale Weglängendifferenz der beiden interferierenden Teilstrahlen):

$$I(x) \text{ RECT}\left(\frac{x}{2L}\right) \circ \rightarrow S(\sigma) \otimes 2L \text{ sinc}(2\pi L\sigma) \quad (3.1)$$

Die Fouriertransformation liefert also die Faltung des idealen Spektrums mit einer sinc-Funktion. Eine unendlich schmale Linie wird dadurch verbreitert und erhält die Breite $0.603/L$ auf halber Höhe. Dieser Wert wird im allgemeinen als unapodisierte Auflösung bezeichnet. Außerdem treten als Folge der 'sinc'-Funktion Nebenschwingungen auf.

Um beispielsweise den Einfluß von Störgasen in einem spektralen Auswertintervall gering zu halten, ist es in der Fourier-spektroskopie üblich, die Nebenschwingungen auf Kosten der Linienbreite zu dämpfen. Dies erreicht man durch Multiplikation des gemessenen Interferogramms mit einer sogenannten Apodisationsfunktion. Im Spektralraum entspricht dies einer Faltung mit der Fouriertransformierten der Apodisationsfunktion, der Scan-Funktion. Die zur Auswertung der MIPAS-FT-Messungen gewählte Apodisation wurde durch die im Rechenprogramm FASCOD2 implementierten Scanfunktionen begrenzt (Rechteck, Dreieck, Gauß oder sinc²). Die Wahl fiel auf die 'sinc²'-Funktion. Dies entspricht einer Multiplikation des Interferogramms mit einer Dreiecksfunktion. Diese Funktion liefert relativ schmale Linien (Auflösung: $0.886/L$) bei quadratischer Unterdrückung der Nebenschwingungen.

Die Messungen des Winters 1991/92 wurden demnach mit einer apodisierten Auflösung von 0.1772 cm^{-1} und diejenigen des Winters 1992/93 mit 0.0805 cm^{-1} aufgenommen.

3.3 Die Inversionsrechnung

3.3.1 Spektralintervalle

Innerhalb des Filterbereichs von MIPAS-FT mußten zur Auswertung der einzelnen Spurengase Spektralintervalle definiert werden. Diese sollten sich dadurch auszeichnen, daß die Signaturen des Zielgases möglichst wenig durch Linien anderer Gase überlagert sind. Außerdem mußte darauf geachtet werden, daß einerseits genügend starke Signaturen ausgewählt werden, damit der Einfluß des spektralen Rauschens gering bleibt. Andererseits durften die Linien nicht optisch dicht werden, so daß sich Masseänderungen der Gase auch in Änderungen der Linienintensitäten widerspiegeln.

Im folgenden werden die Spektralintervalle der wichtigsten Spurengase mit einer Auflösung von 0.08 cm^{-1} dargestellt, entsprechend der Meßsituation des Winters 1992/93 (Abbildungen 3.4 a-k). Der Bereich von ClONO_2 wird zusätzlich mit der Auflösung 0.18 cm^{-1} , entsprechend derjenigen der Kampagnen 1991/92, gezeigt.

Zur Durchführung der CO₂-Korrektur (Kapitel 2.3.4) war es notwendig, weit auseinanderliegende Spektralintervalle des Spurengases Kohlendioxid auszuwählen. Diese sind in Abbildung 3.4 a, b dargestellt. Die Linien der sogenannten 'Laserbände' im Intervall von 940 cm⁻¹ bis 950 cm⁻¹ werden fast nicht von Signaturen anderer Gase überlagert. Im Bereich von 801 cm⁻¹ bis 812 cm⁻¹ stören vor allem die Linien von O₃. Ihr Einfluß auf die CO₂-Korrektur wird in Anhang I.7 untersucht.

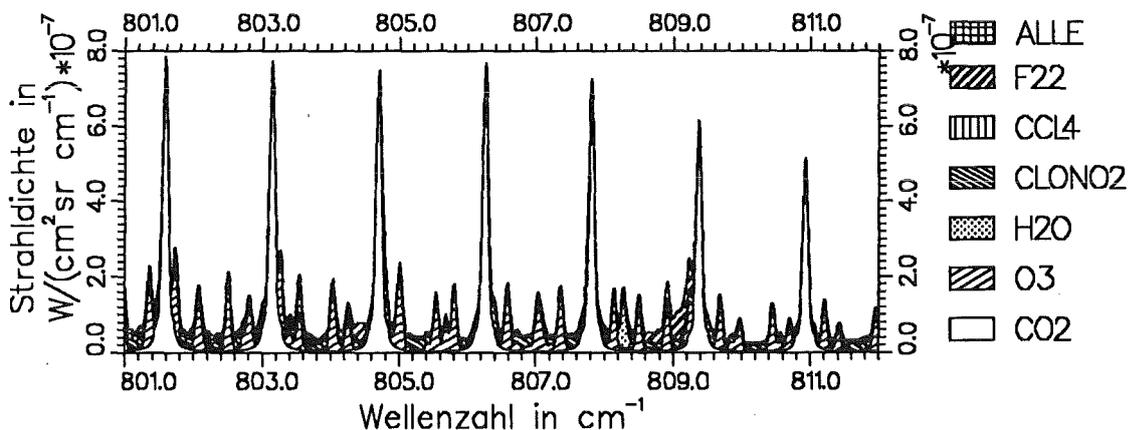
Die wichtigsten stratosphärischen Spurengase, die in Spektren von MIPAS-FT ausgewertet werden können, sind O₃, HNO₃ und ClONO₂. O₃ kann dabei in drei, HNO₃ und ClONO₂ jeweils in einem Spektralbereich ausgewertet werden. Die Spektralbereiche von O₃ bei 990 cm⁻¹ und 1120 cm⁻¹ (Abbildung 3.4 d, e) sind praktisch frei vom Einfluß anderer Spurengase. Allerdings zeigt die Fehlerabschätzung, daß die Auswertung in diesen Intervallen aufgrund der höheren Temperaturempfindlichkeit dieser Spektrallinien mit wesentlich größeren Fehlern verbunden ist als im dritten Spektralbereich bei 780 cm⁻¹ (Abbildung 3.4 c). Für die Bestimmung von HNO₃ ist der Spektralbereich bei 870 cm⁻¹ gut geeignet (Abbildung 3.4 f). Der Störgaseinfluß ist hier vernachlässigbar.

Die Bestimmung von ClONO₂-Säulengehalten wurde im Bereich des ν₄ Q-Zweigs bei 780.21 cm⁻¹ durchgeführt (Abbildung 3.4 g, h). Die relativ breite Signatur von ClONO₂ wird hauptsächlich von O₃- und CO₂-Linien und einem schwachen Kontinuum von HNO₃ überlagert. Zwei O₃-Linien befinden sich bei 780.07 cm⁻¹ und 780.36 cm⁻¹. Neben der starken CO₂-Linie bei 780.50 cm⁻¹ liegen zwei weitere, allerdings wesentlich schwächere Linien dieses Gases bei 780.08 cm⁻¹ und bei 780.23 cm⁻¹. Der durch eine ungenaue Kenntnis des O₃- und CO₂-Säulengehalts verursachte Fehler in der ClONO₂-Auswertung wird in Anhang I.7 untersucht.

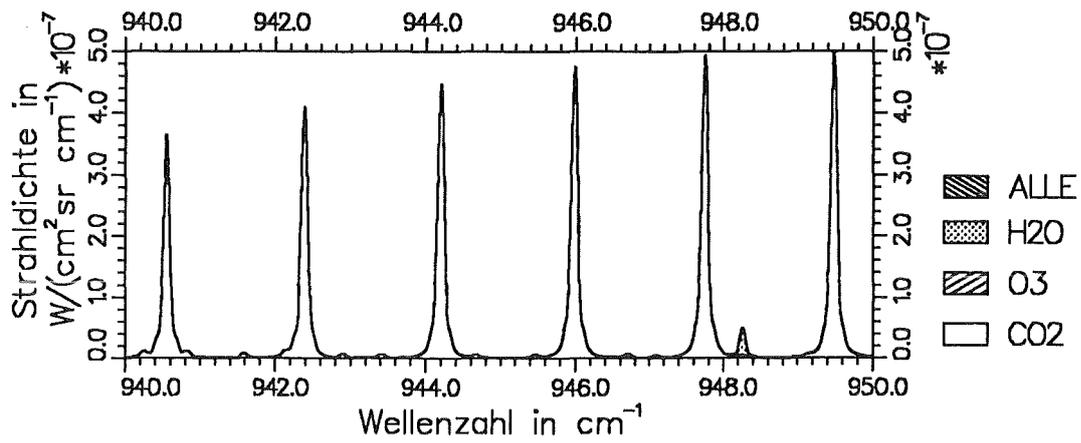
Weiterhin besitzen die troposphärischen Gase Distickstoffoxid, Methan und F12 starke Signaturen im Filterbereich. Ihre Auswertintervalle sind in Abbildung 3.4 i-k gezeigt.

Wasserdampflinien finden sich über das gesamte Spektrum hinweg verteilt. H₂O wurde im Zusammenhang mit anderen Gasen bestimmt (CO₂, HNO₃).

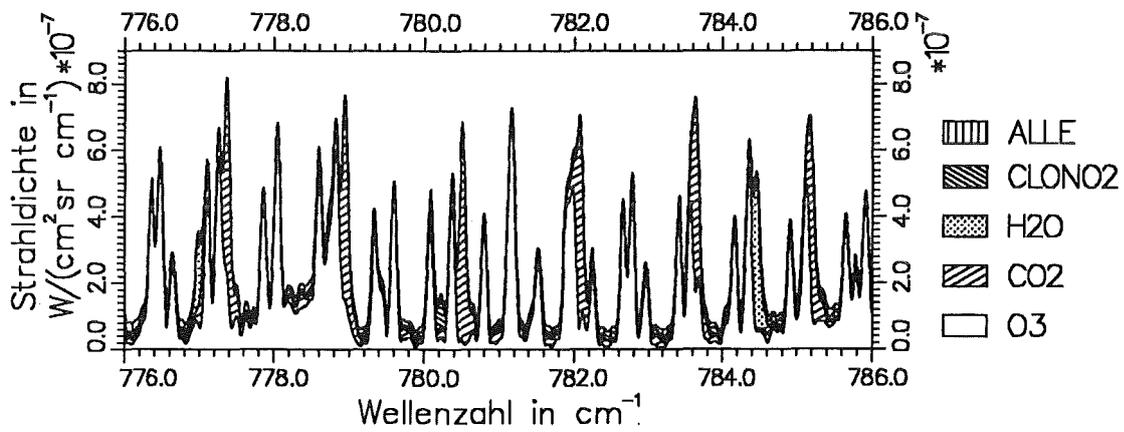
In den gemessenen Spektren konnten außerdem eindeutige Signaturen von F11 (CCl₃F), F22 (CHF₂Cl) und SF₆ (siehe Abbildung 3.5) (*Echle, 1992*) nachgewiesen werden, die jedoch hier nicht weiter betrachtet werden sollen.



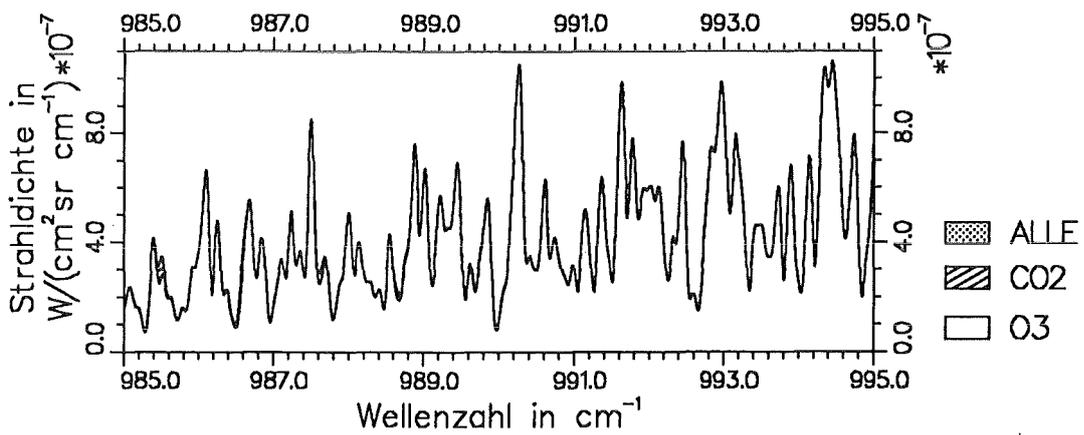
3.4 a: CO₂



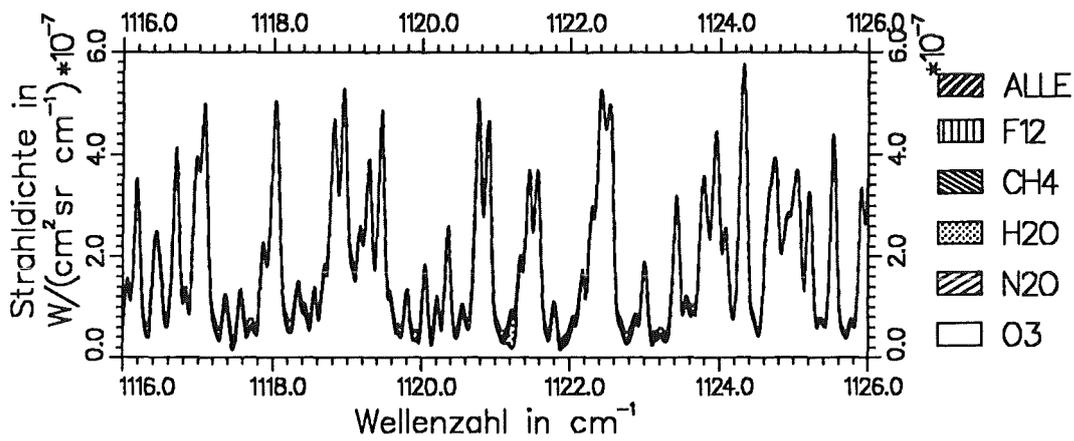
3.4 b: CO₂



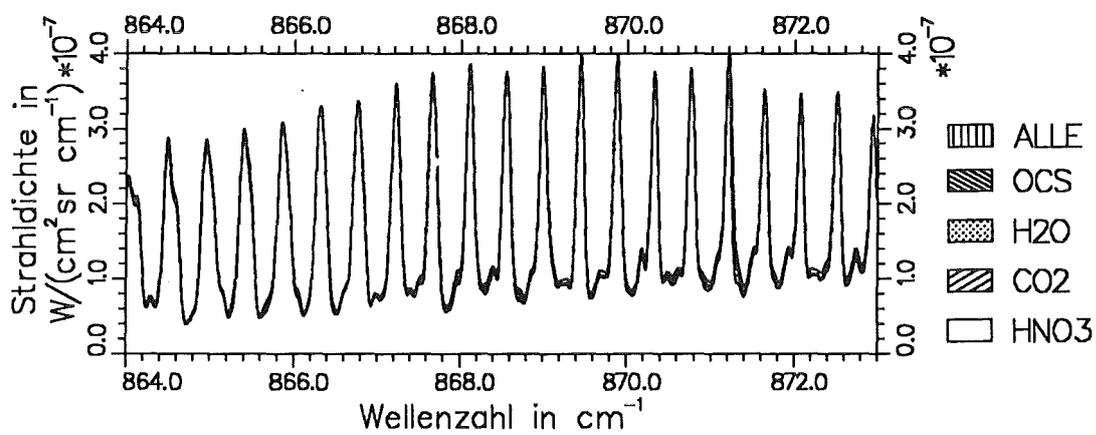
3.4 c: O₃



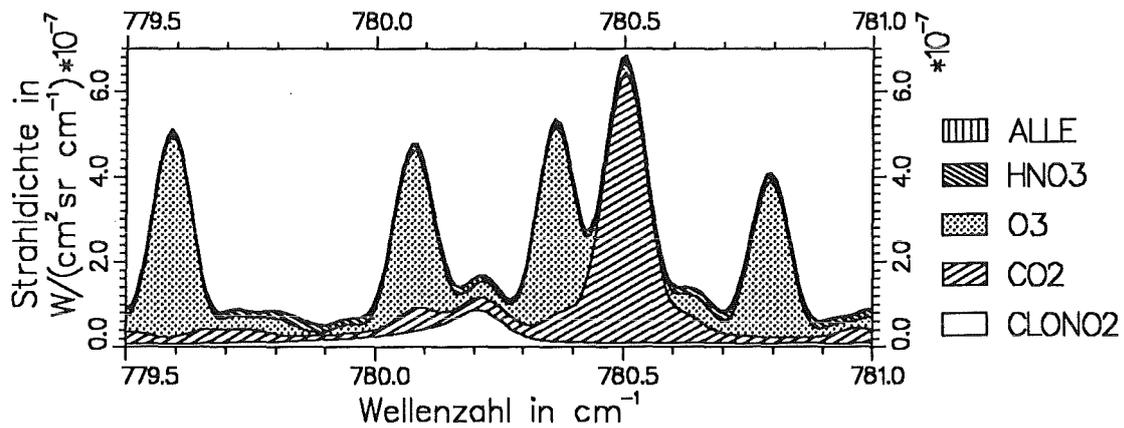
3.4 d: O₃



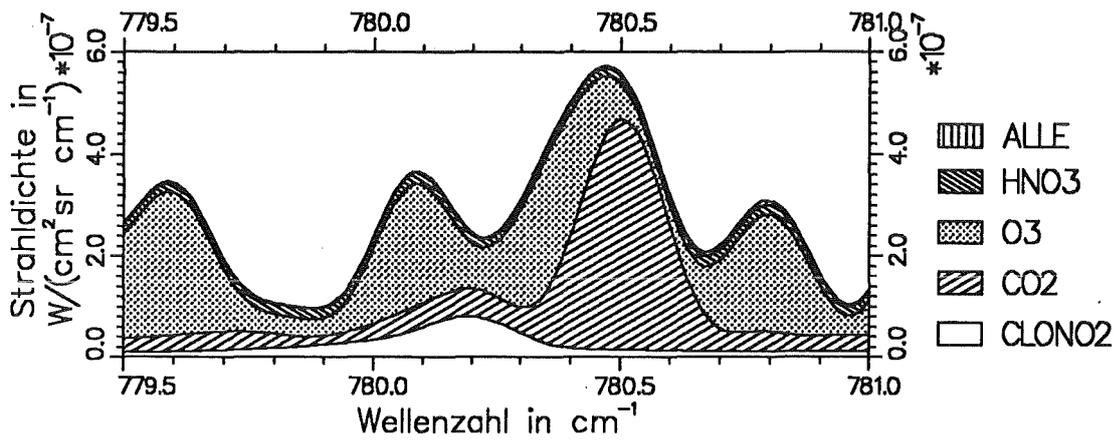
3.4 e: O₃



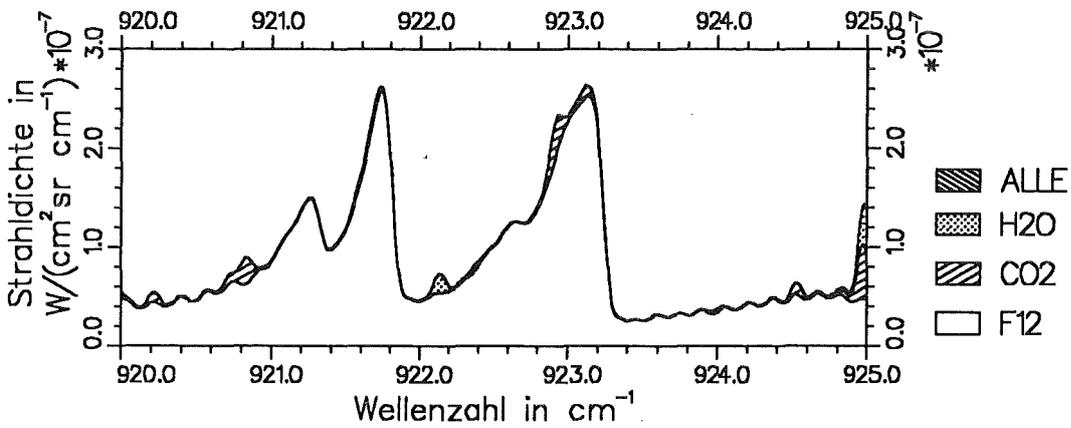
3.4 f: HNO₃



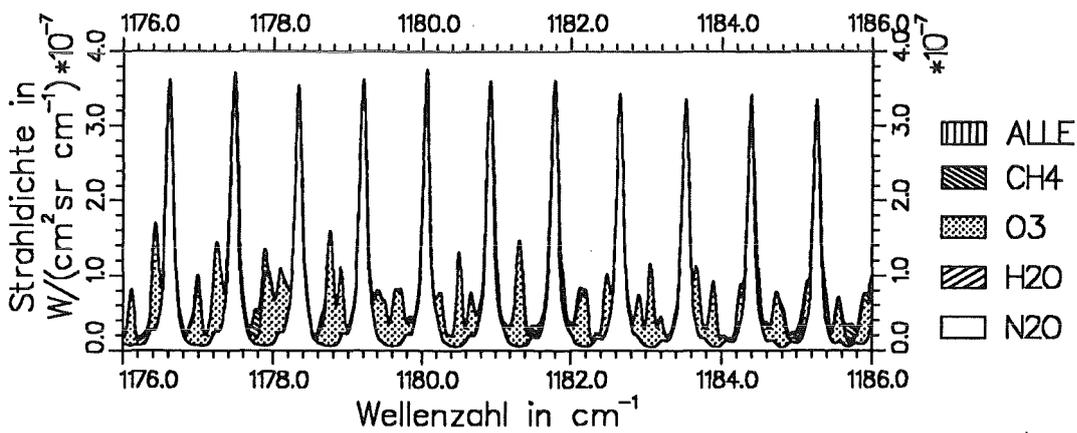
3.4 g: ClONO₂



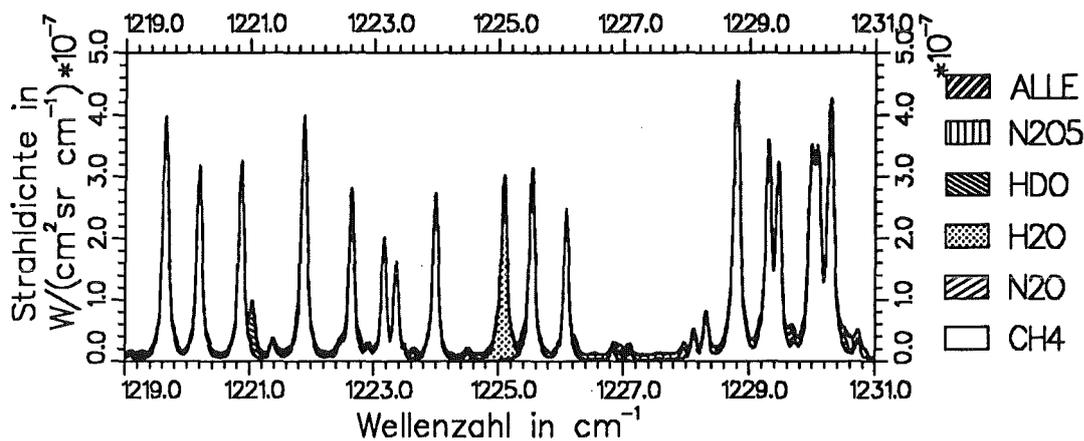
3.4 h: ClONO₂: Auflösung 0.18 cm⁻¹



3.4 i: CCl₂F₂



3.4 j: N₂O



3.4 k: CH₄

Abb. 3.4 a-k Ausgewählte Spektralintervalle zur Auswertung von Säulengehalten. Der Elevationswinkel beträgt 7°. Für die Rechnungen wurde das Temperaturprofil 1728 aus Abbildung 3.3 benutzt. Die obere Eintragung 'ALLE' in der Legende bedeutet, daß mit allen im Vorwärtsrechenprogramm FASCOD2 implementierten Spurengasen gerechnet wurde. Bis auf Bild h wurde mit einer Auflösung von 0.08 cm⁻¹, wie sie den Messungen der Kampagnen 1992/93 entspricht, gerechnet. In Abb. 3.4 h wurde das ClONO₂-Auswertintervall mit der im Winter 1991/92 erreichten Auflösung von 0.18 cm⁻¹ dargestellt. Der Säulengehalt oberhalb des Flugzeugs beträgt für ClONO₂ 2.0 · 10¹⁵ cm⁻².

3.3.2 Bestimmung von Säulengehalten

In der Inversionsrechnung, d.h. die Bestimmung von atmosphärischen Parametern aus gemessenen Spektren, werden Meßspektren mit theoretischen Spektren verglichen. Durch eine Variation der gesuchten Parameter im gerechneten Spektrum wird in einem iterativen Prozess eine Parameterkonstellation gesucht, die eine optimale Übereinstimmung der Spektren bewirkt. Zur Bestimmung dieser Parameter können verschiedene numerische Optimierungsverfahren angewandt werden (v. Clarmann, 1990).

Zur Durchführung der Inversion wurde das von v. Clarmann entwickelte Programm RAT (Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles) verwendet (v. Clarmann, 1994). Dieses Programm ermöglicht neben der Bestimmung der Säulengehalte von Spurengasen die simultane Anpassung eines additiven Untergrunds als auch eines multiplikativen Korrekturfaktors, wie er bei der CO₂-Korrektur benötigt wird.

Zur Erläuterung der Strategie der Bestimmung von Säulengehalten bei MIPAS-FT muß daran erinnert werden, daß die gemessenen Spektren zwar in absoluten Strahldichte-einheiten vorliegen, aber einen wellenzahlabhängigen, additiven Untergrund besitzen, der durch die Eigenstrahlung des Spektrometers hervorgerufen wird, und bei der Kalibrierung im Fall von MIPAS-FT nicht korrigiert werden kann. Aus diesem Grund ist es notwendig, bei allen Inversionsrechnungen den additiven Untergrund als freien Parameter mit anzupassen. Die negativen Strahldichtewerte, die bei der Ausgleichsrechnung in den Spektralintervallen unterhalb ca. 830 cm⁻¹ auftreten (Abbildungen 3.6, 3.7, 3.11), sind eine Folge dieser nachträglichen Anpassung eines additiven Untergrunds, da hier die Geräteeigenstrahlung selbst negativ ist (Kapitel 2.2.2 und 2.3.2).

Der zweite und wesentliche Parameter bei der Bestimmung von Säulengehalten ist der Faktor, mit dem das angenommene Höhenprofil des Volumenmischungsverhältnisses multipliziert wird, der sogenannte Profilmfaktor. Dieser ist proportional zur Masse des Spurengases in der Sichtlinie des Meßgeräts und bestimmt daher die Intensität der Spektrallinien. Sind alle anderen Strahlungsbeiträge im Spektrum bekannt, so hat die Inversionsaufgabe (Bestimmung von additivem Untergrund und Profilmfaktor) eine eindeutige Lösung. Wesentliche Probleme treten dann auf, wenn sich im betrachteten Spektralintervall ein unbekannter wellenlängenabhängiger Untergrund atmosphärischen Ursprungs befindet, der nicht im Strahlungsmodell simuliert wird. Ein solcher Untergrund wirkt sich nicht nur additiv auf das Spektrum aus (sonst würde er durch den mit angepaßten additiven Untergrund beschrieben), sondern beeinflusst auch die Intensität der Spektrallinien. Einen wichtigen Beitrag zu einem solchen Untergrund liefert das atmosphärische Aerosol. Dieser Punkt wird in Anhang I.10 näher betrachtet.

Das Auswerteverfahren setzt sich aus zwei Teilen zusammen: erstens aus der CO₂-Korrektur und zweitens aus der eigentlichen Bestimmung von Säulengehalten.

Wie in Kapitel 2.3.4 dargelegt wurde, war eine nachträgliche Korrektur der kalibrierten Spektren erforderlich. Dazu wurde das Profil des Volumenmischungsverhältnisses von CO₂, sowie das Druck- und Temperaturprofil der Atmosphäre als bekannt vorausgesetzt. Dann wurden in den zwei ausgewählten Spektralintervallen von CO₂ (Abbildung 3.4 a, b) die Intensität der gemessenen CO₂-Linien mit derjenigen der theoretischen CO₂-Linien verglichen. In der Regel wich die Höhe der gemessenen Linien von derjenigen der theoretischen um einen gewissen Faktor ab. Diese Korrekturfaktoren wurden in einer Anpassungsrechnung bestimmt. Sie lagen im Winter 1991/92 (1992/93) im Wellenzahlintervall bei 800 cm⁻¹ im Mittel bei 0.902 (1.034) und im Bereich von 950 cm⁻¹ bei 0.914 (1.054). Die Faktoren liegen im Winter 1992/93 näher bei 1.0, da dort die Kalibrierung mittels Schwarzkörpermessungen im Flug durchgeführt wurde, während 1991/92 am Boden nachträglich kalibriert wurde (Kapitel 2.3). Aus den beiden Faktoren (bei 800 cm⁻¹ und 950 cm⁻¹) wird eine Korrekturgerade über den gesamten Wellenzahlbereich berechnet und mit dem Meßspektrum multipliziert. Das derart korrigierte Meßspektrum bildet die Grundlage für die Bestimmung der Säulengehalte im nächsten Schritt.

Während der Anpassung der Korrekturfaktoren werden gleichzeitig zwei weitere Parameter bestimmt, die danach bei der Berechnung der Säulengehalte konstant gehalten werden. Zum einen handelt es sich dabei um eine Verschiebung der Frequenzachse, dem sogenannten Frequenzshift, und zum anderen wird die spektrale Auflösung angepaßt. Der Mittelwert der Auflösungen aus den beiden CO₂-Bereichen geht in die weiteren Berechnungen der Säulengehalte ein. Eine Analyse der Auswirkungen einer fehlerhaft bestimmten Auflösung auf die Ergebnisse wird in Anhang I.3 durchgeführt. Abbildung 3.5 und 3.6 zeigen das Beispiel einer Anpassungsrechnung in den beiden CO₂-Bereichen.

Im zweiten Schritt werden diejenigen Gase ausgewertet, die wenig von anderen Gasen gestört werden: O₃, HNO₃, N₂O, CH₄, und F12 (Abbildungen 3.7 - 3.14). Wie oben schon erwähnt wurde, sind die variablen Parameter in diesen Bereichen der Profilmfaktor des gesuchten Spurengases und der additive Untergrund. In den Fällen, in denen sich Wasserdampflinien im Spektralbereich befanden, wurde deren Profilmfaktor als freier Parameter mitgerechnet.

Zur Bestimmung von ClONO₂, das im wesentlichen von CO₂- und O₃-Signaturen überlagert ist, wird der O₃-Profilfaktor auf den im umliegenden Spektralbereich bestimmten Wert gesetzt und CO₂ konstant gehalten. Ein Beispiel des Ergebnisses einer Anpassungsrechnung

ist in Abbildung 3.11 dargestellt. Eine Abschätzung der Fehler durch Ungenauigkeiten in den Störgasen ist in Anhang I.7 beschrieben. Oftmals wurde eine zweite Rechnung durchgeführt, bei der als dritter Parameter O_3 gleichzeitig angepaßt wurde. Dabei ergaben sich Ergebnisse für $ClONO_2$, die sich nur sehr geringfügig von denjenigen der Rechnung mit zwei freien Parametern unterschieden.

Im folgenden werden beispielhaft die Ergebnisse der Auswertung eines Spektrums vom 25.1.1993, 17:00 GMT dargestellt.

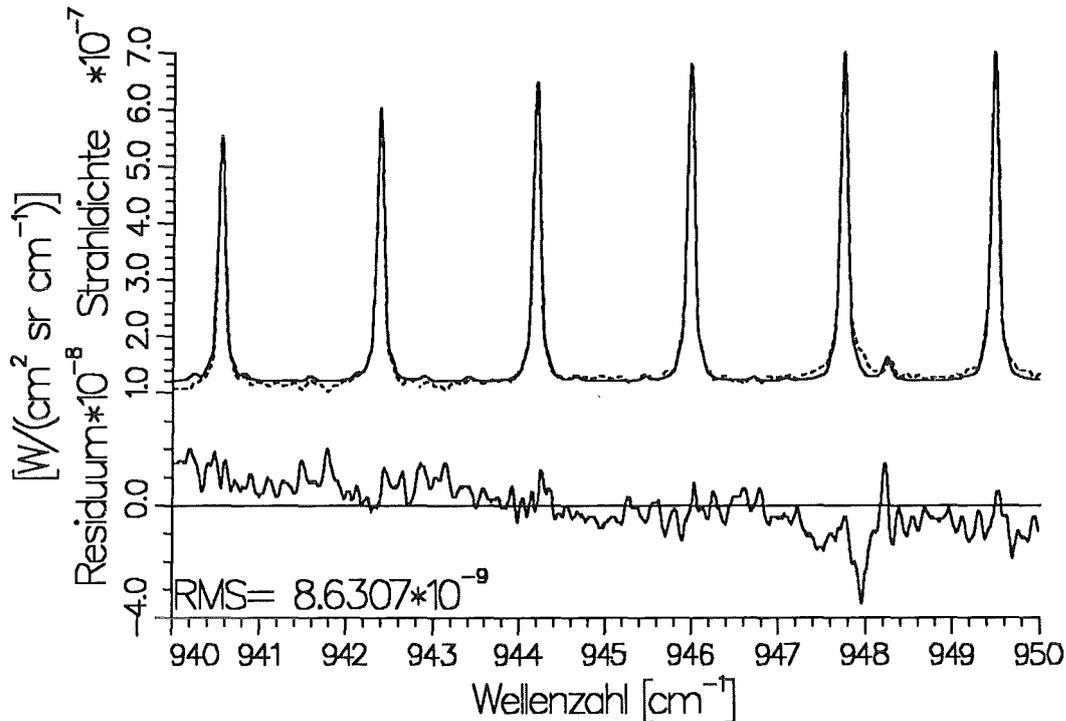


Abb. 3.5 CO_2 -Korrektur. Freie Parameter: Frequenzshift, additiver Untergrund, Korrekturfaktor, Auflösung.

Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

Bei der schlecht angepaßten Struktur bei $947.9\ cm^{-1}$ handelt es sich um den ν_3 Q-Zweig von SF_6 .

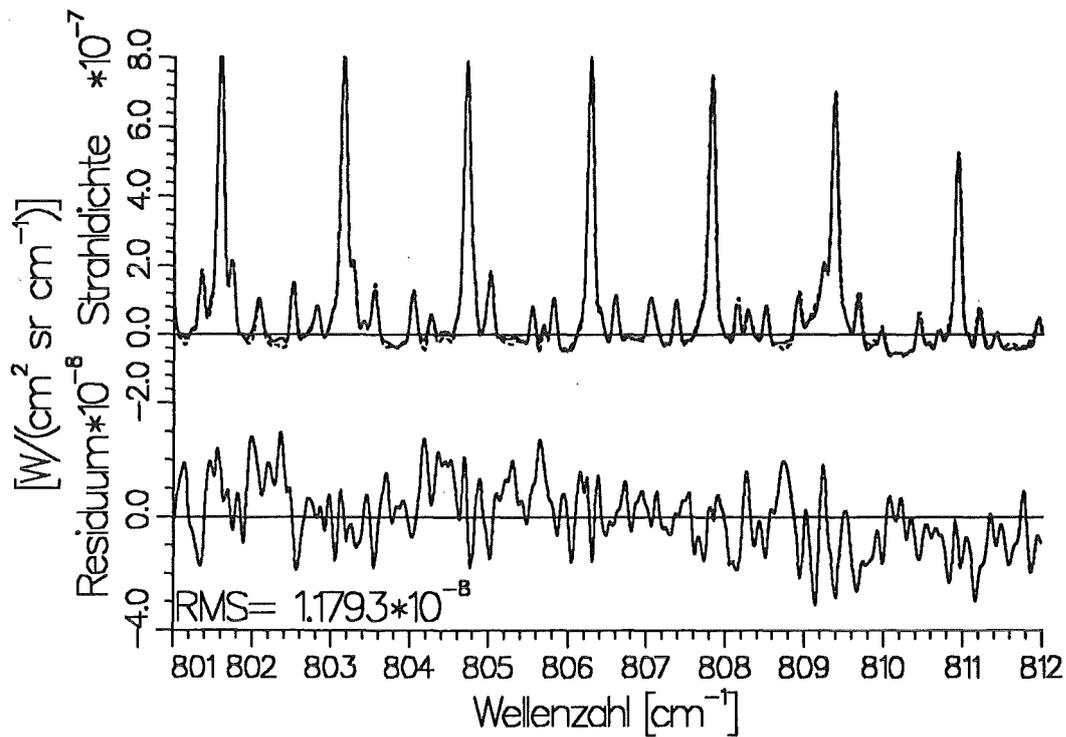


Abb. 3.6 CO₂-Korrektur. Freie Parameter: Frequenzshift, additiver Untergrund, Korrekturfaktor, Auflösung.

Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

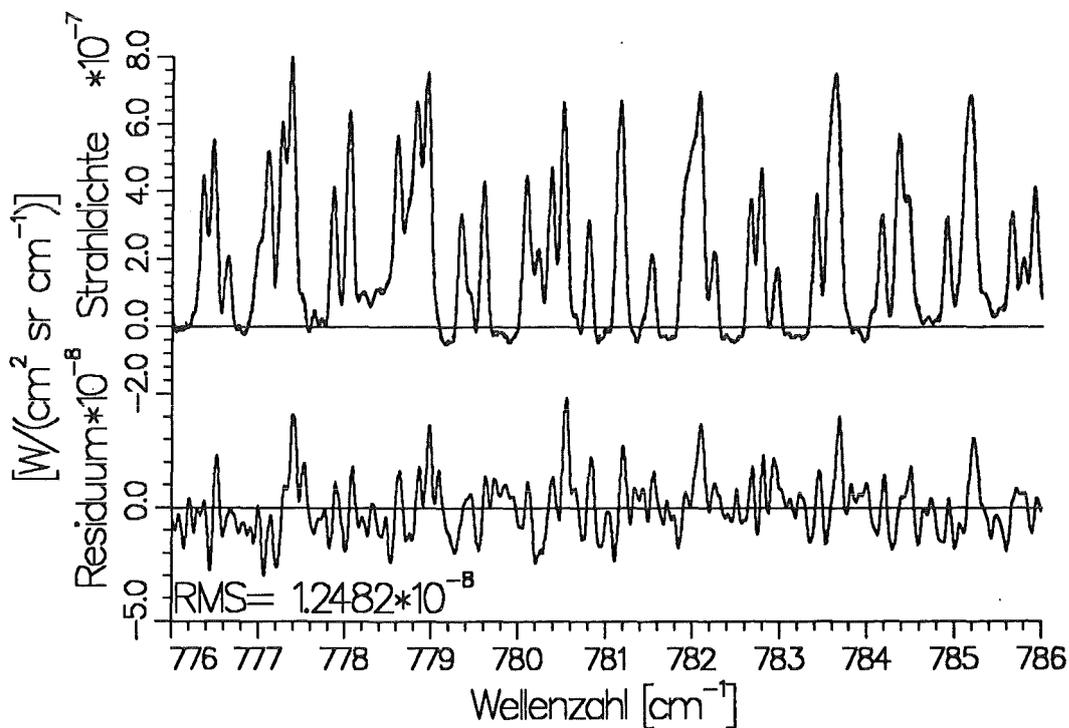


Abb. 3.7 O₃-Anpassung. Freie Parameter: O₃-Profilmfaktor, H₂O-Profilmfaktor, additiver Untergrund.

Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

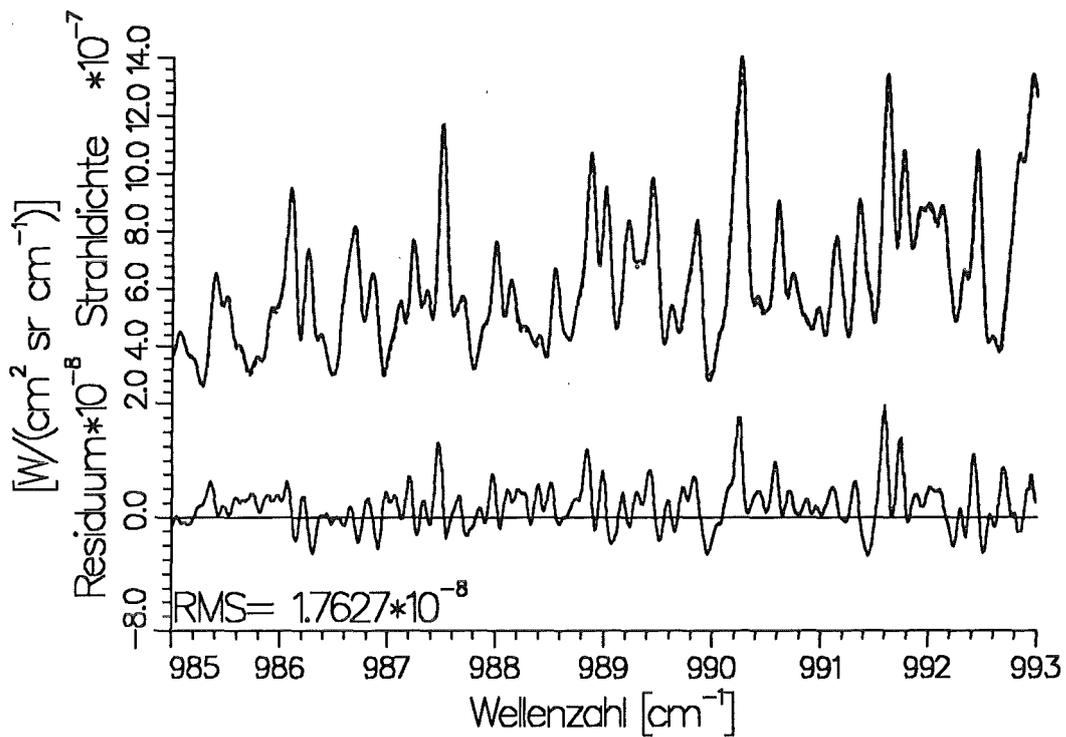


Abb. 3.8 O₃-Anpassung. Freie Parameter: O₃-Profilfaktor, additiver Untergrund.
Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

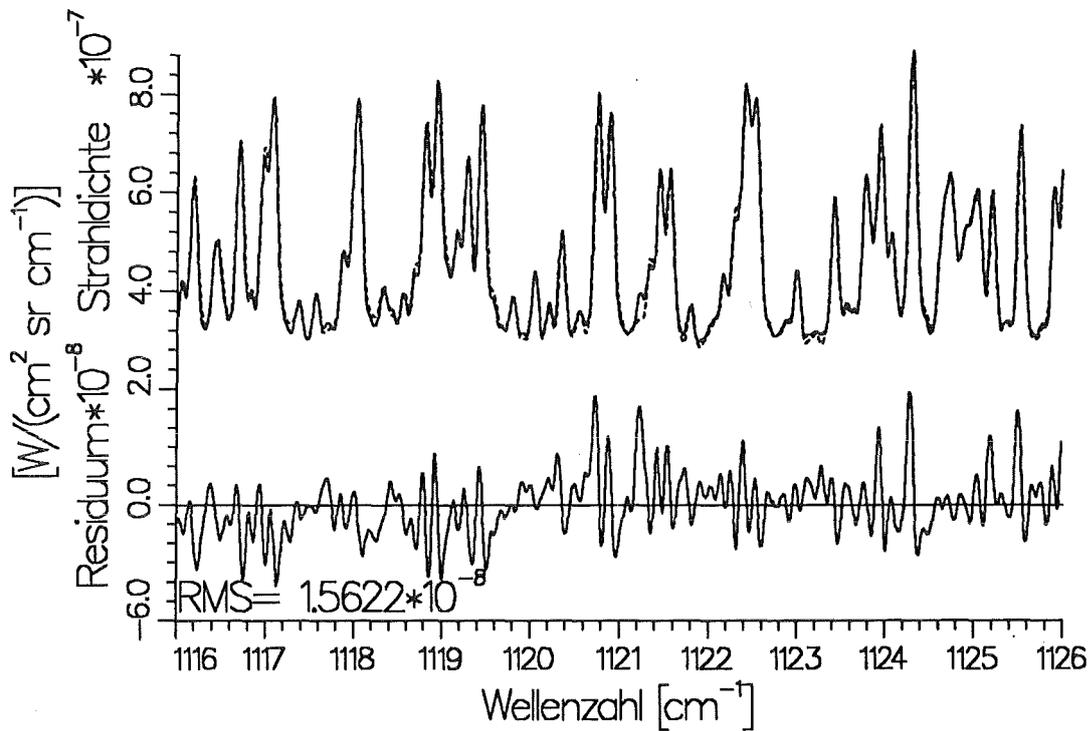


Abb. 3.9 O₃-Anpassung. Freie Parameter: O₃-Profilfaktor, additiver Untergrund.
Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

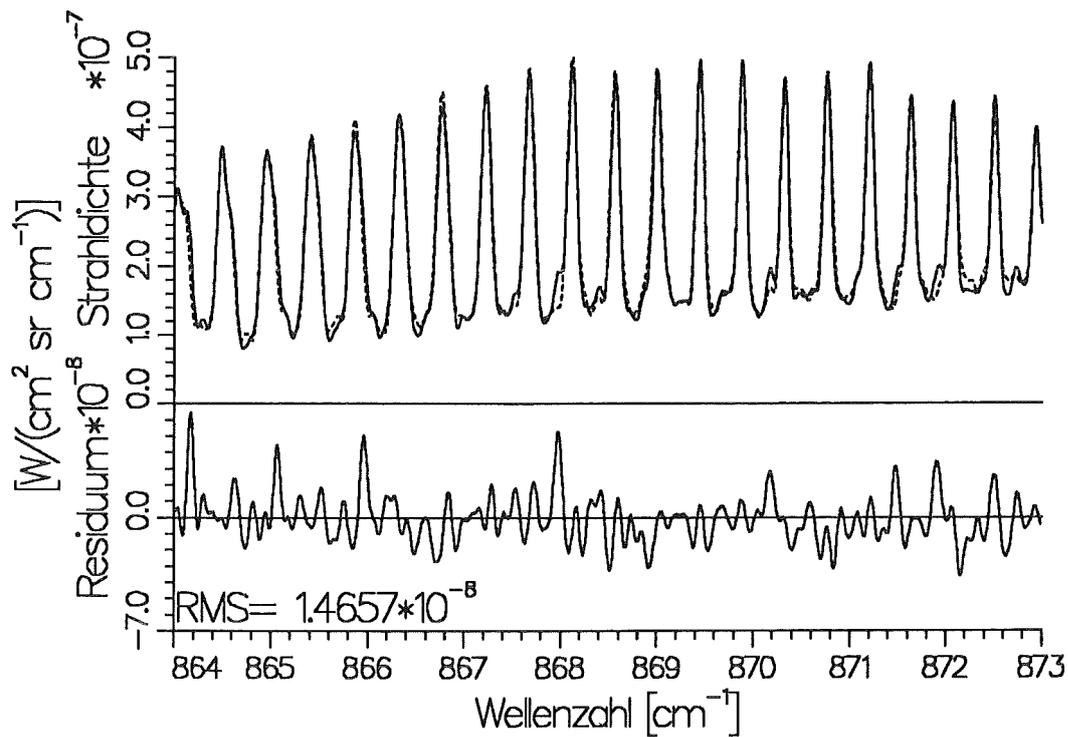


Abb. 3.10 HNO₃-Anpassung. Freie Parameter: HNO₃-Profilmfaktor, H₂O-Profilmfaktor, additiver Untergrund.

Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

Bei der schlecht angepaßten Struktur bei 868 cm⁻¹ handelt es sich um eine NH₃-Linie.

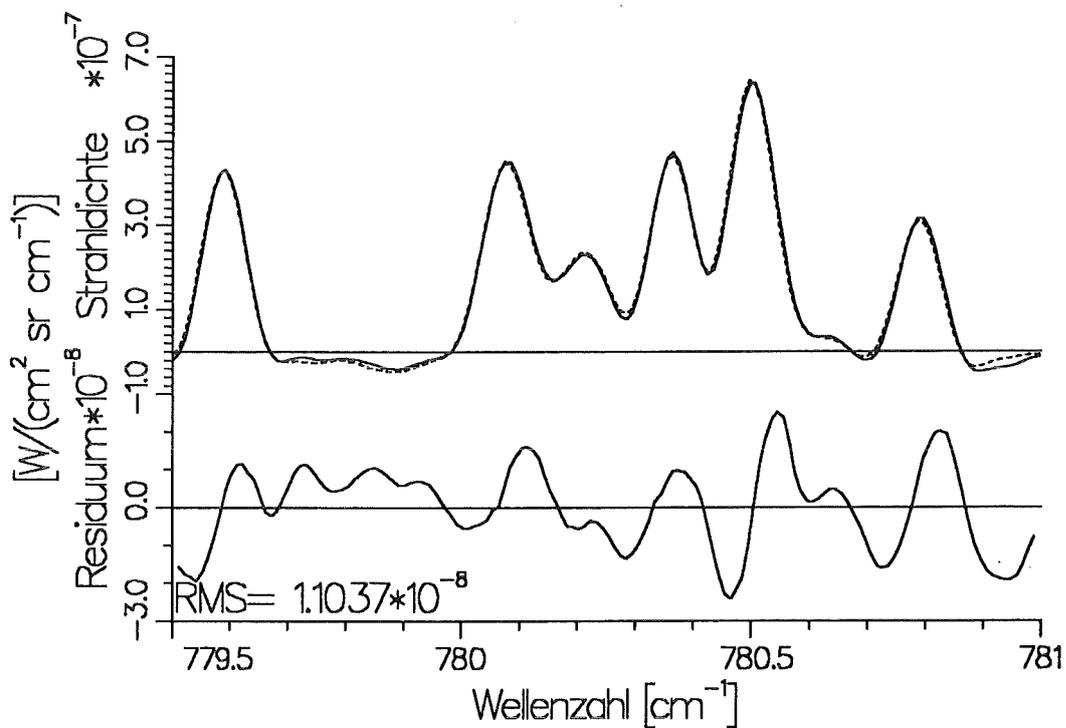


Abb. 3.11 ClONO₂-Anpassung. Freie Parameter: ClONO₂-Profilmfaktor, additiver Untergrund. O₃-Resultate aus O₃-Anpassung (s.o.) übernommen oder als zusätzlichen freien Parameter mit angepaßt.

Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

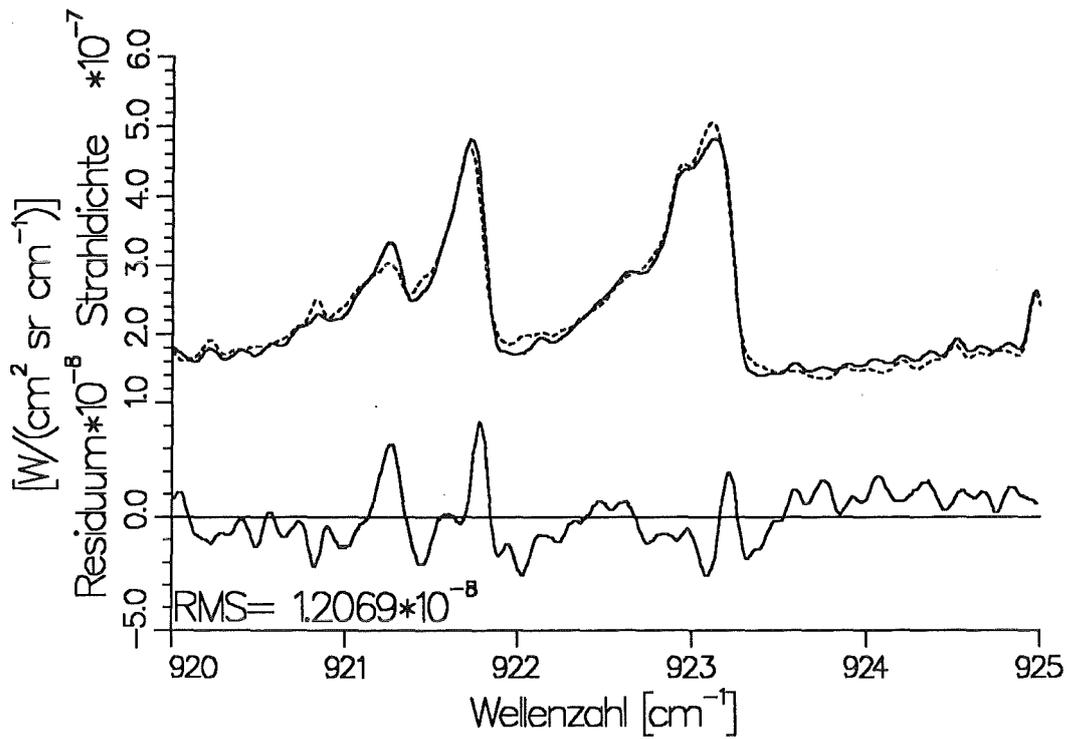


Abb. 3.12 F12-Anpassung. Freie Parameter: F12-Profilfaktor, H₂O-Profilfaktor, additiver Untergrund.
Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

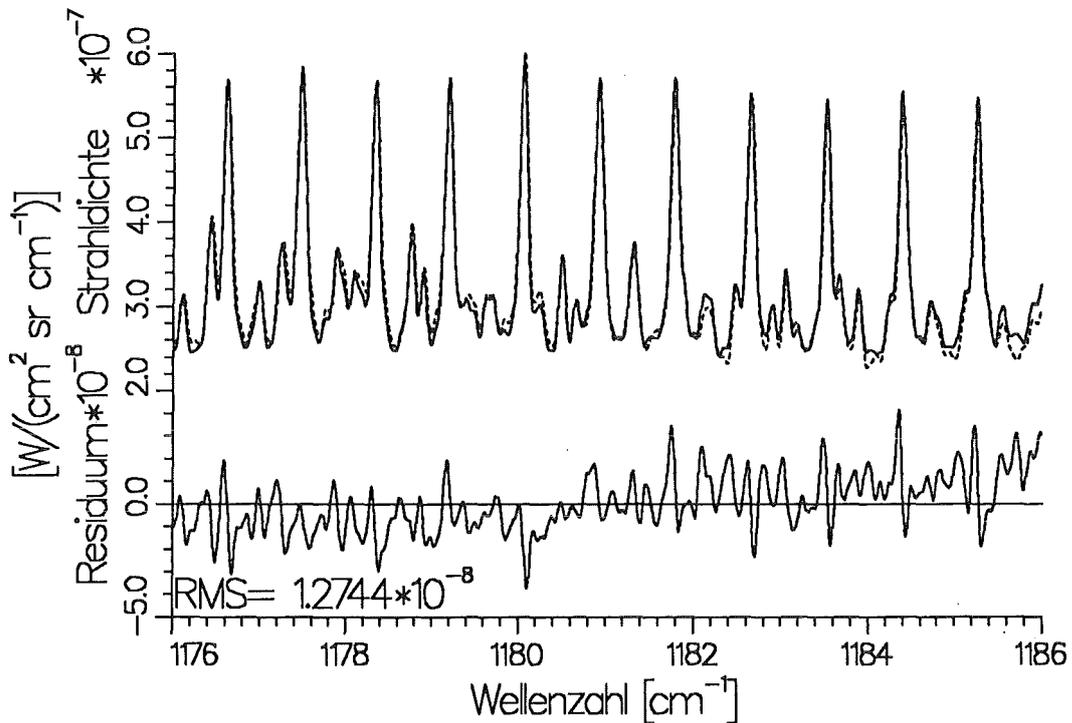


Abb. 3.13 N₂O-Anpassung. Freie Parameter: N₂O-Profilfaktor, additiver Untergrund.
Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

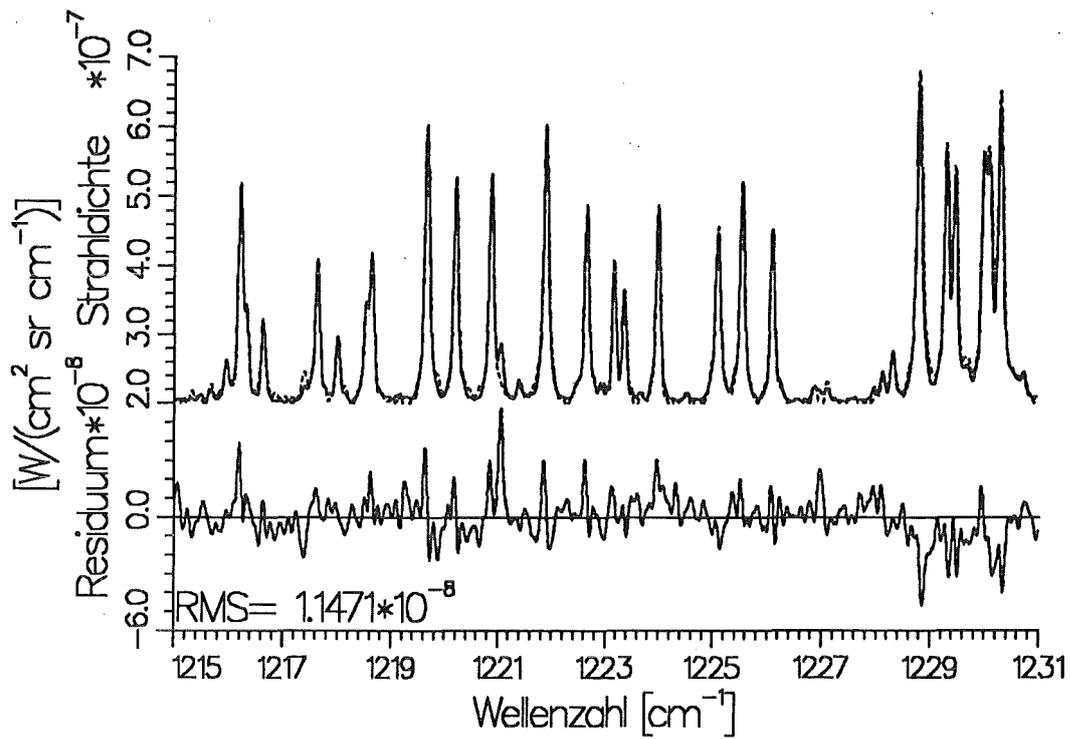


Abb. 3.14 CH_4 -Anpassung. Freie Parameter: CH_4 -Profilfaktor, H_2O -Profilfaktor, additiver Untergrund.

