

Kapitel 4

Methoden zur Messung chemischen Ozonabbaus

Um den chemischen Ozonabbau in der Arktis trotz der im letzten Abschnitt geschilderten dynamischen Variabilität nachweisen zu können, müssen Verfahren verwendet werden, die es erlauben, chemische Einflüsse auf die Ozonkonzentration von Einflüssen durch die Dynamik der atmosphärischen Luftmassenbewegungen zu trennen. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über die bisher verwendeten Verfahren gegeben

4.1 Über den Polarwirbel gemitteltes Ozon

Wie in Abschnitt 3.3 geschildert, stellt der Polarwirbel eine gegenüber den umgebenden Luftmassen zu einem gewissen Grade isolierte Einheit dar. Bei Vernachlässigung des diabatischen Absinkens im Wirbel sollte demnach das über den Wirbel gemittelte Ozonmischungsverhältnis auf einer Isentropenfläche dynamisch verhältnismäßig wenig beeinflusst sein. Das diabatische Absinken führt jedoch, wie in Abschnitt 3.5 erläutert, normalerweise zu einem transportbedingten Ansteigen des mittleren Ozonmischungsverhältnisses auf Isentropenflächen. Wird daher stattdessen eine Abnahme des über den Wirbel gemittelten Ozonmischungsverhältnisses auf Isentropenflächen beobachtet, ist dies ein starkes Anzeichen für chemischen Ozonabbau.

Waters et al. [1993a] zeigte mit Daten des Microwave Limb Sounders (MLS), eines der Instrumente des Upper Atmosphere Research Satellite (UARS), während des Januars 1992 auf der 465 K Isentrope abnehmende Wirbelmittel von Ozon und interpretierte sie als Hinweis auf chemischen Ozonverlust.

Braathen et al. [1996] benutzte die Ozonsondendaten einiger arktischer Ozonsondenstationen, um die zeitliche Entwicklung des über den Wirbel gemittelten Ozonmischungsverhältnisses auf der 475 K Isentrope zu verfolgen. Braathen et al. [1996] analysierten die arktischen Winter seit 1988/89 und zeigten eine ausgeprägte Variabilität von Winter zu Winter, wobei eine Korrelation zwischen dem Auftreten von PSC -Temperaturen in einem Winter und Hinweisen auf chemischen Ozonverlust gefunden wurde. Die gesamte Ozonabnahme über den jeweiligen Winter wurde quantifiziert, wobei angemerkt wurde, daß der chemische Ozonverlust von diesen Abnahmen unterschätzt wird, da diabatisches Absinken vernachlässigt wurde.

Um den chemischen Ozonabbau mit der Mittelung über den Wirbel zu quantifizieren, muß der Einfluß des diabatischen Absinkens quantitativ abgeschätzt und berücksichtigt werden. Auch wenn dies geschieht, sind die Ergebnisse nur als Abschätzung zu verstehen, da der Einfluß von Austauschprozessen über den Wirbelrand nicht bekannt ist. Allgemein ist davon auszugehen, daß bei dynamisch ruhigeren Wintern die Ergebnisse dieser Methode den wahren Ozonabbau besser repräsentieren, als bei dynamisch gestörteren Wintern. Im nächsten Abschnitt wird eine Methode beschrieben, die diabatische Absinkbewegung zu berücksichtigen.

4.2 Verwendung von inerten Tracern

Inerte Tracer wurden in einigen Arbeiten eingesetzt, um dynamische Prozesse zu identifizieren, die Einfluß auf das Ozonmischungsverhältnis haben können. Dabei werden sowohl vertikale Bewegungen als auch seitliches Einströmen in den Wirbel mit Tracern untersucht.