Durchgezogen: Rechnung, gestrichelt: Messung.

Bei der schlecht angepaßten Struktur bei 1221 cm^{-1} handelt es sich um eine HDO-Linie.

4.1 Überblick über die Fehlerquellen

In der beschriebenen Auswertestrategie von MIPAS-FT können an zahlreichen Stellen Fehler entstehen, die sich auf die Genauigkeit der abgeleiteten Säulengehalte auswirken. Die verschiedenen Fehlerquellen sind in Tabelle 4.1 zusammengefaßt.

Interferogramm und Spektrum	Kalibrierung	CO ₂ -Korrektur	Spurengasbestimmung
<ul style="list-style-type: none"> - Koaddition (2.1.1) - Wolken (2.1.2) - Spikes (2.1.3) - Rollwinkel (2.1.4) - Vibrationen (2.1.5) - Spektrales Rauschen (I.7) - Phasenkorrektur (2.2.3) 	<ul style="list-style-type: none"> - Temperatur des Schwarzkörpers (2.3.5.1) - Emissivität des Schwarzkörpers (2.3.5.2) - Nichtlineare Änderung der Verstärkungsfunktion (2.3.5.3, I.11) 	<ul style="list-style-type: none"> - Gesichtsfeld (I.1) - Elevationswinkel (I.2) - spektrale Auflösung (I.3) - Temperaturprofil (I.4) - Spektroskopische Daten (I.6) - Störgase (I.7) - Flughöhe (I.8) - Aerosol (I.10) 	<ul style="list-style-type: none"> - wie unter CO₂-Korrektur - Form der Vertikalverteilung der Spurengase (I.5)

Tabelle 4.1 Fehlerquellen in der Auswertekette von MIPAS-FT. In Klammern sind die Kapitel angegeben, in denen die Fehler näher diskutiert werden.

Einige der aufgeführten Fehlerquellen wurden weiter vorne schon diskutiert. Um die Fehler, die im Verlauf der Inversionsrechnung bei der CO₂-Korrektur und der Spurengasbestimmung auftreten, zu quantifizieren, wurde für beispielhafte Messungen die Auswertung mit veränderten Eingabeparametern wiederholt. Hierzu war es notwendig, die Fehler dieser Parameter realistisch abzuschätzen. Im einzelnen ist dies in Anhang I beschrieben.

4.2 Zusammenfassung der Fehler

In den folgenden Tabellen 4.2 und 4.3 werden die verschiedenen Fehlerquellen, die in Anhang I detailliert betrachtet werden, zusammengefaßt. Der Gesamtfehler in den Säulengehalten der Spurengase teilt sich auf in einen statistischen und einen systematischen Beitrag, die jeweils über die Gaußsche Fehlerfortpflanzung aus den Einzelfehlern hergeleitet werden. Zum systematischen Beitrag zählen diejenigen Fehlerquellen, die bei allen Auswertungen die gleichen Fehler erzeugen. Dies sind zum einen die Ungenauigkeiten der spektroskopischen Daten und zum anderen die Probleme, die bei der Rechnung mit FASCOD2 festgestellt wurden. Die Zuordnung des Aerosolfehlers ist nicht eindeutig. Er wird im folgenden als systematisch betrachtet, da im Verlauf eines Winters der Aerosolbeitrag bei allen Anpassungsrechnungen nicht geändert wurde (siehe dazu Anhang I.10).

Der statistische Fehler setzt sich aus den übrigen Beiträgen zusammen. Dieser Fehler muß bei Vergleichen innerhalb unserer Messungen, d.h. zwischen einzelnen Flügen, Kampagnen oder Wintern, als Kriterium herangezogen werden. Bei den in den Tabellen angegebenen systematischen Fehlern handelt es sich um Fehlerobergrenzen im Gegensatz zu den statistischen Fehlern, die Standardabweichungen darstellen.

Betrachtet man sich den statistischen Fehler der einzelnen Spurengase, so fällt auf, daß er bei Auswertungen oberhalb von 985 cm^{-1} sehr hohe Werte annimmt. Dies hat im wesentlichen zwei Ursachen. Zum einen macht sich hier, weit entfernt von den zur CO_2 -Korrektur verwendeten Spektralintervallen, die nichtlineare Änderung der Gerätefunktion deutlich bemerkbar. Zum anderen zeigen die Ozonauswertungen in diesem Bereich eine stärkere Temperaturabhängigkeit im Vergleich zu derjenigen bei 780 cm^{-1} .

Die drei stratosphärischen Spurengase HNO_3 , O_3 (bei 780 cm^{-1}) und ClONO_2 , die in dieser Arbeit vor allem von Interesse sind, zeigen vergleichsweise geringe Fehler. Ihre einfachen Standardabweichungen liegen im Winter 1991/92 (1992/93) für HNO_3 bei 6.7% (7.3%), für O_3 bei 10.7% (7.4%) und für ClONO_2 bei $\pm 17\% \pm 0.73 \cdot 10^{15}\text{ cm}^{-2}$ ($\pm 7.2\% \pm 0.28 \cdot 10^{15}\text{ cm}^{-2}$). Die Nachweisgrenze von ClONO_2 liegt im Winter 1991/92 (1992/93) bei $2.2 \cdot 10^{15}\text{ cm}^{-2}$ ($0.84 \cdot 10^{15}\text{ cm}^{-2}$).

Vergleicht man Meßpunkte während eines einzelnen Flugs, so sind die statistischen Fehler, vor allem dann, wenn keine größeren Gradienten in der Atmosphäre durchflogen werden, sicherlich geringer. Ein Hinweis dafür ist beispielsweise der Flug vom 31.1.1993. Hier stimmt der Verlauf der gemessenen ClONO_2 -Säulengehalte sehr gut mit einer Modellrechnung überein (*Chipperfield et al., 1994*).

Tabelle 4.2 Fehlertabelle für den Winter 1991/92.

Fehlerquelle	Fehler in der Skalierung (CO ₂) bzw. in den Säulengehalten oberhalb der Transall (andere Gase)									
	CO ₂ (801-812)	CO ₂ (940-950)	HNO ₃ (863-873)	O ₃ (776-786)	O ₃ (985-995)	O ₃ (1116-1126)	ClONO ₂ (779.5-781)	N ₂ O (1176-1186)	CH ₄ (1215-1231)	F12 (920-925)
Kalibrierung ¹	-	-	0.9%	1.3%	2.2%	7.3%	0.5%	6.5%	10.2%	0.9%
†statistischer T-Fehler ²	1.1%	2.3%	3.6%	3.3%	9.6%	11.5%	3.0%	2.5%	3.1%	1.3%
†systematischer T-Fehler ³	3.3%	5.6%	2.7%	1.0%	5.9%	10.6%	3.1%	8.7%	10.5%	3.9%
†systematischer T-Fehler > 10 hPa ⁴	1.1%	1.9%	1.0%	3.7%	2.2%	4.2%	7.3%	3.8%	4.8%	1.9%
†Winkel ⁵	2.5%	3.1%	0.8%	3.0%	3.5%	7.8%	0.4%	8.7%	9.2%	2.0%
VMR-Profil ⁶	-	-	4.2%	8.3%	21%	24%	15%	8.3%	11.6%	3.0%
Auflösung ⁷	-	-	2.0%	1.7%	1.4%	2.6%	1.0%	1.6%	1.6%	0.5%
Rauschen ⁸	0.9%	1.8%	0.6%	2.8%	1.3%	4.3%	0.7·10 ¹⁵ cm ⁻²	1.5%	2.3%	2.3%
Störgas	0.7% ⁹	*	*	*	*	*	0.2·10 ¹⁵ cm ⁻² 10	2.5% ⁹	*	*
<i>statistischer Fehler</i>	-	-	6.7%	10.7%	24.3%	31.3%	17.3% ±0.73 ·10 ¹⁵ cm ⁻²	17.1%	21.8%	6.3%
spektrosk. Daten ¹¹	1-3 %	1-4 %	5-10 %	5-8 %	5-9 %	5-9 %	-15% - +10%	2-8 %	2-5 %	15%
†Aerosol	1.0%	0.7%	1.0%	1.4%	5.1%	6.5%	0.7%	5.4%	7.8%	0.7%
†FASCOD2 Apod.	6.3%	5.1%	2.8%	3.2%	8.7%	11.5%	1.2%	9.3%	10.5%	3.2%
<i>systematischer Fehler</i>	-	-	5.8-10.4%	6.1-8.7%	11.3-13.5%	14.1-15.3%	-15.1 - +10.1%	10.9-13.4%	13.2-13.9%	15.4%
¹ Kalibrierfehler 0.8% < 1000cm ⁻¹ , 4%: 1120cm ⁻¹ , 5.5%: 1180cm ⁻¹ , 7%: 1220cm ⁻¹ ² T-Profil: RMS 2K ³ T-Profil: 1K Offset ⁴ T-Profil > 10 hPa: 10K Offset ⁵ Beobachtungswinkel: 0.3° Offset			⁶ VMR-Profil: 2km verschoben ⁷ Auflösung: RMS 0.002cm ⁻¹ ⁸ NESR: 1·10 ⁻⁸ W/(cm ² sr cm ⁻¹) ⁹ O ₃ Variation um 10% ¹⁰ O ₃ Variation um 10%, CO ₂ um 5%				¹¹ Linienstärke Σ, Halbwertsbreite γ, Absorptionsquerschnitt α: CO ₂ (Σ: 2-5%, γ: 5-10%), HNO ₃ (Σ: 5-10%, γ: 5-10%), O ₃ (Σ: 5-8%, γ: 5-10%), ClONO ₂ (α: -10- +15%), N ₂ O (Σ: 2-8%, γ: 5-10%), CH ₄ (Σ: 2-5%, γ: 1-2%), F12 (α: 15%) † Schließt Fehler durch CO ₂ -Korrektur ein * Fehler kleiner 0.2%			

Tabelle 4.3 Fehlertabelle für den Winter 1992/93.

Fehlerquelle	Fehler in der Skalierung (CO ₂) bzw. in den Säulengehalten oberhalb der Transall (andere Gase)									
	CO ₂ (801-812)	CO ₂ (940-950)	HNO ₃ (863-873)	O ₃ (776-786)	O ₃ (985-995)	O ₃ (1116-1126)	ClONO ₂ (779.5-781)	N ₂ O (1176-1186)	CH ₄ (1215-1231)	F12 (920-925)
Kalibrierung ¹	-	-	1.5%	1.9%	1.9%	10.8%	0.6%	10.3%	17.5%	0.9%
†statistischer T-Fehler ²	1.7%	2.2%	3.8%	4.3%	9.6%	8.8%	3.0%	1.1%	1.3%	1.1%
†systematischer T-Fehler ³	4.2%	5.6%	3.4%	2.2%	5.2%	8.5%	3.4%	7.2%	7.7%	4.1%
†systematischer T-Fehler > 10 hPa ⁴	1.5%	2.0%	1.2%	1.9%	2.5%	2.8%	1.0%	6.0%	6.5%	2.1%
†Winkel ⁵	2.3%	3.1%	0.4%	0.5%	3.0%	3.5%	0.5%	1.9%	3.5%	0.7%
VMR-Profil ⁶	-	-	4.6%	4.3%	12.5%	15.1%	5.4%	2.2%	5.8%	1.0%
Auflösung ⁷	-	-	0.8%	1.4%	0.9%	1.2%	0.1%	0.9%	0.9%	0.3%
Rauschen ⁸	0.9%	0.4%	1.2%	1.8%	0.5%	0.8%	0.2·10 ¹⁵ cm ⁻²	1%	0.9%	1.7%
Störgas	0.5% ⁹	*	*	*	*	*	0.2 · 10 ¹⁵ cm ⁻² 10	2.0% ⁹	*	*
<i>statistischer Fehler</i>	-	-	7.3%	7.4%	17.2%	22.7%	7.2% ±0.28 ·10 ¹⁵ cm ⁻²	14.5%	21.4%	5.3%
spektrosk. Daten ¹¹	1-3 %	1-4 %	5-10 %	5-8 %	5-9 %	5-9 %	-15% - +10%	2-8 %	2-5 %	15%
†Aerosol	1.1%	2.8%	1.0%	0.7%	2.7%	7.9%	0.4%	6.2%	8.2%	1.0%
†FASCOD2 Apod.	6.7%	4.0%	2.5%	3.0%	9.0%	10%	1.5%	10%	10%	2.8%
<i>systematischer Fehler</i>	-	-	5.7-10.4%	5.9-8.6%	10.6-13.0%	13.7-15.6%	-15.1 - +10.1%	11.9-14.2%	13.1-13.9%	15.3%
¹ Kalibrierfehler 0.8% < 1000cm ⁻¹ , 4%: 1120cm ⁻¹ , 5.5%: 1180cm ⁻¹ , 7%: 1220cm ⁻¹ ² T-Profil: RMS 2K ³ T-Profil: 1K Offset ⁴ T-Profil > 10 hPa: 10K Offset ⁵ Beobachtungswinkel: 0.3° Offset			⁶ VMR-Profil: 2km verschoben ⁷ Auflösung: RMS 0.002cm ⁻¹ ⁸ NESR: 1·10 ⁻⁸ W/(cm ² sr cm ⁻¹) ⁹ O ₃ Variation um 10% ¹⁰ O ₃ Variation um 10%, CO ₂ um 5%				¹¹ Liniestärke Σ, Halbwertsbreite γ, Absorptionsquerschnitt α: CO ₂ (Σ: 2-5%, γ: 5-10%), HNO ₃ (Σ: 5-10%, γ: 5-10%), O ₃ (Σ: 5-8%, γ: 5-10%), ClONO ₂ (α: -10-+15%), N ₂ O (Σ: 2-8%, γ: 5-10%), CH ₄ (Σ: 2-5%, γ: 1-2%), F12 (α: 15%) † Schließt Fehler durch CO ₂ -Korrektur ein * Fehler kleiner 0.2%			

4.3 Das Problem bei der Ozonauswertung

Eine bisher ungeklärte Inkonsistenz systematischer Natur stellt das sogenannte 'Ozonproblem' bei der Auswertung der Spektren von MIPAS-FT dar. Die Unstimmigkeit liegt darin, daß für unterschiedliche Spektralbereiche verschiedene Ergebnisse für Ozon erzielt wurden. Der Verlauf der Ergebnisse zeigt bei fast allen Flügen einen systematischen Trend hin zu einer Abnahme der Säulengehalte bei höheren Wellenzahlen. Bezogen auf die abgeleiteten Ozonsäulengehalte im Bereich von 780 cm^{-1} liegen diejenigen bei 990 cm^{-1} im Winter 1991/92 (1992/93) um durchschnittlich 18% (13%) und bei 1120 cm^{-1} um 34% (32%) tiefer. Die Tendenz zu niedrigen Resultaten bei höheren Wellenzahlen zeigt sich auch in den abgeleiteten Säulengehalten von N_2O (bei 1180 cm^{-1}) und CH_4 (bei 1230 cm^{-1}), die um 20-30% zu kleine Werte liefern.

Die Ursache dieser Unstimmigkeit muß prinzipiell in zwei unterschiedlichen Bereichen der Auswertung gesucht werden. Denkbar ist ein Fehler entweder im kalibrierten Spektrum oder in der Simulation der atmosphärischen Strahlung. Vermutungen in Bezug auf eine nichtlineare, temperaturabhängige Gerätefunktion wurden im wesentlichen von *Schlipper (1994)* widerlegt. Möglicherweise könnte der Effekt auch durch die Vibrationen des Geräts verursacht werden. Als Fehlerquelle im Bereich des simulierten Spektrums bot sich das nicht gut beschriebene Aerosol an. Rechnungen von *Echle (1994)* ergaben, daß dies zwar einen gewissen Teil des Effekts erklären könnte, jedoch nicht das volle Ausmaß. An einer genaueren Untersuchung des Aerosolproblems wird im IMK gearbeitet; durch die Abnahme des stratosphärischen Aerosolgehalts in den Jahren nach dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo sollten exaktere Aussagen bald möglich sein.

Da im Gegensatz zu N_2O und CH_4 die Ergebnisse von F12 bei 920 cm^{-1} und die in den CO_2 -Bereichen bestimmten Korrekturfaktoren keinen systematischen Trend aufzeigen, kann davon ausgegangen werden, daß im wesentlichen der kürzerwellige Spektralbereich ab 1000 cm^{-1} von diesem Effekt betroffen ist. Jedenfalls darf diese Problematik, vor allem bei Vergleichen mit anderen Experimenten oder Modellrechnungen, als möglicher zusätzlicher systematischer Fehler nicht außer Acht gelassen werden.

5.1 Bisherige Messungen von HNO_3 und ClONO_2

Um einen Überblick über die bisherigen Messungen von Salpetersäure und Chlornitrat in der Atmosphäre zu geben, werden in den beiden folgenden Abschnitten einige Säulengehaltmessungen und aus Höhenprofilen berechnete Säulengehalte dieser beiden Spurengase bis zum Beginn der Transalkampagnen im Winter 1991/92 aufgeführt. Danach sind die bisher veröffentlichten Meßergebnisse aus den Wintern 1991/92 und 1992/93 aufgelistet, die parallel zu den Transalkampagnen durchgeführt wurden. Da die Spurengase HNO_3 und ClONO_2 einen wesentlichen Anteil des gesamten NO_y und zeitweise auch des Cl_y darstellen, werden zum Schluß einige Messungen und Abschätzungen der Säulengehalte von NO_y und Cl_y innerhalb und außerhalb des Polarwirbels aufgeführt.

5.1.1 HNO_3 bis 1991

Seit *Murcray et al. (1968)* mittels eines ballongetragenen Infrarotspektrometers zum ersten Mal HNO_3 in der Stratosphäre nachgewiesen hatten, gab es eine Fülle von Messungen dieses Spurengases. Dabei wurden hauptsächlich Fernerkundungsgeräte (Filterradiometer, Gitterspektrometer, Interferometer) von den verschiedensten Plattformen (Boden, Flugzeuge, Stratosphärenballons, Satelliten) aus eingesetzt. Zusätzlich wurden auch über in-situ-Methoden Höhenprofile von HNO_3 gemessen. In den siebziger Jahren wurden Breitenschnitte in mittleren bis tiefen Breiten der Nord- und Südhemisphäre aufgenommen. Aufgrund des verstärkten Interesses an der polaren Stratosphäre nach der Entdeckung des Ozonlochs wurden in den achtziger Jahren viele Messungen von HNO_3 auch in hohen Breiten durchgeführt.

Abbildung 5.1 faßt die Ergebnisse einiger Experimente zusammen. Die ausgeprägte Breitenabhängigkeit des Säulengehalts von HNO_3 ist deutlich erkennbar. Ein jahreszeitlicher Zyklus mit maximalen Werten im Winter wurde in höheren Breiten ($> 45^\circ$) festgestellt. Trendanalysen der Messungen vom Jungfrauoch bzw. von Kitt Peak aus zeigen keine eindeutige langfristige Tendenz im HNO_3 -Säulengehalt (*Rinsland et al., 1991*).

HNO_3 -Säulengehalte in polaren Breiten wurden im wesentlichen durch Flugzeugmessungen und von Bodenstationen aus gewonnen. Einige dieser Messungen sind in Abbildung 5.1 eingetragen, sofern es sich um Breitenschnitte bzw. um Messungen von Bodenstationen aus handelt. Da die geographische Breite bei polaren Wintermessungen keine optimale Koordinate darstellt, sind diese Messungen in Tabelle 5.1 nach der relativen Lage bezüglich des Polarwirbels zusammengefaßt.

Frühe Flugzeugmessungen wurden von *Williams et al. (1982)* im November 1978 mit einem Gitterspektrometer in Emission bis über den Südpol durchgeführt. Es handelte sich dabei allerdings um Messungen im Sommer nach dem Zusammenbruch des antarktischen Wirbels. In den folgenden Jahren wurden im Dezember 1980, im November 1986 und im antarktischen Frühling 1986 und 1987 Messungen mit FTIR-Spektrometern von der amerikanischen Antarktisstation McMurdo und von der Amundsen-Scott Südpolstation aus vorgenommen (*Murcray et al., 1987 und 1989, Farmer et al., 1987*).

Im Rahmen der amerikanischen Flugzeugkampagne AAOE fanden im September 1987 eine Reihe von Flügen südlich von 60°S statt. Dabei wurden auf der DC-8 mit zwei Fourier-spektrometern solare Absorptionsspektren aufgenommen (Coffey et al., 1989, Toon et al., 1989). In Richtung Wirbelinneres wurden dabei deutlich abnehmende Werte der Säulengehalte von HNO₃ festgestellt, die auf eine Denitrifizierung innerhalb des antarktischen Polarwirbels hindeuteten.

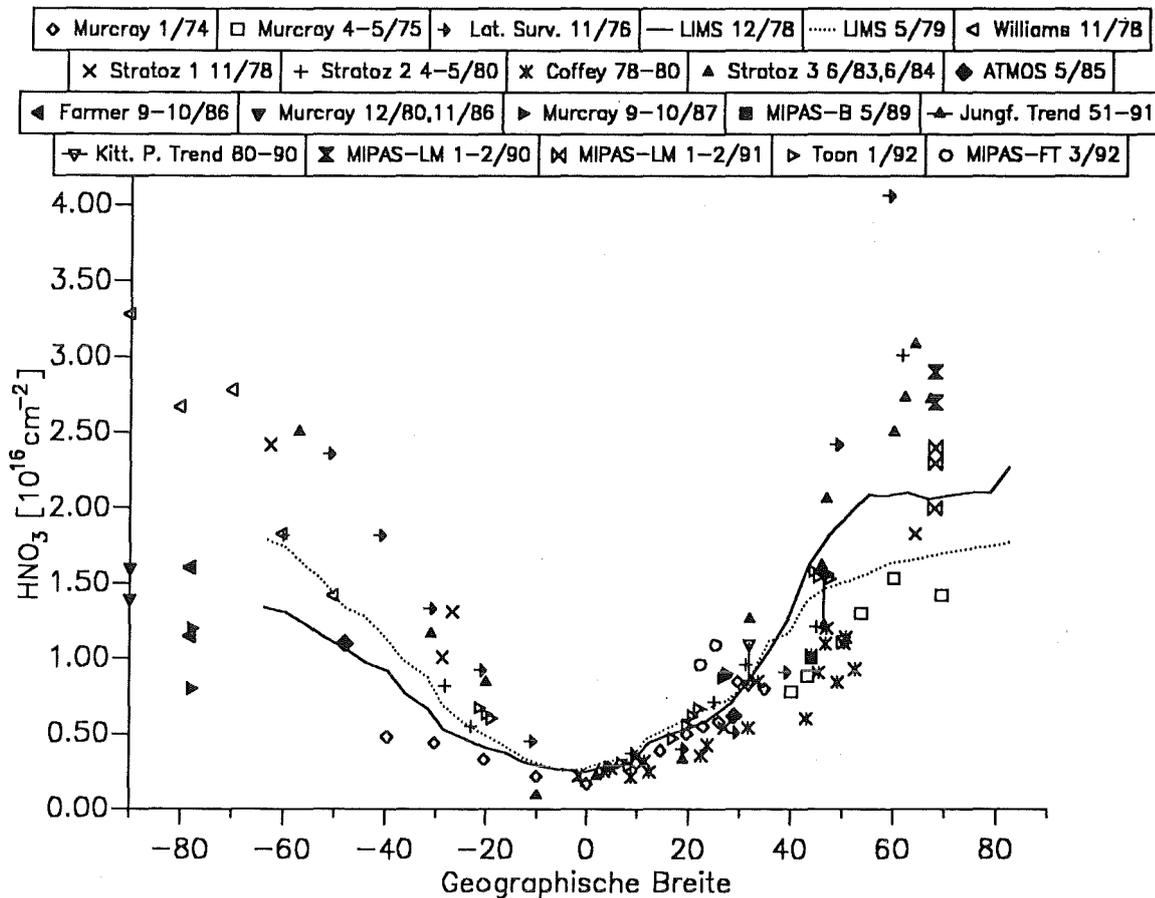


Abb. 5.1 Breitenabhängigkeit der HNO₃-Säulengehalte. Über das Jahr 1991 hinaus sind Flugzeugmessungen in niederen Breiten von Toon et al., 1993 und MIPAS-FT eingezeichnet. Weitere Messungen aus hohen nördlichen und südlichen Breiten sind in Tabelle 5.1 nach ihrer relativen Lage zum Polarwirbel geordnet.

Murcroy 74: Murcroy et al., 1975, Murcroy 75: aus Gille et al., 1984, Lat. Surv.: Girard et al., 1979, LIMS: Gille et al., 1984, Williams: Williams et al., 1982, Stratoz 1: Girard et al., 1980, Stratoz 2: Girard et al., 1983, Coffey: Coffey et al., 1981, Stratoz 3: Karcher et al., 1988, ATMOS: Russel et al., 1988, Farmer: Farmer et al., 1987, Murcroy 80, 86: Murcroy et al., 1987, Murcroy 87: Murcroy et al., 1989, MIPAS-B: v. Clarmann et al., 1993, Jungf./Kitt. P. Trend: Rinsland et al., 1991, Zander, 1993, MIPAS-LM: Adrian et al., 1991, 1992., Toon: Toon et al., 1993, MIPAS-FT: diese Arbeit.

Untersuchungen der nördlichen winterlichen Stratosphäre wurden während AASE Anfang 1989 wiederum von der DC-8 aus durchgeführt (Mankin et al., 1990, Toon et al., 1992b). Im Gegensatz zur Antarktis waren jetzt die HNO₃-Säulengehalte im Vortexinneren am höchsten. Dies wurde einerseits auf diabatisch abgesunkene Luft und andererseits auf heterogene chemische Prozesse zurückgeführt. Es gab keine Hinweise darauf, daß HNO₃, wie über dem Südpolargebiet, aus der Gasphase entfernt war.

In den folgenden beiden Wintern wurden mit dem Fourierspektrometer MIPAS-LM HNO₃-Säulengehalte von Esrange in Nordschweden aus gemessen. Die Ergebnisse weisen den AASE-Messungen vergleichbar hohe Werte auf.

Massenspektroskopische in-situ Bestimmungen von HNO₃-Höhenprofilen in der Arktis wurden von Esrange aus durchgeführt. Dabei ergaben sich Hinweise auf Kondensation von HNO₃ in PSCs (Arnold et al., 1989).

Zeit	Ort	Plattform	Gerät	Referenz	HNO ₃ -Säulengehalt in 10 ¹⁶ cm ⁻²		
					Außen	Rand	Innen
11/78	50°S - 90°S	Fl	GS/E	Williams et al., 1982	1.5 - 3.5		
12/80 11/86	90°S	Bo	FTIR/sA	Murcraey et al., 1987	1.6 1.4		
8.9.- 24.10.86	78°S	Bo	FTIR/sA	Farmer et al., 1987		1.1 - 2.0	0.9 - 1.5
9.9.- 31.10.87	78°S	Bo	FTIR/sA	Murcraey et al., 1989			0.8 - 1.2
5.9.- 2.10.87	28°S 65°S-87°S	Fl	FTIR/sA	Toon et al., 1989	1.1	1.8	0.5
22.8.- 2.10.87	28°S 65°S-87°S	Fl	FTIR/sA	Coffey et al., 1989	1.1	1.5	0.4
1.2.88	68°N	Ba	MS	Arnold und Knop, 1989			2.2 ¹
18.1.89	68°N	Ba	MS	Arnold et al., 1989			3.0
26.1.89	70°N	Fl	FTIR/sA	Mankin et al., 1990	1.5	2.0	3.1
27.12.88 - 7.2.89	35°N 61°N-73°N	Fl	FTIR/sA	Toon et al., 1992b	1.1 1.7	2.2	3.2
4.2.- 31.2.90	68°N	Bo	FTIR/sA	Adrian et al., 1991, 1992		2.8	2.9
28.1.- 15.2.91	68°N	Bo	FTIR/sA	Adrian et al., 1992	1.8 - 2.3	2.3	2.4

GS: Gitterspektrometer, FTIR: Fouriertransformationsspektrometer, MS: Massenspektrometer E: Emission, sA: solare Absorption, Bo: Bodenstation, Fl: Flugzeug.
¹ ursprünglicher Wert wurde mit dem Faktor 1.43 nach Arnold et al. (1989) korrigiert

Tabelle 5.1 Messungen des HNO₃-Säulengehalts in polaren Breiten relativ zur Wirbelgrenze.

5.1.2 HNO₃ in den arktischen Wintern 1991/92 und 1992/93

Für den Winter 1991/92 gibt es zahlreiche Messungen von HNO₃, da während dieser Zeit zum einen die europäische Kampagne EASOE und zum anderen die zweite amerikanische Flugzeugmeßkampagne AASE-II stattfand.

Im folgenden Winter 1992/93 wurden keine großen Meßkampagnen durchgeführt. Deshalb ist das verfügbare Datenmaterial wesentlich geringer.

Tabelle 5.2 faßt die bisher veröffentlichten Ergebnisse zusammen.

Zeit	Ort	Plattform	Gerät	Referenz	HNO ₃ -Säulengehalt in 10 ¹⁶ cm ⁻²		
					Außen	Rand	Innen
4.12.91-14.3.92	82°N/62°W	Ba	GS/E	Fast et al., 1993			2.8-3.8 (15.2.92: 1.9)
17.12.91-14.3.92	68°N/21°O	Ba	GS/E	Murcra et al., 1994			2.1-2.9
13.1.92-15.3.92	68°N/21°O	Ba	FTIR/E	v. Clarmann et al., 1993, Oelhaf et al., 1994			2.4 2.1
13.2.92	68°N/21°O	Ba	MS	Spreng u. Arnold, 1994		0.73-1.7	2.1
11.11.91-14.3.92	68°N/21°O	Bo	FTIR/sA	Adrian et al., 1994	11/91: 2.3 1/92: 1.2-1.5	11/91: 2.1 2/92: 2.7-3.1	2/92: 2.9 3/92: 2.6-2.8
11.2.92-24.3.92	63°N/13°O	Bo	FTIR/sA	Bell et al., 1994	1.9-2.6		
12.3.92-26.3.92	79°N/12°O	Bo	FTIR/sA	Notholt, 1994		2.3-2.6	1.9-2.3
1-3/92-12.2.92	50-84°N	Fl	FTIR/sA	Toon et al., 1992c	1.8	2.3	3.1
5.12.92-28.3.93	79°N/12°O	Bo	FTIR/sA,IA	Notholt et al., 1993 Notholt, 1994			12/92: 2.2-2.8 2/93: 1.7-2.8 3/93: 2.1

GS: Gitterspektrometer, FTIR: Fouriertransformationsspektrometer, MS: Massenspektrometer, E: Emission, sA: solare Absorption, IA: Absorption mit Mond als Quelle, Bo: Bodenstation, Fl: Flugzeug, Ba: Ballon.

Tabellè 5.2 Messungen des HNO₃-Säulengehalts in polaren Breiten 1991/92 und 1992/93 relativ zur Wirbelgrenze.

5.1.3 ClONO₂ bis 1991

Die ersten Versuche zur Identifikation von ClONO₂ in der Stratosphäre wurden anhand von Ballon-Absorptionsspektren an der Stelle des ν_2 Q-Zweigs bei 1292.6 cm⁻¹ von *Murcray et al. (1979)* unternommen. Die veröffentlichten Resultate sind allerdings zweifelhaft oder zumindest mit einem großen Fehler behaftet, da keine genauen Liniendaten zur Verfügung standen und der verwendete Spektralbereich von CH₄, N₂O und HNO₃-Linien überlagert ist (*Zander et al., 1986*). Ein weiterer Versuch wurde von *Rinsland et al. (1985)* mit Ballonspektren aus dem Jahr 1981 und neuen spektroskopischen Daten durchgeführt. Der erste eindeutige Nachweis von ClONO₂ in der Stratosphäre gelang dann *Zander et al. (1986)* bei der Auswertung von Messungen mit dem ATMOS-Interferometer auf Spacelab 3. Die angegebenen Profile wurden unter Verwendung des ν_4 Q-Zweigs bei 780.2 cm⁻¹ und Liniendaten von *Rinsland et al. (1985)* ermittelt. Eine zweite Auswertung dieser Spektren mit Liniendaten von *Ballard et al. (1988)* wurde von *Zander et al. (1990)* veröffentlicht. Die erste Bestimmung des ClONO₂-Säulengehalts aus Bodenmessungen wurde von *Zander et al. (1988)* beschrieben. Die Abbildung 5.2 zeigt eine Zusammenfassung der Säulengehaltsmessungen von Chlornitrat in mittleren und niederen Breiten zusammen mit einer Trendanalyse der Daten vom Jungfraujoch von Anfang 1986 bis Mitte 1992.

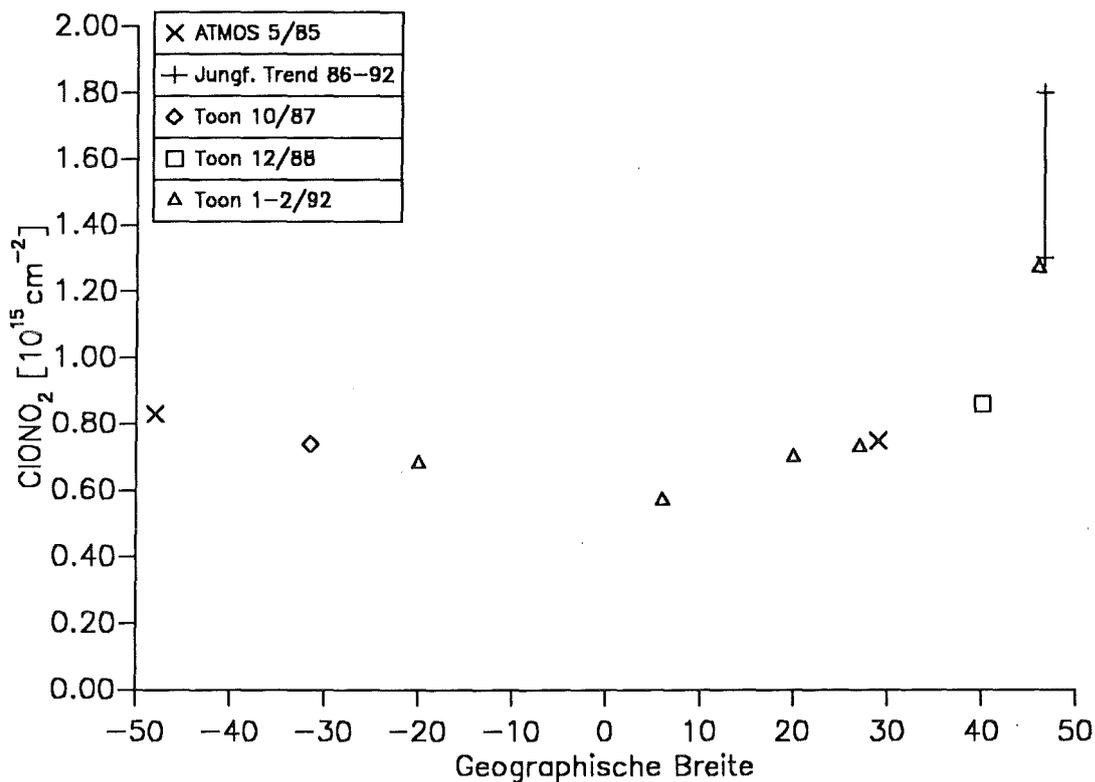


Abb. 5.2 ClONO₂-Säulengehalte in mittleren Breiten.

ATMOS: *Zander et al., 1990*, Jungf. Trend: *Zander, 1993*, Toon 87: *Toon et al., 1989*, Toon 88: *Toon et al., 1992b*, Toon 92: *Toon et al., 1993*.

ClONO₂- Säulengehaltsmessungen in polaren Breiten wurden von *Farmer et al. (1987)* für den antarktischen Frühling 1986 über McMurdo veröffentlicht. Hier zeigten sich zum er-

sten Mal höhere Werte am Vortexrand als im Inneren. Weitere ClONO₂-Daten über dem Südpolargebiet wurden auf den Flügen des AAOE gewonnen (Coffey et al., 1989, Toon et al., 1989). Auch dabei traten deutlich erhöhte Werte am Wirbelrand auf, die jetzt als ClONO₂-'Kragen' um den Polarwirbel bezeichnet wurden.

Dieser Kragen wurde auch während der AASE-Kampagne in der Arktis festgestellt (Mankin et al., 1990, Toon et al., 1992b).

Zeit	Ort	Plattform	Gerät	Referenz	ClONO ₂ -Säulengehalt in 10 ¹⁵ cm ⁻²		
					Außen	Rand	Innen
8.9.- 24.10.86	78°S	Bo	FTIR/sA	Farmer et al., 1987		2.5 - 4.5	1.5 - 2.5
5.9.- 2.10.87	28°S 65°S-87°S	Fl	FTIR/sA	Toon et al., 1989	0.7	4.5	1.0
19.9.- 26.9.87	70°S-84°S	Fl	FTIR/sA	Coffey et al., 1989	0.9	3.0	1.3
26.1.89	70°N	Fl	FTIR/sA	Mankin et al., 1990	1.7	4.0	1.5
27.12.88 - 7.2.89	35°N 61°N-73°N	Fl	FTIR/sA	Toon et al., 1992b	0.9 1.4	3.0	1.0

FTIR: Fouriertransformationsspektrometer, sA: solare Absorption, Bo: Bodenstation, Fl: Flugzeug.

Tabelle 5.3 Messungen des ClONO₂-Säulengehalts in polaren Breiten relativ zur Wirbelgrenze.

5.1.4 ClONO₂ in den arktischen Wintern 1991/92 und 1992/93

Wie im Fall von HNO₃ gibt es für den Winter 1991/92 mehr Messungen von ClONO₂ als in den Jahren zuvor. Ein wichtiges Ergebnis war die erstmalige Bestimmung von ClONO₂-Höhenprofilen im arktischen Polarwirbel (v. Clarmann et al., 1993, Oelhaf et al., 1994). Diese zeigten im März eine drastische Zunahme von ClONO₂ in der unteren Stratosphäre. Auch Bodenmessungen (Adrian et al., 1994, Notholt et al., 1994) spiegelten diesen starken Anstieg von ClONO₂ gegen Ende des arktischen Winters wider.

Für den Winter 1992/93 wurden bisher lediglich von Notholt et al. (1993) Messungen von ClONO₂ veröffentlicht.

Eine Zusammenfassung der ClONO₂-Messungen von 1991/92 und 1992/93 gibt die Tabelle 5.4.

Zeit	Ort	Plattform	Gerät	Referenz	ClONO ₂ -Säulengehalt in 10 ¹⁵ cm ⁻²		
					Außen	Rand	Innen
13.1.92 15.3.92	68°N/21°O	Ba	FTIR/E	v. Clarmann et al., 1993, Oelhaf et al., 1994			1.1 5.3
20.11.91- 14.3.92	68°N/21°O	Bo	FTIR/sA	Adrian et al., 1994		11/91: 1.6 1/92: 2.2 3/92: 5.4	2/92: 3.2 3/92: 6.9-7.2
24/25.1.92	63°N/13°O	Bo	FTIR/sA	Bell et al., 1994	0.95-1.15		
1-3/92	50-84°N	Fl	FTIR/sA	Toon et al., 1992c	1.2	1/92: 2.0 2/92: 4.0	1/92: 1.0 2/92: 2.0-4.0 3/92: 5.1
12.3.92- 24.3.92	79°N/12°O	Bo	FTIR/sA	Notholt et al., 1994	2.7-3.9	4.0-4.6	2.8-6.8
6.12.92- 8.2.93	79°N/12°O	Bo	FTIR/IA	Notholt et al., 1993			12/92: 1.1-4.2 2/93: <0.5-0.6

GS: Gitterspektrometer, FTIR: Fouriertransformationsspektrometer, E: Emission, sA: solare Absorption, IA: Absorption mit Mond als Quelle, Bo: Bodenstation, Fl: Flugzeug, Ba: Ballon.

Tabelle 5.4 ClONO₂-Säulengehalt in polaren Breiten 1991/92 und 1992/93 relativ zur Wirbelgrenze.

5.1.5 NO_y und Cl_y

Berechnungen des Säulengehalts von NO_y in der Stratosphäre wurden für mittlere Breiten von Russell et al. (1988) anhand von ATMOS-Messungen durchgeführt. Hierbei ergab sich bei 30°N im Höhenbereich von 13.5 km - 53.5 km ein Säulengehalt von 1.5·10¹⁶ cm⁻² und bei 50°S 1.8·10¹⁶ cm⁻².

Toon et al. (1989) bestimmten in der Antarktis Säulengehalte von NO_y aus ihren Flugzeugmessungen. Dazu verwendeten sie zwei verschiedene Methoden: zum einen wurde NO_y als die Summe der gemessenen Gase HNO₃ + NO + NO₂ + ClONO₂ definiert (N₂O₅ beispielsweise wird dabei nicht berücksichtigt). Der andere Weg führte über den gemessenen Säulengehalt von N₂O über dem Flugzeug: unter Einbeziehung des dabei herrschenden Außendrucks und einer Annahme über den Anteil an N₂O, der in der Stratosphäre in NO_y umgewandelt wird, kann leicht der NO_y-Säulengehalt bestimmt werden. Aus der ersten Methode ergab sich für mittlere Breiten ein Wert von 1.84·10¹⁶ cm⁻², für den Wirbelrand 2.64·10¹⁶ cm⁻² und für das Wirbelinnere 0.85·10¹⁶ cm⁻² NO_y. Aus N₂O folgte für mittlere Breiten ein Säulengehalt von 1.76·10¹⁶ cm⁻², der recht gut mit der Summe der dort gemessenen Gase zusammenpaßt. In polaren Breiten ergaben sich auch innerhalb des Vortex 3.89·10¹⁶ cm⁻² NO_y. Diese Menge ist wesentlich größer als die Summe der dort gemessenen Gase und deutet auf Kondensation von HNO₃ hin.

Um eine mögliche Denitrifizierung in der arktischen Stratosphäre zu erkennen, wurden bei den Messungen von *Toon et al. (1992b)* ebenfalls nach den beiden oben beschriebenen Methoden NO_y bestimmt. Das Verhältnis der Summe der gemessenen NO_y -Verbindungen und des aus N_2O berechneten Werts lag im Mittel bei ca. 0.9. Bis auf wenige abweichende Punkte war hier kein Zeichen für eine Denitrifizierung ähnlichen Ausmaßes wie in der Südpolarregion festzustellen. Berechnungen aus den veröffentlichten Werten von N_2O während eines Fluges am 26.1.89 über die Wirbelgrenze hinweg ergaben NO_y -Säulengehalte von $2.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ außerhalb des Wirbels und $3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ im Inneren.

Die Säulengehalte von Cl_y in der unteren Stratosphäre wurde von *Schmidt et al. (1994)* aus in-situ Ballonmessungen von F12 während der EASOE-Kampagne bestimmt. Danach beträgt der Säulengehalt über Esrange außerhalb des Wirbels $5 - 7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ und im Inneren $6 - 10.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

Toon et al. (1992c) schätzten den Säulengehalt an Cl_y über dem Flugzeug aus ihren HF-Messungen von Januar bis März 1992 ab. Dabei erhielten sie außerhalb des Wirbels $4.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ und im Inneren $9.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für Januar und jeweils $10.0 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für Februar und März.

5.2 Zur Interpretation von Säulengehalten

Das wesentliche Problem bei der Interpretation von gemessenen Säulengehalten besteht in der Unterscheidung zwischen rein dynamisch bestimmten Variationen und chemischen Einflüssen. Wichtige dynamische Vorgänge, die zu einer Änderung von Säulengehalten führen können, sind einmal das langfristige, diabatische Absinken der Luftmassen im Polarwirbel während des Winters, zweitens kurzfristige, adiabatische Strömungsvorgänge in der Atmosphäre, die zu einem Anheben oder Absinken von Luftmassen führen, und schließlich die horizontale Advektion von Luft unterschiedlicher Herkunft in verschiedenen Höhenbereichen. Auf diese drei Vorgänge soll kurz noch etwas näher eingegangen werden, um dann zu diskutieren, wie in anderen Experimenten versucht wurde, Absinkvorgänge aus Säulengehaltmessungen zu extrahieren und wie dies bei MIPAS-FT geschehen könnte.

Diabatisches Absinken: Wie in Kapitel 5.1 schon beschrieben wurde, kühlt sich die Luft im Polarwirbel während des Winters durch Abstrahlung im Infraroten ab. Dies hat ein Absinken innerhalb des Polarwirbels zur Folge. Dabei kommt es zu einem Ausströmen von Luft am unteren Wirbelrand und zu einem Einströmen in höheren Bereichen der Atmosphäre. Hat nun ein bestimmtes Spurengas in der Höhe ein größeres Volumenmischungsverhältnis als weiter unten, so nimmt sein Säulengehalt zu. Dies ist bei den stratosphärischen Spurengasen, wie HNO_3 , ClONO_2 oder O_3 der Fall. Umgekehrt nimmt der Säulengehalt von troposphärischen Gasen ab, da diese ein mit der Höhe abnehmendes Volumenmischungsverhältnisprofil besitzen.

Adiabatische Vertikalbewegung: Ein gutes Beispiel für eine adiabatisch bedingte Änderung des Säulengehalts eines Spurengases sind die niedrigen Ozonwerte, die über dem nördlichen Atlantik in der zweiten Januarhälfte 1992 gemessen wurden (*Naujokat et al., 1992*). Hier kam es beim Überströmen einer stationären Antizyklone in der Troposphäre zu einem Aufsteigen und einer dadurch bedingten Abkühlung der Luft in der Stratosphäre. Ein solches Aufsteigen führt zu einer Abnahme der Säulengehalte stratosphärischer Gase, da das Maximum des Volumenmischungsverhältnisses zum niedrigeren Druck hin verschoben wird und

dadurch die absolute Konzentration des Gases abnimmt. Aus Gründen der Massenerhaltung muß damit natürlich ein horizontales Ausströmen von Luft aus der Säule einhergehen (*Tung und Yang, 1988*). Nimmt man beispielsweise vereinfachend an, das stratosphärische Spurengas habe ein Volumenmischungsverhältnis von Q zwischen den beiden Druckniveaus p_1 und p_2 ($p_1 > p_2$) und ansonsten von 0, so ist sein Säulengehalt SG proportional zu $Q(p_1 - p_2)$. Steigt nun dieses Luftvolumen auf, so daß es danach zwischen den Niveaus p'_1 und p'_2 liegt, so beträgt der neue Säulengehalt SG' ; da sich das Volumenmischungsverhältnis Q nicht ändert:

$$SG' = SG \frac{p'_1 - p'_2}{p_1 - p_2} \quad (5.1)$$

Aus dem Verlauf des Drucks entlang von Trajektorien läßt sich also leicht die relative Änderung der Säulengehalte abschätzen.

Horizontale Advektion: Die dritte Möglichkeit der Variation von Säulengehalten ist die horizontale Advektion. Hier hat die Luft der gemessenen Säule keinen einheitlichen Ursprung, sondern stammt zum Beispiel teilweise aus mittleren Breiten und teilweise aus dem Polargebiet. Um dies zu untersuchen, ist es notwendig, die Trajektorien der Luftpakete in verschiedenen Höhen zu verfolgen.

Die Frage des Absinkens von Luft innerhalb des Polarwirbels und der Einfluß auf gemessene Säulengehalte wurde von *Toon et al. (1992a)* analysiert. Sie verwendeten Säulengehaltsmessungen von chemisch stabilen Spurengasen, wie N_2O , CH_4 , OCS , HCN , Freonen und HF , um eine Parametrisierung des Absinkens herzuleiten. Es zeigte sich, daß ein einfaches vertikales Verschieben des Höhenprofils nicht ausreichte, um die beobachteten Änderungen der Säulengehalte gut zu beschreiben. Ein besseres Ergebnis erbrachte folgende Annahme:

$$VMR[z] = VMR_{ref}[z(1 + DOS)] \quad (5.2)$$

mit dem Referenzprofil des Volumenmischungsverhältnisses $VMR_{ref}(z)$, dem abgesunkenen Profil $VMR(z)$ und dem sogenannten Downwellingfaktor DOS . Bei abgesunkener Luft innerhalb des Vortex ist $DOS > 0$.

Innerhalb des arktischen Polarwirbels wurden für Januar und Februar 1989 maximale Downwellingfaktoren von 0,42 beobachtet (*Toon et al., 1992a*). Dies entspricht einem Absinken der Luft von 21,3 km auf 15 km bzw. von 28,4 km auf 20 km.

In der Abbildung 5.3 ist das Verhältnis von abgesunkenem zu nichtabgesunkenem Säulengehalt für die wichtigsten von MIPAS-FT gemessenen Gase gegen den Downwellingfaktor (untere Achse) bzw. gegen die Höhendifferenz des Absinkens auf 20 km (obere Achse) aufgetragen. Man erkennt deutlich, wie sich Gase mit unterschiedlichem Höhenprofil jeweils verschieden verhalten: je höher das Profil des Spurengases liegt, desto stärker ist seine Verschiebung durch das Absinken und desto größer ist die relative Änderung seines Säulengehalts.

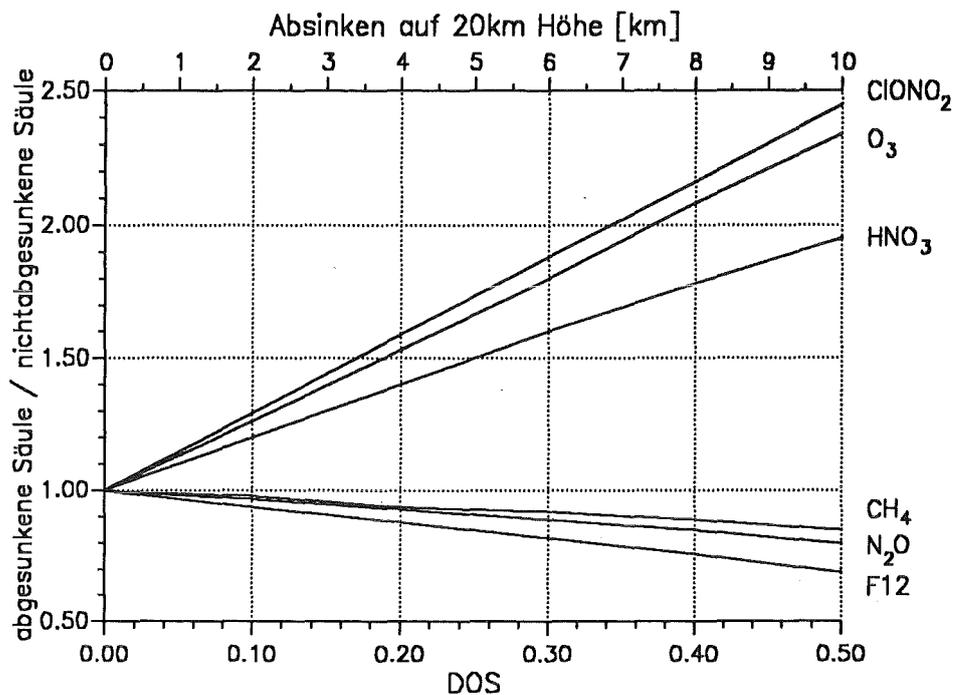


Abb. 5.3 Verhältnis von abgesunkenem Säulengehalt oberhalb von 7 km zu nichtabgesunkenem Säulengehalt in Abhängigkeit von dem Downwellingfaktor nach *Toon et al. (1992a)* (untere Achse) bzw. dem Absinken auf 20 km Höhe (obere Achse). Als nichtabgesunkene Profile wurden Profile aus mittleren Breiten verwendet (*Echle et al., 1992*).

Es stellt sich die Frage, ob man die Säulengehalte der mit MIPAS-FT gemessenen Spurengase N₂O, CH₄ und F12 in gleicher Weise wie bei den Messungen mit der DC-8 zur Interpretation der stratosphärischen Gase nutzen kann, um Informationen über den Grad des Absinkens zu erhalten und somit etwaige chemische Prozesse deutlich zu machen. Dies bereitet jedoch aus folgenden Gründen Probleme:

- Die relative Änderung der Säulengehalte troposphärischer Gase infolge Absinkens ist wesentlich geringer als diejenige der stratosphärischen Spurengase (Abbildung 5.3). Sie liegt in der Größenordnung des Meßfehlers dieser Gase. Dieser Unterschied zu den Messungen auf der DC-8 rührt daher, daß dort die Flughöhe ca. 12 km im Vergleich zu 7 km bei der Transall betrug. Bei den Messungen mit MIPAS-FT befand sich also ein wesentlich größerer Säulengehalt troposphärischer Gase über dem Flugzeug.
- Während der Meßflüge wurde die Flughöhe öfter geändert. Dies hat relativ große Variationen der gemessenen Säulengehalte troposphärischer Spurengase zur Folge, die den kleineren dynamischen Änderungen überlagert sind.
- Es ist problematisch, anhand troposphärischer Gase eine Aussage über das Absinken von stratosphärischen Gasen zu treffen. Wie *Toon et al. (1992a)* zeigten, ist beispielsweise F12 am empfindlichsten auf Absinken in einer Höhe von 12-13 km, während Messungen des in der unteren Stratosphäre chemisch stabilen Spurengases HF auf dynamische Änderungen in Höhenbereichen von 17-18 km hindeuten. Dieses Gas ist daher wesentlich besser geeignet, um dynamische von chemischen Veränderungen bei stratosphärischen Spurengasen zu trennen. Leider kann HF nicht von MIPAS-FT gemessen werden.

Aus diesen Gründen können bei der Diskussion der Ergebnisse die dynamischen Effekte nicht generell aus den troposphärischen Gasen hergeleitet werden. Vielmehr soll versucht werden, das Absinken mittels verschiedener Methoden abzuschätzen. Zum einen können Aerosolmessungen, die von dem parallel an Bord der Transall betriebenen LIDAR-Gerät durchgeführt wurden, verwendet werden. Diese zeigen deutlich das Absinken der Aerosolschicht innerhalb des Polarwirbels. Weiterhin kann der Grad des diabatischen Absinkens während des Winters anhand von gemessenen Absinkraten aus anderen Quellen abgeschätzt werden (z.B. *Bauer et al., 1994*). Außerdem werden die drei gemessenen stratosphärischen Gase miteinander korreliert, um eventuelle Abweichungen von einem rein dynamischen Verhalten feststellen zu können. Wie die Abbildung 5.4 zeigt, sollten die drei Gase bei reinem Absinken deutlich linear miteinander korrelieren.

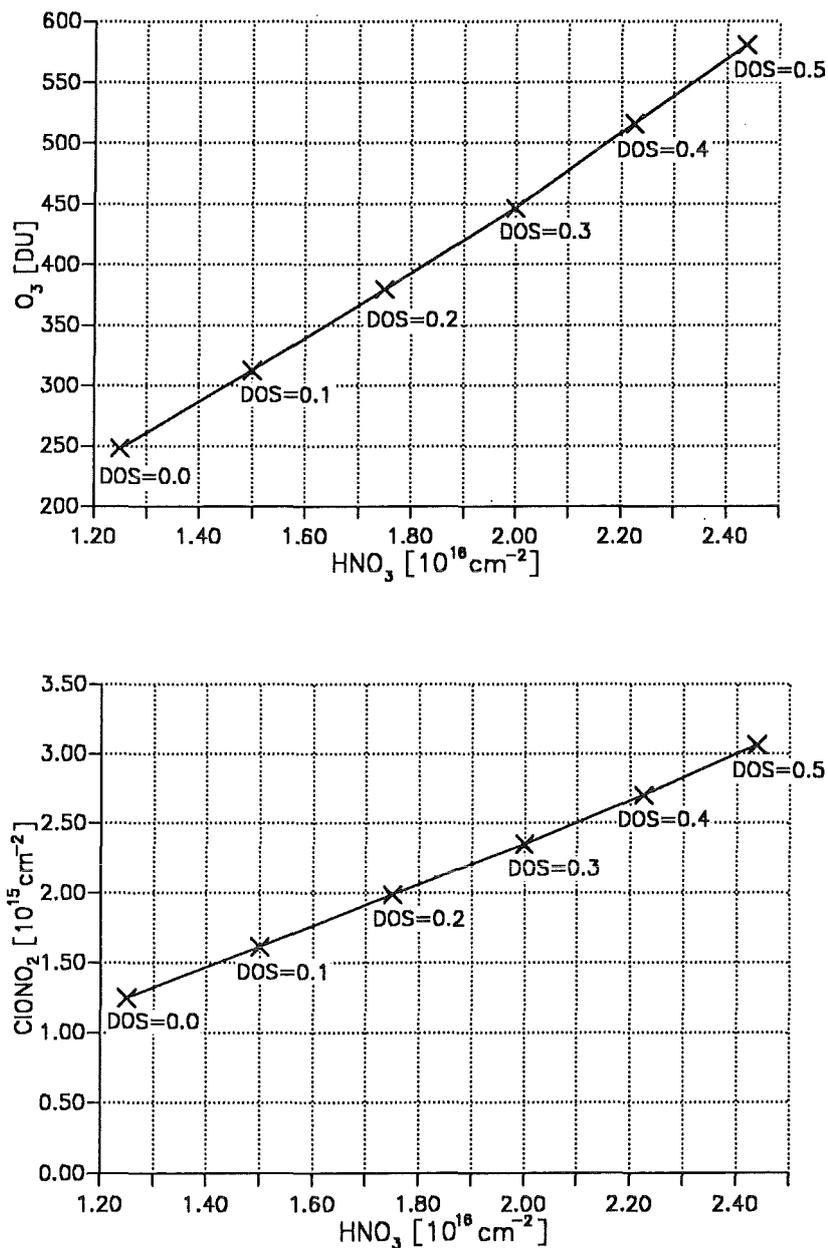


Abb. 5.4 Korrelation von HNO_3 mit O_3 (oben) bzw. mit ClONO_2 (unten), falls nur 'Downwelling' berücksichtigt wird. Als Ausgangswerte (DOS = 0.0) wurden typische Säulengehalte außerhalb des Polarwirbels benutzt.

5.3 Die Meteorologie der polaren Stratosphäre 1991/92 und 1992/93

Der Beschreibung der meteorologischen Entwicklung der Stratosphäre im Winter 1991/92 und 1992/93 liegen im wesentlichen die Beilagen zur Berliner Wetterkarte (*Naujokat et al., 1992 und 1993*), die Analysen des Geopotentials und der Temperatur des Meteorologischen Instituts der Freien Universität Berlin, ECMWF-Analysen der Temperatur und Karten der potentiellen Vorticity, die vom DMI (Danish Meteorological Institut) aus ECMWF-Analysen berechnet wurden, zugrunde.

5.3.1 Der Winter 1991/92

Der frühe Polarwirbel im November und Dezember 1991 war stark ausgebildet und wurde nur durch einige Wärmeverstöße gestört, die Ende November zu einer kurzfristigen Teilung führten. Darauf folgte eine kalte, ungestörte Periode bis Anfang Januar. Eine Erwärmung über NO-Asien hatte dann eine Verlagerung des Wirbelzentrums nach N-Europa zur Folge. Das Maximum dieser Erwärmung lag zwischen dem 10. und 14. Januar 1992. Über dem Polargebiet kam es dabei auf 10 hPa zu einer Temperaturerhöhung von ungefähr 60°C. Auf die Dynamik des Polarwirbels in der unteren Stratosphäre hatte dies jedoch praktisch keinen Einfluß. Ab der Monatsmitte bildete sich in der Troposphäre eine blockierende Antizyklone aus, die zu einem adiabatischen Aufsteigen der Luft am Wirbelrand führte und eine damit verbundene Abkühlung und niedrige Ozonsäulengehalte zur Folge hatte.

Nach einer vorübergehenden ungestörten Periode Ende Januar kam es im Februar erneut zu einer Verstärkung der planetaren Welle 1. Dies verursachte eine Erwärmung und mehrmalige Aufspaltung des Wirbels. Ende Februar stabilisierte sich der Vortex nochmals kurzfristig. Mitte März begann mit einem starken Wärmetransport nach Norden die endgültige Frühjahrserwärmung. Die vollkommene Umstellung zur Sommerzirkulation war erst Ende April vollzogen.

Meßperiode	Lage und Zustand des Vortex	Lage des Kältepol	min. T auf 50 hPa
9.1.92 - 13.1.92	Zentrum über Novaja Zemlja, ungestörter Vortex	zwischen Grönland und Skandinavien	-83°C
30.1.92 - 16.2.92	wandert von der europäischen Arktis (30.1.) über Novaja Zemlja (9.2.) nach nördlich des Franz-Josef-Landes (11.2.) und spaltet sich danach in zwei Zentren über Grönland und Novaja Zemlja	Nord-Skandinavien (30.1.), Finnland (9.2.), NW-Rußland (11.2.), danach 2 Kältepole über N-Norwegen und NO-Rußland	-77°C
29.2.92 - 12.3.92	geteilter Vortex am 29.2. mit Zentren über Grönland und Franz-Josef-Land, im folgenden wieder vereinigt mit Zentrum über Franz-Josef-Land und zur Kawa-See wandernd	über Spitzbergen, Barents See und N-Skandinavien	-75°C

Tabelle 5.5 Vortexlage und Kältepol während der Meßperioden im Winter 1991/92.

Temperaturen, wie sie zur Bildung von PSC-I-Teilchen im Polarwirbel notwendig sind, traten zum letzten Mal Ende Januar 1992 auf. PSC-II-Temperaturen wurden in diesem Winter praktisch nicht erreicht.

5.3.2 Der Winter 1992/93

Im Gegensatz zum Vorjahr blieb der arktische Polarwirbel im Winter 1992/93 bis Ende Januar kalt und ungestört. Lediglich in der oberen Stratosphäre kam es zu einigen Erwärmungsvorstößen, die aber keinen Einfluß auf die untere Stratosphäre hatten. Im Dezember lag das Wirbelzentrum über der sibirischen Arktis. Die erste starke Stratosphärenenerwärmung dieses Winters trat im Februar in mehreren Warmluftvorstößen auf, also einen Monat später als im Jahr zuvor. Der Wirbel, dessen Zentrum nun über Nordeuropa lag, wurde dadurch nicht gestört. Das stratosphärische Kältezentrum lag am Vortexrand oberhalb einer troposphärischen Antizyklone, die, wie im Januar 1992, zum Aufsteigen von Luftmassen und zu einer Erniedrigung des Ozonsäulegehalts führte.

Nach einer ungestörten Phase Ende Februar begann die Frühjahrserwärmung Anfang März in der oberen Stratosphäre. Sie setzte sich aber nur langsam in der gesamten Stratosphäre durch. Anfang März führte dies zu einer Ausdehnung des Vortex mit kalten stratosphärischen Temperaturen bis weit in den Süden Europas und nach Asien. Bis Ende März verstärkte sich der Wirbel nochmals, so daß das Zentrum in der unteren Stratosphäre über dem Nordpol zu liegen kam. Die endgültige Auflösung des Vortex und die Umstellung auf die sommerliche Ostwindzirkulation erfolgte gegen Mitte April.

Meßperiode	Lage und Zustand des Vortex	Lage des Kältepol	min. T auf 50 hPa
4.12.92 - 8.12.92	Zentrum wandert von der Kawa-See ostwärts nach Severnaja Zemlja ungestörter Vortex auf 550 K deutlicher ausgebildet als auf 475 K	über der Kawa-See	-80°C
27.1.93 - 5.2.93	Vortexzentrum nur wenig vom Pol in Richtung N-Europa verschoben ungestört	Nördlich von Novaja Zemlja	-86°C
5.3.93 - 12.3.93	Vortex langgezogen (bis N-Afrika), rotiert ostwärts über Europa hinweg	Kältepol wandert über Mittelschweden nach Osten	-77°C
24.3.93 - 29.3.93	Vortex einigermaßen symmetrisch zum Pol auf 550 K kleiner als auf 475 K	westlich von Spitzbergen	-71°C

Tabelle 5.6 Vortexlage und Kältepol während der Meßperioden im Winter 1992/93.

Kalte Temperaturen zur Bildung von PSC-I-Partikeln lagen in diesem Winter ca. 2-3 Wochen länger im Polarwirbel vor als 1991/92, nämlich bis Mitte Februar. Auch war der Wirbel teilweise so kalt, daß die Entstehung von PSC-II-Teilchen möglich war.

5.4 Die Meßkampagnen der Winter 1991/92 und 1992/93

Im Winter 1991/92 fanden während EASOE in der Zeit vom 3.12.91 bis 13.3.92 vier Transall-Meßkampagnen statt. Im folgenden Winter 1992/93 wurden ebenfalls vier Kampagnen zwischen dem 4.12.92 und dem 29.3.1993 durchgeführt.

Die einzelnen Zeiträume für beide Winter sind in der Tabelle 5.7 aufgeführt.

1991/92		1992/93	
Kampagnenzeitraum	Anzahl der Flüge	Kampagnenzeitraum	Anzahl der Flüge
3.12.91 - 13.12.91	6	4.12.92 - 8.12.92	3
8.1.92 - 17.1.92	8	27.1.93 - 5.2.93	4
29.1.92 - 17.2.92	15	5.3.93 - 12.3.93	6
28.2.92 - 13.3.92	15	24.3.93 - 29.3.93	4

Tabelle 5.7 Kampagnenzeiträume und Anzahl der Flüge in den Wintern 1991/92 und 1992/93.

Die wesentlichen Unterschiede im Experiment, in der Datenaufnahme und in der Logistik zwischen den beiden Wintern bestanden in folgenden Punkten:

- Die spektrale Auflösung wurde von 0.18 cm^{-1} auf 0.08 cm^{-1} (apodisiert) verbessert. Dies führte zu einer wesentlich genaueren Bestimmung von ClONO_2 .
- Durch experimentelle Verbesserungen war das Gerät während den Kampagnen 92/93 wesentlich stabiler (Gulde, 1992). Es traten daher kaum noch Sprünge des Zählsystems bzw. Totalausfälle auf.
- Deshalb war es 1992/93 möglich, eine Datenreduktion vor dem Abspeichern der Interferogramme durchzuführen. Im Gegensatz zum vorherigen Winter, in dem nur die Interferogramme einer Pendelrichtung aufgezeichnet werden konnten, trat daher kein Datenverlust auf.
- Im Winter 1992/93 wurde eine interne 2-Punkt-Eichung während des Flugs durchgeführt. Für 1991/92 mußten hingegen Bodeneichungen herangezogen werden (Kapitel 2.3.3). Der Vorteil der internen Kalibrierung zeigt sich an den Korrekturfaktoren der CO_2 -Korrektur, die 1992/93 wesentlich weniger von 1 abwichen. Das Spektrum mußte daher weniger stark korrigiert werden als im vorhergehenden Winter.
- 1992/93 wurde mit einem Elevationswinkel von 7° gegenüber 5° im Winter 1991/92 gemessen. Dies erbrachte eine Verbesserung des Fehlers durch Winkelungenauigkeiten.
- Im Winter 1992/93 wurden während den Überflüge von Deutschland nach Nordschweden ebenfalls Messungen durchgeführt. Dadurch konnten einige wichtige Schnitte von Spurengasen über die Vortexgrenze hinweg gewonnen werden.
- Eine wesentliche Verbesserung der effektiven Meßzeit im Winter 1992/93 konnte durch eine konsequente Routenplanung anhand von ECMWF-Vorhersagen der potentiellen Vorticity, der Temperatur und hoher Wolken erreicht werden.

5.5 Die Datensätze der Winter 1991/92 und 1992/93

Im Winter 1991/92 traten während den ersten beiden Meßkampagnen instrumentelle Probleme auf. Dies führte dazu, daß im Dezember 1991 keine und im Januar 1992 nur wenig verlässliche Daten gewonnen werden konnten. Dagegen konnten in der dritten und vierten Kampagne beinahe für jeden Meßflug Spektren ausgewertet werden.

Da, wie oben schon gesagt, das Spektrometer 1992/93 wesentlich zuverlässiger funktionierte, konnten in diesem Winter an jedem Meßtag Säulengehalte bestimmt werden. Die vollständigen Datensätze der Ergebnisse von O_3 , HNO_3 und $ClONO_2$ der beiden Winter sind in Tabellenform in Anhang J und K aufgeführt.

Die Säulengehalte der troposphärischen Gase CH_4 , N_2O und $F12$ und die Ergebnisse von O_3 aus den beiden kurzweiligen Intervallen wurden nicht in die Tabelle aufgenommen. Dies liegt zum einen an ihren großen relativen und systematischen Fehlern (Kapitel 4) und zum anderen an der schweren Interpretierbarkeit aufgrund von Flughöhenänderungen (Kapitel 5.3).

Die Orte der Datenpunkte aus den Anhängen J und K sind zu Beginn der Diskussionen der einzelnen Meßkampagnen im nächsten Kapitel anhand von Karten verdeutlicht. Die Ausfüllung der Symbole zeigt dabei die relative Lage der Punkte bezüglich der Vortexgrenze an. Dabei bedeuten offene Symbole Messungen außerhalb, voll ausgefüllte solche innerhalb und halb ausgefüllte Zeichen Messungen am Rand des Vortex. Die Vortexgrenze wurde dabei im wesentlichen durch den größten Gradienten der potentiellen Vorticity auf 475 K und 550 K und in manchen Fällen zusätzlich anhand von LIDAR-Messungen bestimmt. Sie liegt auf der isentropen Fläche $\theta = 475$ K bei ca. $30\text{-}35 \cdot 10^{-6}$ K m^2/kg s und auf 550 K bei ca. $90 \cdot 10^{-6}$ K m^2/kg s. Es muß dabei beachtet werden, daß die Grenze manchmal nicht vertikal verläuft. Deshalb ist es notwendig, gerade bei Flügen nahe der Vortexgrenze, die PV auf verschiedenen Isentropenflächen zu betrachten.

Zur Interpretation unserer Messungen werden im folgenden neben Karten der potentiellen Vorticity und der Temperatur auch Rückwärtstrajektorien verwendet. Diese wurden am DMI anhand von ECMWF-Analysen berechnet. Alle Daten wurden der Datenbank des NILU (Norsk Institutt for Luftforskning) (*Braathen, 1992*) entnommen.

5.6 Diskussion der einzelnen Kampagnen

Im folgenden werden die Ergebnisse der beiden Winter Kampagne für Kampagne besprochen. Dabei wird mit dem Winter 1992/93 begonnen, da für dieses Jahr bessere und umfangreichere Datensätze vorliegen. Bei der Diskussion der Daten des Winters 1991/92 im zweiten Teil kann dann vergleichend auf ähnliche stratosphärische Konstellationen aus den schon diskutierten Kampagnen hingewiesen werden.

5.6.1 Die Meßkampagnen im Winter 1992/93

5.6.1.1 Kampagne 1 (4.12.92 - 8.12.92): Der frühwinterliche Polarwirbel

Das Ziel der ersten Flugzeugmeßkampagne des Winters 1992/93 war, den Zustand des Polarwirbels im frühen Winter zu untersuchen. Dabei interessierte vor allem die Frage, ob möglicherweise schon zu diesem Zeitpunkt durch heterogene chemische Prozesse an der Oberfläche von polaren Stratosphärenwolken oder Aerosolen eine Chloraktivierung stattgefunden hatte und ob sich die chemische Zusammensetzung der Spurengase innerhalb des Vortex von der Luft außerhalb unterschied. Ungewöhnlich niedrige Säulengehalte an ClONO_2 würden beispielsweise auf eine vorangegangene Freisetzung von Chlor aus diesem Reservoirgas hindeuten. Andererseits wären vergleichsweise hohe Werte des Gases ein Indiz für eine frühere Chloraktivierung und nachfolgender Reaktion von ClO mit NO_2 zu ClONO_2 (Gleichung 1.6). Hierbei erhöht sich die Menge an Chlornitrat, da die Rückreaktion von ClO zu HCl langsamer verläuft (z.B. Müller *et al.*, 1994).

Eine Erhöhung des HNO_3 -Säulengehalts könnte ebenfalls auf heterogene Reaktionen hindeuten (Denoxifizierung). Ungewöhnlich niedrige Werte wären Hinweise auf die Entfernung von gasförmiger Salpetersäure aus dem beobachteten Luftvolumen, beispielsweise durch Einbindung in PSCs.

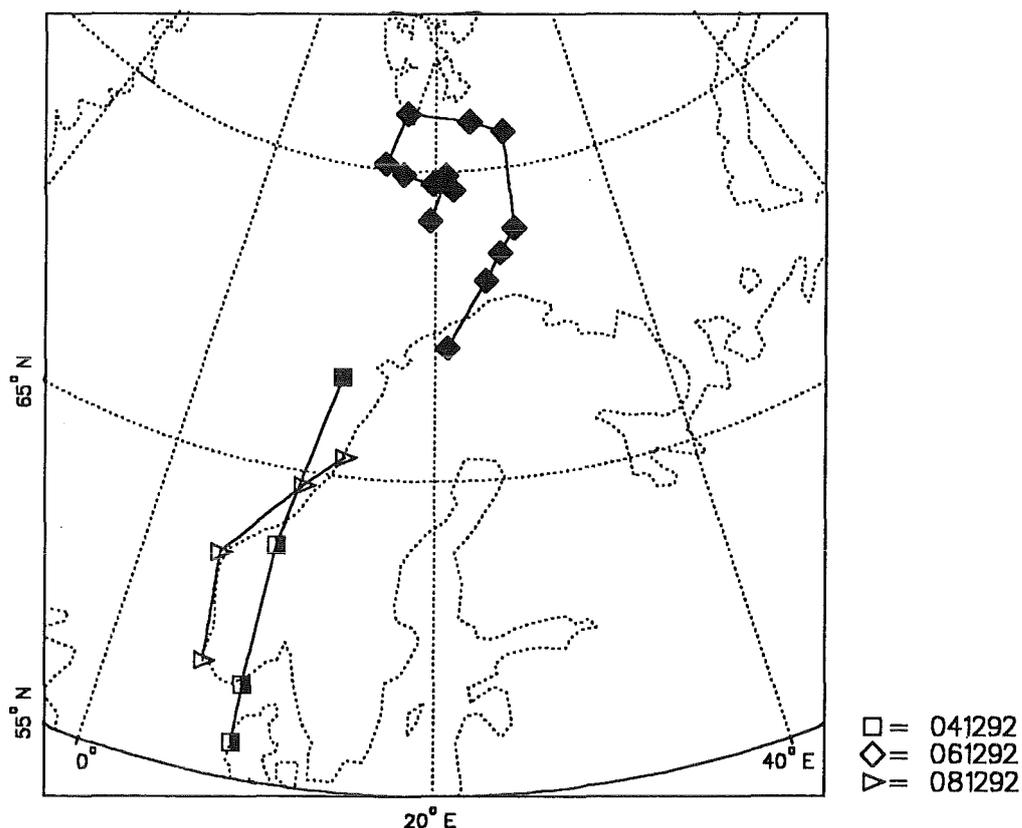


Abb. 5.5 Geographische Position der gemessenen Spektren während der ersten Kampagne im Winter 1992/93. Die einzelnen Flüge unterscheiden sich durch die Form der Symbole. Die Ausfüllung der Symbole zeigt die relative Lage bezüglich des Polarwirbels an: leer = außerhalb, halb = Randlage, voll = innerhalb.

Wie in Abschnitt 5.3 erläutert wurde, sind neben diesen rein chemischen Veränderungen der Zusammensetzung dynamische Effekte, insbesondere das diabatische Absinken von Luftmassen innerhalb des Vortex, möglich. Zur eindeutigen Identifikation chemisch bedingter Variationen ist es daher notwendig, mögliche dynamische Einflüsse auszuschließen.

Während der Meßkampagne wurden insgesamt drei Flüge durchgeführt: ein Überflugsflug von Manching nach Kiruna am 4.12., in dessen Verlauf Meßpunkte am äußeren und inneren Rand und im Inneren des Polarwirbels aufgenommen wurden, ein Flug am 6.12. südlich von Spitzbergen im Wirbelinneren und der Rückflug nach Deutschland am 8.12.92 mit Werten außerhalb des Wirbels.

Hier und in der Besprechung der folgenden Meßkampagnen werden jeweils zuerst die Meßpunkte außerhalb des Polarwirbels diskutiert, um Referenzwerte zu den Säulengehalten am Rand und innerhalb des Vortex zur Verfügung zu haben.

Während der Flüge im Dezember wurde lediglich am 8.12. außerhalb des Polarwirbels gemessen. Die Säulengehalte aller drei stratosphärischen Gase nehmen nach Süden hin ab: ClONO_2 von $1.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ auf $0.7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, HNO_3 von $2.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ auf $1.6 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und O_3 von 356 DU auf 276 DU. Diese Werte sind typisch für Messungen außerhalb des Polarwirbels. Die gute Korrelation der drei Gase läßt auf rein dynamische Ursachen der Abnahme schließen.

Die Meßwerte am Vortexrandbereich des Hinflugs am 4.12. zeigen nach Norden Richtung Vortexinneres einen leicht zunehmenden Trend, wie es durch Absinken im Polarwirbel zu erwarten ist. Sie liegen im Mittel für ClONO_2 bei $2.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, für HNO_3 bei $2.58 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und für O_3 bei 364 DU. Eine Ausnahme stellt der nördlichste Meßpunkt dar: hier sinken die Werte plötzlich auf $2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, $2.01 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bzw. 249 DU ab (Abbildung 5.6 und 5.7). Da es keine Hinweise darauf gibt, daß dieser Meßpunkt sich hinsichtlich der Gerätefunktion, der Kalibrierung oder der Qualität des Spektrums von den anderen Messungen unterscheidet, muß es atmosphärische Gründe für die Abweichungen geben. Da das Flugzeug während der gesamten Meßzeit seine Flughöhe beibehielt, können die Ergebnisse der troposphärischen Gase hinzugezogen werden. Diese zeigen ebenfalls beim nördlichsten Meßpunkt eine Ausnahme: sie nehmen plötzlich zu (F12 z.B. von $3.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ auf $3.7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$), wie es bei einer dynamisch bedingten Anhebung des Höhenprofils eines troposphärischen Gases der Fall wäre. Die mit dem gleichzeitig an Bord messenden LIDAR-Gerät aufgenommenen Aerosolprofile, die am 4.12. für den Ort unseres letzten Meßpunkts vorhanden sind, zeigen bei einem Vergleich mit der Lage des Aerosols vom 6.12., - als in ähnlicher Lage relativ zur Vortexgrenze gemessen wurde - eine Anhebung um ca. 2 km. Dies bekräftigt die Vermutung, daß es sich bei der Abweichung des letzten Meßpunkts am 4.12. um einen dynamischen Effekt handelt.

Die Ergebnisse des Flugs vom 6.12. im Inneren des Vortex weisen keine großen Variationen auf. Die Mittelwerte von ClONO_2 liegen bei $2.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, diejenigen von HNO_3 bei $2.37 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und O_3 bei 317 DU.

Sind die erhöhten Werte von Chlornitrat und Salpetersäure, die am 4.12. und 6.12. gemessen wurden, vollkommen durch dynamische Effekte zu erklären, oder gibt es einen eindeutigen Hinweis auf chemische Veränderungen? Um eine Antwort hierauf zu finden, ist es notwendig, abzuschätzen, wie stark die Luft innerhalb des Polarwirbels seit dem Beginn seiner Entstehung Ende Oktober abgesunken ist, und welche Auswirkungen dies auf die

Säulengehalte der hier betrachteten stratosphärischen Gase hatte. Aus Absinkraten, die von *Bauer et al. (1994)* während der EASOE-Kampagnen 1991/92 aus N₂O-Profilmessungen mittels Ballonaufstiegen bestimmt wurden, ergibt sich zwischen dem 31.10. und dem 5.12.1991 ein Absinken um 2.8 km auf 23.7 km und um 3.7 km auf 25.9 km. Der hieraus leicht zu berechnende DOS-Faktor (Kapitel 5.3) beträgt im Mittel 0.13. Da die frühe Vortexentwicklung während beider Winter nicht wesentlich unterschiedlich verlief, kann davon ausgegangen werden, daß ähnliche Werte auch für Dezember 1992 Gültigkeit besitzen.

Aus dem Vergleich von Aerosolmessungen am 6.12. und am 8.12. ergibt sich ein Absinken des Aerosolprofils um ca. 2 km auf 16 km. Dies entspricht einem Absinkfaktor von 0.125, der recht gut zu dem obigen Wert paßt.

Aus Abbildung 5.4 ist abzulesen, daß diesem Faktor eine Erhöhung der Säulengehalte der stratosphärischen Gase um das 1.3-1.4-fache entspricht. Multipliziert man die außerhalb des Polarwirbels am 8.12. gemessenen Werte mit diesen Faktoren, so erhält man für ClONO₂ eine Spanne von 1.0 - 2.5·10¹⁵ cm⁻², für HNO₃ von 2.0 - 2.8·10¹⁶ cm⁻² und für O₃ von 372 - 480 DU. Wird dies mit den gemessenen Werten vom 4.12. bzw. 6.12. verglichen, so folgt, daß ClONO₂ am oberen Rand, HNO₃ in der Mitte und O₃ niedriger als die theoretisch ermittelten abgesunken Säulengehalte liegt.

Ähnliches zeigt sich auch an den Korrelationen der drei Gase (Abbildungen 5.6 und 5.7): HNO₃ und ClONO₂ weisen über alle Meßflüge hinweg eine relativ gute positive Korrelation auf. Dagegen geht aus der Auftragung von O₃ gegen HNO₃ hervor, daß die Ergebnisse vom 8.12. mit den beiden anderen Tagen nicht gut korrelieren, da O₃ innerhalb und außerhalb des Vortex ähnlich hohe Werte aufweist und somit nicht das Absinken innerhalb des Vortex widerspiegelt.

Auf ein ähnliches Problem bei O₃-Säulengehaltsmessungen von der DC-8 aus wurde von *Toon et al. (1992b)* hingewiesen. Auch dort wurden vergleichbare Werte von Ozon im Inneren wie außen gemessen. Der Anstieg der Säulengehalte nach innen hin war also kleiner als aufgrund des Absinkens erwartet wurde. Als mögliche Erklärung wurde hier angeführt, daß entweder die Parametrisierung des Absinkens (Gleichung 5.2) falsch sein könnte, oder Ozon kein guter Tracer sei (da entweder Ozonverlust im Wirbelinneren oder Anreicherung außerhalb stattgefunden haben könnte). Diese Schwierigkeiten bei der Diskussion der Ozonwerte müssen während der folgenden Kampagnen im Auge behalten werden.

Bezüglich der frühen Chloraktivierung kann aus unseren Messungen nicht eindeutig eine Erhöhung von Chlornitrat aufgrund von chemischen Vorgängen nachgewiesen werden. Eine solche Veränderung läßt sich aber auch nicht ausschließen, da Ergebnisse von bis zu 3.1·10¹⁵ cm⁻² am oberen Rand der durch dynamische Effekte bedingten Erhöhung des ClONO₂-Säulengehalts liegen. Daß es in dieser Phase schon chloraktivierte Luft innerhalb des Polarwirbel gegeben hat, zeigen Satellitenmessungen von *Waters et al. (1993)*, die ab dem 4.12. erhöhte ClO-Werte beobachteten.

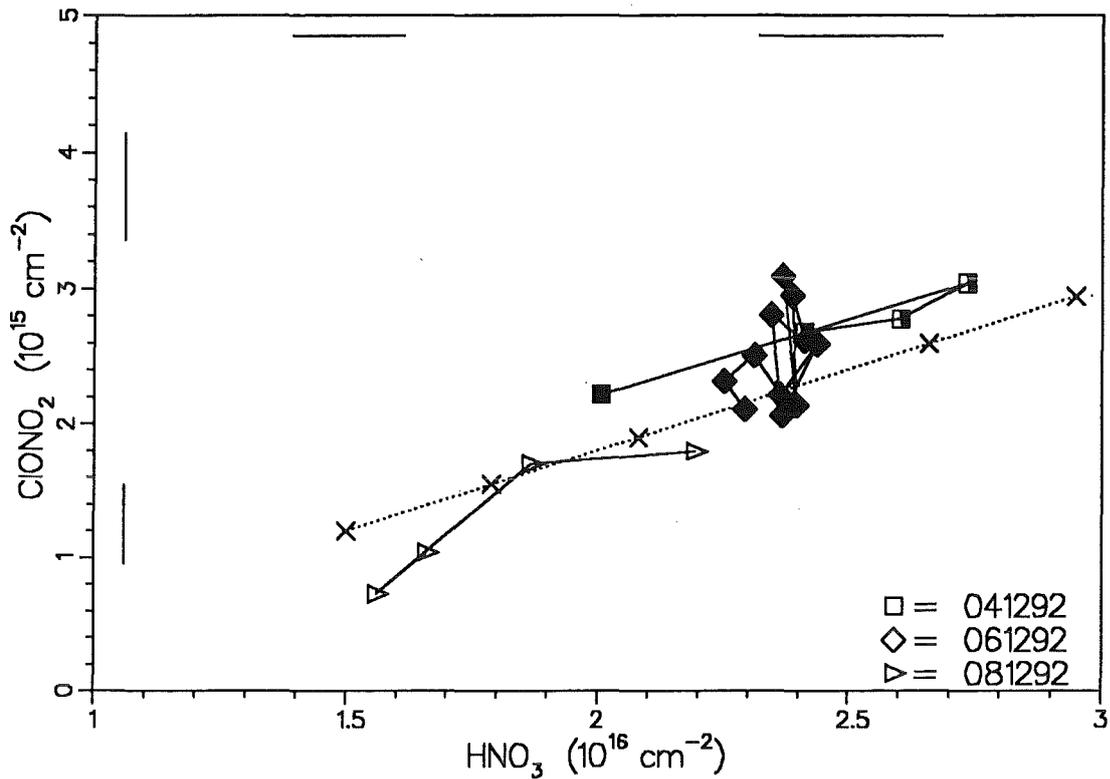


Abb. 5.6 Korrelation HNO₃ - ClONO₂ in der ersten Kampagne des Winters 1992/93. Die Fehlergrenzen sind beispielhaft entlang der linken und oberen Achse angegeben. Die aufgetragenen Balken besitzen die 2-fache Länge der in Kapitel 4.2 abgeleiteten relativen Fehler (2-fache Standardabweichung). Die Nachweisgrenze von ClONO₂ beträgt 1992/93 $0.84 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ und 1991/92 $2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Die gestrichelt eingezeichnete Linie (Absinkgerade) bezeichnet die allein durch Absinken von Profilen aus mittleren Breiten hervorgerufene Korrelation der beiden Gase. Die Kreuze befinden sich dabei im Abstand von 0.1 DOS-Einheiten. Die Linie beginnt links unten mit DOS=0.0 bei 300 DU für O₃, $1.5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ für HNO₃ und $1.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für ClONO₂.

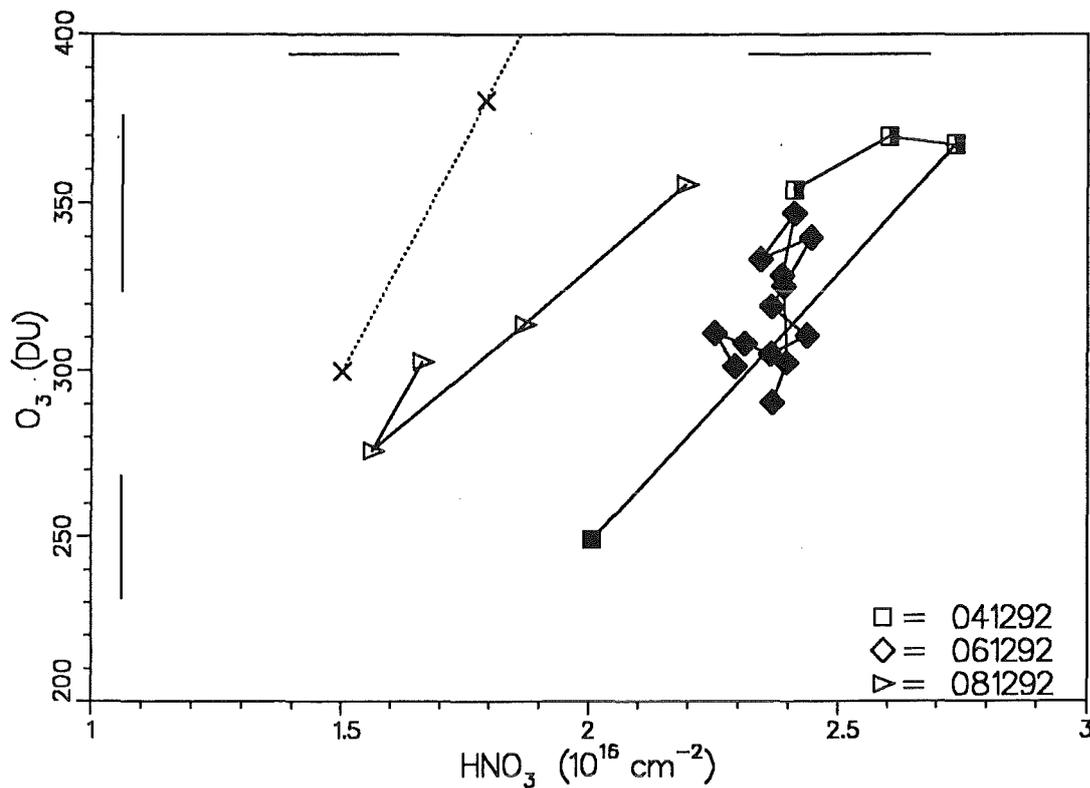


Abb. 5.7 Korrelation HNO₃ - O₃ in der ersten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

5.6.1.2 Kampagne 2 (27.1.93 - 5.2.93): Der kalte Polarwirbel

Ende Januar 1993 war der nördliche Polarwirbel noch kalt und seit seiner Entstehung praktisch ungestört. Dieser Zeitpunkt war gut geeignet, um die chemische Zusammensetzung von stratosphärischer Luft zu untersuchen, die lange Zeit im Dunkeln isoliert und heterogenen Reaktionen auf häufig auftretenden PSCs ausgesetzt war.

Ein wesentlicher Punkt ist dabei das Verhalten von ClONO₂. Es stellt sich die Frage, ob dessen Reduzierung und somit Umwandlung in andere, wahrscheinlich reaktive, Chlorverbindungen beobachtet werden kann und ob am Wirbelrand, wie zum Beispiel in *Toon et al. (1992b)* beschrieben, ein Kragen mit hohen Werten dieses Spurengases auftritt. Bezüglich HNO₃ ist von Interesse, ob dessen Säulengehalte aufgrund von Denoxifizierung erhöht sind, oder ob eine Erniedrigung, möglicherweise durch Kondensation, festgestellt werden kann.

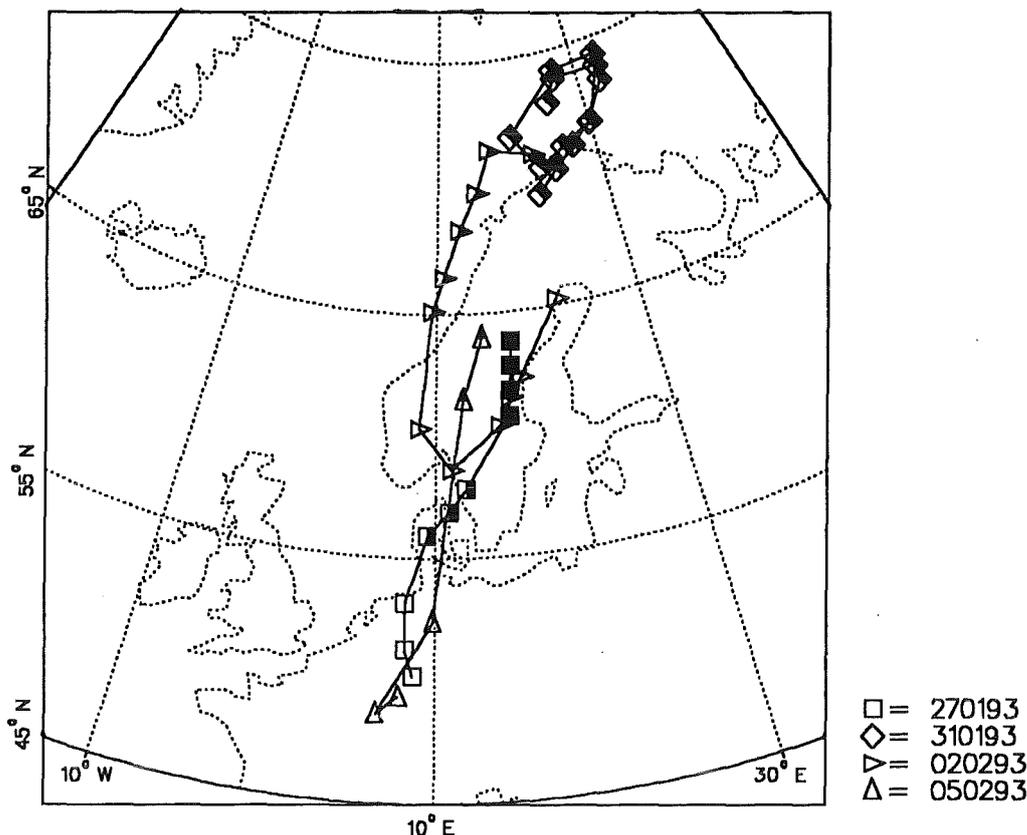


Abb. 5.8 Geographische Position der gemessenen Spektren während der zweiten Kampagne im Winter 1992/93. Die einzelnen Flüge unterscheiden sich durch die Form der Symbole. Die Ausfüllung der Symbole zeigt die relative Lage bezüglich des Polarwirbels an: leer = außerhalb, halb = Randlage, voll = innerhalb.

Insgesamt wurden vier Meßflüge durchgeführt. Auf dem Überführungsflug von Manching nach Kiruna am 27.1.93 konnte ein schöner Schnitt über die Vortexgrenze hinweg gewonnen werden. Am 31.1. folgte ein Flug im Gebiet zwischen Nordskandinavien und Spitzbergen am Wirbelrand. Während eines weiteren Flugs nach Süden am 2.2. und während des Rückflugs am 5.2. konnte am Rand und außerhalb des Wirbels gemessen werden.

Werte außerhalb des Vortex existieren somit für drei Flüge. Am 27.1. und am 2.2. liegen die Werte von ClONO_2 unterhalb der Nachweisgrenze von $0.84 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, und am 5.2. wurden Säulengehalte von $1.1\text{-}1.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ gemessen. Dies sind typische Ergebnisse für mittlere Breiten (Kapitel 5.1). Die HNO_3 Werte sind an allen drei Tagen ähnlich: am 27.1. $1.25\text{-}1.5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, am 2.2. $1.11\text{-}1.27 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und am 5.2. $1.26\text{-}1.38 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. Gleiches gilt für Ozon mit 248-330 DU am 27.1., 237-274 DU am 2.2. und 273-279 DU am 5.2..

Um aus diesen Werten die dynamische Erhöhung der Säulengehalte stratosphärischer Gase innerhalb des Wirbels abzuschätzen, müssen zuerst die Absinkfaktoren abgeleitet werden. Da der größte Teil des diabatischen Absinkens im Dezember und Januar stattfindet (Bauer et al., 1994), können zum einen die maximal von Toon et al. (1992a) gefundenen DOS-Werte von 0.42 verwendet werden. Auch aus Bauer et al. (1994) ergibt sich für den Zeitraum vom 31.10.91-18.1.92 ein mittlerer DOS-Wert der gleichen Größe. Aus den Transall-LIDAR-Messungen wurde für den Flug am 27.1.93 ein Wert von 0.35 berechnet, der etwas niedriger als obige Abschätzungen ist. In Tabelle 5.6 sind die theoretischen Säulengehalte

der drei stratosphärischen Gase für beide DOS-Faktoren, die aus den außerhalb des Wirbels gemessenen Werte berechnet wurden, eingetragen.

DOS	$\text{ClONO}_2 / 10^{15}\text{cm}^{-2}$	$\text{HNO}_3 / 10^{16}\text{cm}^{-2}$	O_3 / DU
0	0.8 - 1.5	1.11 - 1.5	237 - 330
0.35	1.6 - 3.0	1.9 - 2.5	460 - 640
0.42	1.8 - 3.3	2.0 - 2.7	504 - 702

Tabelle 5.6 Theoretische Werte der Säulengehalte diabatisch abgesunkener Profile im Polarwirbel Ende Januar 1993 für unterschiedliche DOS-Faktoren.

Wie schon erwähnt, war der Flug am 27.1.93 ein Schnitt über die Grenze des Polarwirbels hinweg. Während dieser Kampagne wurden dabei die einzigen Meßpunkte innerhalb des Wirbels aufgenommen. Der Flug ist daher geeignet, um nach eventuellen Anzeichen für heterogene chemische Prozesse zu suchen. Rückwärtstrajektorien für den 27.1. von Kiruna aus, das sich wie unsere nördlichsten Meßpunkte gleichfalls im Wirbelinneren befand, zeigen deutlich, daß die Luft auf 380-475 K für lange Zeit so kalt war, daß die Bildungstemperatur von PSC-I Teilchen unterschritten wurde. Auf 435 K wurden im Extremfall sogar Temperaturen unter 190 K erreicht.

Die gemessenen ClONO_2 -Säulengehalte nehmen von außen zum Wirbelrand hin bis auf Werte von $1.9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ zu und fallen dann im Inneren auf Werte unterhalb der Nachweisgrenze ab. Man erkennt hier die Kragenstruktur von Chlornitrat am Wirbelrand (wenn auch nicht so ausgeprägt, wie sie von *Toon et al. (1992b, c)* beobachtet worden ist). Diese Abnahme von ClONO_2 im Wirbelinneren ist ein starkes Indiz für die vorangegangene Umwandlung in aktive Chlorverbindungen. Vergleicht man die niedrigen Werte aus dem Inneren mit den theoretisch zu erwartenden Werten bei reiner Dynamik aus Tabelle 5.6, so erkennt man, daß die gemessenen Säulengehalte nur durch chemische Reaktionen erklärt werden können.

Dieser Sachverhalt wird auch an der Korrelation von ClONO_2 mit HNO_3 deutlich (Abbildung 5.9). Bis zum äußeren Rand hin korrelieren beide Gase gut. Danach aber nimmt HNO_3 im Wirbelinneren extrem stark zu, während ClONO_2 abnimmt. Kann diese Zunahme von HNO_3 bis zu $3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ nun allein auf dynamische Effekte zurückgeführt werden, oder zeigen sich wie im Fall von ClONO_2 auch hier Hinweise auf heterogene Reaktionen? Vergleicht man diese Werte mit den maximalen Säulengehalten von $2.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, die für Absinken berechnet wurden (Tabelle 5.6), dann sind unsere gemessenen Werte ein starkes Indiz für die Bildung von HNO_3 aus NO_x während des Winters. Auch die höchsten HNO_3 -Säulengehalte, die von *Toon et al. (1992c)* im arktischen Winter 1991/92 im Wirbel gemessen wurden und die aufgrund der Korrelation mit HF auf dynamische Prozesse zurückgeführt wurden, sind mit $3.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ noch niedriger als alle Meßpunkte aus dem Wirbelinneren am 27.1.93. Einen dritten Hinweis darauf, daß starke Denoxifizierung im Vortex stattgefunden hat, erbringt der Vergleich mit den Säulengehalten an NO_y aus Kapitel 5.2.5. Diese liegen im Bereich von $3.7\text{-}3.9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ im Inneren des Polarwirbels. Das heißt, daß die von uns gemessenen HNO_3 -Säulengehalte auf eine beinahe vollständige Denoxifizierung der Stratosphäre Ende Januar 1993 schließen lassen.

Aus der Auftragung von O_3 gegen HNO_3 (Abbildung 5.10) ist zu erkennen, wie die Ozonsäulengehalte am 27.1. zum Wirbelrand hin ansteigen, dann aber im Gegensatz zu HNO_3 unverändert bei ca. 400 DU bleiben. Diese Ozonwerte sind zwar etwas höher als die Säulengehalte außerhalb des Vortex, sie erreichen aber nicht einmal den niedrigsten Wert von 460 DU, der für reines Absinken berechnet wurde (Tabelle 5.6). Auch hier tritt also die gleiche Problematik wie in der ersten Kampagne bei der Verwendung von Ozon als Tracer für das Absinken auf.

Die Vortexrandwerte vom 27.1. werden im folgenden gemeinsam mit den Ergebnissen des Flugs am 31.1. diskutiert. Obwohl dieser zweite Flug wesentlich weiter nördlich stattfand, lag er praktisch ausschließlich im Wirbelrandbereich, da sich der Vortex zwischen dem 27.1. und 31.1. nach Norden verlagert hatte. Am 27.1. gibt es drei Meßpunkte am Wirbelrand, von denen die ersten beiden eher am äußeren Rand und der letzte im Randgebiet liegt. Die Werte von HNO_3 und O_3 steigen dabei von $1.89 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ auf $2.51 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bzw. von 348 DU auf 392 DU an. In der Abbildung 5.11 läßt sich erkennen, daß die gemessenen Säulengehalte von HNO_3 und O_3 am 31.1. relativ konstant sind. Ihr Mittelwert liegt bei $2.83 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bzw. 392 DU. Die Abbildung zeigt weiterhin, daß die Werte beider Gase mit den am Wirbelrand gemessenen Säulengehalten vom 27.1. recht gut übereinstimmen. Auch an der Korrelation von HNO_3 und O_3 (Abbildung 5.10) ist zu sehen, wie gut die Meßpunkte vom 31.1. auf dem Verlauf der Punkte vom 27.1. liegen.

Vergleicht man hingegen die Säulengehalte von $ClONO_2$ am Vortexrand während der zwei Flüge (Abbildung 5.12), so ist deutlich zu sehen, daß diese Werte nicht übereinstimmen. Am 31.1. ist der mittlere $ClONO_2$ -Säulengehalt mit $3.6 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ mehr als doppelt so hoch, wie die $1.7 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ am 27.1.. Daß dieser Unterschied nicht auf dynamische Prozesse zurückgeführt werden kann, beweisen nicht nur die ähnlich hohen Werte von HNO_3 und O_3 an beiden Tagen und die vergleichbare Lage bezüglich des Wirbelrands, sondern auch die Aerosolmessungen des LIDAR, das am 31.1. die Aerosolschicht in der gleichen Höhe maß wie am 27.1. im Randbereich.

Zur Interpretation dieses Unterschieds können Trajektorienrechnungen herangezogen werden. Die Station, die den Vortexrandpunkten vom 27.1. am nächsten liegt, ist Gardermoen, am 31.1. ist es die Bäreninsel. Abbildung 5.13 und 5.14 zeigen die zugehörigen Rückwärts-trajektorien. Man erkennt, daß in beiden Fällen die Luftvolumina auf Gebiete nördlich von $55^\circ N$ beschränkt bleiben und zum Wirbelrandbereich zu rechnen sind. Dabei sind zwei wesentliche Unterschiede in der Geschichte der Luft an den beiden Tagen festzustellen. Erstens kamen die Luftpakete am 31.1. aus südlicheren Breiten, während sie vor dem 27.1. weiter nördlich waren. Zweitens war die Luft am 31.1. vorher wesentlich wärmer und kühlte sich gerade ab. Am 27.1. hingegen war die Luft gerade in einer Erwärmungsphase, nachdem sie 12 Stunden vorher auf 475 K eine minimale Temperatur von 194 K und auf der Isentropenfläche 550 K 192 K erreicht hatte. Die Temperaturen waren also wesentlich niedriger als am 31.1.. Dies läßt den Schluß zu, daß die niedrigen $ClONO_2$ -Werte am 27.1. daher rühren, daß die Luft kurz zuvor durch heterogene Prozesse auf PSC-Oberflächen aktiviert wurde. Die hohen Säulengehalte am 31.1. dagegen können auf die Rückreaktion von ClO zu $ClONO_2$ während der höheren Temperaturen zurückgeführt werden. Weiterhin besteht die Möglichkeit, daß die Luft am 31.1. vorher weiter südlich mit NO_x -reicher Luft aus dem Wirbeläußeren gemischt wurde und daß sich $ClONO_2$ durch die Reaktion mit ClO aufgebaut haben könnte.

Modellrechnungen, die von *Chipperfield et al. (1994)* mittels eines dreidimensionalen chemischen Transportmodells durchgeführt wurden, zeigen deutlich den Einfluß der heterogenen Chemie und spiegeln auch den Unterschied zwischen dem 27.1. und 31.1. qualitativ wider.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß der Vortexrandbereich bezüglich ClONO_2 keine einheitliche chemische Zusammensetzung aufweist, sondern je nach der Geschichte der Luftmassen extrem variabel ist.

Der Meßflug am 31.1. war noch aus einem anderen Grund aufschlußreich. Es wurde nämlich die gleiche Flugstrecke zweimal durchflogen, so daß mit einer zeitlichen Differenz von ca. 3-4 Stunden am gleichen Ort gemessen werden konnte. Während man an den Säulengehalten von HNO_3 und O_3 keinen Unterschied erkennt, sind die gemessenen Säulengehalte von ClONO_2 in der zweiten Flughälfte deutlich erhöht, im Mittel um $0.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Die Modellrechnungen von *Chipperfield et al. (1994)* spiegeln diese relative Lage der Meßpunkte wider. Die beobachteten Unterschiede kommen dadurch zustande, daß sich in der Zwischenzeit die ClONO_2 -Verteilung mit starken Gradienten räumlich verlagert hat.

Der zweite Flug der Kampagne fand am 2.2.93 statt. In der ersten Hälfte der Flugstrecke, die entlang schwedischen Küste nach Süden führte, werden Säulengehalte von HNO_3 , ClONO_2 und O_3 gemessen, die eindeutig Luftmassen von außerhalb des Polarwirbels zugeordnet werden können (Abbildung 5.9 und 5.10). Gleiches zeigen auch die Werte der potentiellen Vorticity. Nach einer durch Wolken bedingten Meßunterbrechung sind die Säulengehalte der drei stratosphärischen Gase auf dem Rückflug entlang der norwegischen Küste Richtung Norden plötzlich stark erhöht. Sie nehmen nach Norden hin weiter zu. Das plötzliche Ansteigen der Werte während der zweiten Flughälfte deutet schon an, daß man sich hier eher am Wirbelrand befindet. Die PV-Werte in der Tabelle des Anhangs J sind zwar höher, zeigen aber den Verlauf der Wirbelgrenze nicht eindeutig. Besser kann man die Situation auf der Karte der potentiellen Vorticity mit eingezeichneter Flugroute analysieren (Abbildung 5.15). Hier wird am starken Gradienten der PV deutlich, wie die Vortexgrenze verläuft, und daß man sich zu Beginn außerhalb und am Ende des Flugs (beginnend auf der gleichen geographischen Breite, nur weiter westlich) im Wirbelrandbereich aufhielt. Abbildungen 5.9 und 5.10 zeigen die gute Korrelation aller drei Gase am 2.2.. Es werden HNO_3 -Säulengehalte von $1.8\text{-}2.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, ClONO_2 -Werte von $2 - 3.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ und O_3 -Werte von 360-445 DU gemessen. HNO_3 liegt etwas niedriger als am 31.1. und ist vergleichbar mit den Ergebnissen vom äußeren Wirbelrand am 27.1.. Die ClONO_2 -Säulengehalte sind höher als diejenigen am 27.1. und erreichen Werte wie am 31.1.. Die Säulengehalte von Ozon sind die höchsten, die während dieser Meßkampagne verzeichnet werden. Diesmal korreliert Ozon auch wesentlich besser mit den beiden anderen Gasen. Rückwärts-trajektorien von der Bäreninsel für den 2.2. zeigen, daß die Luft eine dem 31.1.93 ähnliche Geschichte hat. Dadurch sind die im Vergleich zum 27.1. erhöhten Werte an ClONO_2 erklärbar. Außerdem zeigt Abbildung 5.9, daß HNO_3 und ClONO_2 vom 2.2. gut mit den Werten vom 31.1. korrelieren. Warum Ozon hierbei aus der Reihe fällt, kann allerdings nicht beantwortet werden.

Während des Rückflugs nach Manching am 5.2. werden über Mittelskandinavien Säulengehalte von HNO_3 und ClONO_2 beobachtet, die mit den Randwerten des 2.2. vergleichbar sind. Ozon ist hingegen wieder etwas niedriger und entspricht eher den Säulengehalten vom 27.1.. Über Deutschland werden typische Säulengehalte für mittleren Breiten gemessen.

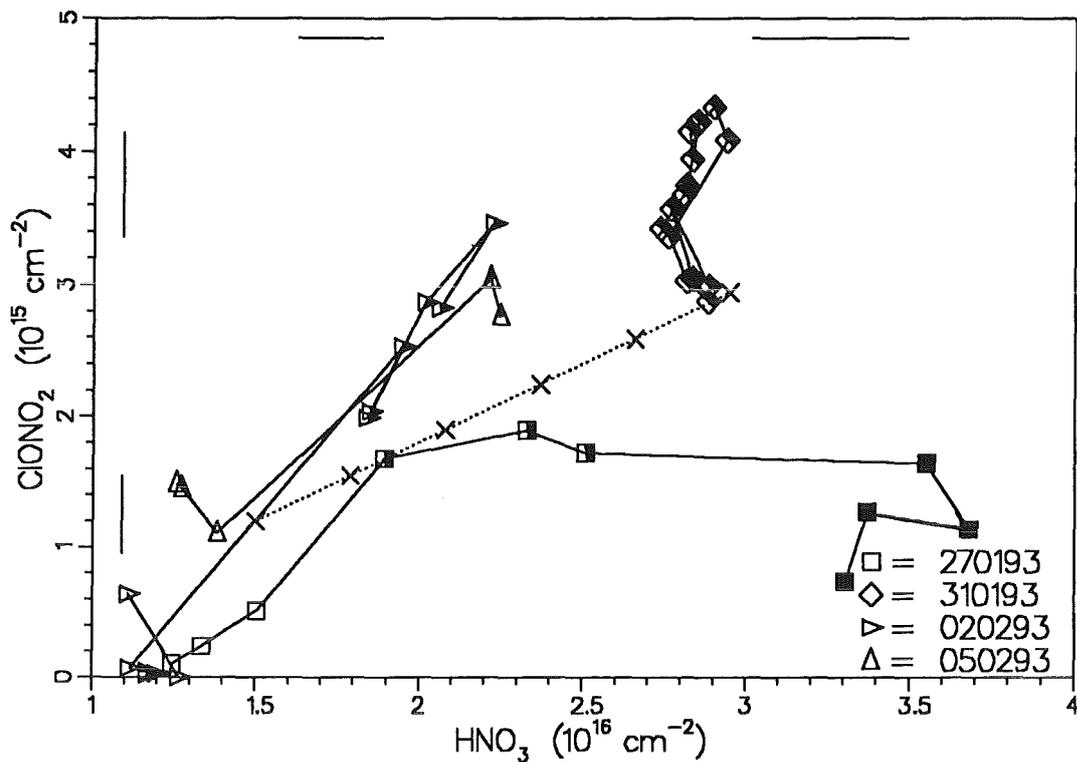


Abb. 5.9 Korrelation HNO_3 - ClONO_2 in der zweiten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

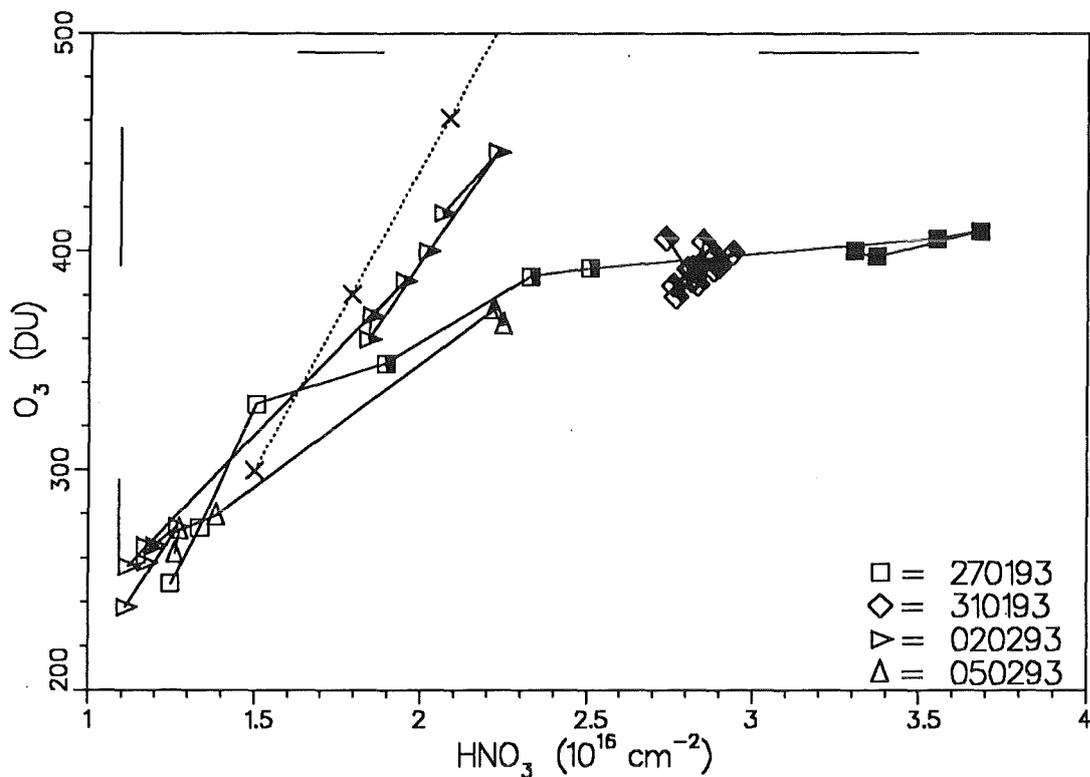


Abb. 5.10 Korrelation HNO_3 - O_3 in der zweiten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

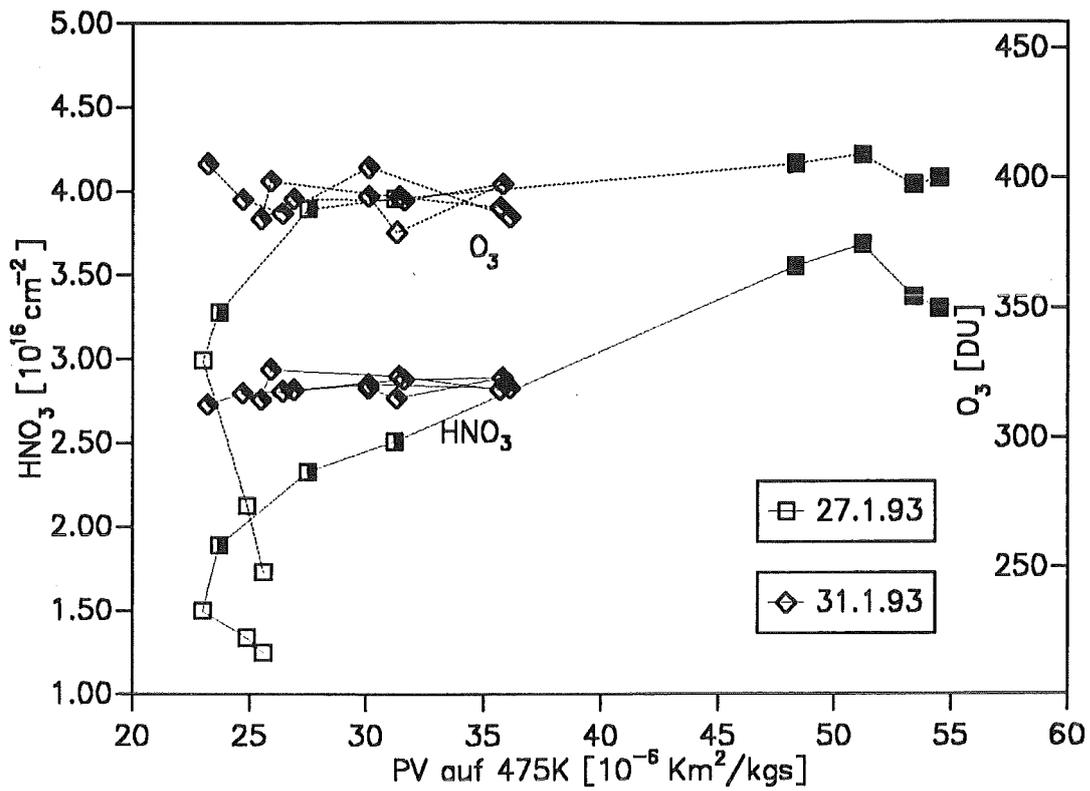


Abb. 5.11 Verlauf von HNO₃ und O₃ gegen die potentielle Vorticity auf 475 K am 27.1.93 und am 31.1.93.