4.2.1 N₂O als Tracer für die diabatische Zirkulation

Manney et al. [1994] benutzten N₂O Messungen des Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer (CLAES) auf UARS, um das diabatische Absinken im Wirbel zu verfolgen. N₂O ist unter den Bedingungen der unteren polaren Stratosphäre chemisch inert und weist einen ausgeprägten vertikalen Gradienten auf. Die Flächen gleichen N₂O-Mischungsverhältnisses sollten also mit der diabatischen vertikalen Bewegung der Luftmassen über die Isentropen hinweg absteigen. Die für den Winter 1992/93 aus MLS-Daten berechnete Abnahme des Wirbelmittels des Ozonmischungsverhältnisses (vgl. Abschnitt 4.1) wird zusammen mit der aus den N₂O-Daten gewonnenen Absinkbewegung diskutiert und chemischer Ozonabbau qualitativ nachgewiesen.

4.2.2 Hintergrundaerosol als Tracer für Einmischungsvorgänge in den Wirbel

Wirth und Renger [1996] analysierten Daten eines vom Flugzeug aus betriebenen kombinierten Ozon-/Aerosollidars. Sie zeigten zwischen dem 3.2. und dem 21.3.1995 in etwa 450 K eine Reduktion des Ozonmischungsverhältnisses auf etwa 50%, wenn das Ozon entlang beider Flugpfade verglichen wird. Die Reduktion bestätigte sich auf einem dritten Flug am 26.3.1995. Auf allen drei Flügen wurde der innere Teil des Wirbels beprobt. Gleichzeitig wurde der Aerosolgehalt der Luftmassen bestimmt.

Im Februar sind innerhalb des Wirbels in 450 K Luftmassen anzutreffen, die durch diabatische Abkühlung während des Winters dorthin gelangten und somit bei Entstehung des Wirbels wesentlich höher lagen. Diese Luftschichten sind relativ arm an Hintergrundaerosol. Außerhalb des Wirbels reicht jedoch die aerosolreiche Junge-Schicht bis in dieses Niveau. Luftmassen, die zu dieser Zeit in den Wirbel eingemischt werden, sollten also an ihrem erhöhten Aerosolgehalt zu erkennen sein. Da bei beiden Flügen in 450 K aerosolfreie Luft angetroffen wurde, schließen Wirth und Renger [1996], daß Einmischung in den Wirbel keine wesentliche Rolle spielte. Sie bemerken weiterhin, daß eine solche Einmischung mit der Einmischung von niedrigem PV verbunden wäre, was im Widerspruch zu den Beobachtungen steht. Da nach Wirth und Renger [1996] eine eventuell unbemerkte Einmischung kleineren Ausmaßes aus dem Wirbelrandgebiet zudem zu einem Anstieg des Ozonmischungsverhältnisses führen würde und der oben beschriebene Effekt diabatischen Absinkens ebenfalls eine Ozonzunahme erwarten ließe, wird die beobachtete 50% Ozonabnahme eher als Untergrenze für den chemischen Ozonabbau bezeichnet.

4.2.3 Ozon/Tracer-Korrelation

Nach theoretischen Untersuchungen von Plumb und Ko [1992] werden für die Mischungsverhältnisse von Spurengasen mit hinreichend langen chemischen Lebensdauern untereinander nahezu lineare Korrelationen erwartet [Müller et al., 1996]. Dieses Verhalten wird auch von CTMs bestätigt [Hall und Prather, 1995]. Insbesondere sagen Plumb und Ko [1992] für die untere Stratosphäre in hohen Breiten eine lineare Korrelation zwischen Ozon und inerten Tracern (wie z.B. N₂O und CH₄) voraus. Ein Zusammenbrechen dieser Korrelation ist daher ein Anzeichen für schnelle chemische Prozessierung eines der beteiligten Spurengase. Unter den chemi-

schen Bedingungen der polaren Stratosphäre ist eine schnelle Prozessierung von N_2O oder CH_4 auszuschließen. Es kommt daher nur eine chemische Änderung des Ozons in Frage [Müller et al., 1996].

Proffitt et al. [1993] benutzten die Korrelation zwischen Ozon und N_2O , um den Ozonabbau im Winter 1991/92 zu untersuchen. Dabei verwendeten sie Ozon und N_2O -Daten, die während der Airborne Arctic Stratospheric Expedition (AASE II) in-situ an Bord des Stratosphärenflugzeugs ER-2 gemessen wurden. Aus der Veränderung der Korrelation zwischen O_3 und N_2O in einigen Luftmassen folgerten sie, daß chemischer Ozonverlust in diesem Jahr stattgefunden hat. Aufgrund beträchtlicher Unsicherheiten im Referenz $\text{O}_3/\text{N}_2\text{O}$ -Verhältnis geben sie jedoch nur eine obere Grenze für den akkumulierten Verlust an.