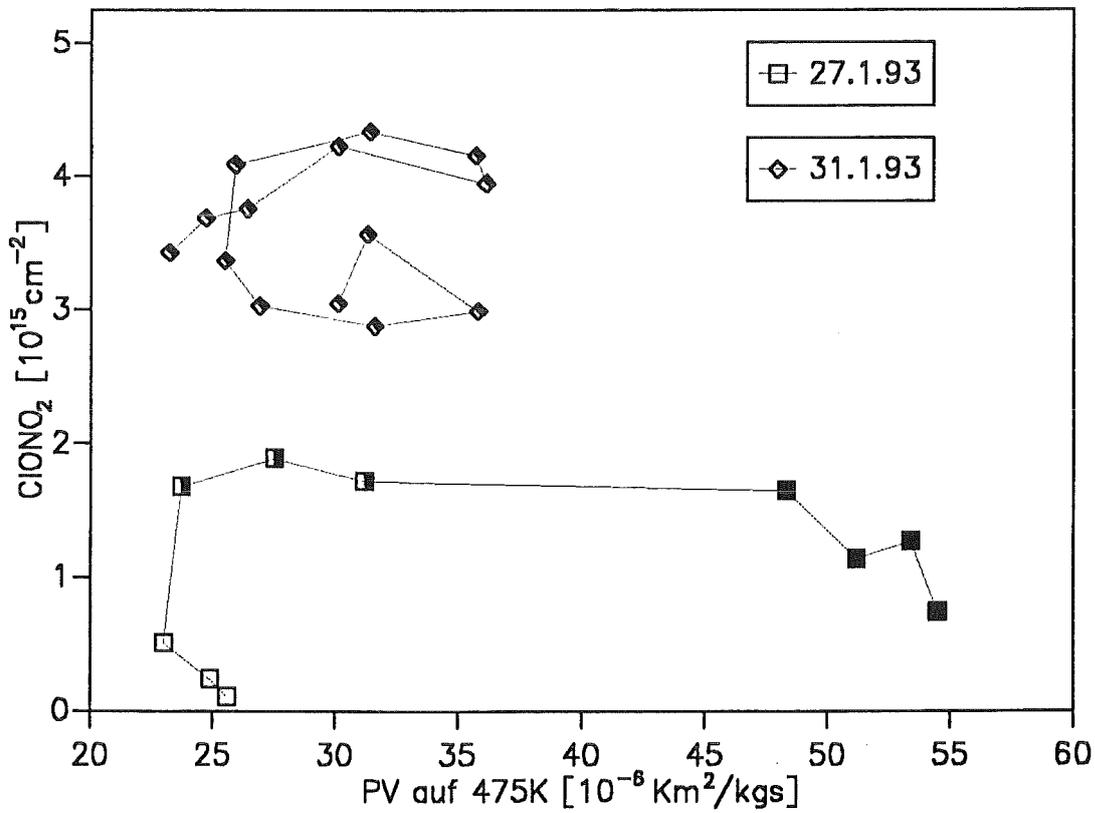
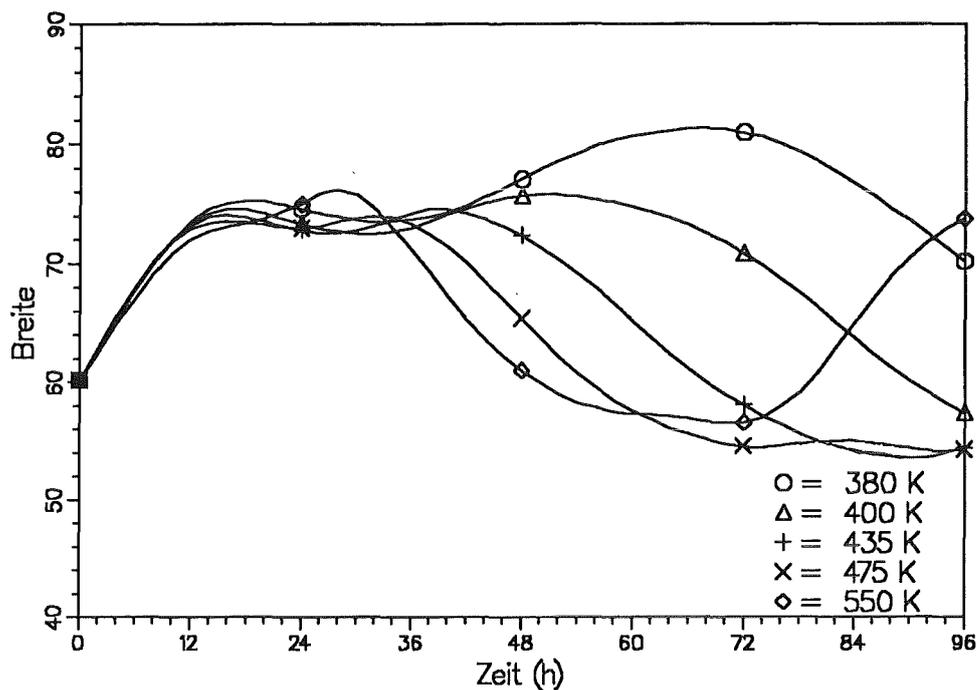


Abb. 5.12 Verlauf von ClONO₂ gegen die potentielle Vorticity auf 475 K am 27.1.93 und am 31.1.93.

Gardermoen 27.1.93



Bäreninsel 31.1.93

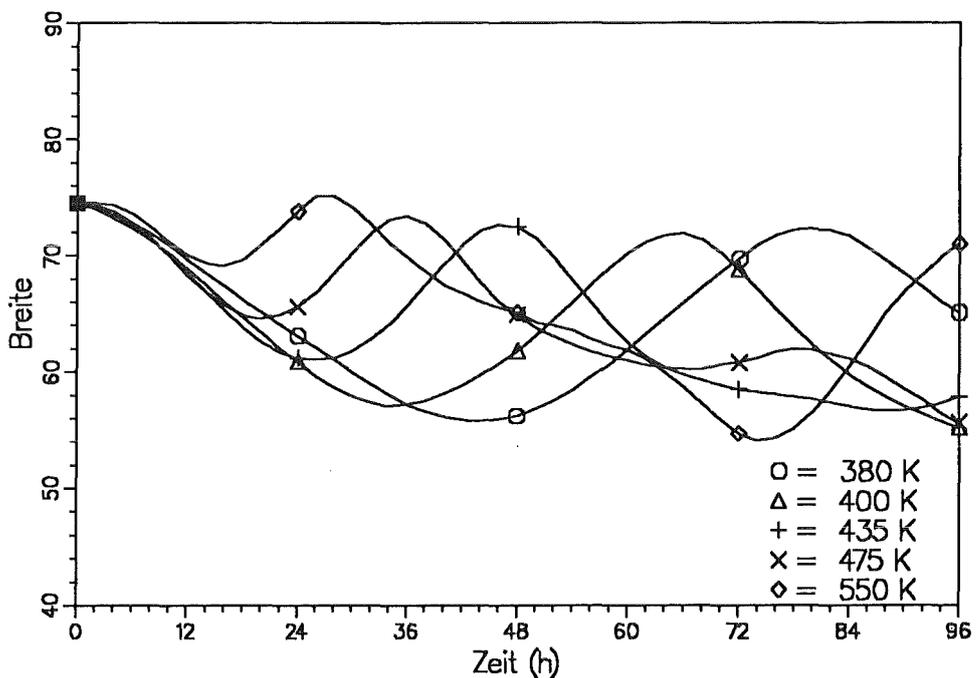
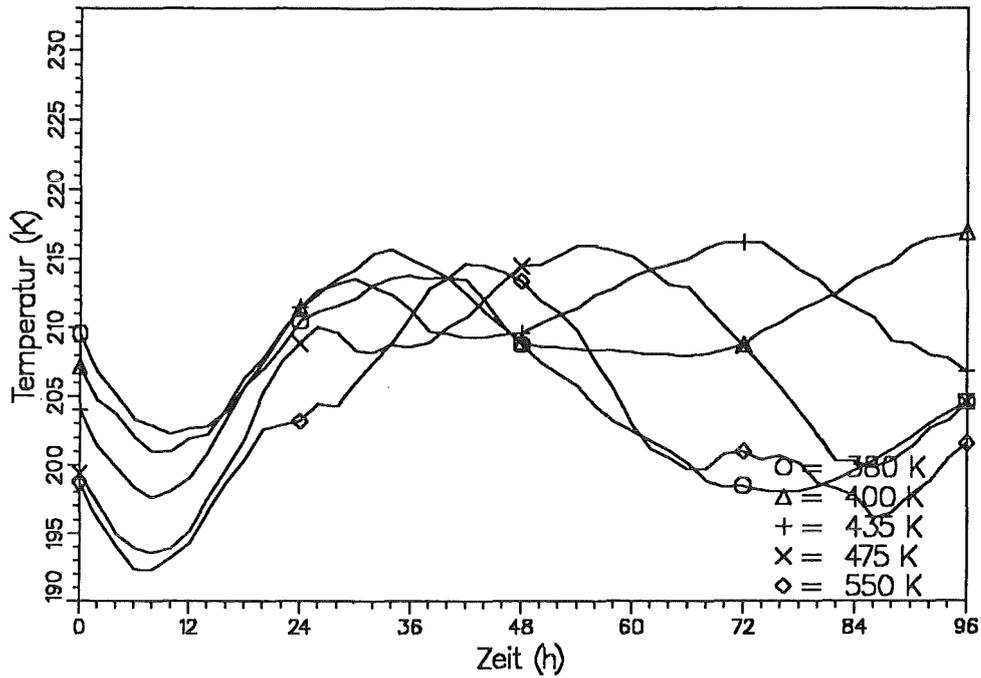


Abb. 5.13 Rückwärtstrajektorien gegen die geographische Breite mit Endpunkt in Gardermoen (60.2°N , 11.1°O) und der Bäreninsel (74.5°N , 19.0°O). Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Beide Stationen lagen an den jeweiligen Tagen am Rand des Polarwirbels. Man erkennt, daß die Luft am 27.1.93 aus nördlichen Breiten und am 31.1.93 aus dem Süden kam.

Gardermoen 27.1.93



Bäreninsel 31.1.93

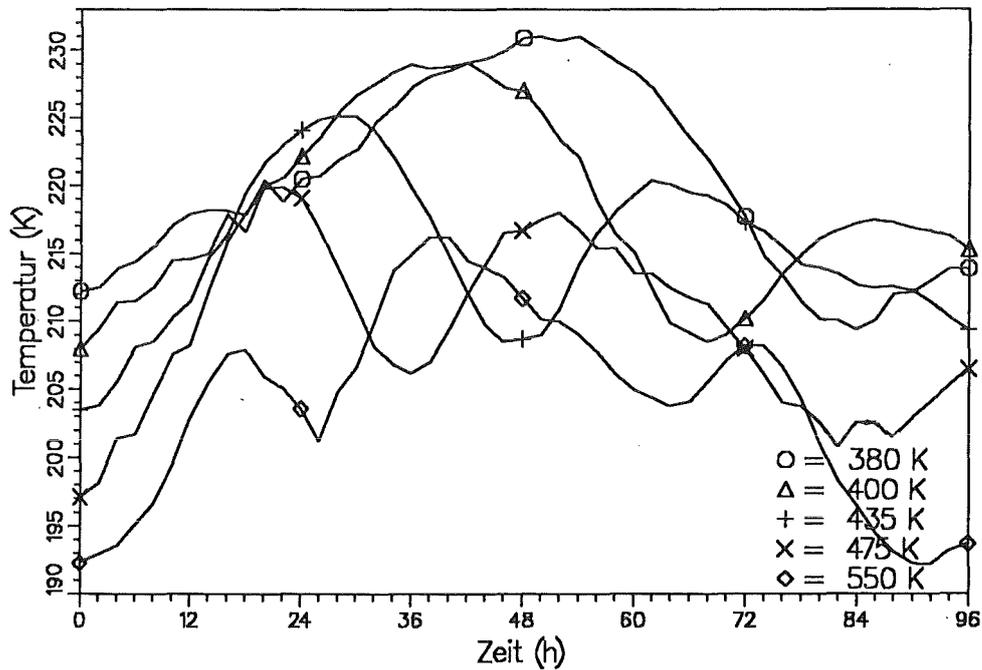


Abb. 5.14 Temperatur auf Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt in Gardermoen (60.2°N , 11.1°O) und der Bäreninsel (74.5°N , 19.0°O). Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Beide Stationen lagen an den jeweiligen Tagen am Rand des Polarwirbels. Man erkennt den deutlichen Unterschied der Temperaturgeschichte der Luftpakete vor der Ankunft.

2.2.93

1500 Uhr 550 K

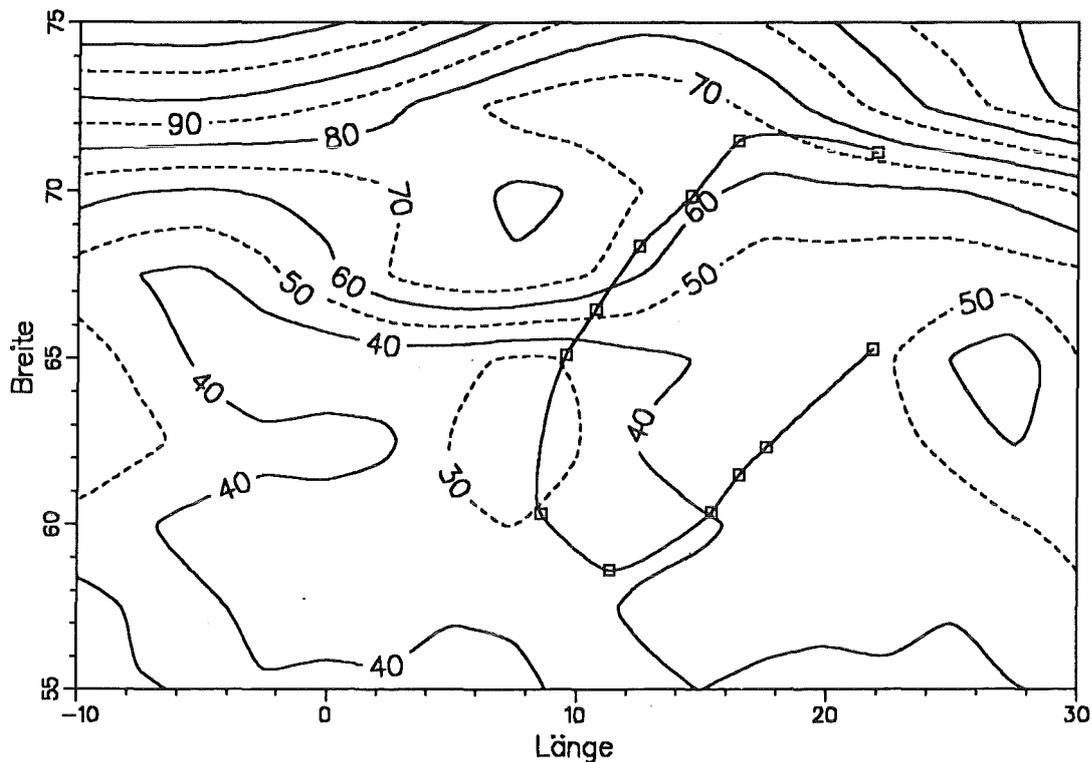


Abb. 5.15 Karte der potentiellen Vorticity auf 550 K am 2.2.93 mit eingezeichneter Flugroute. Die östliche Hälfte des Flugs lag deutlich außerhalb, während der westliche Teil am Rand des Polarwirbels stattfand.

5.6.1.3 Kampagne 3 (5.3.93 - 12.3.93): Der Polarwirbel über dem Mittelmeer

Einen halben Monat nach der zweiten Meßkampagne fand Mitte Februar die erste starke Erwärmung des Polarwirbels in diesem Winter statt. Danach war das Auftreten von PSCs sehr unwahrscheinlich. Die endgültige Erwärmungsphase begann Anfang März mit einer extremen Deformation des Wirbels, der sich über Europa bis fast 35°N erstreckte. In diesen Zeitraum fiel die dritte Transall-Meßkampagne, die zum einen die chemische Zusammensetzung des Polarwirbels drei Wochen nach der Stratosphärenenerwärmung untersuchen und zum anderen das Verhalten der Luft bis zu der südlichsten Erstreckung des Polarwirbels erforschen sollte.

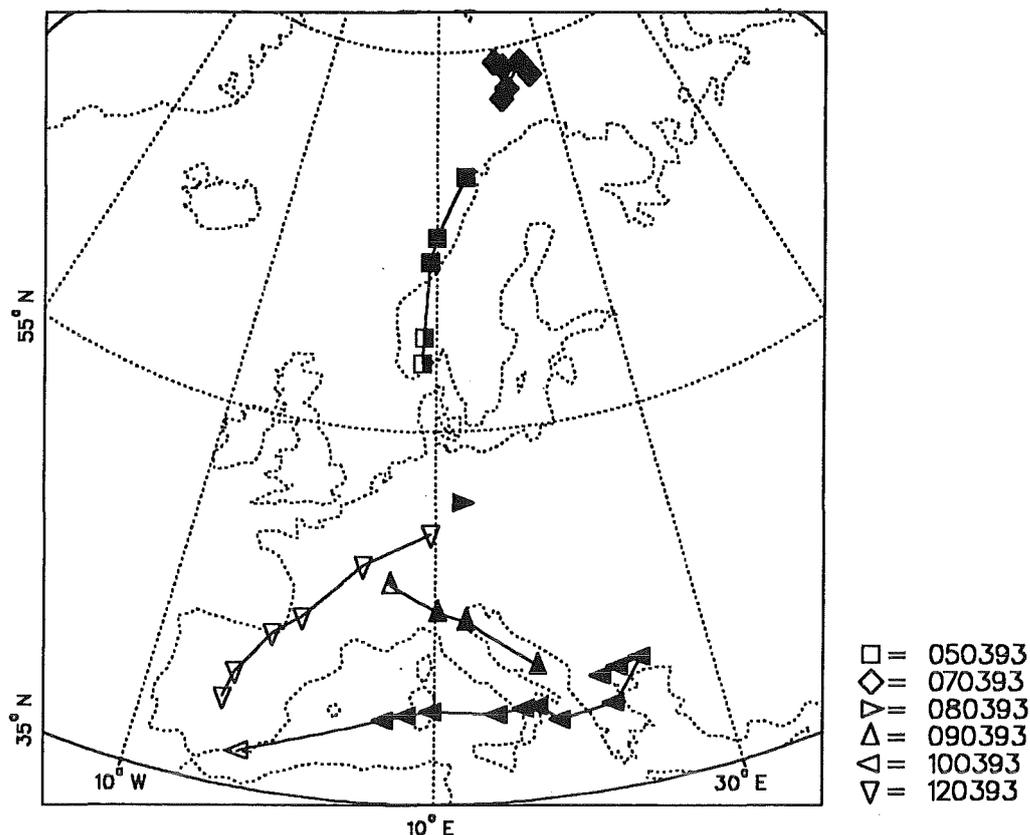


Abb. 5.16 Geographische Position der gemessenen Spektren während der dritten Kampagne im Winter 1992/93. Die einzelnen Flüge unterscheiden sich durch die Form der Symbole. Die Ausfüllung der Symbole zeigt die relative Lage bezüglich des Polarwirbels an: leer = außerhalb, halb = Randlage, voll = innerhalb.

Um die Luft im Norden mit den Messungen der zweiten Kampagne vergleichen zu können, fand am 5.3. ein Flug von Manching nach Kiruna mit Meßpunkten am Vortexrand und -inneren statt. Am 7.3. wurde dieser Flug nach Norden hin fortgesetzt. Dabei wurden Säulengehalte von Spurengasen im Inneren des Wirbels gemessen. Zur weiteren Untersuchung der Luftmassen auf ihrem Weg innerhalb des Polarwirbels nach Süden schlossen sich drei Meßflüge an. Ein Flug am 8.3. zurück nach Manching wurde am 9.3. nach Thessaloniki fortgesetzt. Von da aus führte ein weiterer Flug am 10.3. nach Westen über das Mittelmeer hinweg bis zu den Kanarischen Inseln. Alle diese Flüge lieferten Meßwerte aus dem Wirbelinneren, bis auf einen Punkt außerhalb am 10.3.. Der Rückflug nach Deutschland am 12.3. fand ausschließlich außerhalb des Wirbels statt.

Außerhalb des Wirbels werden am 10.3. auf 37°N für ClONO_2 Säulengehalte unter der Nachweisgrenze, für HNO_3 von $1.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und für O_3 von 320 DU gemessen. Etwas weiter nördlich zwischen 40°N und 50°N werden am 12.3. Werte für ClONO_2 , HNO_3 und O_3 von unterhalb der Nachweisgrenze bis $1.3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, von $1.4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bis $1.6 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und von 311 DU bis 371 DU erhalten - durchweg typische Werte für mittlere Breiten.

Der Flug ins Wirbelinnere am 5.3. nach Kiruna und seine nördliche Fortsetzung am 7.3. zwischen Nordskandinavien und Spitzbergen zeigen im Vergleich mit der zweiten Meßkampagne einen deutlichen Unterschied in den ClONO_2 -Säulengehalten. Das Spurengas steigt von Wirbelrandwerten mit $3\text{-}4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ zu Säulengehalten im Inneren von bis zu

$4.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ am 5.3. und $5.4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ am 7.3., den höchsten Werten dieser Kampagne, an. Es tritt also kein ClONO_2 -Kragen am Wirbelrand mehr auf. Durch Absinkvorgänge läßt sich die starke Erhöhung der Säulengehalte im Inneren nicht erklären. Dies zeigt sich etwa an der eingezeichneten Absinkgeraden in Abbildung 5.17, in der die Korrelation von ClONO_2 und HNO_3 in dieser Kampagne dargestellt ist. Das Phänomen des plötzlichen Anstiegs von ClONO_2 nach Ende der kalten Phase des Polarwirbels wurde auch während der EASOE-Kampagne beobachtet (Kapitel 5.6.2, *Adrian et al., 1994, Oelhaf et al., 1994*). Unsere Messungen zeigen, daß diese Beobachtung kein Einzelfall während eines bestimmten Winters war sondern wahrscheinlich in jedem Winter, in dem genügend tiefe Temperaturen zur Bildung von PSCs vorliegen, auftritt. Nach *Müller et al. (1994)* wird der ClONO_2 -Anstieg dadurch hervorgerufen, daß das reaktive Chlor, das sich während der kalten Periode im Wirbelinneren angereichert hat, mit NO_2 zu ClONO_2 reagiert. Dieses kann dann aufgrund von fehlenden PSCs nicht mehr abgebaut werden. Voraussetzung dazu ist allerdings, daß genügend NO_x im Wirbelinneren zur Verfügung steht. Wie wir bei der Diskussion der zweiten Kampagne gesehen haben, lag während dieser Zeit fast das gesamte NO_y in Form von HNO_3 vor. Es stellt sich daher die Frage, welche Säulengehalte von HNO_3 nun in der dritten Kampagne beobachtet wurden, und ob diese mit dem Anstieg von ClONO_2 zu vereinbaren sind.

Der Säulengehalt von HNO_3 über der Transall erreicht am 5.3. Werte von $2.14 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und am 7.3. - ähnlich wie ClONO_2 - das Maximum der gesamten Kampagne von $2.45 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. Diese Säulengehalte sind deutlich niedriger als die $3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ am 27.1.93. Um eine eindeutige Aussage treffen zu können, ob die Erniedrigung des Säulengehalts nicht nur durch dynamische Prozesse verursacht wurde, muß das Absinken innerhalb des Polarwirbels am 5.3. und 7.3. berücksichtigt werden. Im Vergleich zur Aerosolschicht außerhalb des Vortex am 12.3. ergeben sich am 5.3. und 7.3. Absinkfaktoren von 0.13 bzw. 0.25. Die erhöhten Säulengehalte von HNO_3 im Wirbelinneren am 5. und am 7.3. lassen sich mit diesen Faktoren im Gegensatz zu den Werten am 27.1. allein durch Absinken erklären. Auch das Ansteigen der Säulengehalte der stratosphärischen Gase zwischen dem 5.3. und 7.3. ist auf den unterschiedlichen Grad des Absinkens zurückzuführen. Da HNO_3 innerhalb des Wirbels am 27.1. durch chemische Prozesse erhöht war, muß es also in der Zwischenzeit aufgrund von Photolyse oder chemischen Reaktionen (Gleichungen 1.8, 1.9) abgebaut worden sein. Ein Teil des freigewordenen NO_x (ca. $0.5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$) ist jetzt in ClONO_2 gebunden.

Bezüglich der innerhalb des Wirbels gemessenen Säulengehalte von O_3 an beiden Tagen ist festzustellen, daß der Anstieg von 330 DU auf 400 DU sehr gut mit den unterschiedlichen DOS-Faktoren zusammenpaßt und daher durch dynamische Effekte erklärt werden kann. (Siehe auch die Korrelation von O_3 und HNO_3 an beiden Tagen in Abbildung 5.18.) Allerdings läßt sich, wie auch in den beiden vorigen Kampagnen, beim Vergleich mit den Ozonsäulengehalten außerhalb des Wirbels am 12.3. oder dem südlichsten Randwert am 5.3. feststellen, daß im Wirbelinneren die Werte um ca. 100 DU zu niedrig liegen.

Während der nächsten drei Tage am 8., 9. und 10.3. konnte die Luft innerhalb des Vortex auf dem Weg nach Süden verfolgt werden. Da am 8.3. wegen Wolkenbedeckung lediglich ein Meßpunkt über Deutschland gewonnen werden konnte, soll dieser zusammen mit dem Flug nach Thessaloniki am 9.3. diskutiert werden. Die mittleren Säulengehalte von HNO_3 und O_3 liegen mit Werten von $1.35 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und $1.55 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bzw. mit 284 DU und 337 DU in der Größenordnung von Säulengehalten aus mittleren Breiten. ClONO_2 ist mit

$2.4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ und $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ relativ zu den Werten außerhalb des Wirbels zwar erhöht, aber auch wesentlich niedriger als am 5.3. oder 7.3.. Die gute Korrelation von ClONO_2 mit HNO_3 (Abbildung 5.17) an allen Tagen ist ein Hinweis darauf, daß es sich bei den Änderungen im wesentlichen um dynamisch bedingte Variationen handelt. Dies zeigen auch die LIDAR-Aerosolmessungen der beiden Tage, aus denen Absinkfaktoren von lediglich 0.07 am 8.3. und 0.09 am 9.3. abgeleitet wurden. Die Luft muß also bei ihrem Weg in südlichere Breiten aufgestiegen sein. Sehr schön erkennt man diesen Sachverhalt auch an Rückwärts-trajektorien mit Endpunkten in Lindenberg für den 8.3. in der Nähe unseres Meßpunkts bzw. in Haute-provence am 9.3. (Abbildung 5.19). Der Druck entlang der Trajektorien nimmt nach Süden hin auf fast allen Niveaus deutlich ab. Inwieweit die Abnahme von ClONO_2 und HNO_3 im Süden auch der Photolyse bzw. chemischen Reaktionen zuzuschreiben ist, wurde von *Pfeilsticker et al. (1994)* näher untersucht.

Daß die Abnahme von Ozon wiederum nicht gut in das Bild als Tracer paßt, erkennt man an dessen Korrelation mit HNO_3 (Abbildung 5.18). Die Ozonsäulengehalte vom 8. und 9.3. liegen nicht auf der Geraden, die durch die Meßwerte innerhalb des Vortex vom 5. und 7.3. aufgespannt wird. Auch nimmt der Mittelwert von O_3 zwischen dem 7.3. und 9.3. nur um 15.5% im Vergleich mit 35-38% bei HNO_3 und ClONO_2 ab.

Auf dem Flug von Thessaloniki zu den Kanarischen Inseln am 10.3.93 wurde im wesentlichen entlang des vierzigsten Breitenkreises über dem Mittelmeer innerhalb des Polarwirbels gemessen. Wegen Wolkenbedeckung konnte zwischen Spanien und den Kanarischen Inseln nur über Südspanien ein Meßpunkt außerhalb des Wirbels aufgenommen werden. Abbildung 5.20 zeigt den O-W-Schnitt der berechneten Säulengehalte. Die Vortexgrenze liegt nach LIDAR-Messungen bei ca. 5°O . Deutlich ist die sprunghafte Abnahme aller drei Säulengehalte beim Verlassen des Wirbels zu erkennen. Im Wirbelinneren werden Mittelwerte von $3.9 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für ClONO_2 , $1.78 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ für HNO_3 und 381 DU für O_3 gemessen. Dies stellt eine Zunahme gegenüber den beiden vorhergehenden Tagen dar. Nach Abbildung 5.17 korrelieren ClONO_2 und HNO_3 wieder relativ gut mit den vorherigen Messungen. Dies läßt auf atmosphärische Dynamik als Hauptverursacher schließen. Die Ozonsäulengehalte korrelieren außerdem gut mit den beiden vorherigen Tagen, jedoch nicht mit den Messungen weit im Norden. Es könnte deshalb vermutet werden, daß zwischen den nördlichen Messungen innerhalb des Vortex und den Messungen im Süden ein Unterschied besteht. Betrachtet man den Verlauf der Trajektorien, so läßt sich erkennen, daß während der Messungen im Norden die Luft auf allen Niveaus aus dem Vortexinneren stammt. Dagegen wird im Süden auf 400 K (ca. 15 km Höhe) und darunter Luft aus südlichen Breiten in das Profil eingemischt. Um eine relative Erhöhung der Säulengehalte zu erhalten, müßte also ozonreichere Luft einströmen. Dies scheint eher unwahrscheinlich, da das Profil innerhalb des Wirbels in dieser Höhe schon durch Absinken erhöhte Mischungsverhältnisse haben sollte. Eine relative Erhöhung des Säulengehalts durch Mischung würde sich lediglich dann ergeben, wenn das Ozonprofil innerhalb des Vortex unterhalb 400 K stark vermindert wäre. Die maximale Erhöhung der Säulengehalte durch Einmischung von Luft mit für mittlere Breiten typischen Ozonmischungsverhältnissen würde dann ca. 50 DU betragen. Unter Berücksichtigung dessen würde eine bessere Korrelation der südlichen Ozonsäulengehalte mit den Säulengehalten im Norden erzielt. Betrachtet man allerdings Ozonprofilmessungen aus Sondenaufstiegen im Norden, z.B. am 6.3. oder 8.3. über der Bäreninsel, so läßt sich keine derartige Veränderung des Profils unterhalb 15 km feststellen. Daher wird die An-

nahme, daß die schlechte Korrelation der Ozonsäulengehalte durch Einmischung fremder Luft zustande kommt, unwahrscheinlich.

Am 12.3. werden, wie schon erwähnt, normale Werte aus mittleren Breiten gemessen. Es gibt daher keinen Hinweis darauf, daß Luft aus dem Wirbel, der sich noch wenige Tage zuvor an dieser Stelle befand, ausgeströmt ist und sich mit der nachfolgenden Luft vermischt hat.

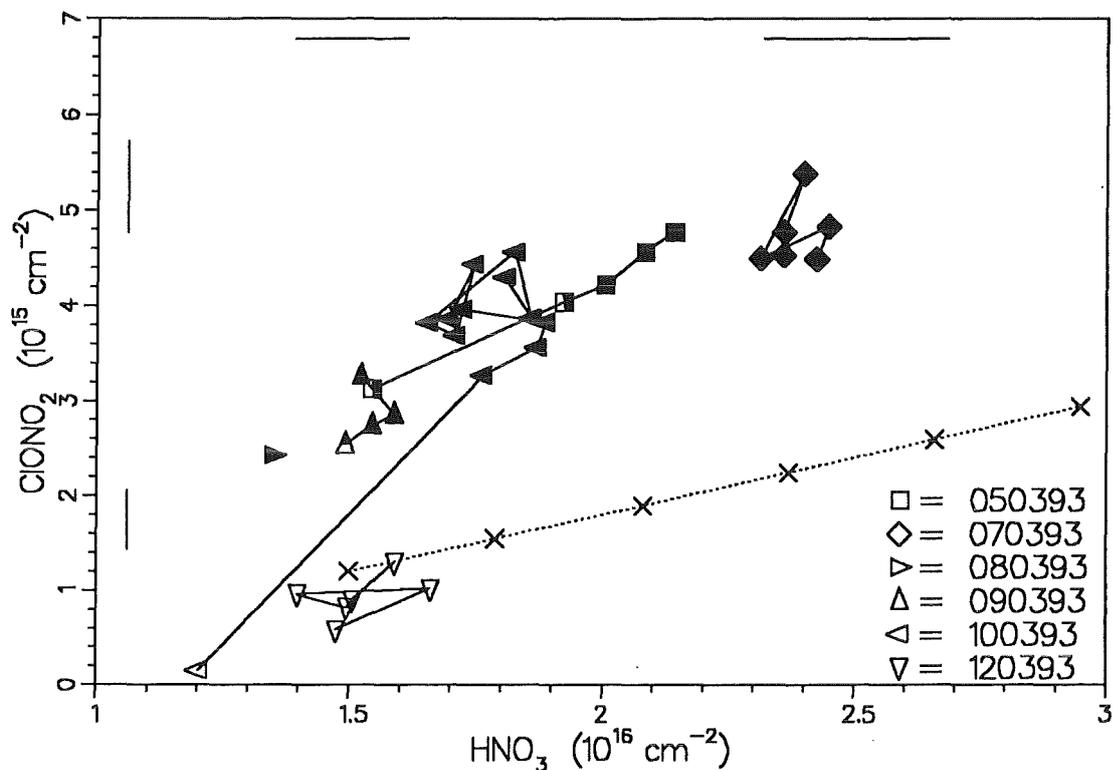


Abb. 5.17 Korrelation HNO_3 - ClONO_2 in der dritten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

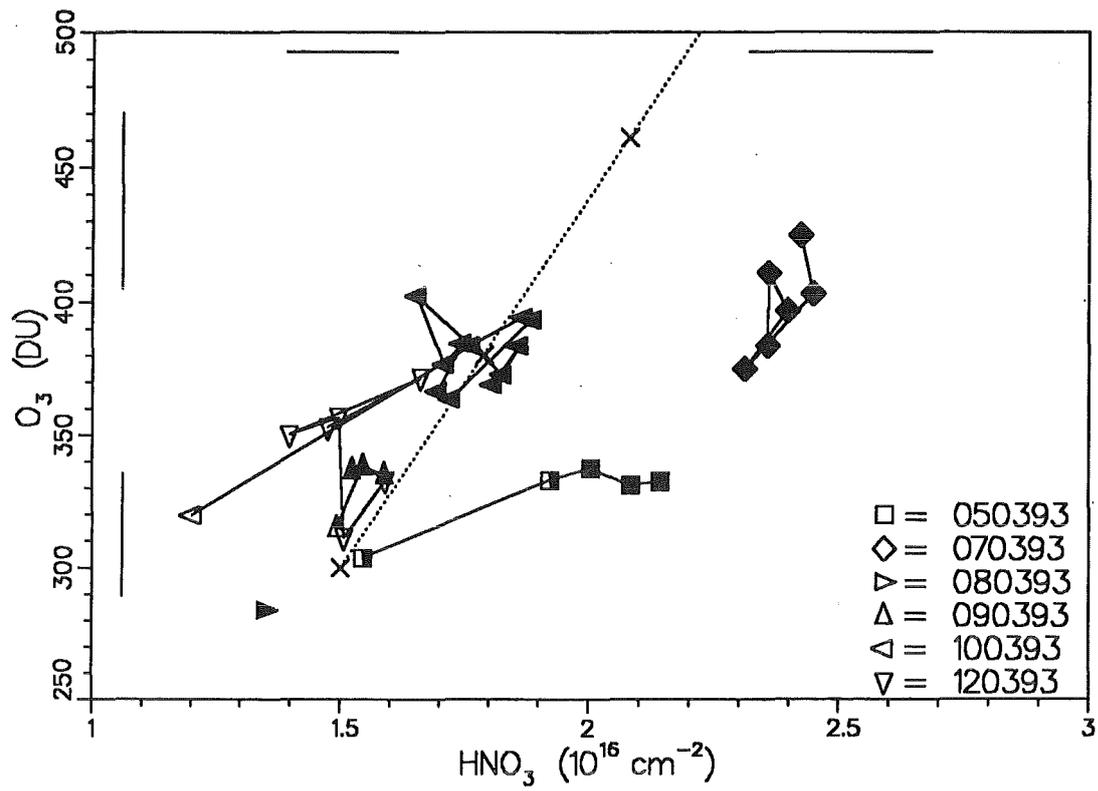
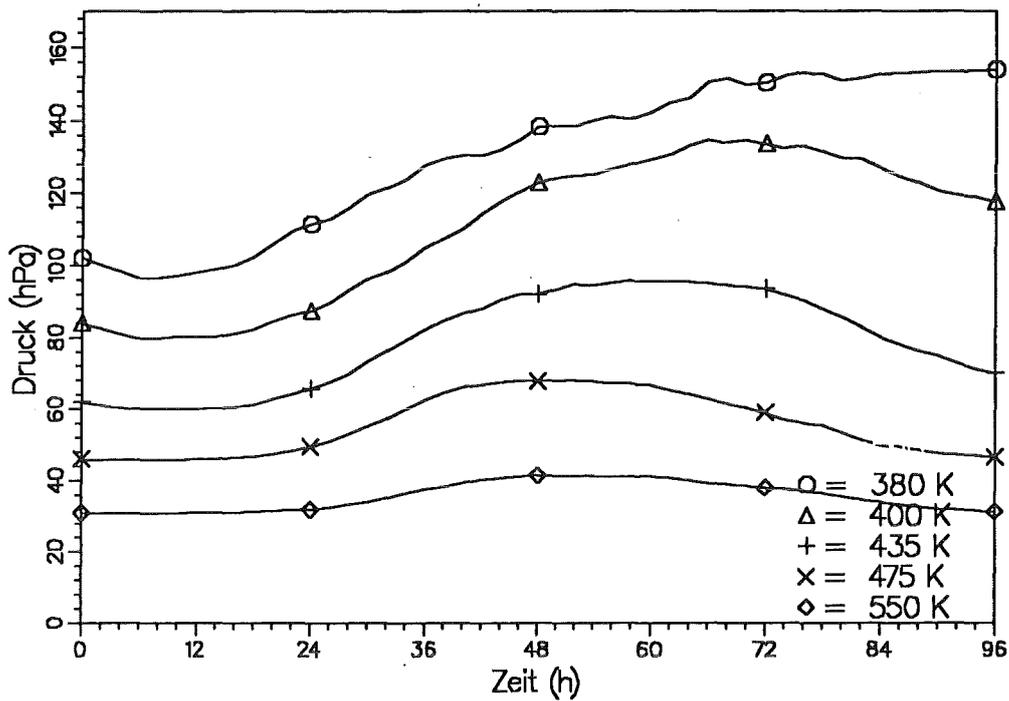


Abb. 5.18 Korrelation HNO_3 - O_3 in der dritten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

Lindenberg 8.3.93



Hauteprovence 9.3.93

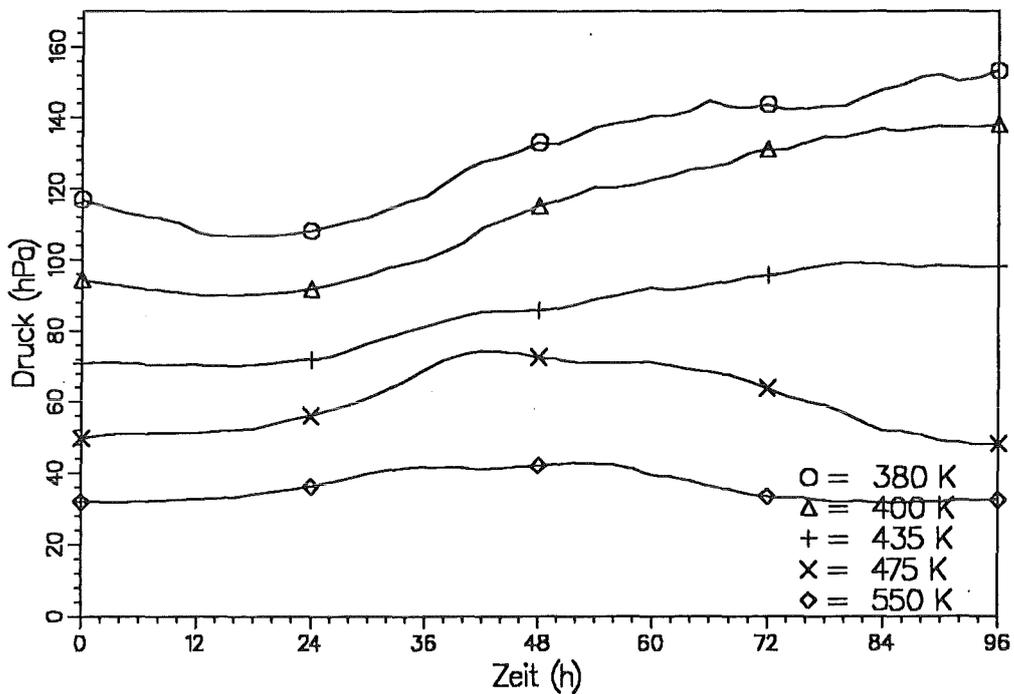


Abb. 5.19 Rückwärtstrajektorien am 8.3.93 mit Endpunkt in Lindenberg (52.2°N, 14.1°O) und am 9.3.93 mit Endpunkt in Hauteprovence (43.9°N, 5.7°O). Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Man erkennt deutlich, wie in den letzten beiden Tagen der Druck auf den Niveaus konstanter potentieller Temperatur abnimmt.

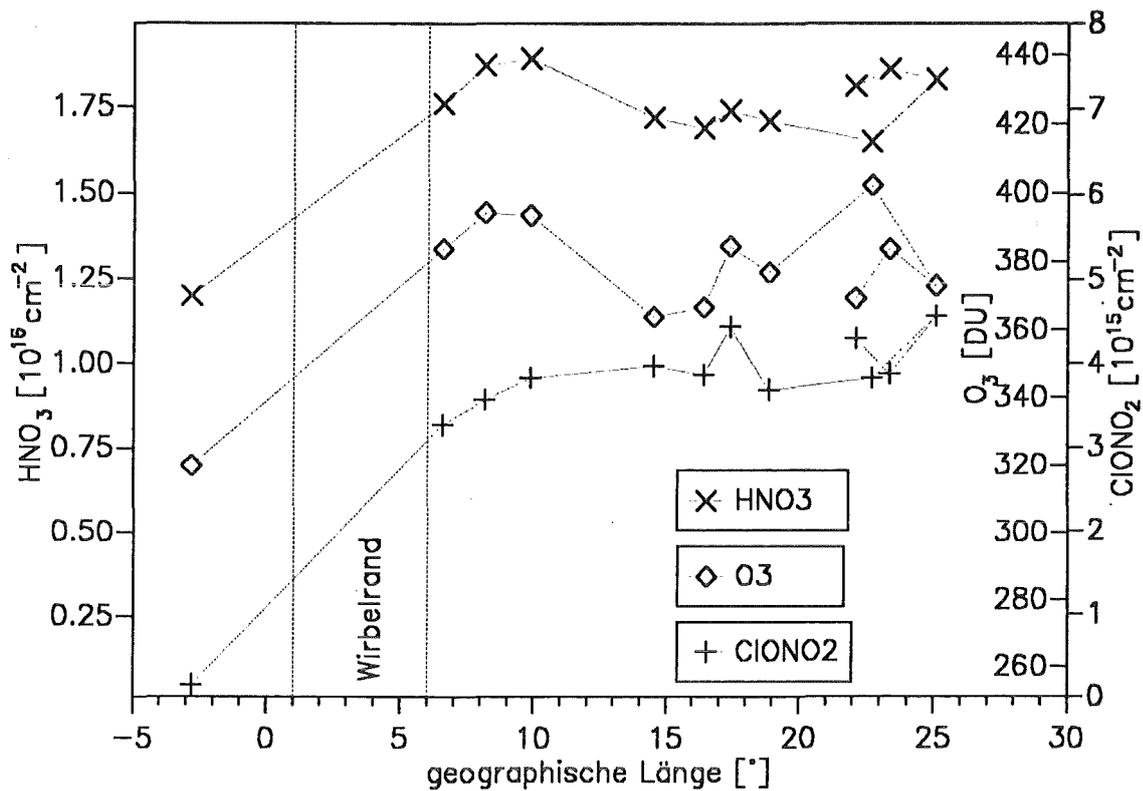


Abb. 5.20 Flug vom Wirbelinneren nach außen (Ost-West) am 10.3.93 über dem Mittelmeer und Südspanien. Der Wirbelrandbereich wurde durch LIDAR-Messungen bestimmt.

5.6.1.4 Kampagne 4 (24.3.93 - 29.3.93): Der Polarwirbel kurz vor der Auflösung

Nach der starken Deformation zu Beginn des Monats löste sich der Polarwirbel nicht sofort auf, sondern stabilisierte sich gegen Ende März nochmals. In dieser Phase - zwei Wochen vor der endgültigen Umstellung zur Sommerzirkulation - fand die letzte Meßkampagne des Winter 1992/93 statt. Untersucht werden sollte, inwieweit sich die chemische Zusammensetzung des Vortex in der kurzen Zeit seit der letzten Kampagne geändert hatte und inwiefern Auflösungserscheinungen, wie das Ausströmen von Luftmassen aus dem Wirbelinneren, stattfinden.

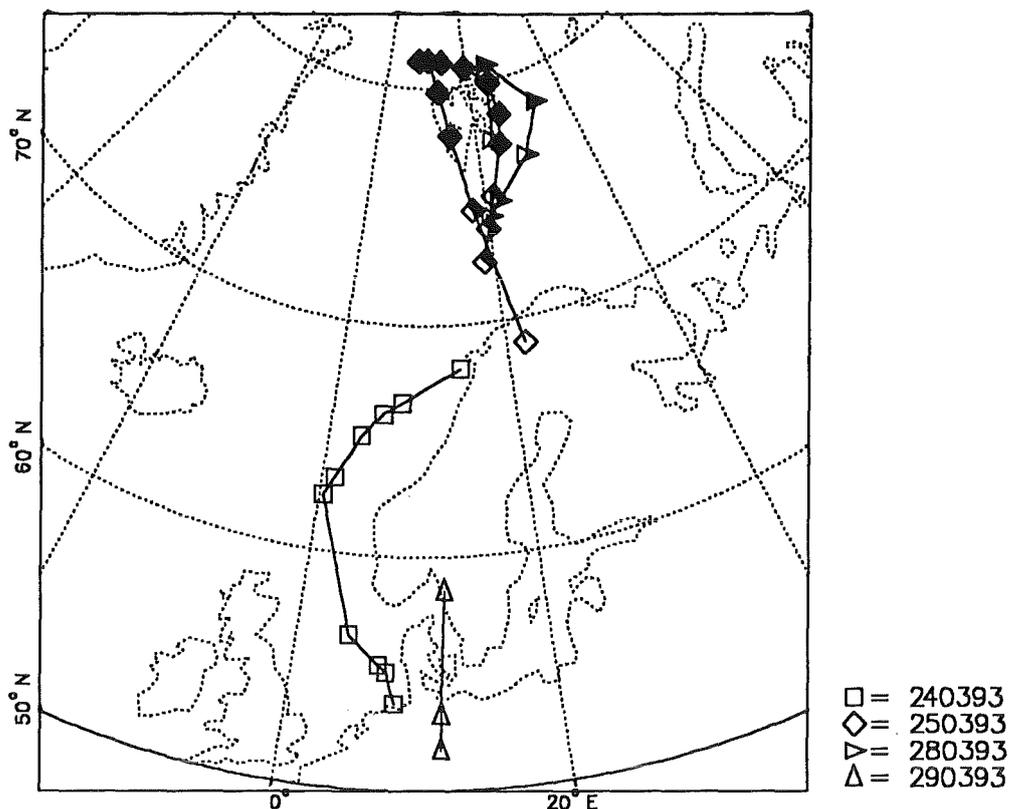


Abb. 5.21 Geographische Position der gemessenen Spektren während der vierten Kampagne im Winter 1992/93. Die einzelnen Flüge unterscheiden sich durch die Form der Symbole. Die Ausfüllung der Symbole zeigt die relative Lage bezüglich des Polarwirbels an: leer = außerhalb, halb = Randlage, voll = innerhalb.

Insgesamt wurden vier Flüge durchgeführt: ein Überführungsflug nach Kiruna mit Meßpunkten außerhalb des Wirbels; zwei Flüge von Kiruna nach Spitzbergen am 25.3. und 28.3. am Wirbelrand und im Inneren; sowie der Rückflug am 29.3. außerhalb des Vortex.

An diesem letzten Tag werden über Dänemark und Norddeutschland typische Säulengehalte mittlerer Breiten gemessen: ClONO_2 liegt unterhalb der Nachweisgrenze, HNO_3 bei $1.88 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und Ozon bei 366 DU.

Im Gegensatz dazu kam es bei dem Hinflug am 24.3. zu ungewöhnlichen Ergebnissen. Nahe Dänemark werden nur leicht erhöhte Säulengehalte gemessen (ClONO_2 : $1.4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, HNO_3 : $1.9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, O_3 : 396 DU). Sechs Breitengrade, also ungefähr 650 km, weiter nördlich steigen die Werte von ClONO_2 um 130% auf $3.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Auch die Säulengehalte von HNO_3 und O_3 zeigen einen, wenn auch wesentlich weniger stark ausgeprägten Anstieg um 16% auf $2.22 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ bzw. um 23% auf 451 DU (Abbildungen 5.22 und 5.23).

Die extreme Erhöhung von ClONO_2 kann nur daher rühren, daß Luft aus dem Wirbelbereich gemessen wurde. Lagen die Meßpunkte also wirklich außerhalb des Vortex - wie es die Werte der potentiellen Vorticity (Anhang K) vermuten lassen - oder stammen sie doch aus dem Randbereich? Um dies zu entscheiden, sollen zuerst die Karten der potentiellen Vorticity betrachtet werden (Abbildung 5.24). Auf der isentropen Fläche von 550 K erkennt man, daß die Meßpunkte mit einem Abstand von ca. 1500 km vom Randbereich deutlich außerhalb liegen. Auf der Karte der 475 K-Fläche ist die Wirbelgrenze weiter nach

Süden verschoben, d.h. der Wirbelrand liegt nicht vertikal. Trotzdem befinden sich auch hier die Meßpunkte noch mindestens 200-300 km von der Wirbelgrenze entfernt. Auch die LIDAR-Aerosolmessungen zeigen keinerlei Anzeichen für ein Absinken, d.h. ein eventuelles Eindringen in die Vortexgrenze.

Während die erhöhten Säulengehalte von HNO_3 und Ozon eventuell noch auf dynamische Prozesse außerhalb des Wirbelbereichs zurückgeführt werden können, muß es sich bei dem Anstieg von ClONO_2 um eine Mischung von ClONO_2 -reicher Luft aus dem Vortex mit Luft von außerhalb handeln. Dieser Prozeß kann aber anhand von Trajektorien nicht nachvollzogen werden. Ein Ausströmen von Luft aus dem Wirbel ist zu diesem Zeitpunkt nicht unwahrscheinlich, da sich der Polarwirbel im Zustand der Auflösung befand. Es zeigt sich also, daß die erhöhten ClONO_2 -Gehalte im Wirbelinneren als Tracer zum Nachweis von Luft aus dem Vortex dienen können. Hohe ClONO_2 -Werte, die nun außerhalb des Wirbels zu finden sind, können dort zu einer Ozonzerstörung nach Reaktionszyklus 1.16-1.19 führen und für den beobachteten Abwärtstrend des Gesamt Ozons in mittleren Breiten mitverantwortlich sein.

Am darauffolgenden Tag, dem 25.3.93, wurde ein Flug von Kiruna bis nördlich von Spitzbergen durchgeführt. Dabei wurden hauptsächlich Meßwerte am inneren Wirbelrand und im Inneren erhalten (Abbildung 2.26). Darüberhinaus gab es einen Meßpunkt außerhalb in einer ähnlichen Lage relativ zum Vortex wie die Messungen mit erhöhten ClONO_2 -Werten am Tag zuvor. Dieser zeigt mit $3.4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (ClONO_2), $2.35 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ (HNO_3) und 449 DU (O_3) gleichfalls erhöhte Säulengehalte.

Die übrigen Werte im inneren Randbereich und Inneren zeichnen sich vor allem durch die sehr hohen ClONO_2 -Säulengehalte über dem Flugzeug aus. Diese liegen mit einem Mittelwert von $5.8 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ nochmals höher als die Maximalwerte der 3. Meßkampagne. Vergleicht man diesen Wert mit den Abschätzungen für Cl, von maximal $10 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ (Kapitel 5.2.5), wird klar, daß der größte Anteil davon in Form von ClONO_2 vorliegt. Da sich der aus Aerosolmessungen bestimmte Absinkfaktor von 0.27 am 25.3. kaum von demjenigen vom 7.3. unterscheidet, läßt dies die Aussage zu, daß innerhalb von zweieinhalb Wochen der Chlornitratgehalt des Wirbels um ca. 20% zugenommen hat. Dies bedeutet, daß während der dritten Kampagne im Wirbel noch reaktives Chlor vorhanden gewesen sein muß - ein Befund, der auch von dem DOAS-UV-Gerät an Bord der Transall anhand von erhöhten OCIO-Säulengehalten nachgewiesen wurde (*Pfeilsticker et al., 1994*).

Bezüglich HNO_3 liegt der Mittelwert der gemessenen Säulengehalte am 25.3. bei $2.26 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, also etwas niedriger als am 7.3..

Der mittlere Ozonsäulengehalt vom 25.3. ist mit 425 DU etwas höher als die typischen Werte, die im Süden außerhalb des Wirbels gemessen wurden. Jedoch erreichen sie nicht die Werte, die durch Absinken aus dem Absinkfaktor berechnet werden und liegen auch unterhalb der am Tag zuvor erhaltenen Säulengehalte in Wirbelnähe (Abbildung 5.23).

Am 28.3. fand nochmals ein Meßflug nach Norden entlang der Ostküste von Spitzbergen statt (Abbildung 2.27). Fast alle Meßpunkte stammen dabei aus dem Wirbelrandbereich. Die Säulengehalte von HNO_3 variieren von $1.67 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ am äußeren Rand bis $1.9 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ weiter im Inneren. Die Ozonsäulengehalte sind mit 330 DU bis 350 DU die niedrigsten der gesamten Kampagne. Die Säulengehalte beider Gase sind also um ca. 20% gegenüber dem 25.3. erniedrigt. Daß dies auf dynamische Prozesse zurückzuführen ist, erkennt man einmal an der relativ guten Korrelation der beiden Gase während der gesamten

Meßkampagne (Abbildung 5.23). Aber auch die Aerosolmessungen, aus denen am Wirbelrand DOS-Werte von 0.0 - 0.5 und im Inneren von 0.11 hergeleitet wurden, zeigen, daß die Luft im Vergleich zum 25.3. (DOS = 0.27) angehoben ist. Diese Unterschiede in den meteorologischen Verhältnissen spiegeln sich auch in Trajektorienrechnungen wider (Abbildung 5.25). Am 25.3. steigt der Druck auf der Rückwärtstrajektorie von Ny-Alesund (Spitzbergen) an, während vor dem 28.3. der Druck auf der Trajektorie deutlich abfällt, d.h. das Luftpaket angehoben wurde. Vergleicht man die Drücke auf 475 K und 550 K am 25.3. und 28.3. miteinander, so unterscheiden sie sich um ca. 15-20%; dies stimmt mit der Abnahme von O_3 und HNO_3 ungefähr überein.

Interessant sind die Messungen von Chlornitrat. Diese erreichen einmal mit $6.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ im Wirbelinneren vergleichbare Säulengehalte wie am 25.3.. Im Randbereich sind die Werte sehr variabel und hängen stark davon ab, ob man sich weiter am inneren (bis $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) oder am äußeren Rand ($1.6 - 2.3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) aufhält (Abbildung 5.22). Dieser starke Gradient von $ClONO_2$ im Randbereich und vor allem die gegenüber Werten aus mittleren Breiten nur leicht erhöhten Chlornitratsäulengehalte am äußeren Rand sind deshalb auffällig, weil am 25.3. kein so extremer Abfall und am 24.3. und 25.3. knapp außerhalb der Vortexgrenze noch stark erhöhte Werte an $ClONO_2$ festgestellt wurden. Es scheint, daß der Wirbel am 24. und 25.3. am Ort der Messungen 'durchlässiger' war als am 28.3.. Bei dieser Interpretation muß man jedoch vorsichtig sein, da auch die Säulengehalte von Salpetersäure und Ozon an diesem 28.3. niedriger sind als drei Tage zuvor. Wie oben gezeigt wurde, kann dies durch die dynamisch unterschiedlichen Verhältnisse begründet werden. Andererseits macht diese Erniedrigung gerade 20% aus, stellt also nur die Hälfte der 40%igen Abnahme von $ClONO_2$ im äußeren Wirbelrand dar.

Gibt es nun auch meteorologische Indizien für einen Unterschied zwischen den Wirbelrandbereichen beider Messungen? Vergleicht man die Karten der potentiellen Vorticity am 25.3. mit denjenigen am 28.3. auf verschiedenen Flächen potentieller Temperatur (Abbildungen 5.26, 5.27), so erkennt man, daß am 25.3. auf 475 K die Wirbelgrenze weiter nach Süden reicht als auf dem 550 K-Niveau. Der Wirbel liegt hier also schräg. Am 28.3. hingegen stimmen die Grenzen auf den verschiedenen Niveaus relativ gut überein. Daß der Wirbelrand am 28.3. weniger gestört war als am 25.3. erkennt man auch an den Trajektorien der Bäreninsel, die beide Male im Randbereich lag (Abbildung 5.28). Am 25.3. kommen die Luftmassen auf den unterschiedlichen Isentropenflächen kurz vor ihrer Ankunft aus sehr unterschiedlichen Breiten. Am 28.3. liegt dagegen keine solch starke Divergenz vor.

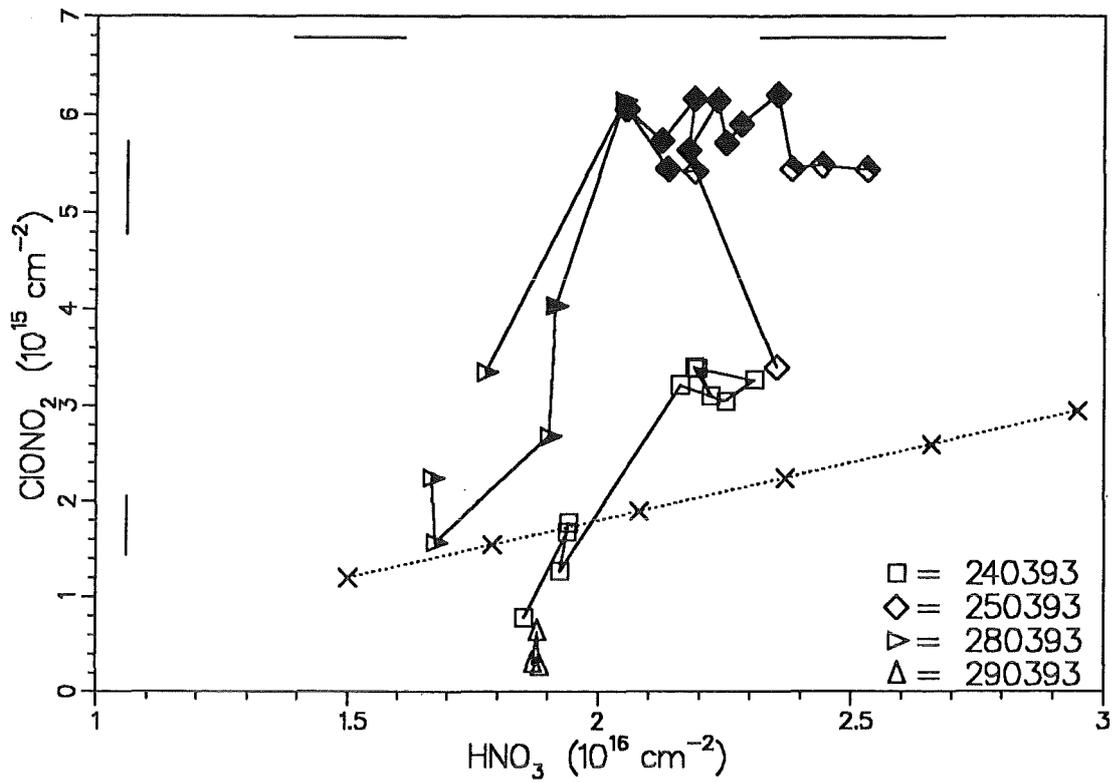


Abb. 5.22 Korrelation HNO_3 - ClONO_2 in der vierten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

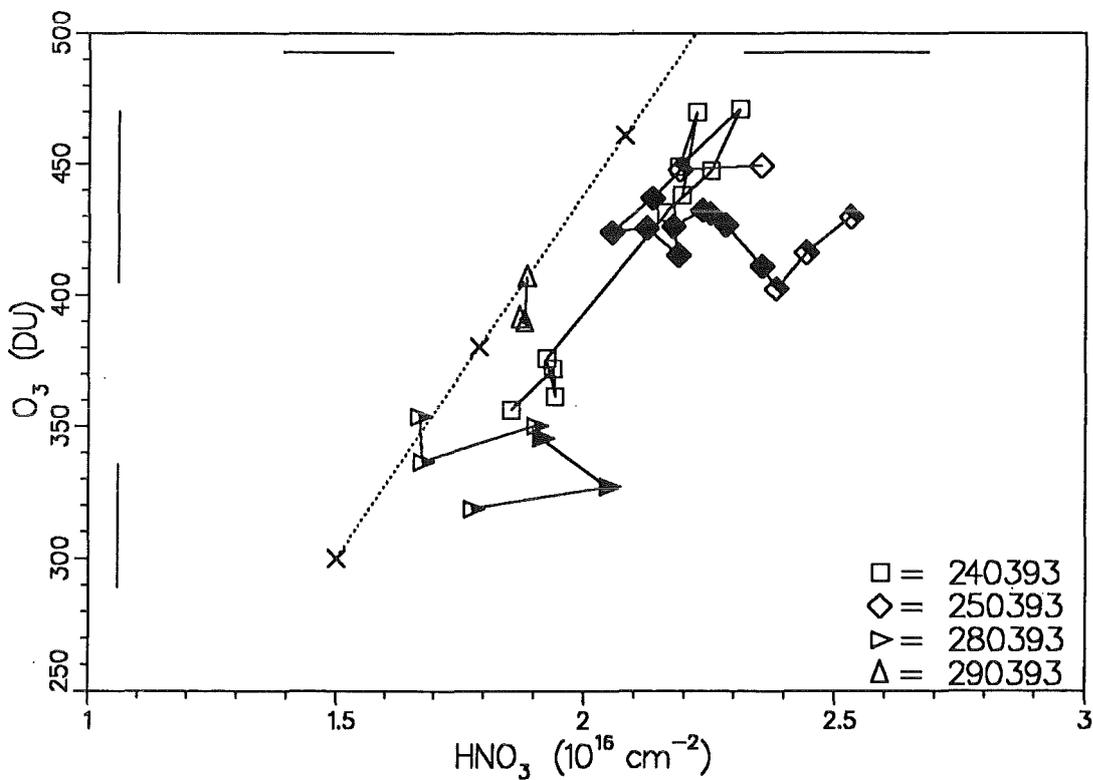
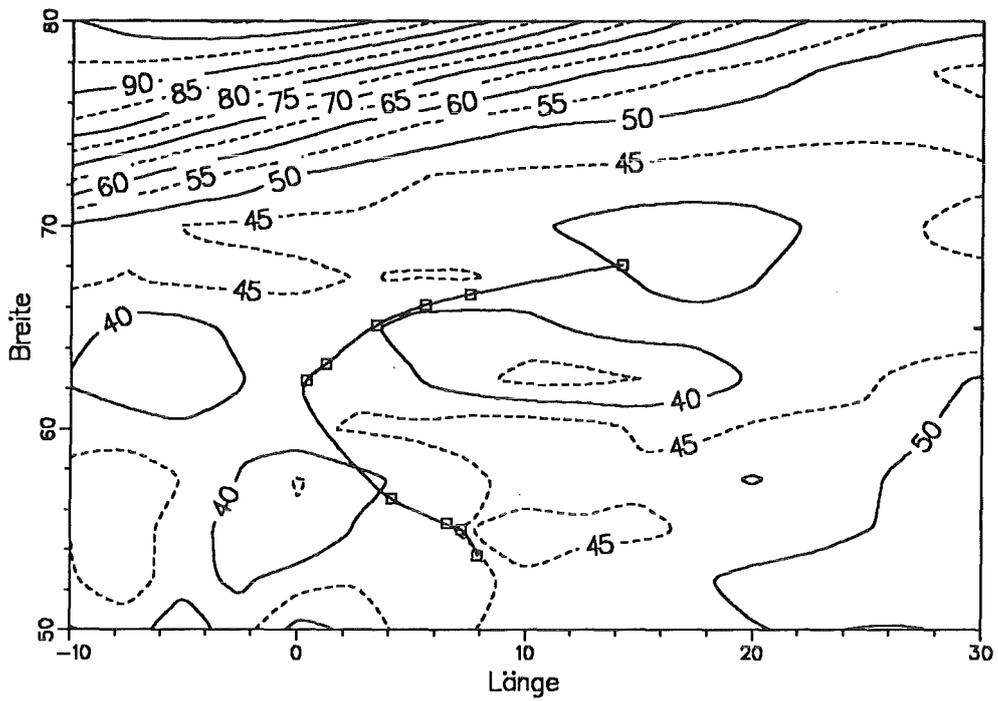


Abb. 5.23 Korrelation HNO_3 - O_3 in der vierten Kampagne des Winters 1992/93. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.6.)

24.3.93

1700 Uhr 550 K



24.3.93

1700 Uhr 475 K

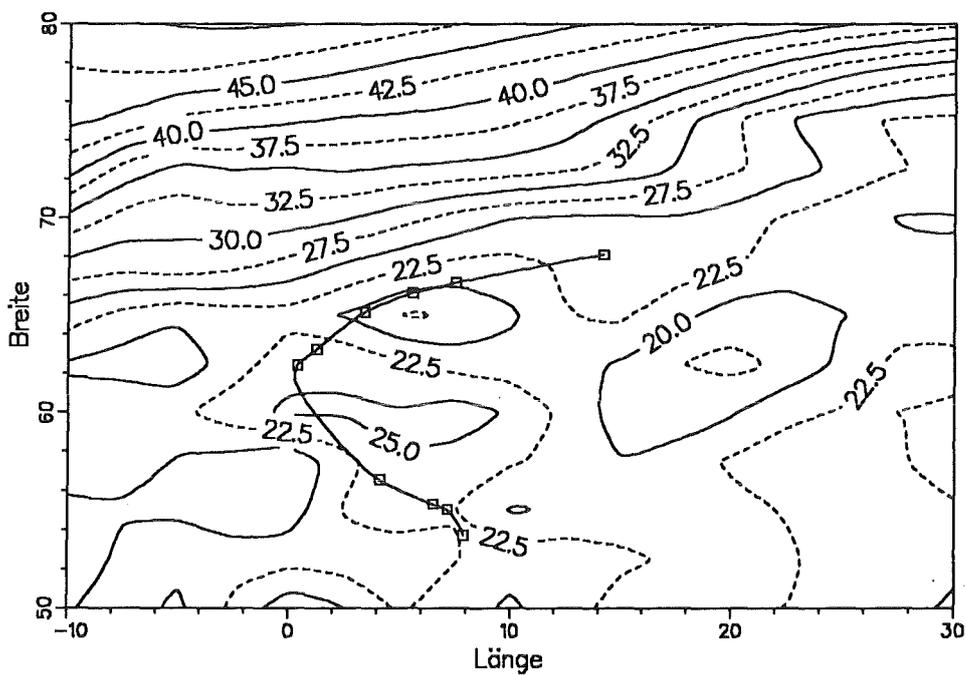
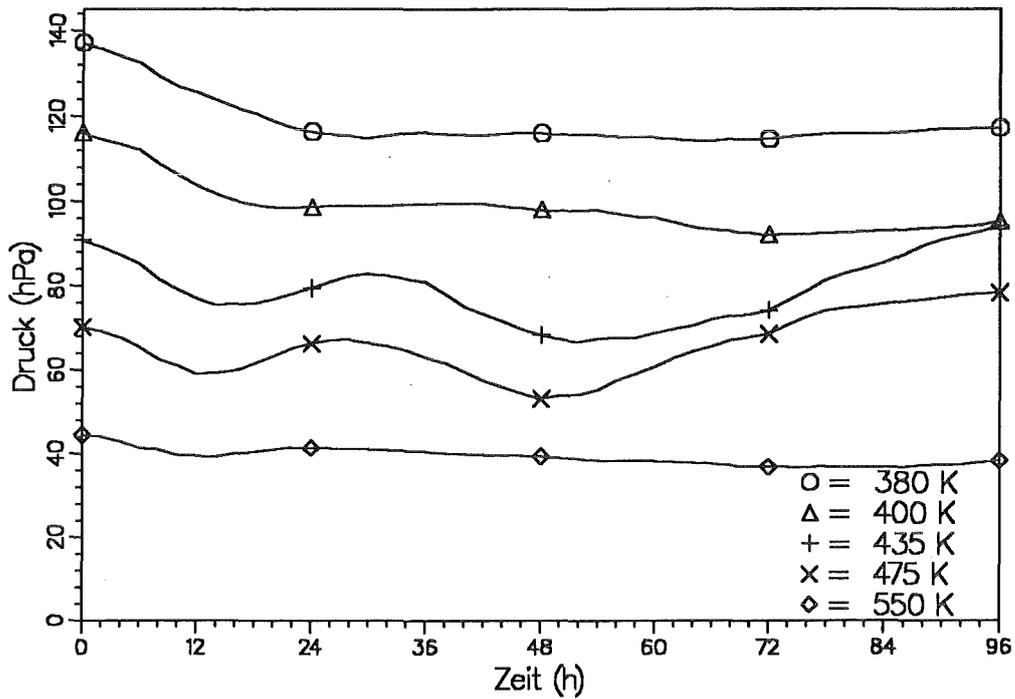


Abb. 5.24 Karten der potentiellen Vorticity am 24.3.93 auf 550 K (oben) und 475 K (unten) mit eingezeichneter Lage der Meßpunkte.

Bäreninsel 25.3.93



Bäreninsel 28.3.93

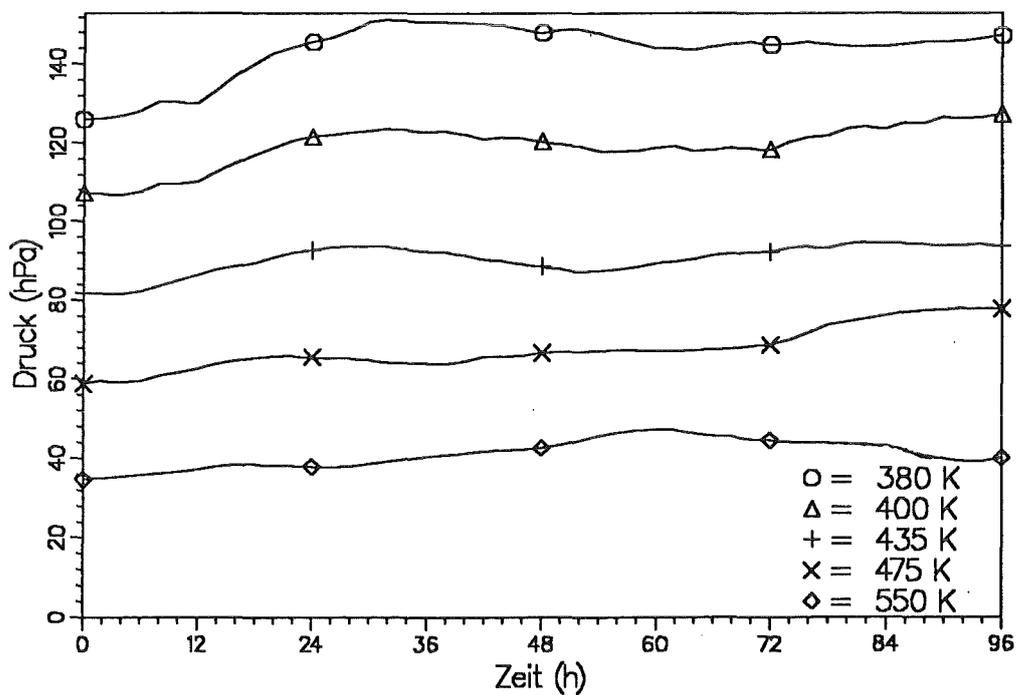
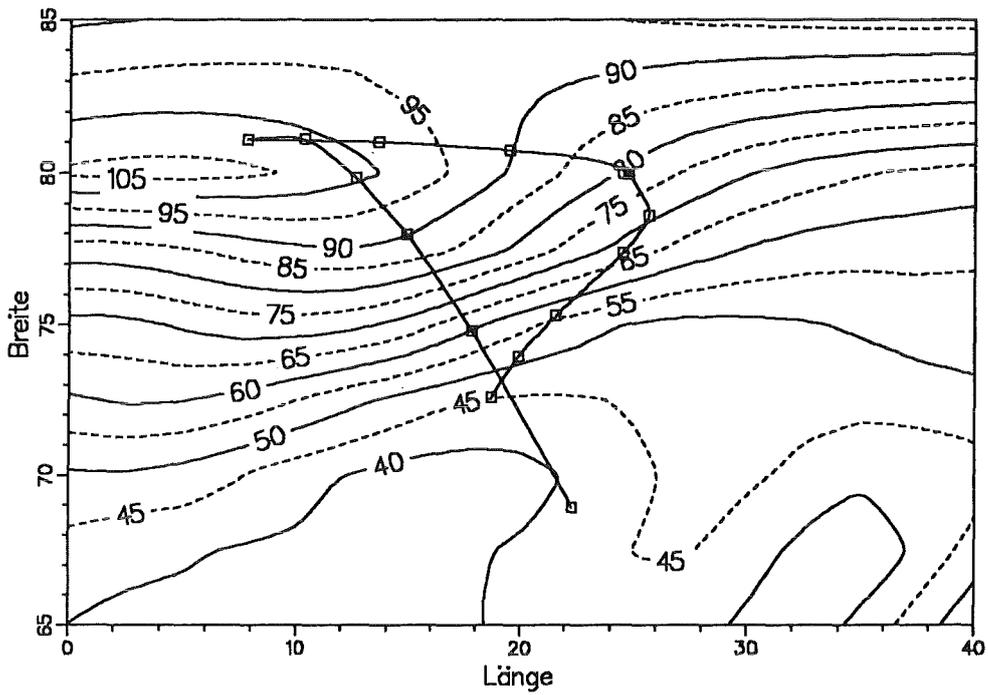


Abb. 5.25 Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt Bäreninsel (74.5°N, 19.0°O) am 25.3.93 und 28.3.93. Man erkennt, daß die Luft am 28.3. stärker angehoben war als am 25.3., als sie sich in einer Abwärtsbewegung befand.

25.3.93

1800 Uhr 550 K



25.3.93

1800 Uhr 475 K

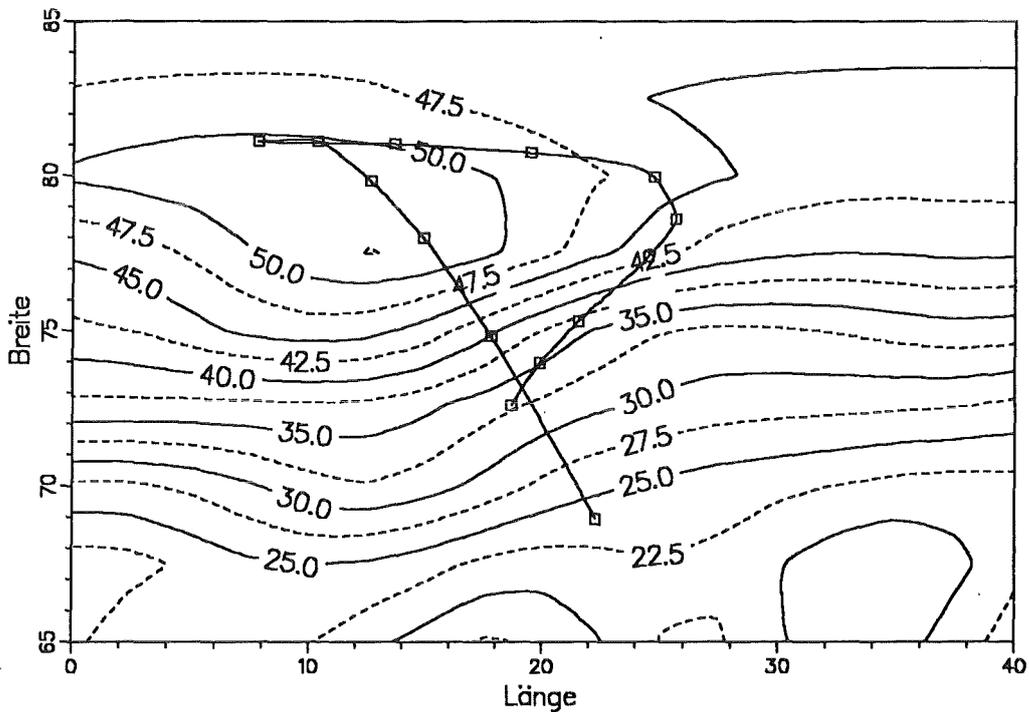
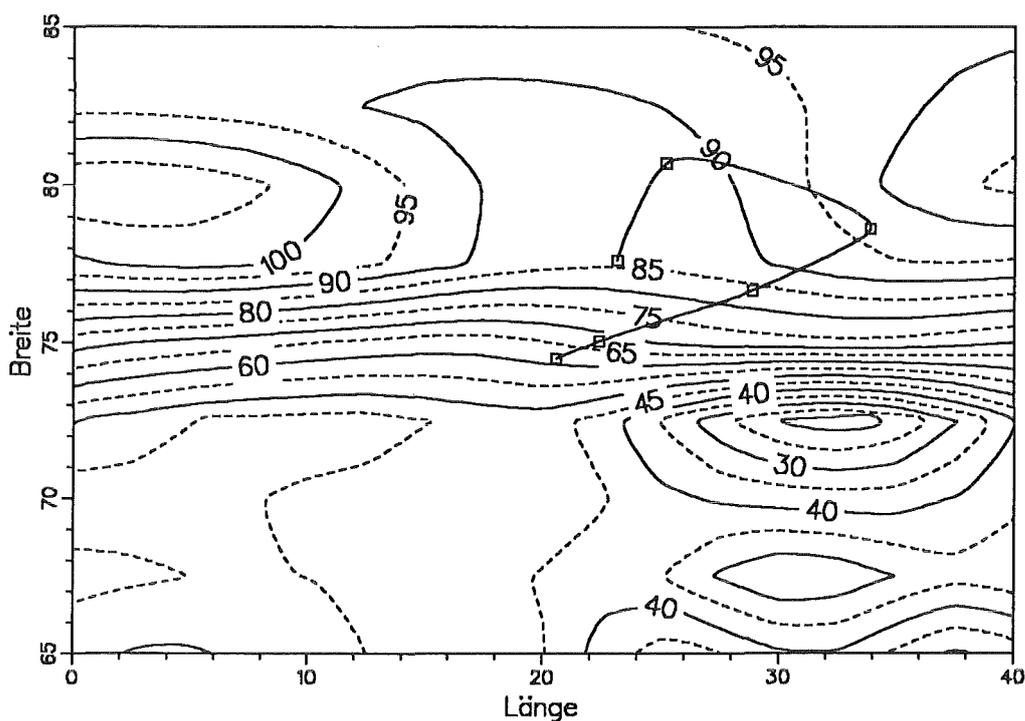


Abb. 5.26 Karten der potentiellen Vorticity am 25.3.93 auf 550 K (oben) und 475 K (unten) mit eingezeichneter Lage der Meßpunkte.

28.3.93

1800 Uhr 550 K



28.3.93

1800 Uhr 475 K

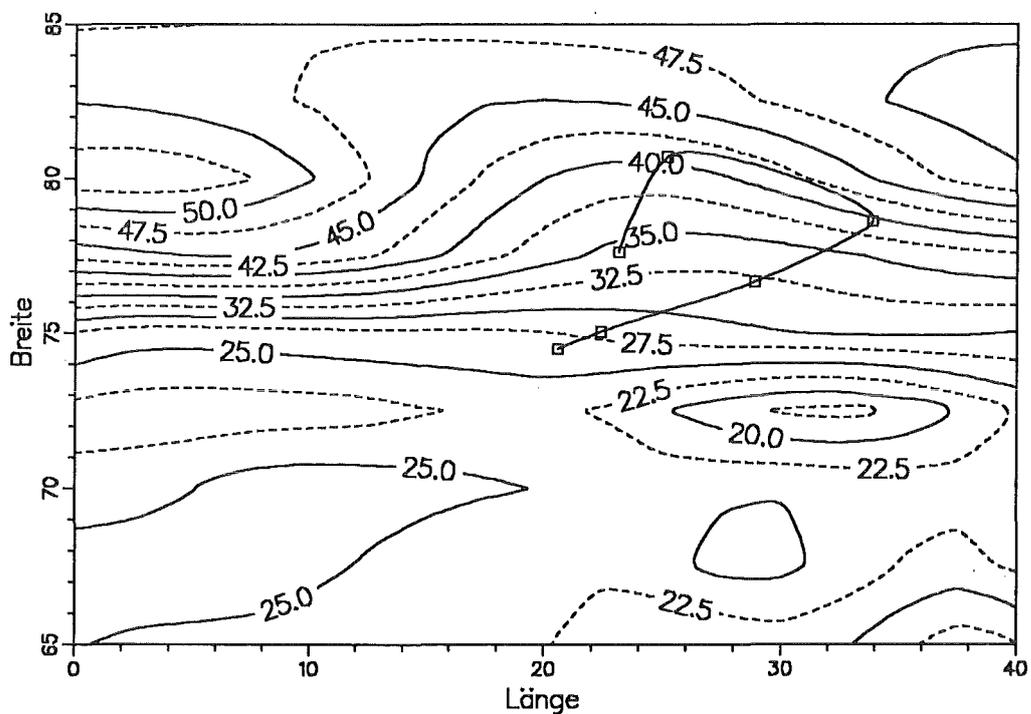
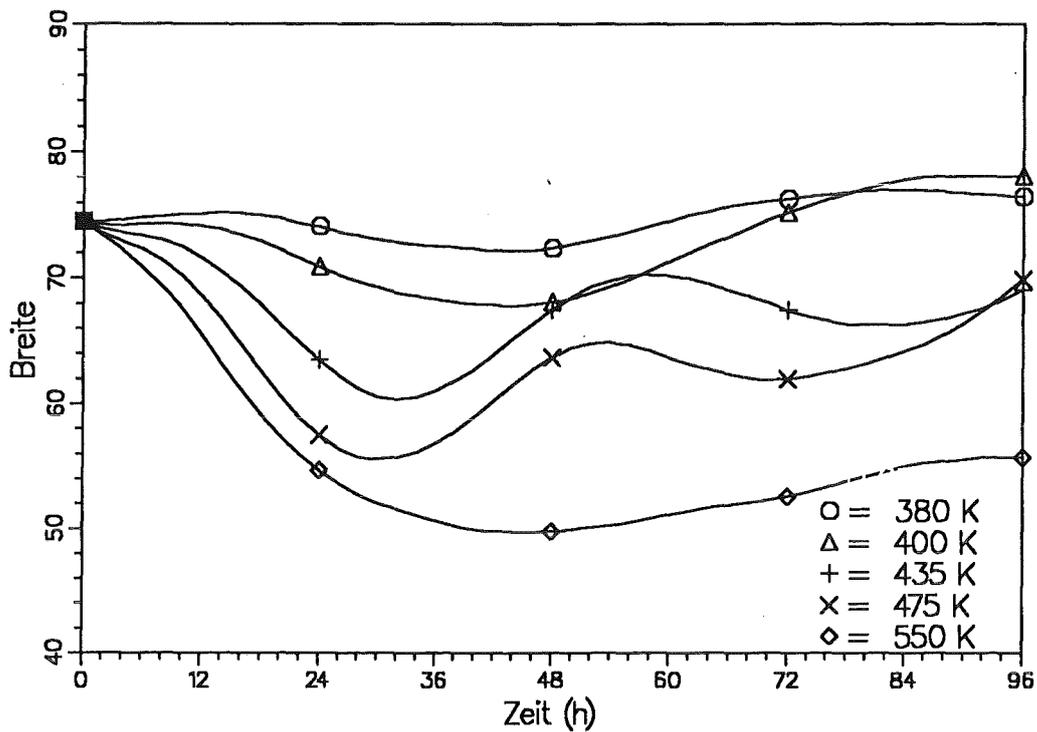


Abb. 5.27 Karten der potentiellen Vorticity am 28.3.93 auf 550 K (oben) und 475 K (unten) mit eingezeichneter Lage der Meßpunkte.

Bäreninsel 25.3.93



Bäreninsel 28.3.93

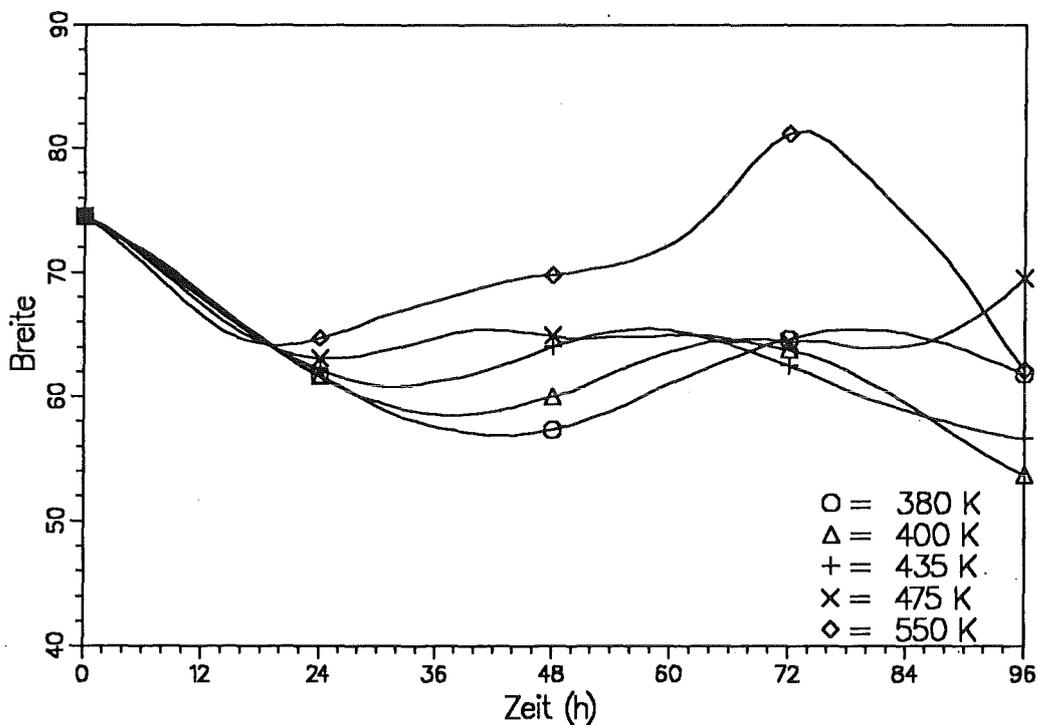


Abb. 5.28 Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt Bäreninsel (74.5°N , 19.0°O) am 25.3.93 und 28.3.93. Die in verschiedenen Höhen advektierte Luft kam am 25.3. aus sehr unterschiedlichen geographischen Breiten, während die Trajektorien am 28.3. 24 Stunden lang parallel verlaufen.

Aufgrund gerätebedingter Schwierigkeiten konnten nur während drei Flügen auswertbare Spektren gewonnen werden: am 9., 12. und 13.1. Diese Daten stammen ausschließlich aus dem Inneren des Wirbels. Das Spektrum vom 9.1., das vor der norwegischen Küste in der Höhe von Kiruna aufgenommen wurde, liefert Säulengehalte von $1.29 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ für HNO_3 und 249 DU für O_3 . Am 12.1. und 13.1. gibt es jeweils drei Meßpunkte in der Nähe von Kiruna. Der Mittelwert von HNO_3 am 12.1. liegt bei $2.68 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und am 13.1. bei $2.00 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. Auch Ozon ist am 12.1. mit durchschnittlich 293 DU höher als am 13.1. mit 237 DU (Abbildung 5.30).

Augenfällig ist dabei der extrem niedrige Wert von HNO_3 am 9.1., vor allem bei einem Vergleich mit den Messungen am 27.1.93 im Vortexinneren. Dort wurden Werte von bis zu $3.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ gemessen, die auch bei Einschluß von dynamischen Effekten nur durch heterogene Prozesse erklärt werden konnten. Wie dort berechnet wurde, erwartete man allein durch Absinken bis Mitte/Ende Januar 1993 eine Erhöhung der Säulengehalte auf Werte von ca. $2.0 - 2.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. Diese Werte passen gut zu den Ergebnissen vom 12.1. und 13.1.92. Die Unterschiede in den abgeleiteten Säulengehalten von O_3 und HNO_3 zwischen den beiden Tagen können möglicherweise auf dynamische Effekte zurückgeführt werden. Mitte Januar kam es nämlich über einer troposphärischen Antizyklone über dem Nordatlantik zu einem adiabatischen Aufsteigen der Luft in der Stratosphäre. Wie in Kapitel 5.3 erläutert wurde, führt dies zu einer Abnahme der Säulengehalte stratosphärischer Gase, also zu einem Prozeß, der dem Absinken innerhalb des Polarwirbels während des Winters entgegenwirkt. Anhand der Rückwärtstrajektorie vom 13.1. (Abbildung 5.31) erkennt man deutlich, daß die Luft vor ihrer Ankunft in Kiruna adiabatisch angehoben wurde. Die Ergebnisse der beiden Tage passen auch recht gut in die Gesamtkorrelation der gemessenen Säulengehalte von O_3 und HNO_3 während der dritten Meßkampagne im Februar 1992 (s. unten), deren Verlauf im wesentlichen auf dynamische Vorgänge zurückgeführt wird.

Stellt nun der sehr tiefe Wert von $1.29 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ HNO_3 innerhalb des Vortex am 9.1. eine Ausnahme dar? Dies ist der niedrigste HNO_3 -Säulengehalt innerhalb des Polarwirbels, der von MIPAS-FT überhaupt gemessen wurde. Zwar liegt Ozon hier mit 249 DU gleichfalls recht niedrig, erreicht aber nicht den noch tieferen Säulengehalt vom 13.1.. Ein Vergleich des Drucks auf der Isentropenfläche 475 K zeigt, daß am Ort des Meßpunkts am 9.1. wirklich der niedrigste Druck herrschte - allerdings nur unwesentlich niedriger als am 13.1.. Eine rein dynamische Ursache ist daher eher unwahrscheinlich.

Nimmt man an, daß der niedrige HNO_3 -Säulengehalt am 9.1. nicht auf die meteorologischen Bedingungen oder auf einen Ausreißer durch Meßfehler zurückzuführen ist, so könnte es sich um die Kondensation von HNO_3 auf PSCs handeln. Unterstützt wird diese These durch Rückwärtstrajektorien vom 9.1. für die dem Ort des Meßpunkts nächstliegende Station Polarfront. Diese zeigen, daß die Temperatur der ankommenden Luft (auf 475 K und 550 K) ca. 24 Stunden lang vor der Ankunft unter der PSC-Bildungstemperatur lag (Abbildung 5.32). Die Luft, die am 12.1. und am 13.1. in Kiruna ankam, erreichte auf 475 K die 195 K-Grenze kaum. Auf 550 K wurde der Wert am 13.1. aber auch unterschritten (Abbildungen 5.33 und 5.34). Direkt am Ort der Meßpunkte wurden am 12.1. und 13.1. tiefste Temperaturen von 194-196 K (auf der Isentropenfläche 475 K) erreicht, während am 9.1. die Temperaturen bei 191 K lagen. Daher ist es wahrscheinlich, daß am 9.1. HNO_3 in stärkerem Ausmaß durch Kondensation aus der Gasphase entfernt wurde als an den beiden anderen Tagen.

Für ClONO₂ konnten in dieser Kampagne keine verlässlichen Werte erhalten werden. Zum einen war das Rauschen in der Umgebung der ClONO₂-Bande relativ groß. Zum anderen gibt es Unsicherheiten durch die starke Stratosphärenenerwärmung um teilweise mehr als 60 K auf 10 hPa und darüber, die sich in den der ClONO₂-Bande überlagerten CO₂-Linien bemerkbar machen.

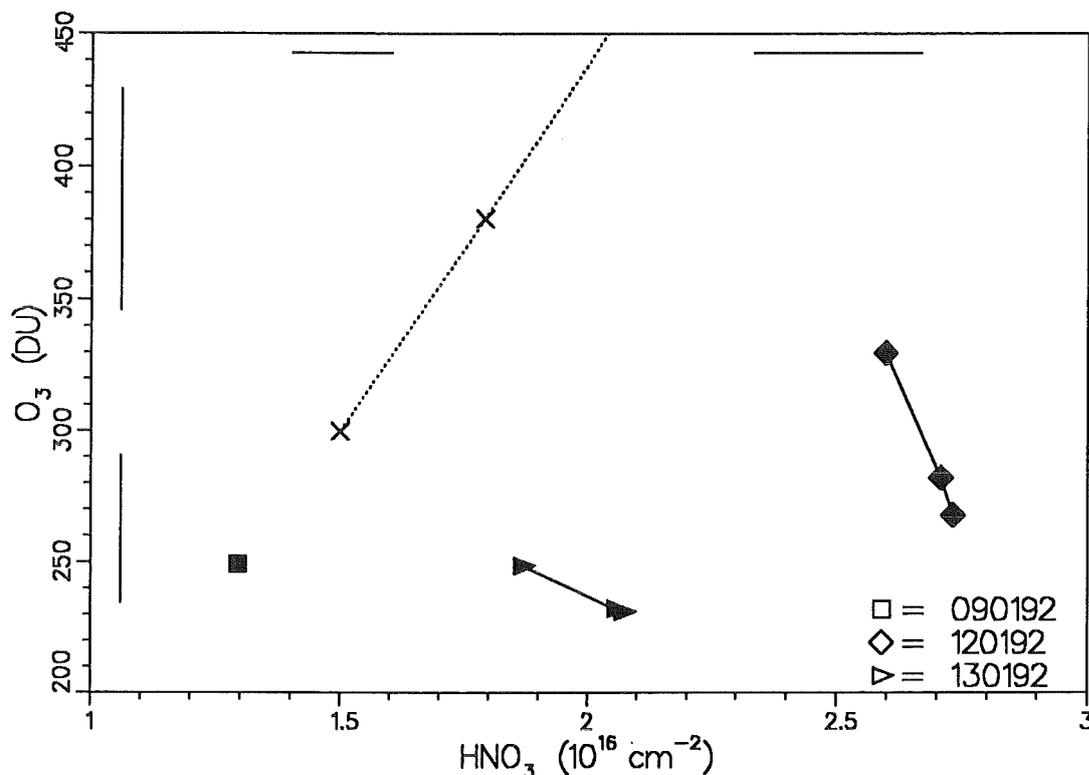


Abb. 5.30 Korrelation HNO₃ - O₃ in der zweiten Kampagne des Winters 1991/92. Die Fehlergrenzen sind beispielhaft entlang der linken und oberen Achse angegeben. Die aufgetragenen Balken besitzen die 2-fache Länge der in Kapitel 4.2 abgeleiteten relativen Fehler (2-fache Standardabweichung). Die Nachweisgrenze von ClONO₂ beträgt 1992/93 $0.84 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ und 1991/92 $2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Die gestrichelt eingezeichnete Linie (Absinkgerade) bezeichnet die allein durch Absinken von Profilen aus mittleren Breiten hervorgerufene Korrelation der beiden Gase. Die Kreuze befinden sich dabei im Abstand von 0.1 DOS-Einheiten. Die Linie beginnt links unten mit DOS = 0.0 bei 300 DU für O₃, $1.5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ für HNO₃ und $1.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für ClONO₂.

Kiruna 13.1.92

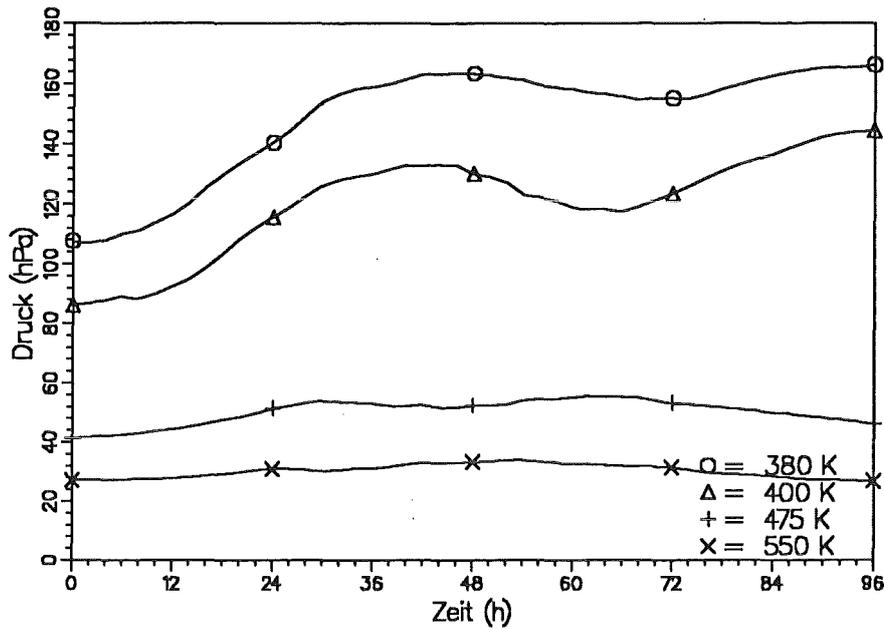


Abb. 5.31 Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt Kiruna (67.8°N , 20.4°O). am 13.1.92. Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Man erkennt das Aufsteigen der Luft, beginnend ca. zwei Tage vor der Ankunft über Kiruna.

Polarfront 9.1.92

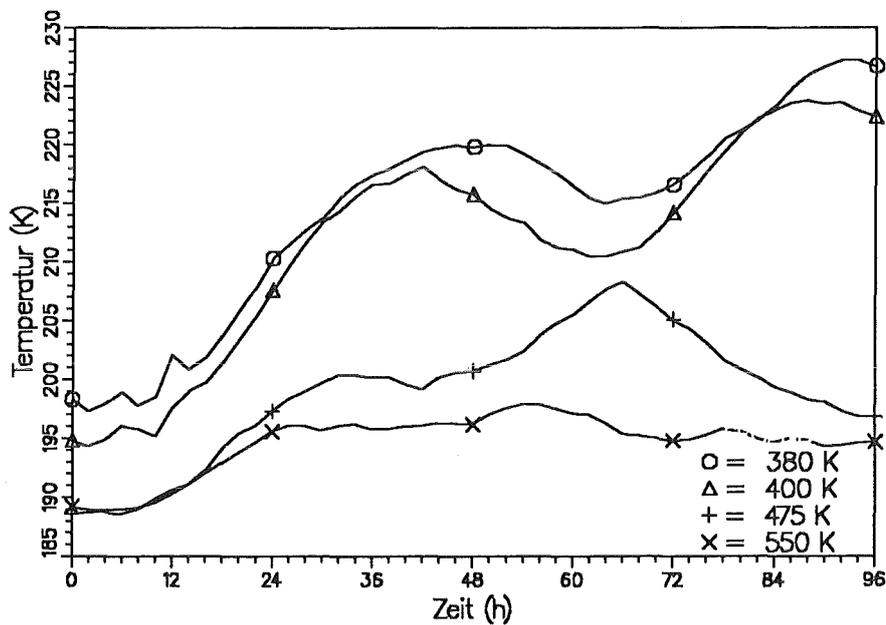


Abb. 5.32 Temperatur auf den Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt Polarfront (66.0°N , 2.0°O). am 9.1.92. Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Die Temperaturen auf den Isentropen 475 K und 550 K waren seit ca. 24 h unter 195 K.

Kiruna 12.1.92

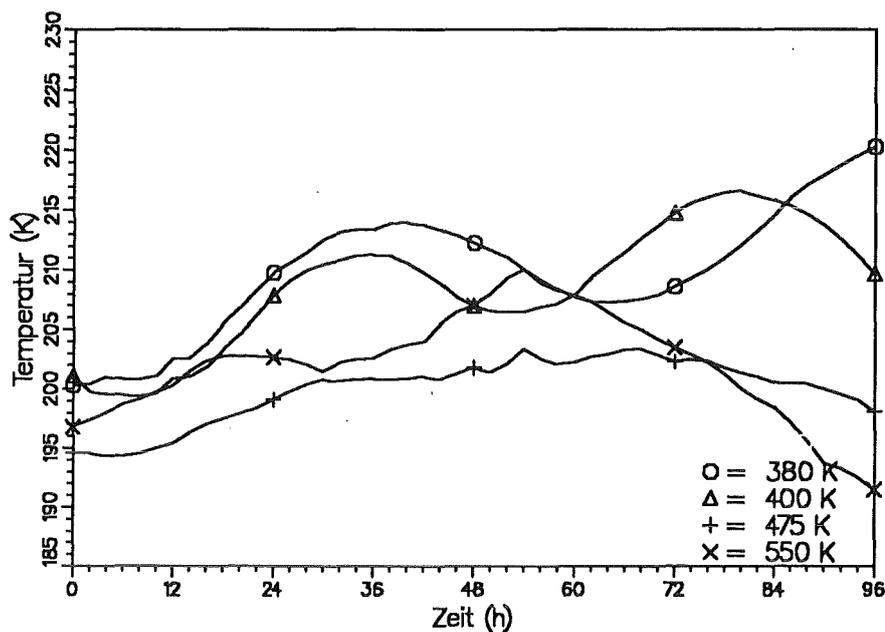


Abb. 5.33 Temperatur auf den Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt Kiruna (67.8°N , 20.4°O), am 12.1.92. Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Auf der Isentrophen 475 K liegen die Temperaturen über 195 K. Die Trajektorie auf 550 K erreicht 195 K nur für kurze Zeit.

Kiruna 13.1.92

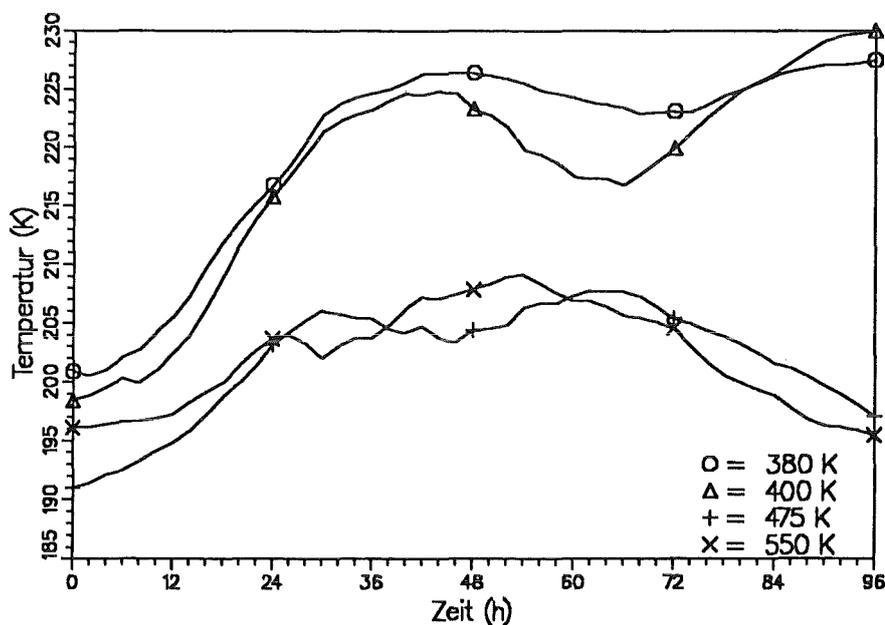


Abb. 5.34 Temperatur auf den Rückwärtstrajektorien mit Endpunkt Kiruna (67.8°N , 20.4°O), am 13.1.92. Die Zeitachse gibt die Stunden vor der Ankunft des Luftpakets bei $t=0$ an. Auf der Isentrophen 475 K liegen die Temperaturen über 195 K. Die Trajektorie auf 550 K unterschreitet 195 K für ca. 12 h vor der Ankunft.

5.6.2.2 Kampagne 3 (29.1.92 - 17.2.92): Der Polarwirbel nach der Erwärmung

Ende Januar bis Mitte Februar 1992 wurde die dritte Transall-Meßkampagne dieses Winters durchgeführt. Zu dieser Zeit befand sich der Polarwirbel nach der ersten Stratosphärenwärmung Mitte Januar und einigen kalten Tagen gegen Ende Januar in einer Phase ansteigender Temperaturen. Die Messungen dieser Kampagne fanden 1-3 Wochen nach dem letzten Auftreten von PSCs im Polarwirbel statt. Sie sind daher eingeschränkt vergleichbar mit der dritten Kampagne 1992/93, die drei Wochen nach der Erwärmung des Polarwirbels begann. Bei einem Vergleich der Messungen aus beiden Kampagnen muß bedacht werden, daß die stratosphärische Luft des polaren Vortex die im März 1993 untersucht wurde, schon in einem stärkeren Maße photochemischen Prozessen ausgesetzt war als im Februar 1992. Eine weitere Besonderheit der hier zu diskutierenden Meßkampagne lag in meteorologischer Hinsicht darin, daß - wie auch schon Mitte Januar - die Luft über einer blockierenden Antizyklone über dem Nordatlantik gerade am Wirbelrand aufstieg. Dies führte zu einer Verringerung der Säulengehalte stratosphärischer Gase.

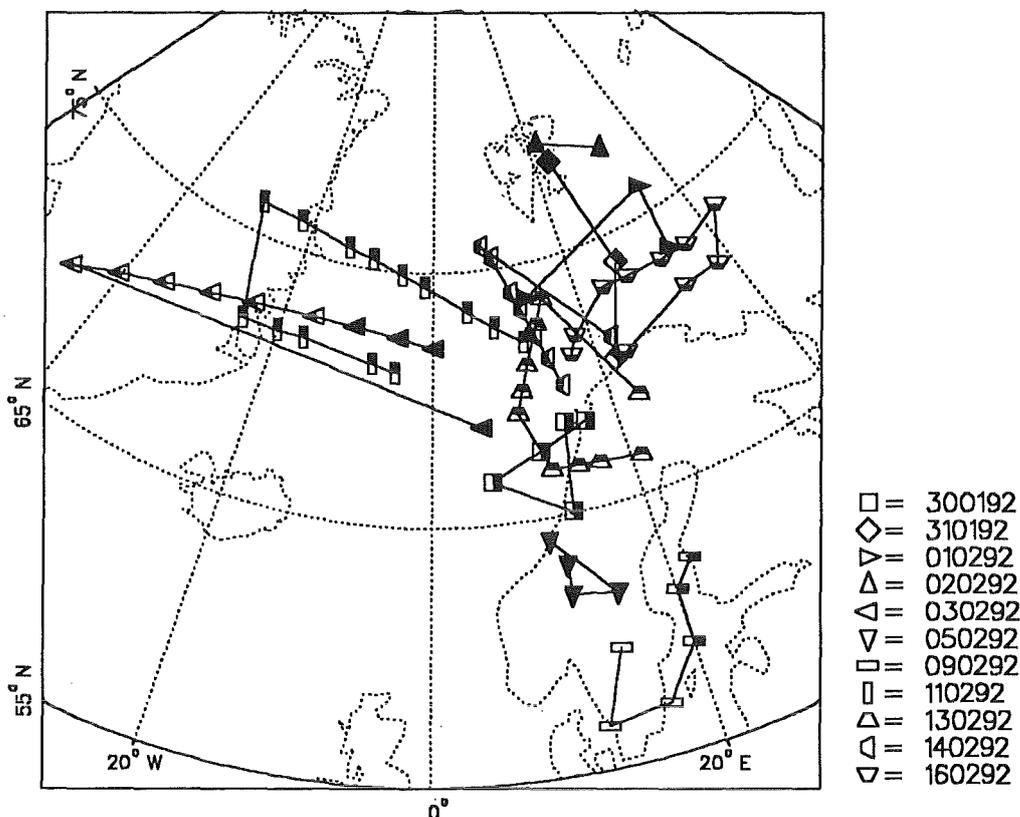


Abb. 5.35 Geographische Position der gemessenen Spektren während der dritten Kampagne im Winter 1991/92. Die einzelnen Flüge unterscheiden sich durch die Form der Symbole. Die Ausfüllung der Symbole zeigt die relative Lage bezüglich des Polarwirbels an: leer = außerhalb, halb = Randlage, voll = innerhalb.

Während der Kampagne wurden insgesamt 15 Flüge durchgeführt. Dabei konnten an 11 Tagen Säulengehalte ermittelt werden.

Meßwerte außerhalb des Polarwirbels existieren nur an einem Tag, dem 9.2., einem Flug entlang der schwedischen Ostküste bis nach Südschweden. HNO_3 und O_3 weisen dabei kei-

ne starken Variationen auf und liegen im Mittel bei $1.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und 250 DU. Diese Säulengehalte sind im Vergleich mit typischen Messungen außerhalb des Wirbels im folgenden Winter etwas niedriger und lassen sich durch die angesprochene meteorologische Situation erklären: die Trajektorien mit Endpunkt Gardermoen vom 9.2. zeigen deutlich das Aufsteigen der Luftpakete. ClONO_2 liegt bei allen Meßpunkten unterhalb der Nachweisgrenze von $2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

Die meisten Messungen dieser Kampagne stammen aus dem Wirbelrandbereich. Aufgrund der großen Zahl der Flüge, des relativ großen Meßfehlers bei ClONO_2 und den starken dynamischen Einflüssen (s.o.) erscheint es sinnvoll nicht - wie bisher geschehen - jeden Flug im einzelnen zu diskutieren, sondern anhand von Übersichtsabbildungen aller Meßpunkte das typische Verhalten der Säulengehalte herauszuarbeiten.

In Abbildung 5.36 sind O_3 und HNO_3 gegeneinander aufgetragen. Es zeigt sich dabei eine relativ gute positive Korrelation der beiden Spurengase. Die Säulengehalte von HNO_3 liegen zwischen ca. $1.1 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und $3.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$, diejenigen von O_3 zwischen 220 DU und 530 DU. Die Korrelation deutet auf dynamische Prozesse als die wesentliche Ursache für diese große Variationsbreite hin. Ein Vergleich des Gesamtverlaufs mit der zusätzlich eingezeichneten Absinkkurve zeigt, daß deren Steigung etwas zu groß ist, d.h., daß HNO_3 stärker oder O_3 schwächer ansteigt als es durch alleiniges Absinken (Kapitel 5.2) verursacht würde. In dieser Kampagne könnte dies aber dadurch erklärt werden, daß die Profiltransformation für das Absinken (Gleichung 5.2) zwar für diabatisches Absinken im Polarwirbel gültig ist, aber nicht bei starken adiabatischen Prozessen, wie sie in dieser Kampagne vorlagen, angewendet werden kann.

Wie Abbildung 5.37 zeigt, ist die Korrelation zwischen ClONO_2 und HNO_3 nicht so gut wie bei O_3 und HNO_3 . Einerseits könnte dies dem größeren Fehler in der Bestimmung von ClONO_2 zugeschrieben werden. Andererseits gibt es aber so markante Ausnahmefälle, wie beispielsweise die hohen HNO_3 -Säulengehalte innerhalb des Wirbels am 31.1., 1.2. oder 2.2. bei gleichzeitig niedrigem ClONO_2 , daß Meßfehler als alleinige Ursache unwahrscheinlich sind. Vor allem die hohen ClONO_2 -Werte am Wirbelrand von $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ bis teilweise $5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ können nicht durch dynamische Prozesse allein erklärt werden.

Klarer wird der Verlauf der ClONO_2 -Säulengehalte, wenn sie gegen die potentielle Vorticity aufgetragen werden (Abbildung 5.38). Hier zeigt sich, von außen kommend, zuerst ein Ansteigen der Säulengehalte, danach ein Maximum im Wirbelrandbereich und schließlich abfallende Werte im Inneren. Diese Kragenstruktur wurde auch von *Toon et al. (1992c)* mit Säulengehalten von $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ im Randbereich im Februar 1992 gemessen. Im Winter 1992/93 wurde von uns eine ähnliche Struktur während der 2. Meßkampagne beobachtet (Kapitel 5.6.1.2), allerdings zu einer Zeit, als der polare Wirbel noch stabil und sehr kalt war. Vergleicht man den Verlauf von ClONO_2 mit der dritten Kampagne im Winter 1992/93, so zeigt sich ein klarer Unterschied: im März 1993 war keine Kragenstruktur mehr sichtbar und die Chlornitratsäulengehalte erreichten im Wirbelinneren Werte von $5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Obwohl also beide Kampagnen in der PSC-freien Zeit stattfanden, wurden im Februar 1992 um ca. $2\text{-}3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ niedrigere ClONO_2 -Säulengehalte innerhalb des Polarwirbels gemessen als zu Anfang März 1993. Hierfür gibt es zwei verschiedene Erklärungsmöglichkeiten: Entweder war die Luft 1991/92 nicht in gleichem Umfang chloraktiviert wie im Jahr danach, oder es war noch nicht genügend NO_x aus HNO_3 freigesetzt, um das vorhandene ClO_x in ClONO_2 umzuwandeln. Messungen von *Waters et al. (1992)* zeigen im

Januar 1992 hohe ClO-Werte im Polarwirbel. Auch die hohen ClONO₂-Säulengehalte, die mit MIPAS-FT und anderen Geräten im März 1992 gemessen wurden (s.u.), deuten auf eine starke Chloraktivierung hin. Diese Ergebnisse widerlegen die erste Hypothese. Es ist also wahrscheinlich, daß das zum Aufbau von ClONO₂ benötigte NO₂ durch Photolyse (oder durch die Reaktion mit OH (1.8)) im März 1993 schon zur Verfügung stand, während im Februar 1992 die arktische Luft noch nicht lange genug der Sonne ausgesetzt war.

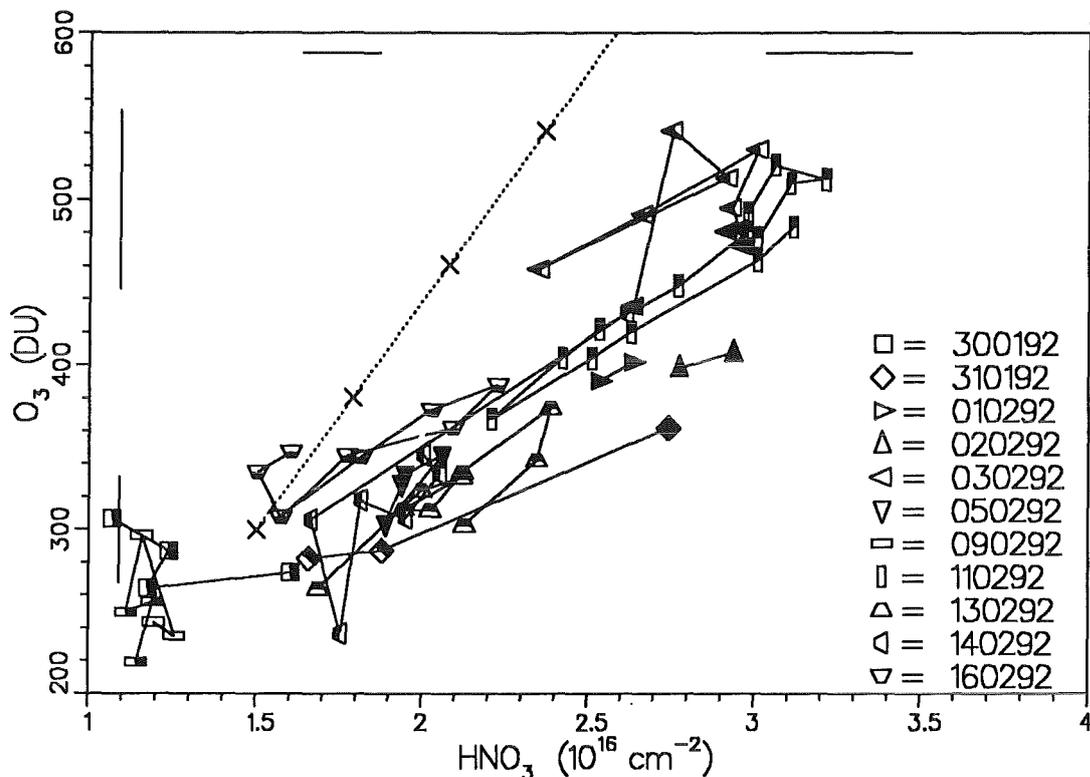


Abb. 5.36 Korrelation HNO₃ - O₃ in der dritten Kampagne des Winters 1991/92. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.30.)

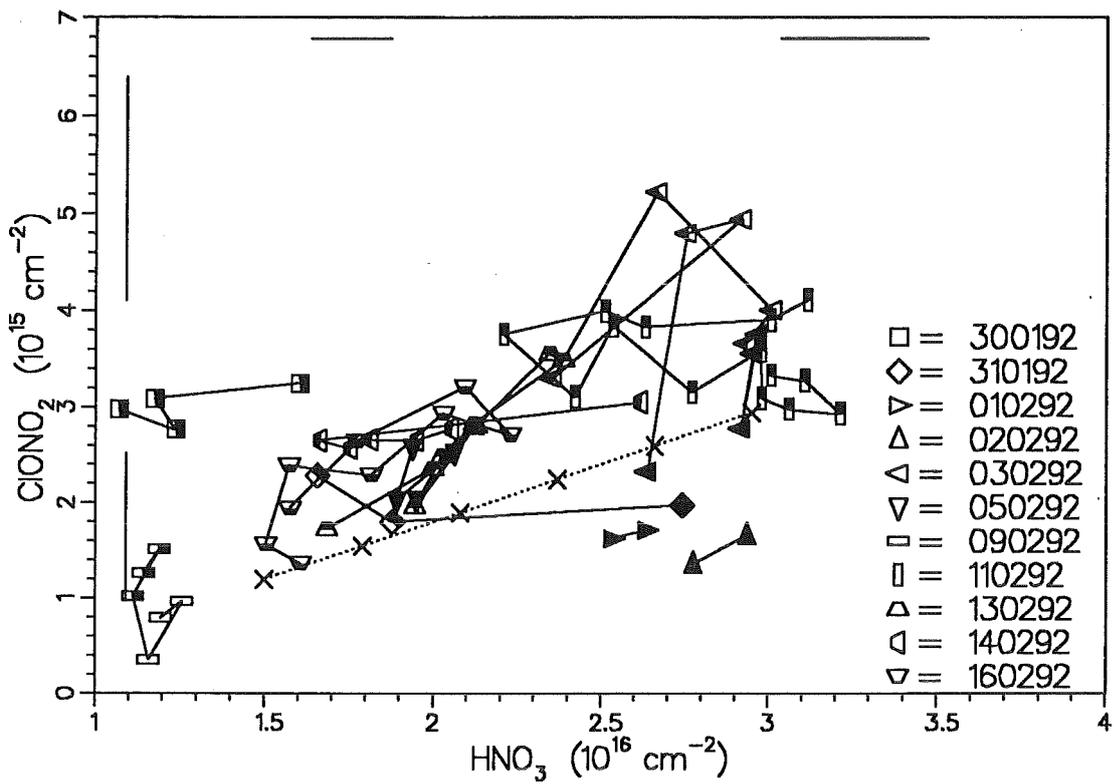


Abb. 5.37 Korrelation HNO_3 - ClONO_2 in der dritten Kampagne des Winters 1991/92. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.30.)

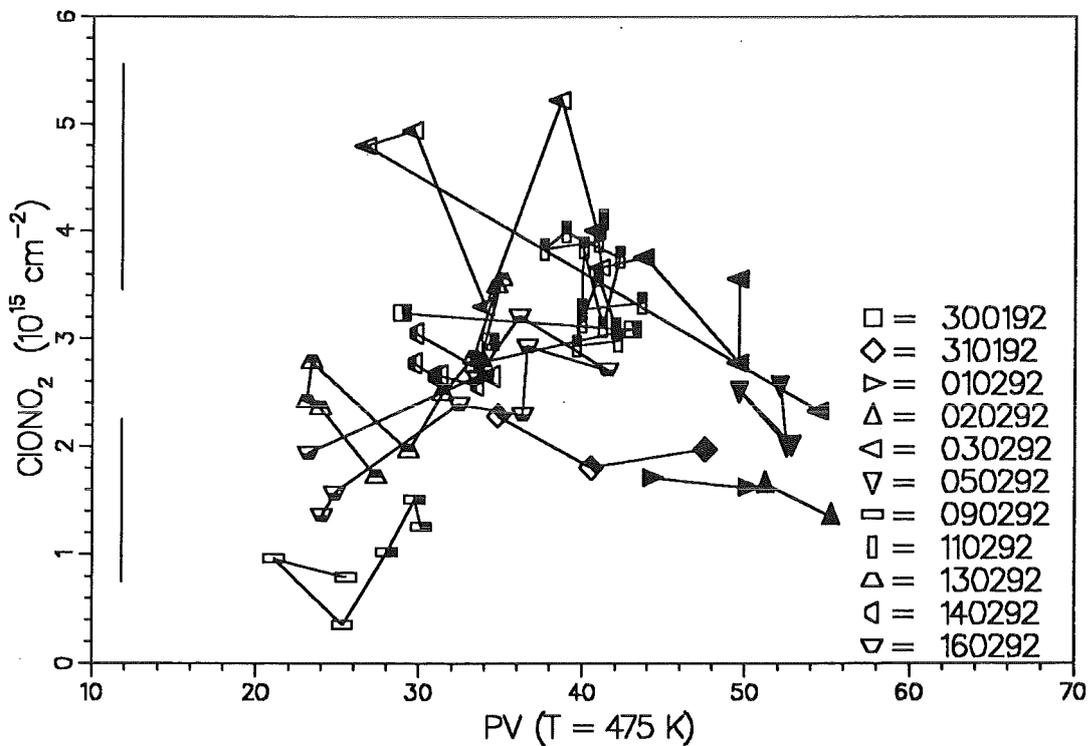


Abb. 5.38 Säulengehalte von ClONO_2 gegen die potentielle Vorticity auf 475 K in der dritten Kampagne des Winters 1991/92. (Fehlergrenzen am Rand der Abbildung)

5.6.2.3 Kampagne 4 (28.2.92 - 13.3.92): Der Polarwirbel im März

Die letzte Meßkampagne im Winter 1991/92 fiel in einen Zeitraum, in dem sich der polare Wirbel vorübergehend nochmals abgekühlt hatte, die Temperaturen aber nicht den Kondensationspunkt von PSCs erreichten. Gegen Ende der Kampagne begann um den 10.3. die endgültige Erwärmung des Wirbels (Naujokat et al., 1992). Im zeitlichen Abstand zur ersten starken Wirbelerwärmung ist diese Meßphase mit der 4. Kampagne Ende März 1993 vergleichbar.

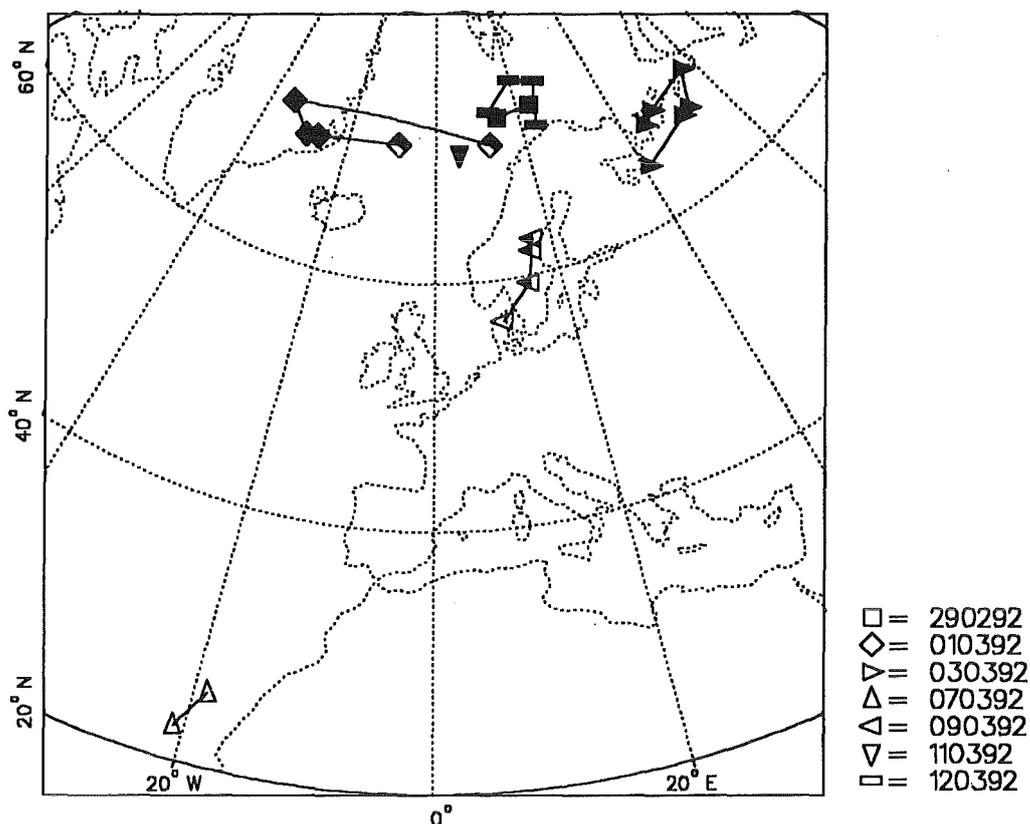


Abb. 5.39 Geographische Position der gemessenen Spektren während der vierten Kampagne im Winter 1991/92. Die einzelnen Flüge unterscheiden sich durch die Form der Symbole. Die Ausfüllung der Symbole zeigt die relative Lage bezüglich des Polarwirbels an: leer = außerhalb, halb = Randlage, voll = innerhalb.

Insgesamt existieren für 7 der 12 Flugtage Meßpunkte. Aufgrund technischer Schwierigkeiten konnte während der Südflüge vom 5.3. bis 8.3. nach Las Palmas nur sehr eingeschränkt gemessen werden.

Die beiden dabei ausgewerteten Spektren stammen von dem Flug am 7.3., der von Las Palmas aus nach Süden verlief. Sie sind auf ca. 24° nördlicher Breite aufgenommen und damit die südlichsten Meßpunkte, die mit MIPAS-FT überhaupt gewonnen wurden. Aufgrund der hochliegenden Tropopause und der feuchten Luft treten die Wasserlinien im Spektrum stark hervor. Dadurch wird die Auswertung von O₃ und ClONO₂ im langwelligen Spektralbereich bei 780cm⁻¹ erschwert. Deshalb sollen hier nur die Ergebnisse von HNO₃ angesprochen werden. Die Säulengehalte dieses Spurengases liegen im Mittel bei 1·10¹⁶ cm⁻². Vergleicht man dieses Ergebnis mit bisherigen Messungen auf ähnlichen Breitengraden (Abbildung 5.1), so befinden sich unsere Werte am oberen Rand der Punkteschar.

Sie sind auch etwas höher als die Messungen von *Toon et al. (1993)*, die im Januar 1992 in gleichen Breiten durchgeführt wurden. Es läßt sich fragen, ob diese leichte Erhöhung unter Umständen durch heterogene Prozesse an der Oberfläche von Aerosoltröpfchen hervorgerufen wurde. Da unsere Werte aber nicht extrem aus den übrigen Messungen hervortreten, könnten sie möglicherweise durch die meteorologischen Bedingungen hervorgerufen worden sein. Eindeutig beantworten läßt sich die Frage also nicht.

In mittleren Breiten existiert außerhalb des Polarwirbes ein Meßpunkt vom 9.3.92. Die gemessenen Säulengehalte betragen für HNO_3 $1.5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und für Ozon 265 DU, ClONO_2 liegt unterhalb der Nachweisgrenze.

Die restlichen Meßpunkte stammen fast alle aus dem Inneren des Wirbels. In Abbildung 5.40 sind die Säulengehalte von HNO_3 und O_3 gegeneinander aufgetragen. Diese beiden Gase weisen, wie auch in der vorangehenden Kampagne, eine relativ gute Korrelation auf, die im wesentlichen parallel zu der durch Absinken bewirkten Kurve verläuft. HNO_3 erreicht - bis auf einen Ausreißer am 11.3. - im Wirbelinneren Werte von ca. $2.7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ und liegt so etwas niedriger als in der 3. Kampagne mit ca. $3.0 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. Im Vergleich mit dem Vormonat wird auch deutlich, daß die dynamisch bedingten Schwankungen der Werte aus dem Inneren diesmal wesentlich weniger stark ausgeprägt sind. Dies rührt daher, daß während der vierten Kampagne kein gleichermaßen starkes Aufsteigen über einem blockierenden Hochdruckgebiet mehr vorlag.

Trägt man ClONO_2 gegen HNO_3 auf (Abbildung 5.41), so wird wie bei der 4. Kampagne 1993 deutlich, daß ClONO_2 in Richtung des Wirbelinneren wesentlich stärker als es durch rein dynamische Effekte erklärbar wäre, ansteigt. Im Vergleich mit der Kampagne im Februar 1992 kommen keine Werte aus dem Wirbelinneren mehr vor, die bei hohen Werten von HNO_3 niedriges ClONO_2 aufzeigen. Verwendet man statt HNO_3 die potentielle Vorticity als x-Achse (Abbildung 5.42), zeigt sich dieser Unterschied zur dritten Kampagne noch deutlicher: die Kragenstruktur von ClONO_2 am Wirbelrand ist verschwunden - ClONO_2 steigt stetig auf hohe Werte im Wirbelinneren an.

Diese Entwicklung läuft parallel zu derjenigen des folgenden Winters und zeigt an, daß in ungefähr dem gleichen Zeitraum nach der ersten starken Erwärmung des Polarwirbels in dessen Inneren ClONO_2 aufgebaut wurde und zwar in beiden Wintern in einem ähnlichen Ausmaß. Dies deutet darauf hin, daß der Polarwirbel in den beiden Jahren eine vergleichbare Chloraktivierung aufwies.

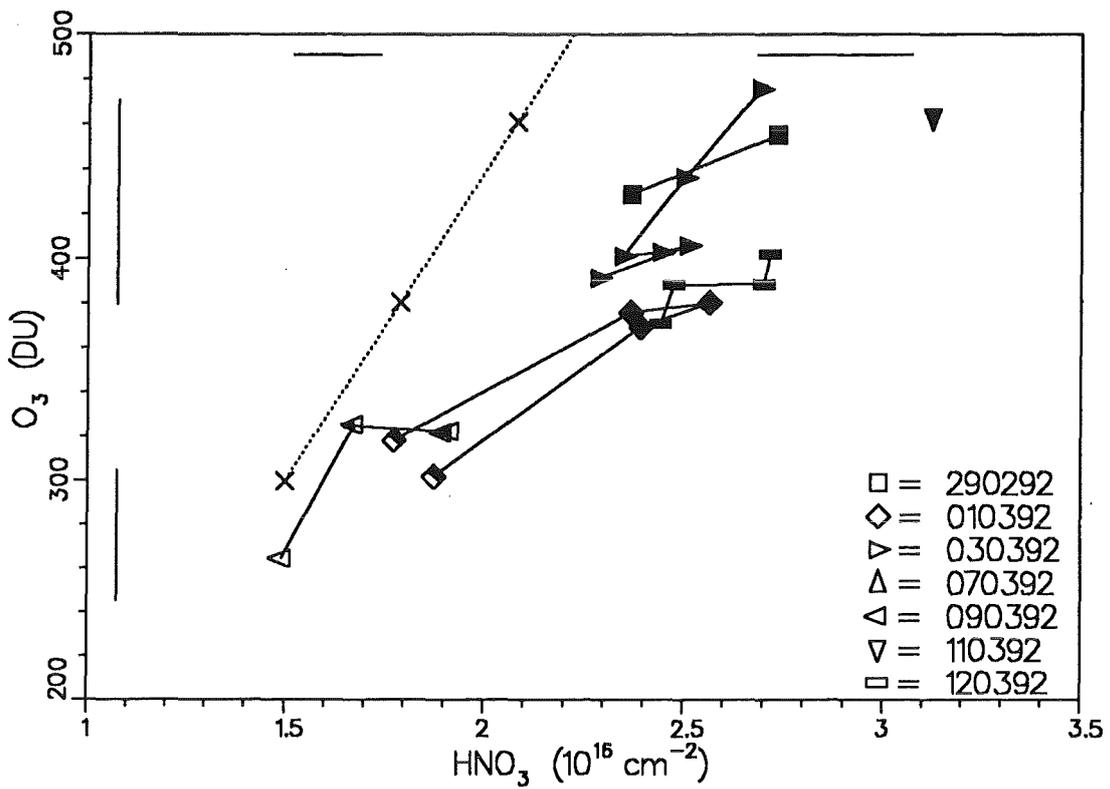


Abb. 5.40 Korrelation HNO_3 - O_3 in der vierten Kampagne des Winters 1991/92. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.30.)

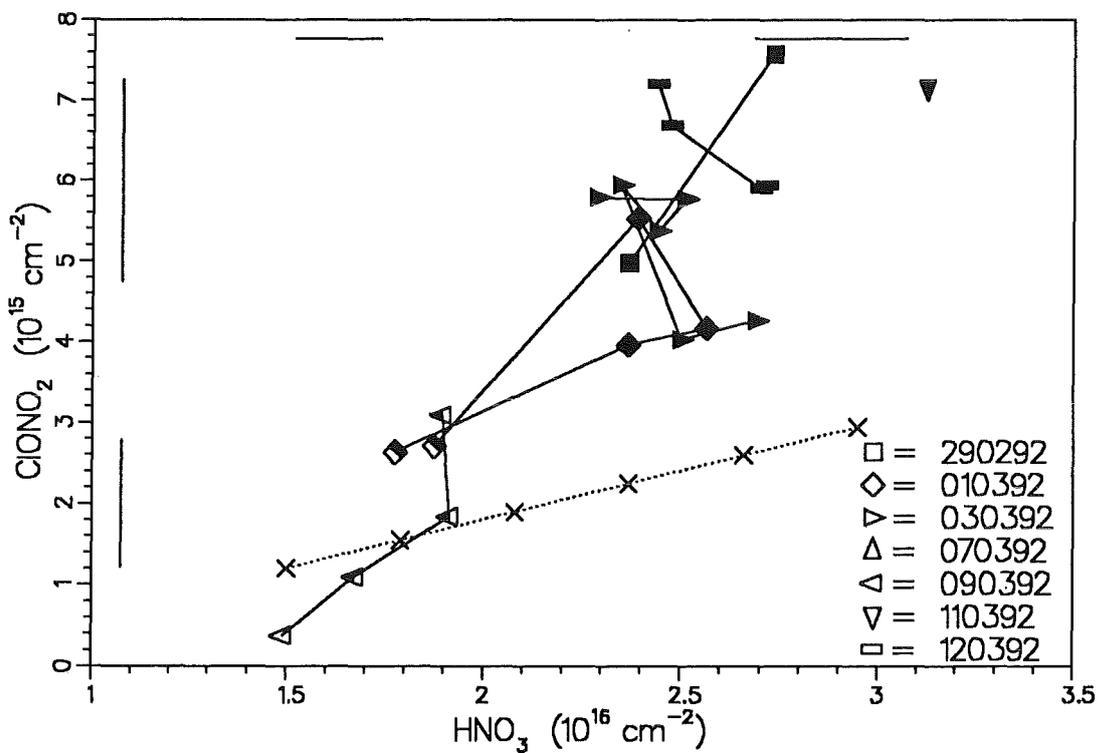


Abb. 5.41 Korrelation HNO_3 - ClONO_2 in der vierten Kampagne des Winters 1991/92. (Fehlergrenzen und Absinkgerade: siehe Legende zur Abbildung 5.30.)

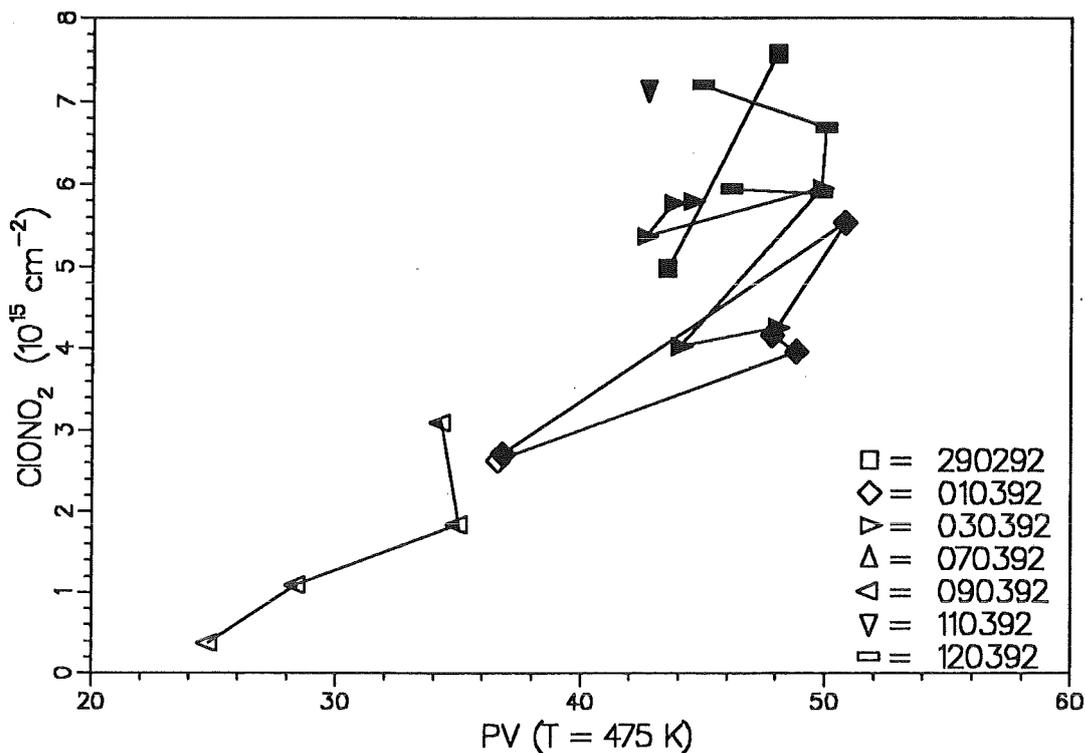


Abb. 5.42 Säulengehalte von ClONO₂ gegen die potentielle Vorticity auf 475 K in der vierten Kampagne des Winters 1991/92. (Fehlergrenzen: siehe Legende zur Abbildung 5.30.)

5.7 Zusammenfassung und Vergleich der Winter 1991/92 und 1992/93

Das Ziel dieses Abschnitts ist, den Verlauf der drei stratosphärischen Spurengase ClONO₂, HNO₃ und O₃ über den jeweiligen Winter hinweg darzustellen und einen Vergleich der beiden Jahre durchzuführen. Hierzu sind in den Abbildungen 5.43 - 5.45 die Entwicklungen der Säulengehalte über den Meßzeitraum aufgetragen. Die gemessenen Säulengehalte jeder Kampagne wurden in drei Gruppen nach ihrer relativen Lage zum Polarwirbel - innerhalb, Randbereich, außerhalb - unterteilt. Die vertikalen Balken erstrecken sich vom kleinsten bis zum größten Meßwert der Kampagne. Die Markierung dazwischen kennzeichnet den Durchschnitt der Mittelwerte jedes Flugs.

Wie aus Abbildungen 5.43 zu ersehen ist, gibt es für ClONO₂ nur Anfang Dezember 1992 Werte aus der frühen Entwicklungsstufe des Polarwirbels. Die Werte vom Rand und aus dem Inneren sind relativ zu den Säulengehalten aus mittleren Breiten erhöht. Diese Erhöhung liegt an der oberen Grenze eines möglicherweise durch diabatisches Absinken innerhalb des Wirbels noch zu erklärenden Anstiegs. Sie könnte daher auch auf eine chemische Anreicherung von ClONO₂ durch heterogene Chloraktivierung und nachfolgender Reaktion mit NO₂ hindeuten.

Ende Januar 1993, als der Polarwirbel noch kalt und ungestört war, sind die ClONO₂-Säulengehalte im Inneren des Wirbels stark erniedrigt. Dies läßt sich auf die Freisetzung von Chlor durch heterogene Reaktionen aus diesem Reservoirgas zurückführen. Am Wirbelrand sind die gemessenen Säulengehalte im Vergleich zu außen oder innen erhöht und sehr variabel. Diese Variabilität konnte gleichfalls auf den Abbau von ClONO₂ durch heterogene

chemische Prozesse an der Oberfläche von PSCs bzw. dessen Aufbau durch Reaktion von ClO mit NO₂ je nach der Geschichte der untersuchten Luft zurückgeführt werden.

Anfang Februar 1992, also schon nach der ersten größeren Erwärmung des Polarwirbels 1991/92, zeigt sich ebenfalls die Kragenstruktur mit erhöhten Randwerten. Die Säulengehalte aus dem Inneren liegen etwas höher als diejenigen Ende Januar 1993. Begründen läßt sich dies mit dem beginnenden Aufbau von ClONO₂ aus den reaktiven Chlorverbindungen nach der Erwärmung des Wirbels.

Im weiteren Verlauf des Frühjahrs 1992 und 1993 kehrt sich das Verhältnis der ClONO₂-Säulengehalte zwischen dem Wirbelrand und -inneren um. Anfang März 1992 und 1993 findet man schließlich einen stetigen Anstieg von außen nach innen. Dies zeigt, daß im Februar Chlornitrat im Wirbelinneren aufgebaut wurde. Ähnlich hohe Werte wie diejenigen, die 1992 schon Anfang März erreicht wurden, werden ein Jahr später erst gegen Ende des Monats gemessen. Dies läßt sich dadurch erklären, daß die erste starke Erwärmung des Wirbels 1993 einen Monat später stattfindet als 1992 und somit ca. 1 1/2 Monate vergehen, bis das aktive Chlor vollständig in ClONO₂ überführt ist.

Die ClONO₂-Messungen außerhalb des Polarwirbels liegen im Winter 91/92 alle unterhalb der Nachweisgrenze und bewegen sich in den ersten drei Kampagnen des Winter 92/93 in dem für mittlere Breiten normalen Bereich. Während der letzten Kampagne Ende März 1993 werden aber auch außerhalb des Wirbels erhöhte ClONO₂-Säulengehalte gefunden. Dies hängt wahrscheinlich mit einem Ausströmen von Luft aus dem Polarwirbel während seiner Auflösungsphase zusammen.

HNO₃ zeigt Anfang Dezember 1992 am Rand und innerhalb des Polarwirbels schon leicht erhöhte Werte, die durch das seit Ende Oktober stattfindende diabatische Absinken hervorgerufen wurden (Abbildung 5.44). Ende Januar 1993 sind die Säulengehalte im Inneren nochmals stark angestiegen. Zum einen ist dies auf das weiter fortgeschrittene Absinken zurückzuführen. Zum anderen spiegelt sich in den extremen Werten die Umwandlung von NO_x in HNO₃ durch heterogene Prozesse auf polaren stratosphärischen Wolken oder auf vulkanischen Aerosolen wider.

Im Vergleich dazu werden im Inneren des kalten Polarwirbels Mitte Januar 1992 keine derart hohen HNO₃-Säulengehalte gefunden, sondern teilweise stark erniedrigte Werte. Dies ist zum einen auf die dynamische Situation Anfang des Jahres 1992 zurückzuführen. Über Nordeuropa kam es zu einem starken Aufsteigen der Luft über einem Hochdruckgebiet wodurch die Säulengehalte stratosphärischer Gase erniedrigt wurden. Zum anderen sind für die extrem niedrigen HNO₃-Säulengehalte vom 9.1.92 wahrscheinlich auch Kondensationsprozesse auf PSCs verantwortlich. In den Flügen im Februar 1992 sind die HNO₃-Säulengehalte am Rand und im Inneren des Wirbels sehr variabel aufgrund der immer noch existierenden, oben beschriebenen, meteorologischen Situation.

In der dritten und vierten Kampagne des Jahres 1993 sind die Säulengehalte von Salpetersäure im Vergleich zur zweiten Kampagne auf Werte zurückgegangen, die auch im März 1992 gemessen werden. Dieser Rückgang deutet auf die Photolyse von HNO₃ (oder den Abbau durch die Reaktion mit OH) im Lauf des Spätwinters hin.

Die gemessenen Säulengehalte von HNO₃ am 7.3.1992 auf 24° nördlicher Breite sind nicht in den Abbildungen 5.44 enthalten. Sie liegen mit 1·10¹⁶ cm⁻² am oberen Rand bisheriger Messungen auf gleicher geographischer Breite.

Verfolgt man den Verlauf von Ozon während der Kampagnen des Winters 1991/92, so stellt man für die Werte aus dem Wirbelinneren zwischen Mitte Januar und Anfang März einen leicht ansteigenden Trend fest. Die tieferen Säulengehalte der zweiten und dritten Kampagne können - wie auch die extreme Variation im Februar am Wirbelrand - auf die meteorologische Situation zurückgeführt werden. Die Werte von außen liegen immer tiefer als die Messungen aus dem Inneren. Dies war infolge des Absinkens zu erwarten. Im Gegensatz hierzu sind während des Winters 1992/93 in drei von vier Kampagnen die Ozonsäulengehalte von außerhalb vergleichbar mit denjenigen im Inneren. Im Verlauf der Kampagnen des Winters 1992/93 erhöht sich der Ozonsäulengehalt zwischen Dezember und Januar wahrscheinlich durch Absinkvorgänge. Danach nehmen die gemessenen Säulengehalte aus dem Inneren des Wirbels aber wieder ab. Sie liegen im März niedriger als im gleichen Monat des Vorjahres. Möglicherweise ist dies ein Anzeichen für einen stärkeren Ozonabbau im Polarwirbel des Jahres 1992/93.

Die hier vorgestellten Datensätze aus den Wintern 1991/92 und 1992/92 enthalten eine Fülle von Details, die bisher noch nicht vollständig interpretiert sind und bei denen weitere Modellvergleiche nützlich wären. Als Beispiele sind die extremen Werte der HNO_3 -Gesamtsäulen im Januar 1992 und 1993 und die relativ hohen Werte dieses Gases in südlichen Breiten zu nennen. Auch die aufgetretene Problematik bei der Verwendung von Ozon als inertem Tracer oder die hohen Werte von ClONO_2 , die außerhalb des Polarwirbels gemessen wurden, stellen interessante Fragestellungen dar.

Die Kombination der vorliegenden Meßergebnisse mit denen des Winters 1993/94 und denen des kommenden Jahres 1994/95 wird die Möglichkeit bieten, eine Klimatologie des arktischen Polarwirbels bezüglich der Reservoiregase ClONO_2 und HNO_3 über vier Jahr hinweg zu erstellen.

Das in dieser Arbeit behandelte TRANSALL-Experiment MIPAS-FT wird seine Fortsetzung in dem an Bord des hochfliegenden Forschungsflugzeugs STRATO-2C mitfliegenden MIPAS-Spektrometer finden. Dieses Experiment verbindet so die Vorteile der Bestimmung von Höhenprofilen mittels Horizontsondierung, die von dem Ballongerät MIPAS-B mit großem Erfolg durchgeführt wurde, mit der Mobilität und großen Reichweite von Flugzeugmessungen.

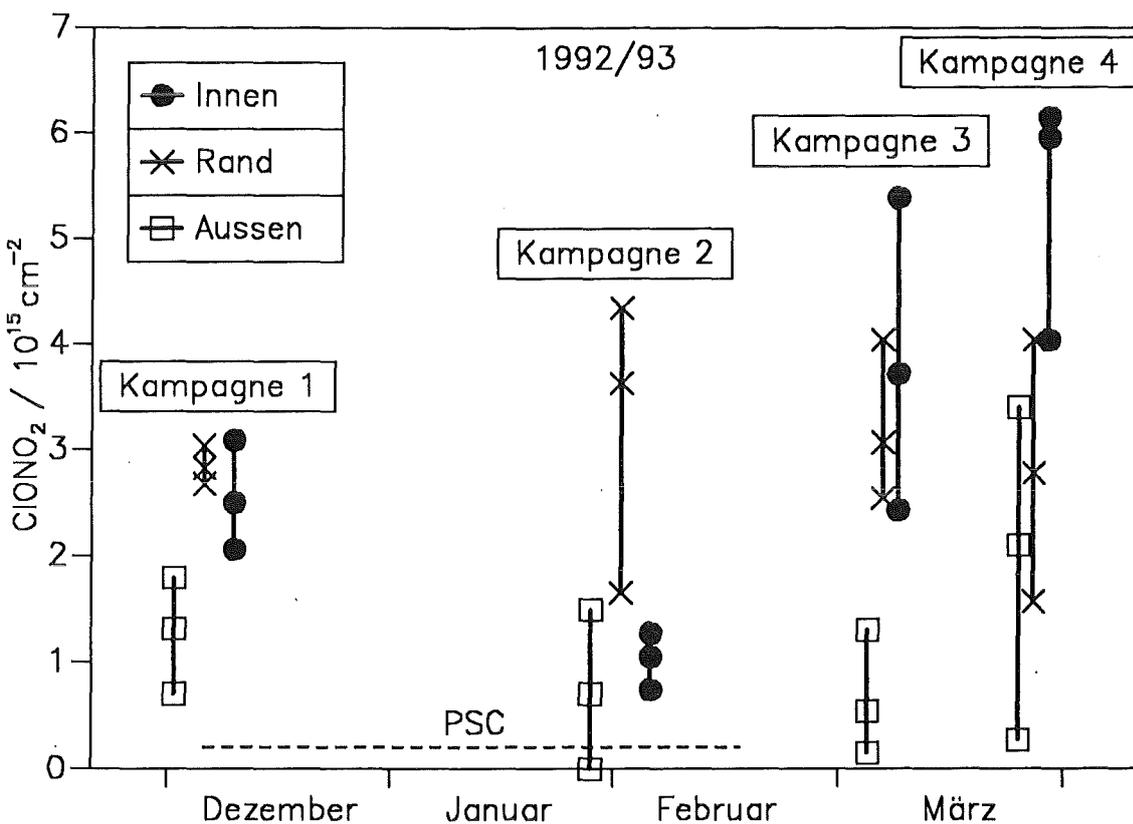
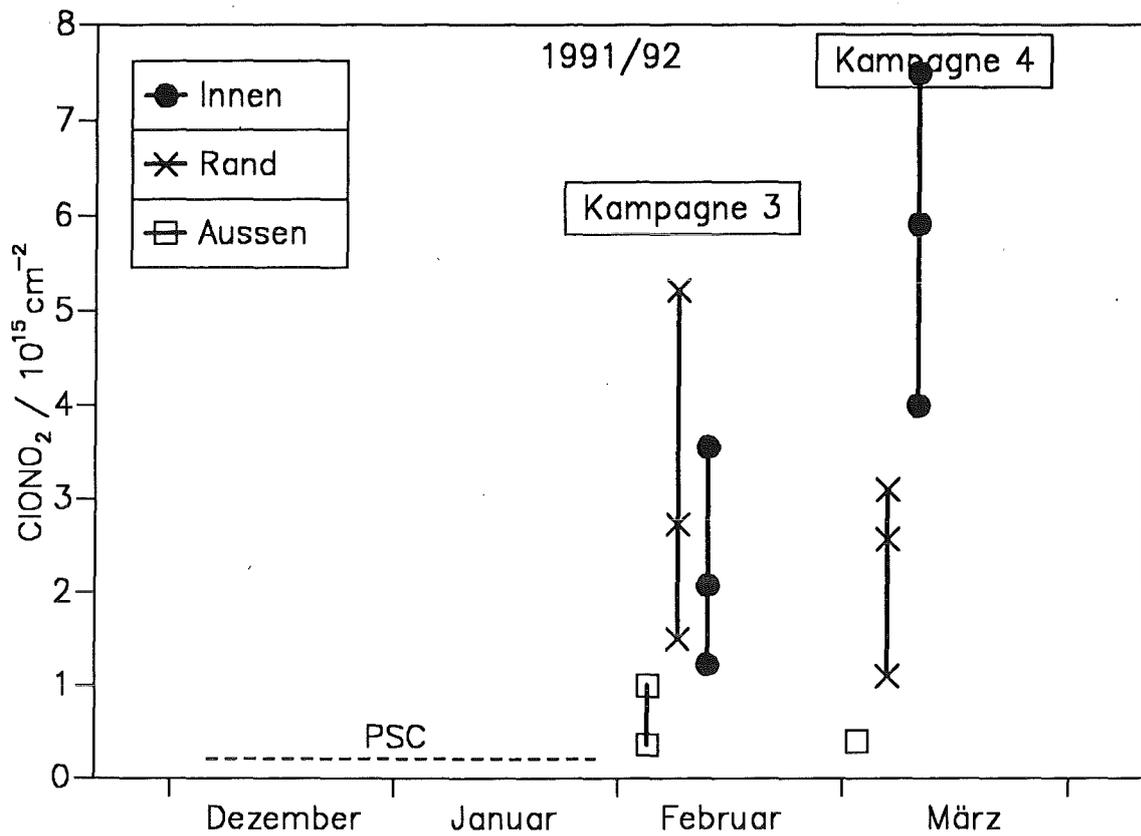


Abb. 5.43 Säulengehalte von ClONO_2 während der Kampagnen des Winters 1991/92 (oben) und 1992/93 (unten). Es sind jeweils die maximalen Werte während den Kampagnen und der Mittelwert aus den Durchschnittswerten aller Flüge eingetragen. Die gestrichelte Linie stellt die Zeitspanne des möglichen Auftretens von PSCs im Polarwirbel dar.

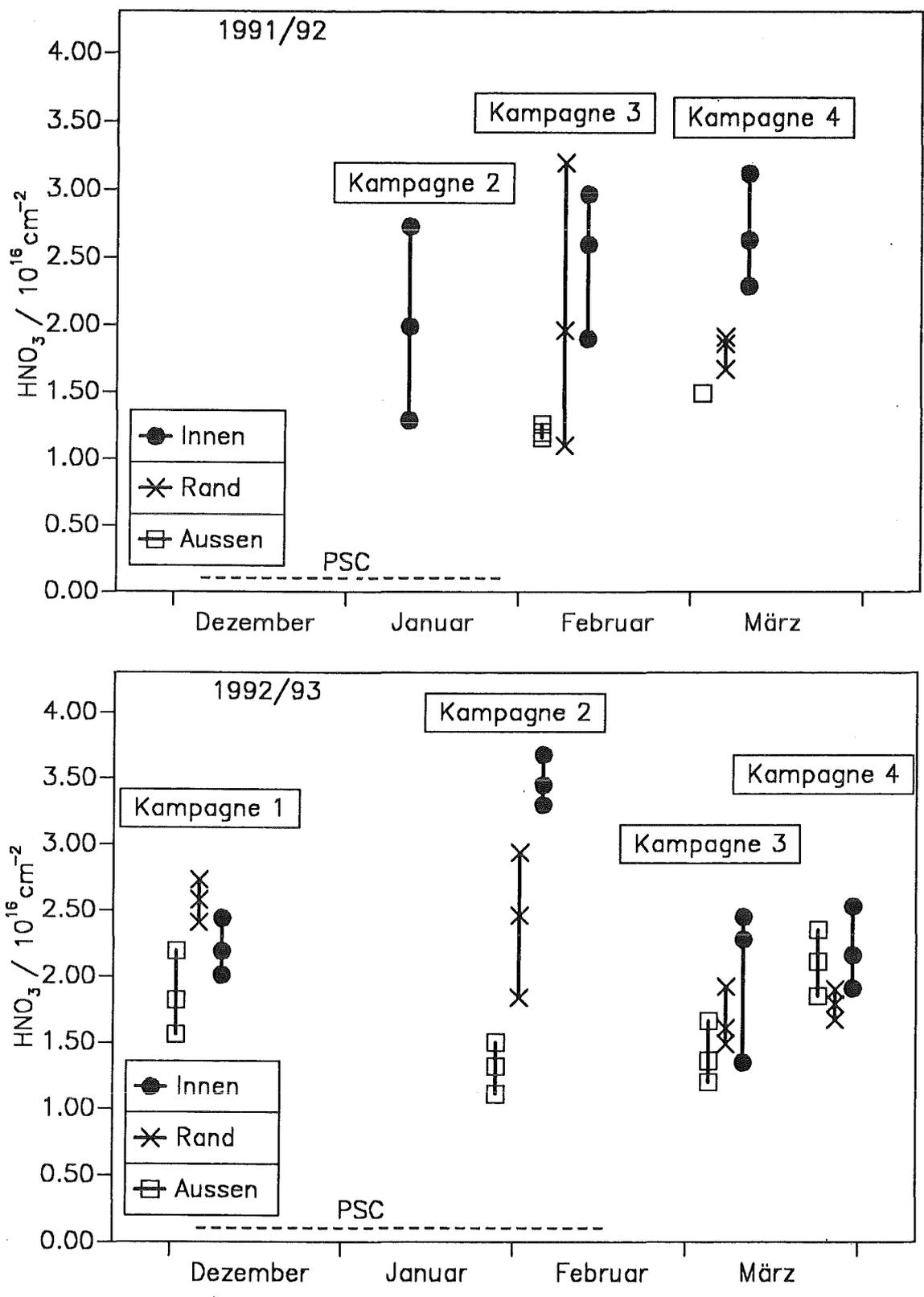


Abb. 5.44 Säulengehalte von HNO₃ während der Kampagnen des Winters 1991/92 (oben) und 1992/93 (unten). Es sind jeweils die maximalen Werte während den Kampagnen und der Mittelwert aus den Durchschnittswerten aller Flüge eingetragen. Die gestrichelte Linie stellt die Zeitspanne des möglichen Auftretens von PSCs im Polarwirbel dar.

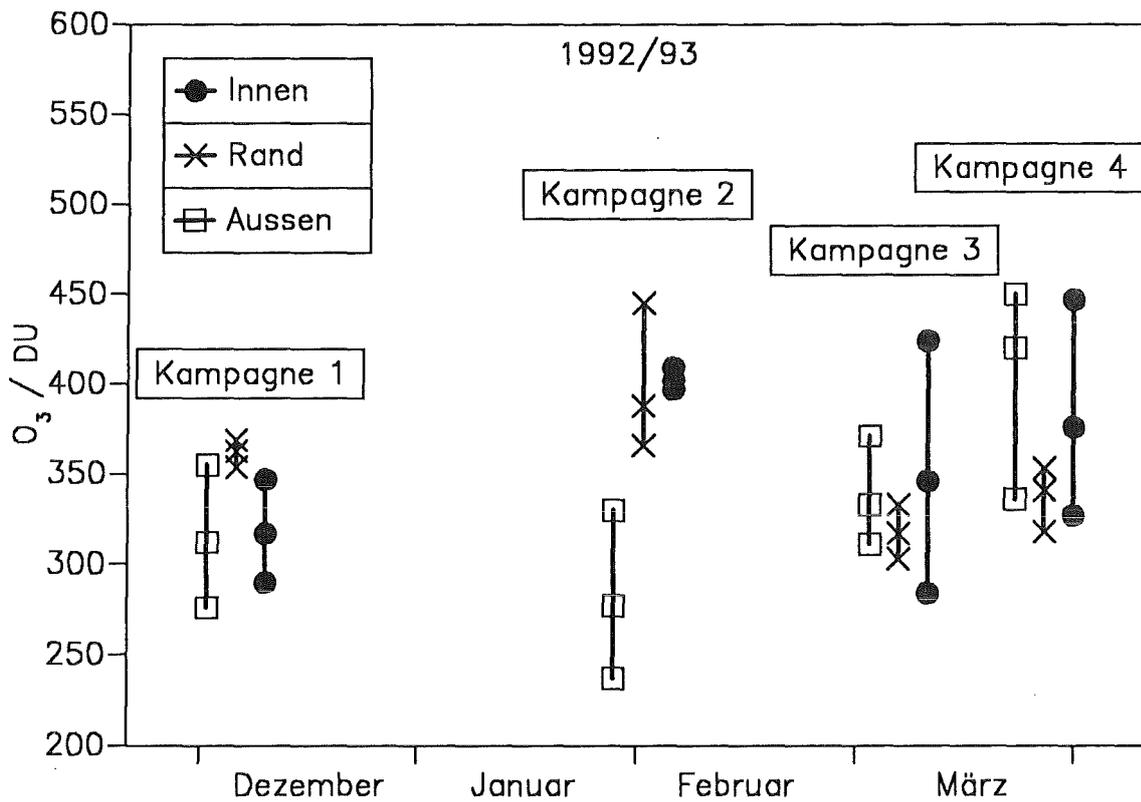
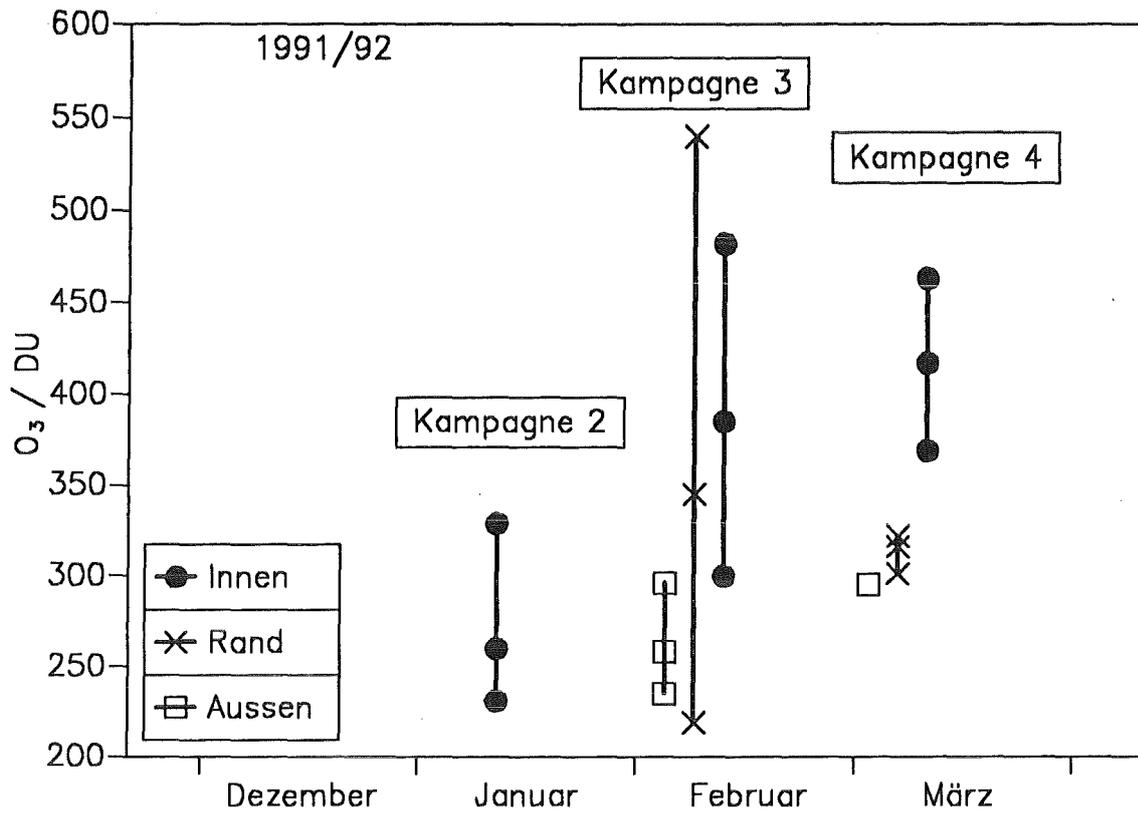
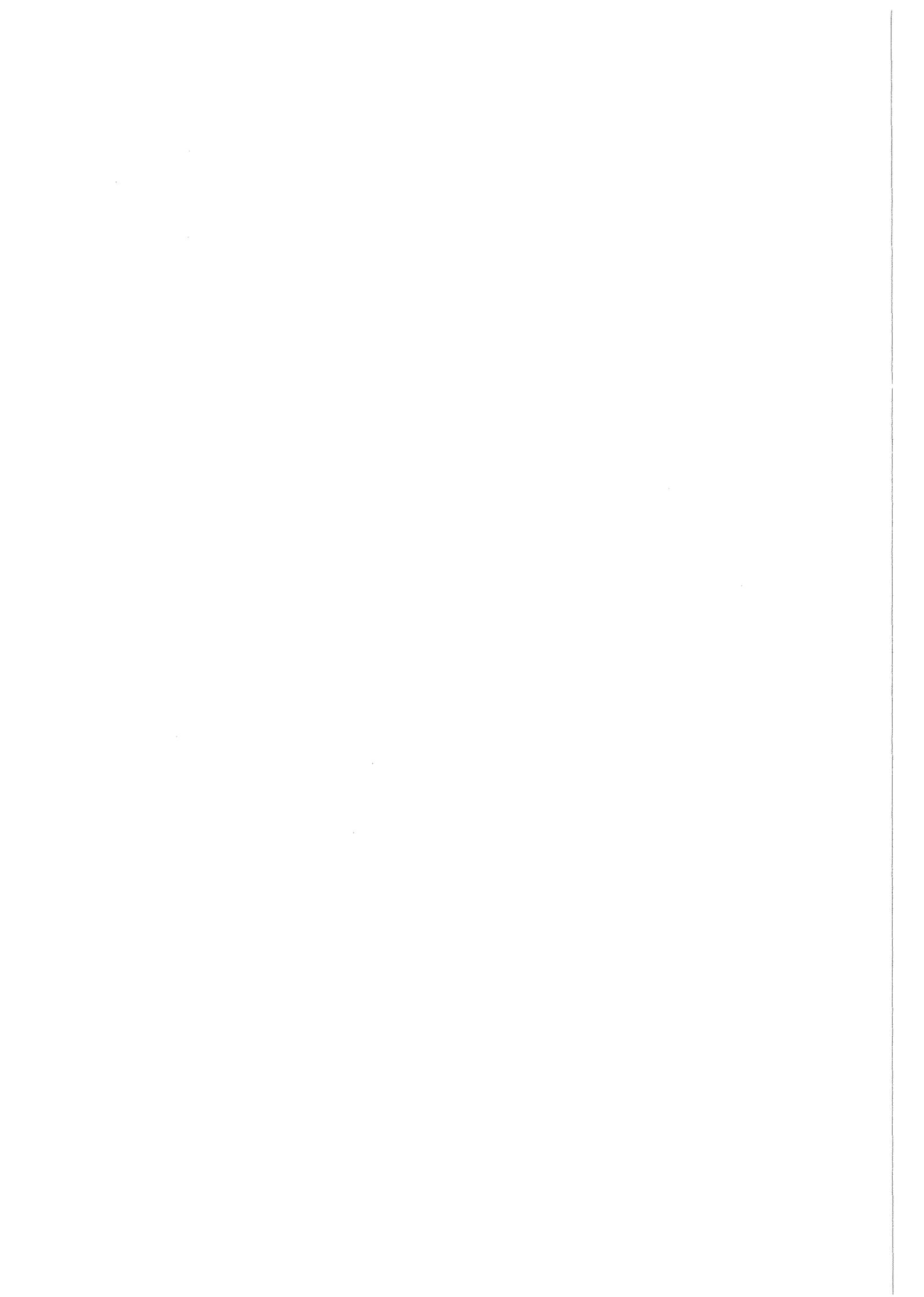


Abb. 5.45 Säulengehalte von O₃ während der Kampagnen des Winters 1991/92 (oben) und 1992/93 (unten). Es sind jeweils die maximalen Werte während den Kampagnen und der Mittelwert aus den Durchschnittswerten aller Flüge eingetragen.



Anhang A. Die potentielle Temperatur und die Ertelsche potentielle Vorticity

Die potentielle Temperatur (θ) ist definiert als die Temperatur, die ein Luftpaket annimmt, wenn es trocken-adiabatisch auf den Druck von 1000 hPa gebracht wird. Sie ist eine Erhaltungsgröße bei adiabatischen Prozessen und eine eindeutige Funktion des Drucks (p) und der Temperatur (T), also eine Zustandsfunktion. Flächen gleicher potentieller Temperatur sind daher identisch mit Isentropen.

Es gilt:

$$\theta = T \left(\frac{p_0}{p} \right)^{\frac{c_p - c_v}{c_p}} \quad (A.1)$$

Hierbei sind c_p und c_v die spezifischen Wärmen bei konstantem Druck und konstantem Volumen. Für Luft ist $(c_p - c_v)/c_p \approx 0.286$.

Die Ertelsche potentielle Vorticity (PV) ist definiert als (*Ertel, 1942*):

$$PV = \frac{1}{\rho} \vec{\zeta}_a \cdot \nabla \Theta \quad (A.2)$$

ρ ist dabei die Dichte, $\vec{\zeta}_a = 2\vec{\Omega} + \nabla \times \vec{u}$ die absolute Vorticity ($\vec{\Omega}$: Winkelgeschwindigkeit der Erde, \vec{u} : dreidimensionaler Geschwindigkeitsvektor), und Θ eine Zustandsfunktion, die bei adiabatischer Bewegung erhalten bleibt.

Der Ertelsche Wirbelsatz sagt aus, daß PV bei adiabatischem und reibungsfreiem Fluß eine Erhaltungsgröße ist.

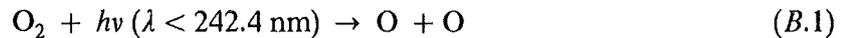
Eine einfache skalare Definition der potentiellen Vorticity in isentroper Form folgt bei Anwendung meteorologischer Näherungen:

$$PV = -g(f + \zeta_\theta) \frac{\partial \theta}{\partial p} \quad (A.3)$$

Hierbei ist g die Erdbeschleunigung, f der Coriolis-Parameter und $\zeta_\theta = (\partial v / \partial x)_\theta - (\partial u / \partial y)_\theta$ die isentrope Vorticity.

Anhang B. Der Chapman-, der ClO-ClO- und der ClO-BrO-Zyklus

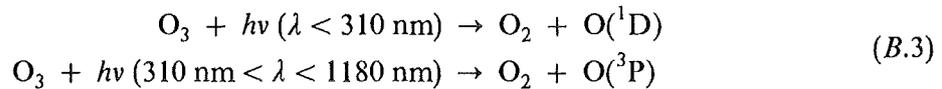
Nach Chapman erfolgt die Bildung von Ozon durch Photolyse molekularen Sauerstoffs



gefolgt von der Rekombination



Die Photolyse des so gebildeten Ozons

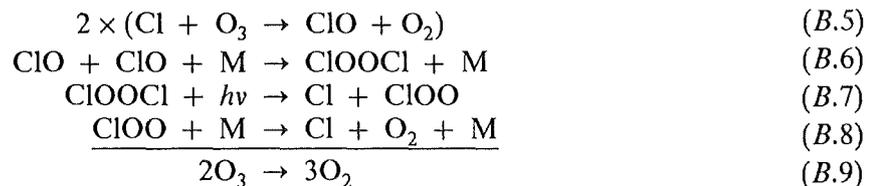


bewirkt keinen Ozonabbau, da der atomare Sauerstoff nach (B.2) schnell wieder zu O_3 reagiert.

Der Abbauprozess besteht vielmehr in der Reaktion

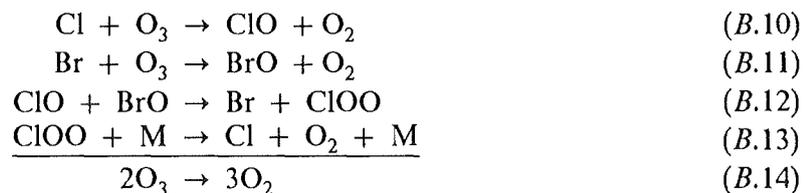


Der wesentliche Prozess in der Chemie des (ant-)arktischen Ozonabbaus ist der ClO-ClO-Zyklus, wenn die ClO Konzentration hoch und die Konzentration an atomarem Sauerstoff niedrig ist, so daß Reaktion (1.2) unerheblich wird:

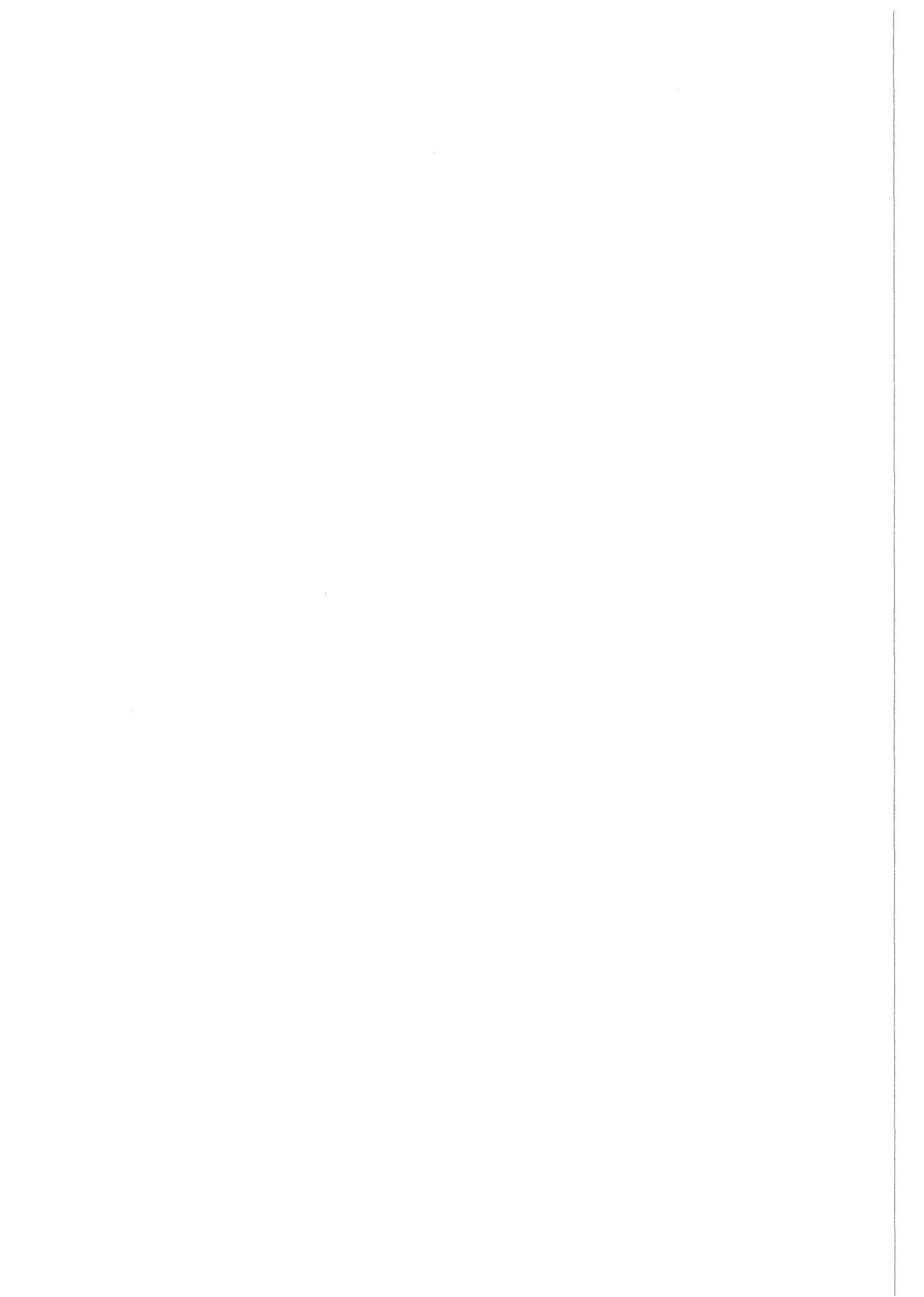


Der limitierende Schritt dieser Reaktionskette ist (B.6), die Bildung von ClOOC.

Der BrO-ClO-Zyklus trägt ca. 15 - 20% zum Ozonabbau bei:



Hierbei ist die limitierende Reaktion (B.12).



Anhang C. Experimentelle Parameter im Winter 1991/92 und 1992/93

	1991/92	1992/93
Spektralbereiche langwellig kurzwellig	770 cm ⁻¹ - 1260 cm ⁻¹ 1580 cm ⁻¹ - 1920 cm ⁻¹	770 cm ⁻¹ - 1260 cm ⁻¹ 1520 cm ⁻¹ - 1690 cm ⁻¹
Maximale Weglängendifferenz	±5 cm	±11 cm
Zeit für einen Scan (zwei- seitig)	1.98 s	4.35 s
Scangeschwindigkeit	5.06 cm/s	5.06 cm/s
Infrarotfenster	ZnSe mit antireflex-Be- schichtung	ZnSe mit antireflex-Be- schichtung
Elevationswinkel	5°	7°
Gesichtsfeld	0.58°	0.84°
Apertur	45 mm	45 mm
Etendue	1.3·10 ⁻³ cm ² sr	2.66·10 ⁻³ cm ² sr
Interferometertemperatur	200 K	200 K
Strahlteiler	KCl mit Sb ₂ S ₃ -Beschichtung	KCl mit Sb ₂ S ₃ -Beschichtung
Detektor	Si:Ga	Si:Ga
Detektortemperatur	4.2 K	4.2 K
Referenzlaser (He-Ne)	632.8 nm	632.8 nm
NESR (langw. Kanal, am Boden)	5·10 ⁻⁸ W/(cm ² sr cm ⁻¹)	5·10 ⁻⁸ W/(cm ² sr cm ⁻¹)
NESR (langw. Kanal, im Flug)	8·10 ⁻⁸ W/(cm ² sr cm ⁻¹)	8·10 ⁻⁸ W/(cm ² sr cm ⁻¹)

Das gestörte Interferogramm lautet:

$$\begin{aligned} I^g(x) &= \cos[2\pi\sigma_0\{x - \Delta x \sin(2\pi\sigma_\beta x + \Upsilon)\}] \\ &= \cos[(\pi\sigma_0 x - 2\pi\sigma_0\Delta x \cos \Upsilon \sin 2\pi\sigma_\beta x) + (\pi\sigma_0 x - 2\pi\sigma_0\Delta x \sin \Upsilon \cos 2\pi\sigma_\beta x)] \end{aligned} \quad (D.1)$$

Im folgenden sei $\xi = 2\pi\sigma_0\Delta x \sin \Upsilon$ und $\eta = 2\pi\sigma_0\Delta x \cos \Upsilon$.

Es folgt:

$$\begin{aligned} I^g(x) &= \cos(-\eta \sin 2\pi\sigma_\beta x + \pi\sigma_0 x) \cos(-\xi \cos 2\pi\sigma_\beta x + \pi\sigma_0 x) \\ &\quad - \sin(-\eta \sin 2\pi\sigma_\beta x + \pi\sigma_0 x) \sin(-\xi \cos 2\pi\sigma_\beta x + \pi\sigma_0 x) \end{aligned} \quad (D.2)$$

Führt man die Fouriertransformation aus (*Champeney, 1973*), so erhält man:

$$\begin{aligned} S^g(\sigma) &= \pi \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n(\eta) \left\{ \delta\left[2\pi\left(\sigma - \frac{\sigma_0}{2} - n\sigma_\beta\right)\right] + \delta\left[2\pi\left(\sigma + \frac{\sigma_0}{2} + n\sigma_\beta\right)\right] \right\} \\ &\quad \otimes \pi \sum_{m=-\infty}^{\infty} (-1)^m J_m(\xi) \left\{ i^m \delta\left[2\pi\left(\sigma - \frac{\sigma_0}{2} - m\sigma_\beta\right)\right] + (-i)^m \delta\left[2\pi\left(\sigma + \frac{\sigma_0}{2} + m\sigma_\beta\right)\right] \right\} \\ &\quad - i\pi \sum_{k=-\infty}^{\infty} (-1)^k J_k(\eta) \left\{ -\delta\left[2\pi\left(\sigma - \frac{\sigma_0}{2} - k\sigma_\beta\right)\right] + \delta\left[2\pi\left(\sigma + \frac{\sigma_0}{2} + k\sigma_\beta\right)\right] \right\} \\ &\quad \otimes i\pi \sum_{l=-\infty}^{\infty} (-1)^l J_l(\xi) \left\{ -(i)^l \delta\left[2\pi\left(\sigma - \frac{\sigma_0}{2} - l\sigma_\beta\right)\right] + (-i)^l \delta\left[2\pi\left(\sigma + \frac{\sigma_0}{2} + l\sigma_\beta\right)\right] \right\} \end{aligned} \quad (D.3)$$

Berücksichtigt man nur noch den Realteil, positive Wellenzahlen und Nebenlinien bis zur ersten Ordnung, so folgt (mit $\delta(x-a) \otimes \delta(x-b) = \delta(x-a-b)$ und $J_n(-x) = (-1)^n J_n(x)$):

$$S^g(\sigma) = \frac{1}{2} \left[J_0(\xi) J_0(\eta) \delta(\sigma - \sigma_0) - J_0(\xi) J_1(\eta) \{ \delta(\sigma - \sigma_0 - \sigma_\beta) - \delta(\sigma - \sigma_0 + \sigma_\beta) \} \right] \quad (D.4)$$

Anhang E. Die Parameter der differentiellen Phase

Die mittels des Ansatzes 2.22 hergeleiteten Parameter a und b lauten:

$$a = \frac{\sum_i \sigma_i W(\sigma_i) \sum_i \sigma_i W(\sigma_i) (\phi_d(\sigma_i) - \phi'(\sigma_i)) - \sum_i \sigma_i^2 W(\sigma_i) \sum_i W(\sigma_i) (\phi_d(\sigma_i) - \phi'(\sigma_i))}{\left[\sum_i \sigma_i W(\sigma_i) \right]^2 - \sum_i W(\sigma_i) \sum_i \sigma_i^2 W(\sigma_i)} \quad (E.1)$$

$$b = \frac{\sum_i \sigma_i W(\sigma_i) \sum_i W(\sigma_i) (\phi_d(\sigma_i) - \phi'(\sigma_i)) - \sum_i W(\sigma_i) \sum_i \sigma_i W(\sigma_i) (\phi_d(\sigma_i) - \phi'(\sigma_i))}{\left[\sum_i \sigma_i W(\sigma_i) \right]^2 - \sum_i W(\sigma_i) \sum_i \sigma_i^2 W(\sigma_i)} \quad (E.2)$$

Summiert wird hierbei über alle Wellenzahlstützstellen i des Spektrums.

Anhang F. Das Programm zur Phasenkorrektur

Zum Vergleich und zur Anwendung der in Kapitel 2.2 beschriebenen Methoden der Phasenkorrektur und Fouriertransformation wurde das Programm FFTKOR erstellt. Dieses Programm wurde zur Auswertung aller Spektren aus den Wintern 1991/92 und 1992/93 verwendet. Im folgenden ist die Eingabedatei des Programms zur Fouriertransformation und Phasenkorrektur aufgelistet:

2f.add	IFGFIL	(character ¹²)
2f.re	FREFIL	(character ¹²)
2f.im	FIMFIL	(character ¹²)
2f.ph	FPHFIL	(character ¹²)
2f2044.ph	PHOFIL	(character ¹²)
ifg.kor	KORFIL	(character ¹²)
0	IMITTE	(integer)
6	M7	(integer)
1	IP7	(integer)
2	LMI	(integer)
1	FFTENT	(integer)
2	PHAENT	(integer)
2	KORENT	(integer)
1	IAP0	(integer)
0.	AUFL	(real)

Die Eingabeparameter mit der Endung 'FIL' sind Dateien, diejenigen mit der Endung 'ENT' sind Schalter für bestimmte Funktionen.

IFGFIL FFTENT = 1-9: Zu transformierendes Interferogramm (Eingabedatei)
FREFIL FFTENT = 1-5,7,8: Realteil nach der Transformation (Ausgabedatei)
FFTENT = 6: Betragsspektrum
FFTENT = 9: Korrekturphase (Ausgabedatei)
FIMFIL FFTENT = 1-9: Imaginärteil nach der Transformation (Ausgabedatei)
FPHFIL FFTENT = 1-9: Phase nach der Transformation (Ausgabedatei)
PHOFIL FFTENT = 3,4,5,9: Vorgegebene Phase aus einer Schwarzkörpermessung (Eingabedatei)
FFTENT = 8: Vorgegebene Phase, mit der direkt korrigiert werden soll (Eingabedatei)
KORFIL KORENT = 1: Phasenkorrigiertes Interferogramm (Ausgabedatei)
IMITTE Interferogrammpunkt als Zentrum der komplexen Transformation (= 0 für Interferogrammmaximum)
M7, IP7 Filterparameter des mathematischen Filters bei der Interferogrammaufnahme
LMI Abtastabstand des Interferogramms in Einheiten der Wellenlänge des Abtastlasers (z.B. LMI = 1 heißt Abtastung mit λ_{Laser})
FFTENT Schalter zum Anwählen verschiedener Funktionen:
= 1: Fouriertransformation des Interferogramms und Abspeichern von Real-, Imaginärteil und Phase.
= 2: Spiegeln des längeren Interferogrammteils bei Beibehaltung des kurzen 2-seitigen Teils und dann wie 1.

- = 3: Korrektur eines 2-seitigen Interferogramms. Dabei werden die Methoden zur Phasenbestimmung und Korrektur nach der Eingabe von PHAENT und KORENT gehandhabt wird.
- = 4: Korrektur eines 1 1/2-seitigen Interferogramms. Hierbei ist die Wahl von PHAENT beliebig, aber KORENT wird automatisch auf 1 gesetzt.
- = 5: Korrektur eines 1-seitigen Interferogramms. PHAENT und KORENT sind hier beide gleich 1.
- = 6: Berechnung des Betragsspektrums
- = 7: Phasenkorrektur nach *Forman*
- = 8: Phasenkorrektur mit vorgegebener Phase
- = 9: Nur Phasenbestimmung und Abspeichern der Korrekturphase
- PHAENT** = 1: Phasenbestimmung im Ozonbereich ('Ozonphase')
- = 2: Differentielle Phasenbestimmung
- KORENT** = 1: Phasenkorrektur durch Faltung des Interferogramms
- = 2: Phasenkorrektur durch Drehung im Spektralraum
- IAPO** = 0: keine Apodisation
- = 1: Apodisation Dreieck
- = 2: Apodisation Norton-Strong
- AUFL** Auflösung (= 0 für volle Auflösung)

Anhang G. Das Programm zur Kalibrierung

Das Programm EICH wurde zur Kalibrierung der Spektren aus dem Winter 1991/92 und 1992/93 erstellt. Es erlaubt neben einem Einsatz zur serienmäßigen Kalibrierung auch Testrechnungen mit verschiedenen Optionen. Im folgenden ist das Beispiel einer Eingabedatei des Programms zur Kalibrierung aufgelistet:

2f1200.re	RELOFI (character^12)
2f1200.im	IMLOFI (character^12)
2f1215.re	REHIFI (character^12)
2f1215.im	IMHIFI (character^12)
2f.st	STGFI (character^12)
2f.ab	ABSFI (character^12)
2f1045.re	SPEKFI (character^12)
2f1045.ca	EICHFI (character^12)
12031212.ph	PHFI (character^12)
218.87	TL (real)
241.76	TH (real)
3	EIENT (integer)
1	STAENT (integer)
1	ASCENT (integer)
0.98	EMI (real)
0.	TUM (real)
2c1000.st	STG1FI (character^12)
2c1100.st	STG2FI (character^12)
1010	TIME1 (integer)
1110	TIME2 (integer)
1045	TIME (integer)

Die Eingabeparameter mit der Endung 'FI' sind Dateien, diejenigen mit der Endung 'ENT' sind Schalter für bestimmte Funktionen.

RELOFI	EIENT = 1,4,6: Realteil der niedrigen Temperatur (Eingabedatei) EIENT = 2,5: Korrigiertes Spektrum der niedrigen Temperatur (Eingabedatei)
IMLOFI	EIENT = 1,4,6: Imaginärteil der hohen Temperatur (Eingabedatei)
REHIFI	EIENT = 1,4,6: Realteil der hohen Temperatur (Eingabedatei) EIENT = 2,5: Korrigiertes Spektrum der hohen Temperatur (Eingabedatei)
IMHIFI	EIENT = 1,4,6: Imaginärteil der hohen Temperatur (Eingabedatei)
STGFI	EIENT = 1,2: Gerätefunktion (Eingabedatei) EIENT = 3: Gerätefunktion (Ausgabedatei)
ABSFI	EIENT = 1,2: Geräteuntergrund (Eingabedatei) EIENT = 3: Geräteuntergrund (Ausgabedatei)
SPEKFI	EIENT = 3,4,5,7: Spektrum in relativen (Eingabedatei)
EICHFI	EIENT = 3,4,5,7: Kalibriertes Spektrum (Ausgabedatei)
PHFI	EIENT = 1: Strahlteilerspektrum (Ausgabedatei) EIENT = 3: Differentielle Phase der Schwarzkörpermessung (Ausgabedatei)
TL	EIENT = 3,4,5: Niedrige Temperatur (Eingabe)
TH	EIENT = 3,4,5: Hohe Temperatur (Eingabe)
EIENT	Schalter zum Anwählen verschiedener Funktionen: = 1: Berechnung der Gerätefunktion und des Untergrunds aus Real- und Imaginärteil der beiden Schwarzkörpertemperaturen

- = 2: Berechnung der Gerätefunktion und des Untergrunds aus phasenkorrigierten Schwarzkörperspektren der beiden Schwarzkörpertemperaturen
 - = 3: Kalibrierung mit Eingabe der Gerätefunktion
 - = 4: Kalibrierung mit Real- und Imaginärteil der beiden Temperaturen
 - = 5: Kalibrierung mit phasenkorrigierten Schwarzkörperspektren der beiden Temperaturen
 - = 6: Berechnung der differentiellen Phase aus Real- und Imaginärteil der beiden Temperaturen
 - = 7: Kalibrierung mit Eingabe von zwei Gerätefunktionen zu zwei verschiedenen Zeitpunkten (STAENT= 1); die Gerätefunktion wird auf den Zeitpunkt der Messung linear interpoliert
- STAENT** = 1: Kalibrierung nur mit Steigung
= 2: Kalibrierung mit Steigung und Untergrund
= 3: Nur Untergrund subtrahieren
- ASCENT** = 1: Kalibriertes Spektrum im ASCII-Format herausschreiben
- EMI** Emissionsgrad des Schwarzkörpers
- TUM** Temperatur der Umgebung, die über den Schwarzkörper eingespiegelt wird (= 0.0, falls nicht zu berücksichtigen)
- STG1FI** EIENT = 7: Steigung zum früheren Zeitpunkt (Eingabedatei)
- STG2FI** EIENT = 7: Steigung zum späteren Zeitpunkt (Eingabedatei)
- TIME1** EIENT = 7: Zeitpunkt der früheren Kalibrierung (HHMM)
- TIME2** EIENT = 7: Zeitpunkt der späteren Kalibrierung (HHMM)
- TIME** EIENT = 7: Zeitpunkt der zu kalibrierenden Messung (HHMM)

Anhang H. Die Strahlungsübertragung

Die Strahlungsübertragungsgleichung lautet für den Fall der Aufwärtssondierung, wie sie bei MIPAS-FT vorliegt:

$$L_{\Delta\sigma} = \int_{\infty}^{z_F} B_{\Delta\sigma}(T(z)) \frac{\partial \tau_{\Delta\sigma}(z)}{\partial z} dz \quad (H.1)$$

Dabei ist $L_{\Delta\sigma}$ die integrierte Strahldichte im Wellenzahlintervall $\Delta\sigma$, z der Ort entlang des Sehstrahls durch die Atmosphäre, z_F der Ort des Flugzeuges, $B_{\Delta\sigma}$ die Planckfunktion, $T(z)$ die Temperatur am Ort z und $\tau_{\Delta\sigma}$ die Transmission vom Ort z bis zum Ort des Beobachters z_F gemittelt im Wellenzahlbereich $\Delta\sigma$.

Die zu integrierende Funktion

$$B_{\Delta\sigma}(T(z)) \frac{\partial \tau_{\Delta\sigma}(z)}{\partial z} \quad (H.2)$$

wird als Beitragsfunktion bezeichnet, da sie die höhenabhängige Verteilungsfunktion der am Ort des Flugzeuges ankommenden Strahlungsintensität darstellt.

1.1 Endliches Gesichtsfeld

Wie von *Wegner (1991)* gezeigt wurde, kann der endliche Öffnungswinkel eines Spektrometers bei Horizontsondierungsgeometrie eine nicht zu vernachlässigende Fehlerquelle darstellen, wenn die Modellspektren für ein infinitesimal kleines Gesichtsfeld berechnet werden. Dies ist im verwendeten Programm FASCOD2 der Fall.

Um diesen Fehler bei der Aufwärtssondierung von der Transall aus abzuschätzen, wurde ein Modellspektrum unter Verwendung des experimentell bestimmten Gesichtsfelds von MIPAS-FT erzeugt. Das Gesichtsfeld ließ sich aufgrund der Vermessung von 1992/93 (*Gulde, 1994*) durch eine Gaußfunktion mit der Halbwertsbreite 0.83° approximieren. Die Gaußfunktion wurde bei 1.2° abgeschnitten, da ab diesem Öffnungswinkel die Werte bei der Vermessung des Gesichtsfelds kleiner als das Rauschen werden. Das Modellspektrum wurde aus Spektren im Abstand von 0.1° , gewichtet mit dieser Gaußfunktion, zusammengesetzt. Einen Vergleich mit dem Spektrum des Zentralstrahls zeigt Abbildung I.1.

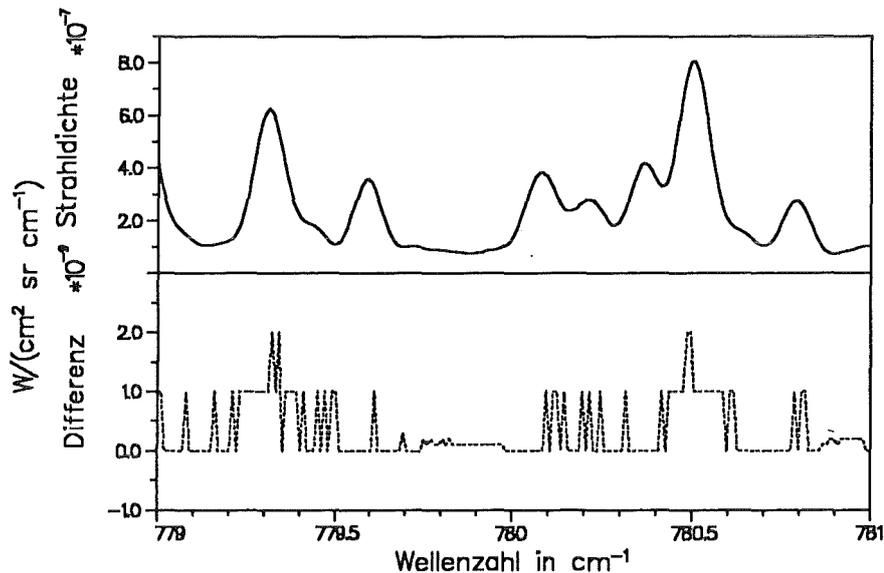


Abb. I.1 Simulierte Spektren mit und ohne Berücksichtigung eines endlichen Gesichtsfelds bei einem Beobachtungswinkel von 7° (Atmosphäre vom 5.3.1993, 15:00).

Die Differenz beträgt in allen für die Auswertung relevanten Spektralbereichen maximal $2 \cdot 10^{-9} W / (\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ und damit höchstens 0.4% der Linienhöhe. (Eine Simulation, wie sie der Meßgeometrie und Auflösung des Winters 1991/92 entspricht, liefert vergleichbare Ergebnisse.)

Diese Rechnungen zeigen, daß eine Auswertung unter Nichtbeachtung des endlichen Gesichtsfelds des Spektrometers zu vernachlässigenden Fehlern führt. Allerdings ist es notwendig, den Ort des Schwerpunkts der Gesichtsfeldfunktion und damit den absoluten Winkel des Zentralstrahls genau genug zu kennen (Anhang I.2).

1.2 Absoluter Elevationswinkel

In Kapitel 2.1.4 wurde gezeigt, daß sich die Rollwinkelschwankung des Flugzeugs während der Interferogrammaufnahme durch die Koaddition herausmittelt. Auch aus den Betrachtungen des endlichen Gesichtsfelds im letzten Kapitel ging hervor, daß es im wesentlichen auf die absolute Kenntnis des mittleren Elevationswinkels (des Schwerpunkts der Gesichtsfeldfunktion) ankommt.

Der absolute Elevationswinkel χ einer Messung wurde folgendermaßen berechnet:

$$\chi = \chi_e + \chi_0 + \chi_R + \chi_G \quad (4.1)$$

Hierbei ist χ_e der am Gerät eingegebene Winkel, χ_0 der Offset zwischen bordeigenem Navigationsgerät und gemessenem Elevationswinkel des He-Ne-Laserstrahls (bei $\chi_e = 0$), χ_R der durch das Navigationsgerät angezeigte Rollwinkel während einer Messung und χ_G der Versatz der Lage des He-Ne-Laserstrahls gegenüber dem Schwerpunkt der Gesichtsfeldfunktion.

Genauigkeit der fehlerbehafteten Glieder:

χ_G : Die Abweichung des He-Ne-Laserstrahls vom Zentrum des Gesichtsfeldes wurde bei der Gesichtsfeldvermessung bestimmt (Gulde, 1994). Diese ist mit einem Fehler von ca. 0.1° behaftet.

χ_0 : Eine Kalibrierung des eingestellten Winkels relativ zu dem fest an Bord installierten Navigationsgerät wurde mehrmals während des Winters durchgeführt. Die Genauigkeit dieser Kalibrierung wird auf ca. 0.1° geschätzt (Piesch, 1994).

Allerdings kann χ_0 während des Fluges von diesem Wert abweichen, da das Navigationsgerät nicht fest mit dem Interferometer verbunden ist. Es steht vielmehr, wie auch das Instrument selbst, auf Schwingungsdämpfern. So kann es durch Verwindung des Flugzeugrumpfs oder durch verschiedene Neigungen des Interferometers aufgrund unterschiedlicher Trockenisbeladung und Vibrationen zu Fehlern kommen, die nicht genau bekannt sind, aber einige zehntel Grad betragen können.

Die Standardabweichung in χ wurde für die Fehlerabschätzung mit 0.3° angesetzt. Dies führt zu Fehlern von 0.4-3.5% (1992/93) bzw. 0.6-9.2% (1991/92) in den Säulengehalten.

1.3 Spektrale Auflösung

Bei der Auswertung der gemessenen Spektren wurde, wie in Kapitel 3.2 beschrieben, nicht die theoretische Auflösung des Spektrometers (Kapitel 3.2) verwendet. Vielmehr wurde während der CO_2 -Korrektur die spektrale Auflösung mit angepaßt und für die spätere Spurengasbestimmung ein Mittelwert der Ergebnisse aus den beiden CO_2 -Bereichen verwendet. Der Mittelwert und die Standardabweichung aller derart ermittelten Auflösungen liegt 1991/92 bei $0.180 \pm 0.004 \text{ cm}^{-1}$ und 1992/93 bei $0.0824 \pm 0.0023 \text{ cm}^{-1}$.

Der resultierende Fehler in den Säulengehalten liegt 1991/92 (1992/93) bei den meisten Gasen im Bereich von 2% (1%), für ClONO_2 und F12 bei unter 1% (0.5%).

1.4 Temperaturprofil

Bei der Auswertung wurden die Temperaturfelder der ECMWF-Analysen sowohl für die CO₂-Korrektur als auch für die Spurengasberechnungen verwendet (Kapitel 3.1.3). So wirkt sich ein fehlerbehaftetes Profil einmal direkt und zum anderen mittelbar über die CO₂-Korrektur auf die Säulengehalte aus. Dies hat beispielsweise zur Folge, daß ein Temperaturprofil, welches nur wenige Kilometer oberhalb des Flugzeugs vom wahren Profil abweicht, jedoch in der Stratosphäre richtig ist, zu Fehlern in der Auswertung stratosphärischer Gase führt. Umgekehrt kann auch ein Kompensationseffekt auftreten, falls die Temperaturfehler überall in die gleiche Richtung gehen und die Temperaturabhängigkeiten der Linien ähnlich sind.

Das angenommene Temperaturprofil kann aus verschiedenen Gründen vom wahren Profil in der Atmosphäre abweichen:

- Fehler durch Mittelung der Interferogramme über eine endliche Flugstrecke
- Fehler bei der Interpolation der ECMWF-Daten auf Ort und Zeit der Messung
- Fehler in den ECMWF-Daten
- Fehler im Temperaturprofil oberhalb 10 hPa

Die Mittelung der Spektren erfolgte über einen Zeitraum von 15-20 Minuten, was einer Flugstrecke von ungefähr 100 km entspricht. Das für die Auswertung verwendete Temperaturprofil wurde auf den Ort und die Zeit des Mittelpunkts dieser Strecke interpoliert. Im Idealfall müßten die Profile entlang des Meßwegs gemittelt werden. Hier ist dies jedoch sinnlos, da das Analysenfeld selbst keine größere Auflösung besitzt.

Fehler bei der Interpolation auf den Ort der Messung, die bei Änderung des Gradienten zwischen zwei Gitterpunkten auftreten, werden ebenfalls durch die räumliche Mittelung über das Meßgebiet gemindert.

Die Ungenauigkeiten der ECMWF-Daten können anhand von Vergleichen mit Satellitendaten abgeschätzt werden. Solche Untersuchungen wurden beispielsweise von *Scott et al. (1986)* oder von *LeMarshall (1985)* durchgeführt. Dabei zeigt sich eine RMS (Root of Mean Squares, Wurzel aus der mittleren quadratischen Abweichung) zwischen Satelliten- und ECMWF-Temperaturprofilen von durchschnittlich 2 K und eine Verschiebung im gesamten Profil von 0.5-1 K. Da die ECMWF-Daten wahrscheinlich genauer als die Satellitendaten sind, stellen diese Werte eine obere Abschätzung für den Temperaturfehler in der Auswertung dar. Lokale Ereignisse, wie z.B. eine durch Leewellen induzierte Temperaturabnahme in der Stratosphäre, die in der Größenordnung von 5-10 K liegen kann, werden in den Analysen nicht aufgelöst. Jedoch werden solche lokalen Anomalien bei der Auswertung dadurch abgeschwächt, daß über eine gewisse Flugstrecke hinweg gemittelt wird.

Der Einfluß des Temperaturfehlers wurde anhand von unterschiedlichen Temperaturprofilen untersucht, die entweder mit einer RMS von 2 K verrauscht oder um einen konstanten Wert von 1 K verschoben waren. Dies führte zu Fehlern von 3 - 4% in den stratosphärischen Gasen HNO₃, ClONO₂ und O₃ (776 - 786 cm⁻¹). Es zeigt sich, daß die Auswertung von O₃ in den Intervallen (985 - 995 cm⁻¹) und (1116 - 1126 cm⁻¹) wesentlich temperaturempfindlicher ist als im langwelligen Bereich.

Die ECMWF-Temperaturprofile enden in einer Höhe von 10 hPa. Von dort wurde das Profil glatt in ein Standardprofil fortgesetzt. Der Fehler, den ein falsches T-Profil oberhalb 10 hPa bei der Bestimmung der Säulengehalte verursacht, wurde durch eine Variation dieses Profiltails um 10 K simuliert. Die abgeleiteten Säulengehalte der stratosphärischen Spurengase HNO_3 , O_3 und ClONO_2 unterscheiden sich 1992/93 um 1%, 2% und 1% und 1991/92 um 1%, 3% und 7%. Auch dieses Ergebnis zeigt deutlich, welche Verbesserung die höhere Auflösung im Winter 92/93 bezüglich der Bestimmung von ClONO_2 -Säulengehalten mit sich brachte.

1.5 Form der Vertikalverteilung der Spurengase

Eine der größten Fehlerquellen bei der Bestimmung von Säulengehalten bei MIPAS-FT ist die Annahme über die Form des Vertikalprofils des auszuwertenden Spurengases. Bei der Ausgleichsrechnung werden die Säulengehalte durch Skalierung des Profils verändert, um eine optimale Übereinstimmung von Messung und Vorwärtsrechnung zu erhalten. Stimmt das vorausgesetzte Profil nicht mit dem wirklichen überein, so kommt es durch Temperatureffekte in der nicht isothermen, realen Atmosphäre zu Fehlern in den Säulengehalten. Wertet man beispielsweise ein Gas aus, dessen Signatur eine positive Temperaturabhängigkeit besitzt und dessen angenommenes Konzentrationsmaximum bei höheren Temperaturen liegt als in Wirklichkeit, so liefert die Rechnung zu kleine Säulengehalte. Dieser Effekt tritt hauptsächlich dann auf, wenn große Temperaturgradienten mit der Lage des Profilmaximums zusammenfallen.

Wie in Kapitel 3.1.2 beschrieben, wurde für die Auswertungen der stratosphärischen Gase angestrebt, möglichst realistische Startprofile zu verwenden. Aufgrund der fehlenden Information über die wahre Höhenverteilung des Spurengases läßt es sich allerdings beispielsweise bei Flügen über die Grenze des Polarwirbels hinweg kaum vermeiden, daß falsche Ausgangsprofile verwendet werden.

Zur Fehlerabschätzung wurde angenommen, daß die Standardabweichung der Höhe des Profils 2 km beträgt. Mit derart verschobenen Profilen wurden beispielhafte Spektren nochmals ausgewertet. Diese Annahme berücksichtigt in erster Näherung dynamische Prozesse, die eine Hauptursache für die Änderung eines Spurengasprofils in der Atmosphäre darstellen. Chemische Veränderungen des Profils werden auf diese Weise allerdings nicht simuliert. Die aufgetretenen Unterschiede in den Säulengehalten sind in den Tabellen 4.2 und 4.3 zusammengefaßt.

Es ist deutlich, daß für die Auswertung von Ozon der langwelligste Bereich am günstigsten ist, da hier die kleinste Temperaturempfindlichkeit und damit auch der kleinste Fehler bei Profilverchiebungen vorliegt.

1.6 Spektroskopische Daten

Die Genauigkeit der spektroskopischen Daten wirkt sich auf den systematischen Fehler in den Säulengehalten aus. Dieser muß beispielsweise beim Vergleich mit anderen Experimenten berücksichtigt werden. Der relative Fehler, der für die Korrelation der Ergebnisse untereinander wichtig ist, wird hierdurch praktisch nicht beeinflusst.

Die größten Fehler resultieren aus der ungenauen Kenntnis der Linienintensität Σ und der Linienbreite γ bzw. des Absorptionsquerschnittes α (Wetzel, 1993). Diese Fehler wurden in Testrechnungen simuliert. Dabei wurden jeweils Σ bzw. γ um 10% variiert. Für Σ ergibt sich, wie erwartet, eine entsprechende Variation der Säulengehalte. Fehler in der Halbwertsbreite wirken sich jedoch wesentlich schwächer auf die Ergebnisse aus. Tabelle I.1 zeigt die Änderung der Säulengehalte bzw. Skalierungsfaktoren (CO_2) bei einem Fehler in der Linienbreite γ .

CO_2 (801-812)	CO_2 (940-950)	HNO_3 (863-873)	O_3 (776-786)	O_3 (985-995)	O_3 (1116-1126)	N_2O (1176-1186)	CH_4 (1215-1231)
0.2	0.4	1.5	1.4	3.0	3.4	1.2	2.1

Tabelle I.1 Prozentuale Änderung der Retrievalergebnisse von Säulengehalten bzw. Skalierungsfaktoren (CO_2) bei einer Variation der Halbwertsbreite γ um 10%.

Die angenommenen Genauigkeiten der spektroskopischen Parameter Σ , γ und α sind in Tabelle 4.2 und 4.3 angegeben. Sie wurden entweder direkt aus der Liniendatenbank (CO_2 , CH_4) oder aus der Studie von Flaud (1993) entnommen. Der Fehler von ca. 10% - 15%, der von Ballard et al. (1988) für die Absorptionsquerschnitte von ClONO_2 angegeben wurde, wird auch in einer neueren Studie bestätigt (Hausmann und Flaud, 1993). Der Fehler in der Intensität der HNO_3 $\nu_3/2\nu_3$ - Bande wird mit 5-20% angegeben. Unser Auswertebereich liegt jedoch eher am unteren Bereich dieser Fehlerschranke und wurde mit 5-10% angesetzt (Oelhaf, 1993).

Zu einem weiteren systematischen Fehler kommt es bei der Auswertung von ClONO_2 oder F12 durch die unbekanntes Temperaturabhängigkeit bei niedrigen Temperaturen, für die keine Absorptionsquerschnitte zur Verfügung stehen. Für den Fehler, der durch die in Kapitel 3.1.1 beschriebenen Interpolationen auf diese Temperaturen entsteht, existieren jedoch keine Abschätzungen.

1.7 Spektrales Rauschen, Störgaseinfluß und Nachweisgrenze von ClONO_2

Um den Einfluß des spektralen Rauschens auf die Ergebnisse abzuschätzen, wurden Testrechnungen mit theoretischen Spektren durchgeführt. Diesen Spektren wurde dazu ein Rauschen von $1 \cdot 10^{-8} \text{W}/(\text{cm}^2 \text{sr cm}^{-1})$ überlagert. Diesem Wert waren einerseits aus Schwarzkörpermessungen bestimmten Rauschwerte bei einer Anzahl von 100 Koadditionen (Anhang C) zugrundegelegt, und andererseits lagen die Residuen der Anpassungsrechnung in der gleichen Größenordnung. Im Gegensatz zu den bisher betrachteten Fehlern bewirkt das Rauschen einen absoluten Fehler in den Ergebnissen. Außer bei ClONO_2 wurde in den Tabellen 4.2 und 4.3 dieser Fehler bei allen Gasen in einen prozentualen Fehler umgerech-

net, da sich deren Säulengehalte nicht extrem ändern und der Fehler mit 1-2% sehr klein ist. Dieser geringe Wert erklärt sich aus der Tatsache, daß der Einfluß des Rauschens mit \sqrt{n} (n : Anzahl der spektralen Stützstellen) zurückgeht (Wetzel, 1993) und diese Gase in breiten Spektralbereichen mit zahlreichen Linien bestimmt wurden.

Der Einfluß von Molekülen, die in den gleichen Intervallen wie die auszuwertenden Gase Signaturen besitzen, wurde durch Variation dieser Störgase bestimmt. Dieser Fehler wirkt sich auch als absoluter Fehler auf das Ergebnis des auszuwertenden Spurengases aus. Die Interferenzen sind für die meisten Wellenzahlbereiche zu vernachlässigen. Lediglich N_2O und vor allem $ClONO_2$ erweisen sich empfindlich gegenüber einer fehlerhaften Annahme von O_3 bzw. O_3 und CO_2 .

Die Menge von $ClONO_2$ in der polaren Stratosphäre wird einerseits durch dynamische Prozesse andererseits aber auch sehr stark durch chemische Reaktionen bestimmt. $ClONO_2$ zeigt daher eine große Variabilität. Unter normalen Bedingungen in mittleren Breiten weist es Säulengehalte von $1-1.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ auf. Im Polarwirbel kann sich diese Menge aber auch vervielfachen. Da der Fehler durch das spektrale Rauschen und durch Störgaseeinfluß bei $ClONO_2$ nicht zu vernachlässigen ist, muß daher neben dem relativen auch ein absoluter Fehler angegeben werden. Dieser bestimmt gleichzeitig die Nachweisgrenze dieses Spurengases bei MIPAS-FT-Messungen. Mittels Gausscher Fehlerfortpflanzung ergibt sich eine Standardabweichung für $ClONO_2$ von $0.28 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für den Winter 1992/93 und $0.73 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ für 1991/92. Setzt man als untere Nachweisgrenze die 3-fache Standardabweichung an, so beträgt diese $0.84 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ im Winter 92/93 und $2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ im Winter 91/92.

1.8 Flughöhe

Eine Fehlerquelle, die sich hauptsächlich indirekt über die CO_2 -Korrektur auf die Genauigkeit der stratosphärischen Spurengase auswirkt, ist die Kenntnis des Außendrucks zum Zeitpunkt der Messung. Die Transallflüge finden, wie in der Luftfahrt üblich ist, auf einem Niveau konstanten Drucks statt. Dies ist eine Voraussetzung dafür, daß Spektren über eine Flugstrecke von bis zu 100 km gemittelt werden können und daß bei der CO_2 -Korrektur von einem gleichbleibenden Außendruck ausgegangen werden kann.

Die Bestimmung des statischen Außendrucks wurde von der Firma *Aerodata* durchgeführt. Das an Bord befindliche Druckmeßgerät mißt den statischen Druck P_s und den Gesamtdruck P_t . Der Staudruck P_{Stau} wird als die Differenz $P_t - P_s$ berechnet. Der Drucksensor ist an einem Ort des Flugzeugs angebracht, an dem der gemessene Druck P_s während des Fluges nur gering von dem Staudruck beeinflusst wird. Zur Berechnung des korrigierten statischen Außendrucks P_{skor} wird eine sogenannte Staudruckkorrektur angewandt:

$$P_{\text{skor}} = P_s - k' P_{\text{Stau}}$$

Der Korrekturparameter k' wurde zu Beginn des Transall-Experiments zu 0.0168 (*Fa. Aerodata*) bestimmt.

P_{Stau} liegt unter normalen Flugbedingungen bei ca. 50 hPa und P_s bei 400 hPa. Demnach resultieren die Fehler bei der Bestimmung von P_{skor} aus der Meßgenauigkeit des Drucksens-

sors und der Bestimmung von k' . Aus dem Datenblatt des Druckmeßgeräts wurde ein Fehler von P_s von ± 0.34 hPa und von P_{Stau} von ± 1.16 hPa entnommen. Nimmt man noch einen relativ hohen Fehler für k von 0.02 an, so ergibt sich nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz ein Fehler des korrigierten Außendruckes von ± 1.06 hPa.

Die Standardabweichung der gemessenen Druckwerte über einen Zeitraum von 15 Minuten, der der Koadditionszeit eines Interferogramms entspricht, beträgt ca. 0.2 hPa.

Der aus der ungenauen Druckbestimmung von 1 hPa resultierende Fehler in den Säulengehalten der Spurengase beläuft sich auf $< 1\%$ und ist nicht in die Fehlertabelle aufgenommen.

1.9 Genauigkeit des Strahlungsübertragungsprogramms

Um die Fehler abzuschätzen, die durch eine ungenaue Simulation des Spektrums durch das Vorwärtsrechenprogramm FASCOD2 bei der Berechnung von Säulengehalten entstehen, wurde ein Vergleich mit SCAIS (siehe Kapitel 3.1.1) durchgeführt. Dieser Vergleich bestand aus einem darin, für die gleiche Modellatmosphäre Vorwärtsrechnungen in gleichen Spektralintervallen mit beiden Programmen durchzuführen. Dabei ist es wichtig, die gleiche Faltungsfunktion (sinc^2) zu benutzen, die hierzu in SCAIS implementiert wurde. Es zeigte sich, daß eine systematische Differenz zwischen beiden Rechnungen vorliegt. Dabei sind die Linien bei SCAIS um ca. 5%-7% niedriger als bei den mit FASCOD2 berechneten Spektren. Die Nebenschwingungen der sinc^2 -Funktion werden dagegen von SCAIS höher modelliert. Um zu entscheiden, woher diese Differenz der beiden Programme kommt, wurden gleiche Rechnungen mit FASCOD3, einer neuen FASCOD-Version, durchgeführt (Echle, 1994). Hierbei stimmten die Ergebnisse sehr gut mit den SCAIS Rechnungen überein. Dies legt den Schluß nahe, daß die Probleme bei FASCOD2 auftreten und höchstwahrscheinlich mit einer fehlerhaften Faltungsfunktion zusammenhängen.

Zur Abschätzung der Auswirkungen dieses Fehlers auf die Säulengehalte wurden Vergleichsauswertungen mit SCAIS und FASCOD2 durchgeführt. Es zeigte sich dabei, daß bei der CO_2 -Korrektur die Korrektur-Faktoren um bis zu 7% unterschiedlich berechnet wurden. Da diese Differenz systematisch in allen Wellenzahlintervallen auftritt, hätte dies ohne Durchführung der CO_2 -Korrektur einen Fehler in den Säulengehalten von bis zu 15% zur Folge. Durch die Korrektur wird dieser Fehler, speziell für die Gase im Spektralbereich unterhalb 1000 cm^{-1} , stark gedämpft und führt hier zu maximalen Differenzen von 3% in den Säulengehalten. Im Bereich höherer Wellenzahlen betragen die Fehler bis zu 10%. Dies hat seine Ursache in der größeren Entfernung von den CO_2 -Korrekturbereichen.

Die hier behandelte Fehlerquelle ist offensichtlich systematischer Natur, da alle Auswertungen mit FASCOD2 durchgeführt wurden.

1.10 Aerosol

Das stratosphärische Aerosol war während der beiden hier betrachteten Winter aufgrund des Ausbruchs des Vulkans Pinatubo im Juni 1991 erhöht. Es stellt sich so die Frage, inwieweit diese Tatsache die Auswertung der Säulengehalte bei MIPAS-FT beeinträchtigt. Für die Auswertungen des Winters 1991/92 wurde bei den Strahlungsübertragungsrechnungen ein Aerosolmodell mit hohem Profil und gealterter Zusammensetzung ('LOW-

TRAN: aged volcanic', *Kneizys et al., 1983*) berücksichtigt. Es stellte sich jedoch heraus, daß die spektrale Abhängigkeit der Extinktion dieses verwendeten Aerosolmodells nicht realistisch war (*Echle, 1993*). Da zum Zeitpunkt der Auswertung der Messungen 1992/93 kein besseres Modell zur Verfügung stand, wurde dieser Winter, um definiertere Bedingungen zu schaffen, ohne die Berücksichtigung von stratosphärischem Aerosol ausgewertet. Es ist daher nötig, abzuschätzen, wie groß der Fehler ist, den dieses Vorgehen in den abgeleiteten Säulengehalten bewirkt.

Aerosol kann bei der Strahlungsübertragung in kleinen Wellenzahlbereichen vereinfacht als Graukörper angenommen werden. Der Einfluß auf das gemessene Spektrum besteht in erster Näherung in einem additiven und einem multiplikativen Beitrag. Ein rein additiver Beitrag hätte keine Auswirkungen auf die Bestimmung der Säulengehalte, da ein additiver Untergrund mit angepaßt wird. Falls der multiplikative Effekt des Aerosols über das gesamte Spektrum mit der Wellenzahl ausschließlich linear wäre, würde dieser durch die CO₂-Korrektur beseitigt werden.

Um zu quantifizieren, inwieweit diese Korrektur im realen Fall, in dem die Extinktion des Aerosols eine spektrale Abhängigkeit zeigt, wirksam ist, wurden Testrechnungen durchgeführt. Dazu wurden aus LIDAR-Messungen, die gleichzeitig an Bord der Transall stattfanden, Höhenprofile des Aerosols bestimmt. Die Zusammensetzung des Aerosols, die den spektralen Verlauf der Extinktion bedingt, wurde mit typischen Werten für die Stratosphäre von 75% H₂SO₄ und 25% H₂O (Gewichts-%) angenommen. Unter Berücksichtigung dieses Aerosolmodells wurden beispielhafte Auswertungen beider Winter (*Echle, 1994*) wiederholt und mit den ursprünglichen Ergebnissen verglichen. Es ergaben sich bei höheren Wellenzahlen, in denen das Aerosol eine stärkere spektrale Struktur aufweist, Fehler von bis zu 10% in den Säulengehalten. In den für die Auswertung von O₃, HNO₃ und ClONO₂ verwendeten Spektralintervallen lagen die Fehler mit ca. 1% wesentlich niedriger.

1.11 Kalibrierung

Um den Einfluß eines 5%-igen Fehlers der Gerätefunktion auf die Säulengehalte abzuschätzen, wurden Testrechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle I.2 zusammengefaßt.

	HNO ₃ (863- 873)	O ₃ (776- 786)	O ₃ (985- 995)	O ₃ (1116- 1126)	ClONO ₂ (779.5- 781)	N ₂ O (1176- 1186)	CH ₄ (1215- 1231)	F12 (920- 925)
1991/92	5.8	8.0	13.9	9.1	3.0	5.9	7.3	5.9
1992/93	9.2	11.9	11.6	13.5	3.5	9.4	12.5	5.5

Tabelle I.2 Prozentuale Änderung der Säulengehalte bei einem Fehler von 5% in der Gerätefunktion. (Bei den Gasen sind die jeweiligen Wellenzahlintervalle angegeben.)

Zur Vermeidung dieser beträchtlichen Fehler wurde, wie in Kapitel 2.3.4 beschrieben, die CO₂-Korrektur durchgeführt. Der noch verbleibende Fehler durch die Kalibrierung, der im Fehlerbudget berücksichtigt werden muß, ist die Abweichung des Quotienten unterschiedlicher Gerätefunktionen von der Linearität (Kapitel 2.3.4.3). Wie dort gezeigt wurde, be-

trägt diese Abweichung im Bereich bis 1000 cm^{-1} ca. 1%, steigt aber zu kürzeren Wellenlängen hin an. Die daraus resultierenden Fehler sind in die Tabellen 4.4 und 4.5 eingearbeitet.

Anhang J. Datensatz Winter 1991/92

Beschreibung der einzelnen Spalten:

Zeit	Der mittlere Zeitpunkt des aufaddierten Meßzeitraums in GMT (Greenwich Mean Time).
Breite, Länge	Die geographische Lage des Durchstoßpunkts der Gerätesichtlinie durch die Höhenschicht 20 km zur obigen Zeit. Der Punkt liegt bei einem Elevationswinkel von 7° horizontal ungefähr 100 km vom Flugzeug entfernt. Dieser Ort wurde in die Tabelle eingetragen, da sich ungefähr dort das Maximum der Beitragsfunktionen der gemessenen stratosphärischen Spurengase befindet (Kapitel 3.1.2).
PV475, PV550	Die Werte der potentiellen Vorticity auf den Isentropenflächen 475 K und 550 K. Die Grundlage zur Berechnung dieser Werte waren Felder der potentiellen Vorticity, wie sie in der Datenbank des NILU für jeden Tag um 12 Uhr mittags zur Verfügung stehen. Die Analysen wurden räumlich auf den Ort der Messung interpoliert. Außerdem fand eine lineare zeitliche Interpolation zwischen je zwei Feldern auf den Zeitpunkt 'Zeit' statt. * bedeutet, daß hier keine PV-Felder vorhanden waren.
O₃	Der Ozonsäulengehalt über dem Flugzeug wird in Dobson-Einheiten angegeben ($1 \text{ DU} \equiv 2.68 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-2}$). Die aufgeführten Werte wurden im langwelligen Wellenzahlintervall ($776 \text{ cm}^{-1} - 786 \text{ cm}^{-1}$) ermittelt.
HNO₃	HNO ₃ -Säulengehalt über dem Flugzeug in 10^{16} cm^{-2} .
ClONO₂	ClONO ₂ -Säulengehalt über dem Flugzeug in 10^{15} cm^{-2} . * bedeutet, daß ClONO ₂ aufgrund einer zu schlechten Anpassung nicht auswertbar war. Abgeleitete Werte unterhalb der Nachweisgrenze sind angegeben. Nachweisgrenzen: 1991/92: $2.2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, 1992/93: $0.84 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 O3/DU HN03/E16 CLON02/E15

2. Kampagne

090192 (Ki - 110/68N - 70/65N - Ki)

1353	9.48	67.58	64.90	172.20	249.2	1.29	△
------	------	-------	-------	--------	-------	------	---

120192 (Ki - 280/66N - 80/68N - 80/71N - Ki)

1042	29.66	67.35	63.10	165.30	329.7	2.60	△
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	---

1129	22.08	66.35	48.40	145.00	282.3	2.71	△
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	---

1143	20.79	66.47	42.30	127.90	267.9	2.73	△
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	---

130192 (Ki - 280/66N - 140/69N - 80/64N - Ki)

0808	27.52	67.16	59.50	165.10	231.1	2.07	△
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	---

0826	26.79	65.74	57.90	161.80	232.1	2.06	△
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	---

0918	21.14	66.42	57.10	165.80	248.6	1.87	△
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	---

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

3. Kampagne

300192 (Ki - 30/75N - Ki)

1212	14.48	68.58	34.30	107.50	306.9	1.07	2.98
1523	6.14	66.69	33.30	102.00	287.1	1.24	2.77
1550	11.36	67.61	43.00	142.00	264.1	1.18	3.09
1615	16.63	68.40	28.90	100.90	273.8	1.60	3.24

310192 (Ki - 300/78N - Ki)

1353	23.00	78.52	47.50	115.30	361.9	2.74	1.98
1528	26.66	73.92	40.50	105.70	287.2	1.88	1.81
1615	21.89	70.39	34.80	113.40	282.3	1.66	2.29

010292 (Ki - 160/76N - 300/78N - Ki)

1122	13.14	73.62	44.20	108.50	401.6	2.64	1.72
1347	34.07	73.44	50.10	116.10	390.4	2.53	1.63

020292 (Ki - 300/80N - Ki)

1219	21.90	79.34	51.20	125.70	407.6	2.94	1.66
1255	32.98	78.11	55.20	153.40	398.2	2.77	1.36

030292 (Ki - 50W/67N - Ki)

0851	5.61	68.86	54.50	128.70	435.8	2.64	2.33
1711	-45.09	69.89	26.70	52.30	541.5	2.75	4.80
1732	-40.24	70.82	29.60	60.90	513.1	2.92	4.94
1753	-35.12	71.55	34.00	73.40	458.3	2.35	3.30
1814	-29.51	72.11	38.60	95.80	491.3	2.67	5.22
1835	-23.91	72.48	40.80	114.90	530.4	3.01	4.01
1904	-15.92	72.72	41.10	118.80	495.1	2.93	3.66
1924	-10.22	72.69	43.80	126.80	471.9	2.97	3.76
1944	-4.32	72.43	49.60	138.10	481.1	2.92	2.78
2002	0.35	72.05	49.60	126.90	482.5	2.95	3.56

050292 (Ki - Norw. Kueste - 140/61N - Ki)

0933	10.73	64.13	52.10	170.10	327.7	1.94	2.58
1028	15.51	61.62	52.50	128.90	303.5	1.89	2.02
1108	11.85	61.90	49.60	139.60	345.4	2.06	2.53
1152	11.88	63.09	52.80	149.90	333.3	1.95	2.03

090292 (Ki - 120/58N - Ki)

1351	21.91	62.09	30.10	116.20	219.1	1.14	1.26
1411	20.12	61.08	29.70	102.90	255.9	1.19	1.51
1442	20.01	58.97	28.00	90.20	249.5	1.11	1.02
1533	17.17	56.98	25.30	78.50	296.5	1.16	0.36
1611	12.66	56.65	21.10	66.10	235.1	1.26	0.97
1631	14.67	59.51	25.50	79.20	243.5	1.19	0.79

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

110292 (Ki - 50W/67N - Ki)

0906	-4.57	71.05	41.20	117.70	483.6	3.11	4.11
0921	-7.51	71.32	40.90	122.20	463.1	3.01	3.90
1009	-16.63	71.81	37.60	116.80	420.1	2.63	3.83
1022	-20.05	71.80	38.90	120.90	404.2	2.51	4.00
1044	-24.62	71.77	42.20	129.90	367.1	2.21	3.76
1749	-28.96	76.21	41.20	128.50	404.5	2.42	3.11
1810	-21.93	76.13	40.00	128.70	421.8	2.53	3.85
1838	-13.40	75.67	39.90	122.30	448.0	2.77	3.15
1852	-9.30	75.37	40.90	120.00	480.7	2.98	3.59
1908	-4.59	74.90	42.00	114.20	492.0	2.98	3.09
1921	-1.14	74.46	42.10	109.80	521.2	3.06	2.98
1948	4.77	73.43	39.60	107.10	512.2	3.21	2.93
2005	8.23	72.72	39.90	111.00	510.0	3.11	3.27
2023	11.67	71.97	43.60	121.90	477.3	3.01	3.33

130292 (Ki - 120/68N - 200/73N - Ki)

0644	21.00	66.51	27.30	101.30	264.1	1.69	1.72
0708	16.98	66.72	23.90	86.20	324.0	2.00	2.36
0722	14.88	66.78	23.10	82.70	350.5	2.13	2.42
0737	12.20	66.85	23.40	85.90	332.0	2.12	2.79
0801	9.65	69.23	29.30	112.80	312.5	1.94	1.96
0816	10.51	70.09	31.40	113.50	311.7	2.02	2.49
0833	11.59	71.07	33.30	109.80	334.9	2.12	2.83
0901	13.74	72.58	34.70	104.90	373.8	2.39	3.49
0918	15.19	73.51	35.00	108.60	342.4	2.35	3.56
1035	23.03	68.76	33.70	123.00	302.5	2.13	2.81

140292 (Ki - 70/80N - Ki)

0559	14.24	71.15	27.40	100.30	345.3	2.01	△
0618	13.31	72.16	29.70	104.80	334.5	2.05	2.77
0643	12.00	73.24	30.90	107.10	306.9	1.95	2.65
0658	11.10	73.96	31.30	106.70	318.0	1.81	2.66
0730	9.04	75.44	33.50	108.60	236.5	1.75	2.57
0747	7.65	75.94	34.50	109.60	306.1	1.66	2.65
1042	22.35	71.24	29.80	104.70	431.3	2.62	3.05

160292 (Ki - 430/73N - Ki)

1033	17.16	71.05	24.00	93.20	347.2	1.60	1.37
1048	18.25	71.73	24.80	90.60	334.8	1.50	1.57
1111	23.68	73.17	32.40	108.60	308.1	1.57	2.40
1153	32.29	73.14	36.30	123.10	344.2	1.82	2.30
1213	36.20	73.14	36.60	118.30	372.8	2.03	2.94
1253	42.60	73.71	41.50	113.10	388.1	2.23	2.72
1338	38.20	71.81	36.10	113.30	362.1	2.09	3.22
1359	33.38	71.80	33.50	110.80	345.1	1.77	2.65
1514	23.44	70.48	23.20	76.80	307.6	1.57	1.94

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

4. Kampagne

290292 (Ki - 190/73N - 180/65N - Ki)

1254	14.83	72.32	43.50	130.30	428.9	2.37	4.98
1322	23.13	72.68	48.00	143.10	455.3	2.73	7.57

010392 (Ki - 50W/67N - Ki)

0841	-8.58	70.66	36.60	122.00	318.4	1.77	2.63
1015	-26.74	69.87	48.80	127.70	376.0	2.37	3.96
1030	-29.26	69.66	47.80	124.50	380.5	2.56	4.17
1620	-34.93	71.56	50.80	136.20	369.4	2.39	5.53
1942	12.11	70.50	36.80	114.10	301.9	1.87	2.71

030392 (Ki - 580/68N - Ki)

1253	44.45	67.42	48.00	114.30	475.7	2.69	4.26
1309	47.26	68.02	44.00	108.60	436.4	2.50	4.03
1357	57.51	68.92	49.80	122.00	401.3	2.35	5.95
1437	53.50	66.36	42.60	108.30	402.9	2.44	5.37
1451	51.58	66.20	43.70	109.60	406.1	2.51	5.77
1555	41.07	64.55	44.50	113.40	391.6	2.29	5.80

070392 (Las Palmas - Capverden - Las Palmas)

1120	-20.92	22.39	△	△	383.0	0.96	△
1209	-18.88	25.35	△	△	242.9	1.09	△

090392 (Koeln - Ki)

1141	10.14	56.74	24.80	57.30	264.8	1.49	0.38
1205	14.99	59.44	28.40	81.10	325.3	1.67	1.10
1251	16.27	61.90	35.00	95.40	322.4	1.91	1.84
1302	16.81	62.80	34.30	94.10	321.7	1.90	3.10

110392 (Ki - 40/79N - Ki)

1412	5.06	70.03	42.70	117.60	463.1	3.12	7.15
------	------	-------	-------	--------	-------	------	------

120392 (Ki - 170/74N - 290/74N - Ki)

1717	12.85	72.86	46.10	129.10	402.2	2.71	5.95
1732	19.99	74.80	49.80	129.80	388.6	2.70	5.90
1754	26.03	74.24	50.00	125.70	388.3	2.47	6.69
1855	23.28	71.12	44.90	119.50	370.9	2.44	7.20

Anhang K. Datensatz Winter 1992/93

Zur Beschreibung der Spalten siehe Anhang J.

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

1. KAMPAGNE

041292 (Ma - Ki)

1130	8.40	56.10	23.40	56.00	354.2	2.41	2.68
1154	8.41	57.94	24.80	57.90	369.8	2.60	2.78
1257	8.94	62.50	30.10	65.80	367.5	2.73	3.04
1409	12.01	68.18	34.10	106.50	249.1	2.01	2.22

061292 (Ki - 250/75N - 00/76.5N - 300/75N - Ki)

0812	19.40	73.44	35.00	82.40	290.6	2.37	3.09
0836	21.30	74.87	35.60	81.80	302.6	2.40	2.14
0851	22.06	74.40	35.80	81.90	325.4	2.39	^
0901	19.69	74.61	35.10	81.70	328.6	2.39	2.95
0917	16.18	74.88	34.50	81.60	347.1	2.41	2.62
0927	13.86	75.17	34.80	82.80	333.5	2.34	2.81
1115	16.17	76.83	37.00	86.30	339.9	2.44	^
1141	24.62	76.56	39.30	85.20	319.3	2.36	2.06
1155	28.84	76.14	39.90	85.10	310.7	2.44	2.59
1227	28.58	73.04	38.20	82.60	305.2	2.36	2.21
1240	26.80	72.29	38.60	84.00	308.2	2.31	2.51
1253	25.10	71.44	39.40	86.20	311.5	2.25	2.32
1328	21.16	69.31	38.60	81.30	301.6	0.00	2.11

081292 (Ki - Ma)

1054	12.99	65.61	23.70	48.40	355.7	2.19	1.79
1118	10.18	64.54	24.80	41.00	313.9	1.87	1.70
1213	5.23	61.92	22.30	34.40	276.0	1.56	0.73
1315	5.78	58.44	20.40	41.80	302.8	1.66	1.04

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

2. KAMPAGNE

270193 (Ki - Ma)

0831	8.57	50.17	25.60	49.10	248.3	1.25	0.11
0851	8.02	51.26	24.90	46.40	273.9	1.34	0.24
0931	7.93	53.17	23.00	47.60	330.1	1.50	0.51
1012	9.44	55.93	23.70	69.10	348.5	1.89	1.68
1034	11.06	56.87	27.50	77.90	388.4	2.33	1.89
1052	12.42	57.84	31.20	91.30	392.2	2.51	1.72
1202	16.26	60.76	48.30	119.40	405.8	3.55	1.65
1219	16.47	61.81	51.20	120.70	409.1	3.68	1.14
1236	16.75	62.82	53.40	123.20	397.7	3.37	1.27
1253	16.96	63.79	54.50	126.50	400.2	3.30	0.74

310193 (Ki - 300/75N - 180/70.5N - 300/75N - Ki)

1103	25.16	73.02	30.10	88.70	393.3	2.83	3.05
1129	26.66	73.87	31.30	89.30	379.4	2.77	3.57
1159	33.14	73.86	35.80	110.20	397.9	2.89	2.99
1223	30.15	71.88	31.60	96.20	391.8	2.88	2.88
1248	25.98	71.18	26.90	82.40	392.4	2.82	3.03
1309	22.72	70.56	25.50	77.70	384.7	2.76	3.37
1353	19.42	71.93	25.90	89.80	399.3	2.94	4.09
1450	26.76	74.18	31.40	93.60	393.1	2.90	4.34
1510	33.25	74.34	35.70	111.70	388.8	2.82	4.16
1525	33.04	73.29	36.10	116.10	385.2	2.83	3.95
1543	29.92	71.85	30.10	98.70	404.4	2.85	4.23
1602	27.24	71.16	26.40	87.10	386.8	2.81	3.76
1621	24.50	70.37	24.70	77.60	392.1	2.80	3.69
1640	22.00	69.53	23.20	66.80	405.9	2.73	3.43

020293 (Ki - 90/60N - 200/72N - Ki)

1302	21.84	65.27	14.80	46.20	237.7	1.11	0.64
1359	17.58	62.32	19.20	47.80	274.2	1.27	0.00
1420	16.48	61.50	19.70	46.00	265.5	1.20	0.03
1440	15.41	60.39	18.00	39.80	265.4	1.17	0.02
1525	11.32	58.62	18.90	37.20	257.8	1.17	0.04
1549	8.59	60.34	20.10	30.20	256.2	1.12	0.07
1655	9.55	65.11	21.20	33.90	386.5	1.95	2.53
1715	10.74	66.48	24.50	55.00	370.5	1.85	2.04
1741	12.48	68.37	26.50	69.00	359.8	1.84	1.99
1801	14.57	69.86	25.70	69.60	400.0	2.02	2.87
1820	16.42	71.50	24.20	75.90	445.5	2.23	3.46
1842	21.99	71.14	20.30	76.90	417.5	2.06	2.83

050293 (Ki - Ma)

0058	14.28	64.01	30.70	106.40	366.1	2.25	2.76
0151	12.38	61.48	29.40	114.70	373.0	2.22	3.05
0417	9.85	52.37	23.00	42.90	279.0	1.38	1.11
0535	6.35	48.59	20.50	42.40	272.6	1.27	1.45
0606	7.70	49.32	20.20	41.30	261.9	1.26	1.49

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

3. KAMPAGNE

050393 (Ma - Ki)

1319	8.56	58.71	30.90	103.70	303.7	1.55	3.13
1422	8.65	60.10	34.70	112.20	333.0	1.92	4.04
1510	9.18	64.15	46.60	105.20	337.5	2.00	4.22
1530	9.91	65.44	50.50	113.50	331.2	2.08	4.57
1620	14.11	68.60	57.00	132.70	332.5	2.14	4.77

070393 (Ki - 300/74N - 8W/78N - Ki)

0432	21.34	72.45	52.50	117.40	383.5	2.36	4.54
0447	22.48	72.92	53.10	118.10	410.6	2.36	4.78
0504	25.74	74.11	55.40	121.40	396.8	2.40	5.39
0521	27.15	73.39	51.80	113.80	374.9	2.31	4.50
0547	22.34	74.02	55.00	120.20	403.1	2.45	4.83
0602	20.91	74.30	54.20	117.50	424.9	2.42	4.49

080393 (Ki - Ma)

0905	12.32	51.13	48.20	114.00	284.0	1.35	2.43
------	-------	-------	-------	--------	-------	------	------

090393 (Ma - 50/46N - 180/41N - 220/41N)

1146	6.44	46.62	34.80	81.30	315.2	1.49	2.54
1251	10.21	45.19	42.20	104.00	338.4	1.55	2.75
1317	12.41	44.70	44.60	108.90	335.2	1.59	2.86
1419	17.58	42.05	41.10	98.70	337.0	1.52	3.27

100393 (220/41N - 250/41N - 2W/37N - 16W/28N)

0459	22.10	41.05	43.40	103.10	369.2	1.81	4.30
0513	23.36	41.35	40.90	93.80	383.7	1.86	3.88
0534	25.08	41.64	42.10	90.10	372.9	1.83	4.57
0620	22.70	39.50	47.40	111.70	402.3	1.65	3.83
0653	18.87	39.06	45.70	110.40	376.8	1.71	3.69
0713	17.40	39.90	43.10	102.10	384.5	1.74	4.44
0733	16.40	39.85	41.40	96.80	366.7	1.69	3.87
0754	14.50	39.65	40.40	93.90	363.8	1.72	3.97
0847	9.86	39.87	29.40	77.80	393.4	1.89	3.83
0905	8.13	39.67	27.90	74.20	394.3	1.87	3.57
0923	6.57	39.38	30.20	73.30	383.8	1.76	3.27
1238	-2.80	36.90	25.20	45.30	319.9	1.20	0.15

120393 (16W/28N - Ma)

1315	-4.64	39.53	20.20	33.40	353.0	1.48	0.58
1333	-4.15	40.98	20.60	34.70	371.6	1.66	1.02
1412	-2.05	43.34	21.50	37.80	350.3	1.40	0.97
1436	-0.05	44.45	20.80	38.30	356.8	1.50	0.83
1546	4.13	47.58	21.70	38.40	311.4	1.51	0.90
1636	9.60	49.44	19.80	43.00	333.0	1.59	1.30

Zeit(HHMM) Laenge Breite PV475 PV550 03/DU HN03/E16 CLON02/E15

4. KAMPAGNE

240393 (Ma - Ki)

1253	7.86	53.69	22.90	45.90	356.3	1.85	0.78
1318	7.16	55.02	23.80	46.90	371.8	1.94	1.68
1333	6.52	55.31	24.50	46.60	361.4	1.94	1.78
1407	4.10	56.54	24.20	41.10	375.8	1.92	1.27
1611	0.36	62.41	24.50	44.30	431.4	2.16	3.22
1628	1.23	63.23	23.30	43.70	447.4	2.25	3.04
1703	3.40	65.14	18.90	40.50	470.9	2.31	3.27
1723	5.57	66.13	18.90	40.90	449.0	2.19	3.40
1739	7.50	66.65	20.10	43.10	469.7	2.22	3.10
1817	14.20	68.11	24.10	39.30	438.0	2.19	3.39

250393 (Ki - 220/82N - Ki)

1555	18.66	72.59	33.00	44.00	429.7	2.53	5.44
1615	19.88	73.96	34.60	49.20	416.2	2.44	5.49
1635	21.54	75.29	36.60	54.60	402.4	2.38	5.45
1713	24.49	77.37	42.80	66.40	410.9	2.35	6.21
1738	25.65	78.60	45.20	71.50	426.8	2.28	5.91
1759	24.75	79.95	46.60	78.90	431.1	2.25	5.72
1838	19.47	80.74	47.50	90.00	432.3	2.23	6.15
1856	13.60	81.02	48.60	98.60	426.2	2.18	5.64
1913	7.79	81.10	49.30	103.80	415.3	2.19	6.16
1931	10.31	81.11	49.00	102.10	425.6	2.12	5.74
1953	12.59	79.83	52.00	102.80	423.9	2.05	6.06
2017	14.85	77.99	53.10	93.70	436.9	2.14	5.44
2059	17.78	74.81	39.50	61.70	447.9	2.19	5.43
2209	22.28	68.93	23.10	40.90	449.4	2.35	3.40

280393 (Ki - 300/82N - Ki)

1626	23.14	77.62	34.80	87.20	318.8	1.78	3.35
1722	25.17	80.70	39.60	86.20	327.2	2.05	6.15
1831	33.87	78.62	39.60	97.80	345.6	1.91	4.04
1908	28.86	76.65	32.20	85.90	350.3	1.90	2.68
1956	22.39	75.04	27.80	66.10	336.6	1.68	1.57
2012	20.55	74.49	26.00	59.20	353.8	1.67	2.25

290393 (Ki - Ma)

1435	11.71	58.53	21.00	40.70	406.6	1.88	0.27
1559	11.28	53.22	21.70	42.40	389.4	1.88	0.63
1620	11.24	51.71	23.20	44.10	391.1	1.87	0.30

Abkürzungen, Funktionen und Symbole

Abkürzungen:

AAOE	Airborne Antarctic Ozone Experiment
AASE	Airborne Arctic Stratospheric Expedition
CHEOPS	Chemistry of Ozone in the Polar Stratosphere
DLR	Deutsche Gesellschaft für Luft- und Raumfahrt
DMI	Danisch Meteorological Institute
DOAS	Differential Optical Absorption Spectroscopy
DOS	Degree of Subsidence (Faktor des Absinkens, Downwellingfaktor)
EASOE	European Arctic Stratospheric Ozone Experiment
ECMWF	European Centre for Medium-range Weather Forecasts
FASCOD	Fast Atmospheric Signature Code
GMT	Greenwich Mean Time
HIS	High-Resolution Interferometer Sounder
IFG	Interferogramm
IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung
LIDAR	LIght Detection And Ranging
LOWTRAN	Low Transmission
MIPAS-FT	Michelson-Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung-Flugzeug Transall
NAT	Nitric Acid Trihydrate
NESR	Noise Equivalent Spectral Radiance
NILU	Norsk Institutt for Luftforskning
OPD	Optical Path Difference
PSC	Polar Stratospheric Clouds
PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
PV	Potentielle Vorticity
RAT	Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles
RMS	Root of Mean Squares, Wurzel aus der mittleren quadratischen Abweichung
SCAIS	Simulation Code for Atmospheric Infrared Spectra
SESAME	Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude Experiment
SG	Säulengehalt
VMR	Volume Mixing Ratio
ZPD	Zero Path Difference

Funktionen:

$\text{atan2}(im, re)$	Arcustangens mit Wertebereich $-\pi$ - π
$\text{COMB}_a(x)$	Diracsche Kammfunktion
FT	Fouriertransformation
$\circ\rightarrow$	Fouriertransformation
$J_m(x)$	Besselfunktion erster Gattung, m-ter Ordnung
$\text{RECT}(x)$	Rechteckfunktion: $\text{RECT}(x) = 1$ für $-0.5 \leq x \leq +0.5$ und $= 0$ sonst.
$\text{sinc}(x)$	$\sin(x)/x$
$\text{sinc}^2(x)$	$(\sin(x)/x)^2$

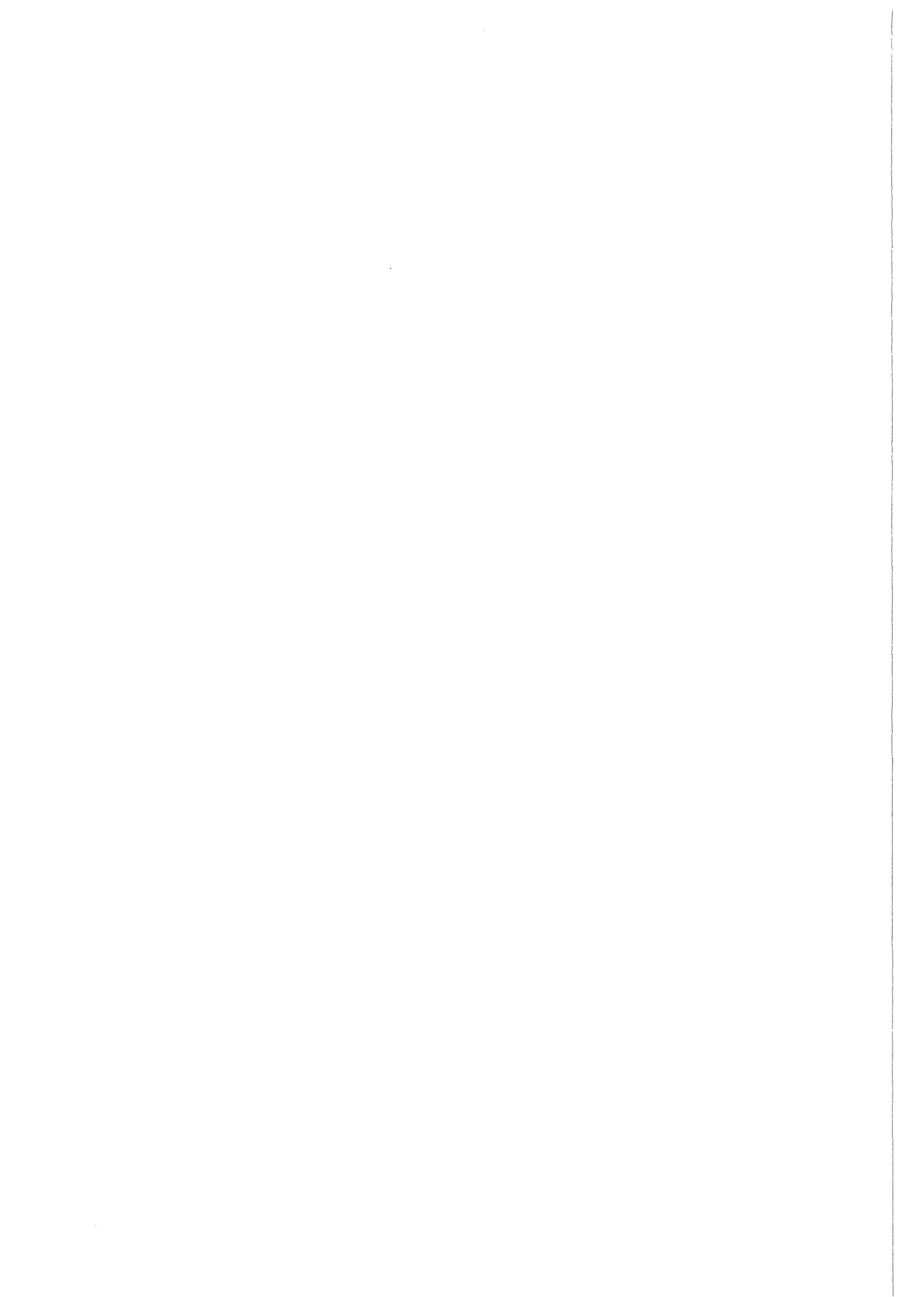
Lateinische Symbole

$B_k(\sigma)$	Planck-Funktion bei niedriger Schwarzkörpertemperatur
$B_w(\sigma)$	Planck-Funktion bei hoher Schwarzkörpertemperatur
$I(x)$	Interferogramm
$I_f(x)$	durch Geschwindigkeitsschwankungen gestörtes, i-tes IFG
$I_R(x)$	durch Rollwinkel gestörtes IFG
$I_{asym}(x)$	asymmetrisches IFG
$I_{sym}(x)$	symmetrisches IFG
$I_{sp}(x)$	durch Spikes gestörtes IFG
k'	Faktor der Staudruckkorrektur
K	Anzahl der gemittelten Interferogramme
L	maximale Weglängendifferenz der Teilstrahlen
$L(\sigma)$	absolute Strahlung aus der Atmosphäre
$L_0(\sigma)$	absolute Eigenstrahlung des Geräts
P_s	statischer Druck
P_{skor}	korrigierter statischer Druck
P_{Stau}	Staudruck
P_t	Gesamtdruck
$r(\sigma)$	Gerätefunktion
$\bar{r}(\sigma)$	mittlere Gerätefunktion
$r_s(\sigma)$	Gerätefunktion bei einer Schwarzkörpermessung
$r_A(\sigma)$	Gerätefunktion bei einer Atmosphärenmessung
$S(\sigma)$	Spektrum
$S_A(\sigma)$	Strahlung von Außen
$S_b(\sigma)$	Strahlung von der Eingangsoptik
$S_G(\sigma)$	gesamte Eigenstrahlung des Spektrometers
$S_i(\sigma)$	Imaginärteil des komplexen Spektrums
$S_k(\sigma)$	relatives Schwarzkörperspektrum bei niedriger Temperatur
$S_{sp}(\sigma)$	durch Spikes gestörtes Spektrum
$S_{sp}^K(\sigma)$	durch Spikes gestörtes Spektrum nach K Koadditionen
$S_j(\sigma)$	rein imaginärer Anteil der Gerätestrahlung
$S_u(\sigma)$	Strahlung von der Detektoroptik
$S_w(\sigma)$	relatives Schwarzkörperspektrum bei hoher Temperatur
$S_0(\sigma)$	reeller Teil der Eigenstrahlung
V	Scangeschwindigkeit
x	Weglängendifferenz der Teilstrahlen

Griechische Symbole

α	Absorptionsquerschnitt
χ	Elevationswinkel der Sichtlinie
χ_e	am Gerät eingestellter Elevationswinkel
χ_G	Winkel zwischen He-Ne-Laser und Schwerpunkt des Gesichtsfelds
χ_R	Rollwinkel der Transall
χ_0	Unterschied zwischen Navigationsgerät und gemessenem Elevationswinkel bei $\chi_e = 0$
γ	Linienbreite

Δt	Laufzeitunterschied zwischen Referenz- und Infrarotzweig
ΔV	Schwankung der Vorschubgeschwindigkeit
$\varepsilon(\sigma)$	Emissionsgrad
Y	Phasendifferenz zwischen Geschwindigkeitsschwankung und ZPD
Y_i	Phasendifferenz zwischen Geschwindigkeitsschwankung und ZPD für das i-te IFG
ν_R	Frequenz der Rollwinkelbewegung des Flugzeugs
$\phi(\sigma)$	Phase des komplexen Spektrums
$\phi_d(\sigma_i)$	differentielle Phase
$\phi_r(\sigma)$	Phasenfehler
Σ	Linienintensität
σ	Wellenzahl
σ_0	zentrale Wellenzahl einer bestimmten Spektrallinie
σ_β	Wellenzahl der Geschwindigkeitsstörung
σ_R	Abstand des durch Rollwinkelvariationen hervorgerufenen Geisterspektrums vom Hauptspektrum
θ	Potentielle Temperatur
θ_R	Phasendifferenz zwischen Rollwinkelvariation und ZPD



Adrian, G.P., T. Blumenstock, H. Fischer, L. Gerhardt, T. Gulde, H. Oelhaf, P. Thomas, O. Trieschmann, 'Column amounts of trace gases derived from ground-based measurements with MIPAS during CHEOPS III', *Geophys. Res. Lett.*, 18, No. 4, 783-786, 1991.

Adrian, G.P., T. v. Clarmann, H. Fischer, H. Oelhaf, 'Trace gas measurements with the ground-based MIPAS experiment during the arctic winters 1990 to 1992', *IRS '92: Current Problems in Atmospheric Radiation*, Hrsg. S. Keevallik und O. Kärner, Deepak Publishing, Hampton Virginia, 359-362, 1993.

Adrian, G.P., M. Baumann, T. Blumenstock, H. Fischer, A. Friedle, L. Gerhardt, G. Maucher, H. Oelhaf, W. Scheuerpflug, P. Thomas, O. Trieschmann, A. Wegner, 'First results of ground-based FTIR measurements of atmospheric trace gases in north Sweden and Greenland during EASOE', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1343-1346, 1994.

Arnold F., G. Knop, 'Stratospheric nitric acid vapour measurements in the cold Arctic vortex: implications for nitric acid condensation', *Nature*, 338, 746-749, 1989.

Arnold F., H. Schlager, J. Hoffmann, P. Metzinger, S. Spreng, 'Evidence for stratospheric nitric acid condensation from balloon and rocket measurements in the Arctic', *Nature*, 342, 493-497, 1989.

Ballard, J., W.B. Johnston, M.R. Gunson, 'Absolute Absorption Coefficients of ClONO₂ Infrared Bands at Stratospheric Temperatures', *J. Geophys. Res.*, 93, No. D2, 1659-1665, 1988.

Bauer, R., A. Engel, H. Franken, E. Klein, G. Kulesa, C. Schiller, U. Schmid, R. Borchers, J. Lee, 'Monitoring the vertical structure of the arctic polar vortex over northern scandinavia during EASOE: regular N₂O profile observations', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1211-1214, 1994.

Bell, W., N.A. Martin, T.D. Gardiner, N.R. Swann, P.T. Woods, P.F. Fogal, J.W. Waters, 'Column measurements of stratospheric trace species over Are, Sweden, in the winter of 1991-1992', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1347-1350, 1994.

Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, M. Höpfner, 'Airborne measurements during the European Arctic Stratospheric Experiment: column amounts of HNO₃ and O₃ derived from FTIR emission sounding', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1351-1354, 1994a.

Blom, C.E., H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, M. Höpfner, Ch. Piesch, 'Spatial and Temporal Variability of ClONO₂, HNO₃ and O₃ in the Arctic Winter 1992/93 as Obtained by Airborne Infrared Emission Spectroscopy', *J. Geophys. Res.*, im Druck, 1994b.

Braathen, G.O., NILU-Datenbank der EASOE-Kampagne, Oslo, 1992.

Chamberlain, 'The Principles of Interferometric Spectroscopy', Hrsg. G.W. Chantry und N.W.B. Stone, John Wiley & Sons, Chichester, 1979.

Champeney, 'Fourier Transforms and their Physical Application', Academic Press Inc., New York, 1973.

Chapman, S., 'A theory of upper atmospheric ozone', *Mem. Roy. Meteorol. Soc.*, 3, 103, 1930.

Charney, J.G., P.G. Drazin, Propagation of planetary-scale disturbances from the lower into the upper atmosphere', *J. Geophys. Res.*, 66, 83-109, 1961.

Chipperfield, M.P., J.A. Pyle, C.E. Blom, N. Glatthor, M. Höpfner, T. Gulde, Ch. Piesch, P. Simon, 'The Variability of ClONO₂ in the Arctic Polar Vortex: Comparison of Transall MIPAS Measurements and 3D Model Results', *J. Geophys. Res.*, im Druck, 1994.

v. **Clarmann, T.**, 'Untersuchungen zur Strahldichteberechnungen mit Linie-für-Linie-Computerprogrammen', Diplomarbeit für Meteorologie, Universität München, Meteorologisches Institut, 1986.

v. **Clarmann, T.**, 'Die Bestimmung von Mischungsverhältnissen stratosphärischer Spurengase aus Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich', Dissertation, KfK-Bericht 4698, 1990.

v. **Clarmann, T., H. Oelhaf, H. Fischer**, 'Retrieval of atmospheric O₃, HNO₃, CFC-11, and CFC-12 profiles from MIPAS-B-89 limb emission spectra', *Appl. Opt.*, 32, No. 33, 6808-6817, 1993.

v. **Clarmann, T., H. Fischer, F. Friedl-Vallon, A. Linden, H. Oelhaf, C. Piesch, M. Seefeldner**, 'Retrieval of Stratospheric O₃, HNO₃ and ClONO₂ Profiles From 1992 MIPAS-B Limb Emission Spectra: Method, Results, and Error Analysis', *J. Geophys. Res.* 98, No. D11, 20495-20506, 1993.

v. **Clarmann**, 'RAT: A Computational Tool for Retrieval of Atmospheric Trace Gas Profiles from Infrared Spectra', KfK-Bericht 5423, 1994.

Clough, S.A., F.X. Kneizys, E.P. Shettle, G.P. Anderson, 'Atmospheric Radiance and Transmittance: FASCOD2', Sixth Conference on Atmospheric Radiation, May 1986, Williamsburg Va., 1986.

Coffey, M.T., W.G. Mankin and A. Goldman, 'Simultaneous Spectroscopic Determination of the Latitudinal, Seasonal, and Diurnal Variability of Stratospheric N₂O, NO, NO₂, and HNO₃', *J. Geophys. Res.*, 86, No. C8, 7331-7341, 1981.

Coffey, M.T., W.G. Mankin and A. Goldman, 'Airborne Measurements of Stratospheric Constituents over Antarctica in the Austral Spring, 1987; 2. Halogen and Nitrogen Trace Gases', *J. Geophys. Res.*, 94, No. D14, 16597-16613, 1989.

Crutzen, P.J., 'Ozone production rates in an oxygen, hydrogen-nitrogen oxide atmosphere', *J. Geophys. Res.*, 76, 7311-7327, 1971.

Crutzen, P.J., F. Arnold, 'Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for the springtime 'ozone hole'', *Nature*, 324, 651-655, 1986.

Davidson, J.A., C.A. Cantrell, R.E. Shetter, A.H. McDaniel, J.G. Calvert, 'Absolute infrared absorption cross sections for ClONO₂ at 296 and 223 K', *J. Geophys. Res.*, 92, No. D9, 10921-10925, 1987.

Delbouille, L., G. Roland, 'Study of the effect of intensity fluctuations and transmission quality on spectrum retrievals in MIPAS', Final Report, ESA Contract AOP/OL/RB/309203, 1992.

Echle, G., H. Oelhaf, A. Wegner, 'Measurements of Atmospheric Parameters with MIPAS', Final Report, ESA Contract 9597/91/NL/SF, 1992.

Echle, G., private Mitteilung, 1993, 1994.

Ertel, H., 'Ein neuer hydrodynamischer Wirbelsatz', *Met. Z.*, 59, 271-281, 1942.

Fahey, D.W., S.R. Kawa, E.L. Woodbridge, P. Tin, J.C. Wilson, H.H. Jonsson, J.E. Dye, D. Baumgardner, S. Borrmann, D.W. Toohey, L.M. Avallone, M.H. Proffitt, J. Margitan, M. Loewenstein, J.R. Podolske, R.J. Salawitch, S.C. Wofsy, M.K.W. Ko, D.E. Anderson, M.R.

- Schoeberl, K.R. Chan**, 'In situ measurements constraining the role of sulphate aerosols in mid-latitude ozone depletion', *Nature*, 363, 509-514, 1993.
- Farman, J.C., B.G. Gardiner, J.D. Shanklin**, 'Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction', *Nature*, 315, 207 - 210, 1985.
- Farmer, C.B., G.C. Toon, P.W. Schaper, J.-F. Blavier and L.L. Lowes**, 'Stratospheric trace gases in the spring 1986 Antarctic atmosphere', *Nature*, 329, 126-130, 1987.
- Fast, H., C.T. McElroy, D.I. Wardle, J.M. Rosen**, 'Wintertime measurements of stratospheric HNO_3 as part of the ISY polar ozone project', *Geophys. Res. Lett.*, 20, No. 22, 2547-2550, 1993.
- Fergg, F., R. Schmid**, 'Bericht zum Stand der Auswertesoftware MIPAS-FT', AP3 Demonstration und Klassifikation, 1992.
- Fischer H., F. Fergg, H. Oelhaf, D. Rabus, W. Völker**, 'Simultaneous Detection of Trace Constituents in the Middle Atmosphere with a Small He-Cooled, High Resolution Michelson Interferometer (MIPAS)', *Beitr. Phys. Atmosph.*, Vol. 56, No. 2, 260-275, 1983.
- Fischer H.**, 'Remote Sensing of Atmospheric Trace Constituents using Fourier Transform Spectroscopy', *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, 96, 306-314, 1992.
- Flaud, J.-M.**, 'Review of spectroscopic data for MIPAS', Final Report, ESA Contract AOP/OL/RB/309204, Europ. Space Agency Publications Division, Noordwijk, The Netherlands, 1992.
- Forman, M. L., W. H. Steel, G. A. Vanasse**, 'Correction of Asymmetric Interferograms Obtained in Fourier Spectroscopy', *J. Opt. Soc. Am.*, 56, 59-63, 1966.
- Friedle, A.**, 'Fehleranalyse der Interferogrammaufnahme des Fourierspektrometers MIPAS-LM', Diplomarbeit im Fach Physik, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1993.
- Geller, M.A.**, 'Tropospheric forcing of the middle atmosphere', *The Role of the Stratosphere in Global Change*, NATO ASI Series, I 8, Hrsg.: M.-L. Chanin, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 29-45, 1993.
- Gille, J.C., J.M. Russell III, P.L. Bailey, E.E. Remsberg, L.L. Gordley, W.F.J. Evans, H. Fischer, B.W. Gandrud, A. Girard, J.E. Harries, S.A. Beck**, 'Accuracy and Precision of the Nitric Acid Concentrations Determined by the Limb Infrared Monitor of the Stratosphere Experiment on NIMBUS 7', *J. Geophys. Res.*, 89, No. D4, 5179-5190, 1984.
- Girard, A., J. Besson, R. Giraudet, L. Geramont**, 'Correlated Seasonal and Climatic Variations of Trace Constituents in the Stratosphere', *Pure Appl. Geophys.*, 117, 381-394, 1979.
- Glatthor, N.**, private Mitteilung, 1992-1994.
- Gulde, T., O. Trieschmann**, 'Systemanalyse und Weiterentwicklung eines Doppelpendel-Fourierspektrometers zur Messung atmosphärischer Spurengase', Diplomarbeit im Fach Physik, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1989.
- Gulde, T.**, private Mitteilung, 1992-1994.
- Hampson, J.**, 'Photochemical behavior of the ozone layer', *Canadian Armament Research and Development Establishment (CARDE) Technical Note 1627*, 11-18, 1964.
- Hanson, D.R., A.R. Ravishankara**, 'The reaction probabilities of ClONO_2 and N_2O_5 on polar stratospheric cloud materials', *J. Geophys. Res.* 96, No. D3, 5081-5090, 1991a.

- Hanson, D.R., A.R. Ravishankara, 'The reaction probabilities of ClONO₂ and N₂O₅ on 40 to 75% sulfuric acid solutions', *J. Geophys. Res.* 96, 17307-17314, 1991b.
- Hausamann, D., J.-M. Flaud, 'ISORAC (Infrared Spectroscopy of Ozone and Related Atmospheric Constituents)', Final Report, May 18th, 1993.
- Herman, J.R., D. Larko, 'Low ozone amounts during 1992-1993 from Nimbus 7 and Meteor 3 total ozone mapping spectrometers', *J. Geophys. Res.*, 99, No. D2, 3483-3496, 1994.
- Hofmann, D.J., S.J. Oltmans, W.D. Komhyr, J.M. Harris, J.A. Lathrop, A.O. Langford, T. Deshler, B.J. Johnson, A. Torres, W.A. Matthews, 'Ozone loss in the lower stratosphere over the United States in 1992- 1993: Evidence for heterogeneous chemistry on the Pinatubo aerosol', *Geophys. Res. Lett.*, 21, D1, 65-68, 1994.
- Hoskins, B.J., M.E. McIntyre, A.W. Robertson, 'On the use and significance of isentropic potential vorticity maps', *Quart. J. R. Met. Soc.*, 111, 877-946, 1985.
- Karcher, F., M. Amodei, G. Armand, C. Besson, B. Dufour, G. Froment and J.P. Meyer, 'Simultaneous measurements of HNO₃, NO₂, HCl, O₃, N₂O, CH₄, H₂O, CO and their latitudinal variations as deduced from air-borne infrared spectrometry', *Ann. Geophysicae*, 6, No. 4, 425-444, 1988.
- Kneizys, F. X., E. P. Shettle, W. O. Gallery, J. H. Chetwynd, L. W. Abreu, J. E. A. Selby, S. A. Clough, R. W. Fenn, 'Atmospheric Transmittance/Radiance: Computer Code LOWTRAN 6', AFGL-TR-83-0187, (NTIS AD A137796), 1983.
- LeMarshall, 'An Intercomparison of temperature and moisture fields retrieved from TIROS operational vertical sounder data', The Technical Proceedings of the Second International TOVS Study Conference, Iglis, Austria, February 18 - 22, 1985, Hrsg.: W. P. Menzel, 106-131, 1985.
- Mankin, W.G., M.T. Coffey and A. Goldman, 'Airborne Measurements of Stratospheric Constituents over the Arctic in the winter of 1989', *Geophys. Res. Lett.*, 17, No. 4, 473-476, 1990.
- Massie, S.T., A. Goldman, 'Absorption Parameters of very dense molecular Spektra for the HITRAN Compilation', *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 48, No. 5/6, 713-719, 1992.
- McIntyre, M.E., T.N. Palmer, 'Breaking planetary waves in the stratosphere', *Nature*, 305, 593-600, 1983.
- Maucher, G., 'Untersuchung zur Addition von Interferogrammen bei Fourierspektrometern', Diplomarbeit im Fach Physik, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1992.
- Müller, R., T. Peter, P. J. Crutzen, H. Oelhaf, G. Adrian, T. v. Clarmann, A. Wegner, U. Schmidt, D. Lary Chlorine chemistry and the potential for ozone depletion in the arctic stratosphere in the winter of 1991/92', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1427-1430, 1994.
- Murcray, D.G., T.G. Kyle, F.H. Murcray, W.J. Williams, 'Nitric Acid and Nitric Oxide in the Lower Stratosphere', *Nature*, 218, 78-79, 1968.
- Murcray, D.G., D.B. Barker, J.N. Brooks, A. Goldman, W.J. Williams, 'Seasonal and latitudinal variation of the stratospheric concentration of HNO₃', *Geophys. Res. Lett.*, 2, No.6, 223-225, 1975.
- Murcray, D.G., A. Goldman, F.H. Murcray, F.J. Murcray, W.J. Williams, 'Stratospheric distribution of ClONO₂', *Geophys. Res. Lett.*, 6, No.11, 857-859, 1979.

Murcray, F.J., F.H. Murcray, A. Goldman, D.G. Murcray, 'Infrared Measurements of Several Nitrogen Species Above the South Pole in December 1980 and November-December 1986', *J. Geophys. Res.*, 92, No.D11,13373-13376, 1987.

Murcray, F.J., A. Goldman, R. Blatherwick, 'HNO₃ and HCl amounts over McMurdo during the spring of 1987', *J. Geophys. Res.*, 94, No.D14,16615-16618, 1989.

Murcray, F.J., J.R. Starkey, W.J. Williams, W.A. Matthews, U. Schmidt, P. Aïmedieu, C. Camy-Peyret, 'HNO₃ profiles obtained during the EASOE campaign', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1223-1226, 1994.

Naujokat, B., K. Petzoldt, K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner, R.-C. Wohlfart, 'The stratospheric winter 1991/92: The winter of the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment', *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 68/92, SO 18/92, 1992.

Naujokat, B., K. Petzoldt, K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner, R.-C. Wohlfart, 'The stratospheric winter 1992/93: A cold winter with a minor warming and a late final warming', *Beilage zur Berliner Wetterkarte*, 89/93, SO 21/93, 1993.

Notholt, J., R. Neuber, O. Schrems, T.v. Clarmann, 'Stratospheric trace gas concentrations in the arctic polar night derived by FTIR-spectroscopy with the moon as IR light source', *Geophys. Res. Lett.*, 20, No.19, 2059-2062, 1993.

Notholt, J., 'The Moon as a light source for FTIR measurements of stratospheric trace gases during the polar night: Application for HNO₃ in the Arctic', *J. Geophys. Res.*, 99, No.D2, 3607-3614, 1994.

Notholt, J., T. v. Clarmann, G.P. Adrian, O. Schrems, 'Ground-based FTIR measurements of ClONO₂ vertical columns amounts in the Arctic', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1359-1362, 1994.

Oelhaf, H., private Mitteilung, 1993.

Oelhaf, H., T.v. Clarmann, H. Fischer, F. Fiedl-Vallon, Ch. Fritzsche, A. Linden, Ch. Piesch, M. Seefeldner and W. Völker, 'Stratospheric ClONO₂ and HNO₃ profiles inside the Arctic vortex from MIPAS-B limb emission spectra obtained during EASOE', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1263-1266, 1994.

Pfeilsticker, K., C. E. Blom, R. Brandtjen, H. Fischer, N. Glatthor, A. Grendel, T. Gulde, M. Höpfner, D. Perner, Ch. Piesch, U. Platt, W. Renger, F. Runge, J. Sessler, M. Wirth, 'Aircraft-borne Detection of the Stratospheric Column Amounts of O₃, NO₂, OClO, ClONO₂, HNO₃ and Aerosols around the Arctic Vortex (79°N to 39°N) during Spring 1993', *J. Geophys. Res.*, *subm.*

Piesch, Ch., private Mitteilung, 1993, 1994.

Ramanathan, V., R.E. Dickinson, 'The role of stratospheric ozone in the zonal and seasonal radiative energy balance of the earth-troposphere system', *J. Atmos. Sci.*, 36, 1084-1104, 1979.

Redemann, E. 'Ein FORTRAN-Rechenprogramm zur Berechnung der atmosphärischen Transmission und Strahldichte', Ludwig-Maximilians-Universität München, Meteorologisches Institut, unveröffentlicht, 1984.

Revercomb, H. E., H. Buijs, H. B. Howell, D. D. LaPorte, W. L. Smith, and L. A. Sromovsky, 'Radiometric calibration of IR Fourier transform spectrometers: solution to a problem with the High-Resolution Interferometer Sounder', *Appl. Opt.*, 27, No. 15, 3210-3218, 1988.

Rinsland, C.P., A. Goldman, D.G. Murcray, F.J. Murcray, F.S. Bonomo, R.D. Blatherwick, V. Malathy Devi, M.A.H. Smith, P.L. Rinsland, 'Tentative Identification of the 780-cm⁻¹ ν_4 Band Q Branch of Chlorine Nitrate in High-Resolution Solar Absorption Spectra of the Stratosphere', *J. Geophys. Res.*, 90, No. D5, 7931-7943, 1985.

Rinsland, C.P., R. Zander, P. Demoulin, 'Ground-based infrared measurements of HNO₃ total column abundances: long-term trend and variability', *J. Geophys. Res.*, 96, No. D5, 9379-9389, 1991.

Rothman, L.S., R.R. Gamache, R.H. Tipping, C.P. Rinsland, M.A.H. Smith, D. Chris Benner, V. Malathy Devi, J.-M. Flaud, C. Camy-Peyret, A. Perrin, A. Goldman, S.T. Massie, L.R. Brown, R.A. Toth, 'The HITRAN Molecular Database: Editions of 1991 and 1992', *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 48, No. 5/6, 469-507, 1992.

Russell III, J.M., C.B. Farmer, C.P. Rinsland, R. Zander, L. Froidevaux, G.C. Toon, B. Gao, J. Shaw, M. Gunson, 'Measurements of Odd Nitrogen Compounds in the Stratosphere by the ATMOS Experiment on Spacelab 3', *J. Geophys. Res.*, 93, No. D2, 1718-1736, 1988.

Schlipper, R., 'Analyse der thermischen Eigenemission der optischen Komponenten des MIPAS-Flugzeugexperimentes', Diplomarbeit im Fach Physik, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1994.

Schmidt, U., R. Bauer, A. Engel, R. Borchers, J. Lee, 'The variation of available chlorine, ClO₂, in the Arctic polar vortex during EASOE', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1215-1218, 1994.

Scott, N. A., N. Husson, A. Chedin, J. F. Flobert, B. Rochard, J. Quere, 'Comparisons Between Physically Retrieved Temperatures from NOAA-7 and NOAA-8 and Conventional Analyses or Radiosonde Data', Second Conference on Satellite Meteorology/Remote Sensing and Applications, May 13-16, Williamsburg, Va., published by the American Meteorological Society, Boston, Mass., 126-183, 1984.

Schoeberl, M.R., D.L. Hartmann, 'The dynamics of the stratospheric polar vortex and its relation to springtime ozone depletions', *Science*, 251, 46-52, 1991.

Schoeberl, M.R., L.R. Lait, P.A. Newman, J.E. Rosenfield, 'The structure of the polar vortex', *J. Geophys. Res.*, 97, No. D8, 7859-7882, 1992.

Solomon, S., R.W. Sanders, R.R. Garcia, J.G. Keys, 'Increased chlorine dioxide over Antarctica caused by volcanic aerosols from Mount Pinatubo', *Nature*, 363, 245-248, 1993.

Spreng, S., F. Arnold, 'Balloon-borne mass spectrometer measurements of HNO₃ and HCN in the winter Arctic stratosphere - Evidence for HNO₃-processing by aerosols', *Geophys. Res. Lett.*, 21, No. 13, 1251-1254, 1994.

Stiller, G., private Mitteilung, 1994.

Stolarski, R.S., R.J. Cicerone, 'Stratospheric chlorine: A possible sink for ozone', *Can. J. Chem.*, 52, 1610-1615, 1974.

Stolarski, R.S., P. Bloomfield, R.D. McPeters, J.R. Herman, 'Total ozone trends deduced from Nimbus 7 TOMS data', *Geophys. Res. Lett.*, 18, 1015-1018, 1991.

Tolbert, M.A., M.J. Rossi, R. Malhotra, D.M. Golden, 'Reaction of chlorine nitrate with hydrogen chloride and water at Antarctic stratospheric temperatures', *Science*, 238, 1258-1260, 1987.

- Tolbert, M.A., M.J. Rossi, D.M. Golden**, 'Antarctic ozone depletion chemistry: Reactions of N_2O_5 with H_2O and HCl on ice surfaces', *Science*, 240, 1018-1021, 1988a.
- Tolbert, M.A., M.J. Rossi, D.M. Golden**, 'Heterogeneous interactions of chlorine nitrate, hydrogen chloride, and nitric acid with sulfuric acid surfaces at stratospheric temperatures', *Geophys. Res. Lett.*, 15, 847-850, 1988b.
- Toon, O.B., P. Hamill, R.P. Turco, J. Pinto**, 'Condensation of HNO_3 and HCl in the winter polar stratospheres', *Geophys. Res. Lett.*, 13, 1284-1287, 1986.
- Toon, G.C., C.B. Farmer, L.L. Lowes, P.W. Schaper, J.-F. Blavier and R.H. Norton**, 'Infrared Aircraft Measurements of Stratospheric Composition over Antarctica during September 1987', *J. Geophys. Res.*, 94, No. D14, 16571-16596, 1989.
- Toon, G.C., C.B. Farmer, P.W. Schaper, L.L. Lowes and R.H. Norton, M.R. Schoeberl, L.R. Lait and P.A. Newman**, 'Evidence for Subsidence in the 1989 Arctic Winter Stratosphere from Airborne Infrared Composition Measurements', *J. Geophys. Res.*, 97, No. D8, 7963-7970, 1992a.
- Toon, G.C., C.B. Farmer, P.W. Schaper, L.L. Lowes and R.H. Norton**, 'Composition Measurements of the 1989 Arctic Winter Stratosphere by Airborne Infrared Solar Absorption Spectroscopy', *J. Geophys. Res.*, 97, No. D8, 7939-7961, 1992b.
- Toon, G.C., J.-F. Blavier, J.N. Solario, J.T. Szeto**, 'Airborne Observations of the 1992 Arctic Winter Stratosphere by FTIR Solar Absorption Spectroscopy', *SPIE Vol. 1715 Optical Methods in Atmospheric Chemistry*, 457-467, 1992c.
- Toon, G.C., J.-F. Blavier, J.N. Solario, J.T. Szeto**, 'Airborne observations of the composition of the 1992 tropical stratosphere by FTIR solar absorption spectrometry', *Geophys. Res. Lett.*, 20, No. 22, 2503-2506, 1993.
- Toumi R., R.L. Jones, J.A. Pyle**, 'Stratospheric ozone depletion by $ClONO_2$ photolysis', *Nature*, 365, 37-39, 1993.
- Waters, J.W., L. Froidevaux, W.G. Read, G.L. Manney, L.S. Elson, D.A. Flower, R.F. Jarnot, R.S. Harwood**, 'Stratospheric ClO and ozone from the Microwave Limb Sounder on the Upper Atmosphere Research Satellite', *Nature*, 362, 597-602, 1993.
- Weddigen, C.**, private Mitteilung, 1992.
- Weddigen, C., C. E. Blom, and M. Höpfner**, 'Phase corrections for the emission sounder MIPAS-FT', *Appl. Opt.*, 32, No. 24, 4586-4589, 1993.
- Wegner, A.**, 'Der Einfluß des nichtinfinitesimalen Gesichtsfeldes auf die Auswertung von spektral hochaufgelösten Horizontsondierungsspektren', Diplomarbeit in Fach Meteorologie, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1991.
- Wetzel, G.**, 'Eignung der Infrarotspektroskopie zur Fernerkundung troposphärischer Spurengase', Dissertation, KfK-Bericht 5183, 1993.
- Williams, W.J., J.J. Kusters, D.G. Murcray**, 'Nitric acid column densities over antarctica', *J. Geophys. Res.*, 87, No. 11, 8976-8980, 1982.
- Wofsy, S.C., M.B. McElroy, Y.L. Yung**, 'The chemistry of atmospheric bromine', *Geophys. Res. Lett.*, 2, 215-218, 1975.
- Tung, K.K., H. Yang**, 'Dynamic Variability of Column Ozone', *J. Geophys. Res.*, 93, No. D9, 11123-11128, 1988.

Zachor, A.S., 'Drive nonlinearities: their effects in Fourier spectroscopy', Appl. Opt., 16, No. 5, 1412-1424, 1977.

Zander, R., C.P. Rinsland, C.B. Farmer, L.R. Brown, R.H. Norton, 'Observation of several chlorine nitrate (ClONO₂) bands in stratospheric infrared spectra', Geophys. Res. Lett., 13, No. 8, 757-760, 1986.

Zander, R., P. Demoulin, 'Spectroscopic evidence for the presence of the ν_4 -Q branch of chlorine nitrate (ClONO₂) in ground-based infrared solar spectra, J. Atmos. Chem., 6, 191-200, 1988.

Zander, R., M.R. Gunson, J.C. Foster, C.P. Rinsland, J. Namkung, 'Stratospheric ClONO₂, HCl, and HF Concentration Profiles Derived From Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy Experiment Spacelab 3 Observations: An Update', J. Geophys. Res., 95, No. D12, 20519-20525, 1990.

Zander, R., E. Mahieu, Ph. Demoulin, 'Monitoring of Stratospheric Changes at the Jungfraujoch Station by HR-IR Solar Observations in support of the NDSC', The Role of the Stratosphere in Global Change, NATO ASI Series, I 8, Hrsg.: M.-L. Chanin, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 29-45, 1993.