Müller et al. [1996] verwendeten die Antikorrelation zwischen Ozonmischungsverhältnissen und Methanmischungsverhältnissen (XCH_4), wobei sie Messungen vom Halogen Occultation Experiment (HALOE, ein weiteres der Instrumente auf UARS) analysierten. Sie schätzten für die Jahre 1991/92 bis 1994/95 den jeweils über den Winter akkumulierten chemischen Ozonabbau ab, indem sie gemessene Ozonprofile mit Profilen verglichen, die sich unter Verwendung der zu Beginn des Winters gemessenen Funktion $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ aus den CH_4 -Profilen ergaben. Die Differenz wird als chemischer Ozonabbau interpretiert. Weiterhin schätzten sie auch aus der Abnahme des Verhältnisses von Ozon- zu Methansäulendichte die chemisch bedingte Reduktion der Ozonsäule ab.

Quantitativ korrekte Aussagen über den Ozonabbau liefert dieses Verfahren allerdings nur unter der Annahme, daß der Wirbel eine ideal isolierte Luftmasse darstellt. Innerhalb und außerhalb des Wirbels finden sich bereits vor chemischer Prozessierung deutlich unterschiedliche Funktionen $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ [Müller et al., 1996]. Dies ist erst recht nach erfolgter Prozessierung im Wirbel der Fall. Wenn nun Luftmassen mit dem für außerhalb des Wirbel typischen $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ Verhältnis von eingemischt werden, ändert sich $\text{XO}_3(\text{XCH}_4)$ im Wirbel auch ohne chemische Prozessierung. Eine Einmischung in den Wirbel kann anhand einer Analyse des Methanmischungsverhältnisses nicht quantisiert werden, da der Effekt sich nicht von dem Effekt diabatischen Absinkens trennen läßt.

4.3 Kombination von Ozonmessungen mit Transportmodellen

Eine weitere Methode chemischen Ozonverlust von dynamischen Einflüssen zu trennen, besteht darin, die Transporte von Luftmassen mit Modellen zu berechnen und direkt in der Auswertung von Ozonmessungen zu berücksichtigen. In [Rex, 1993; von der Gathen et al. 1995] und [Rex et al., 1996a] werden Trajektorienrechnungen verwandt, um von Ozonsonden beprobte Luftmassen zu verfolgen. Das Meßergebnis der jeweils ersten Messung wurde mit weiteren Ozonsondenmessungen zu vergleichen, die jeweils einige Tage später in der selben Luftmasse stattgefunden haben. Eine Weiterentwicklung dieser Methode ([Rex et al., 1995b; Rex et al., 1996b; Rex et al., 1996c]) ist Gegenstand der vorliegenden Arbeit, weshalb hier nicht auf sie eingegangen wird. Näheres findet sich in Kapitel 5.

Manney et al. [1995], Manney et al. [1996a] und Manney et al. [1996b] benutzten MLS Ozondaten, um durch Interpolation Ozon auf Gitterpunkten zu berechnen. An diesen Gitterpunkten wurden dann Trajektorienrechnungen gestartet, mit denen das durch MLS Messungen initialisierte Ozon als passiver Tracer advektiert wurde. Aus dem advektierten Ozon an den Endpunkten der Trajektorien wurde zu bestimmten Zeiten das Ozon an den Gitterpunkten interpoliert. Zu den gleichen Zeiten wurden die MLS Messungen auf das gleiche Gitter interpoliert und mit

dem advektierten Ozon verglichen. Die gefundene Ozondifferenz wurde über alle im Wirbel gelegenen Gitterpunkte gemittelt und der erhaltene Wert als über den Wirbel gemittelter Ozonverlust interpretiert. Ozonverluste wurden für die Zeiten, in denen MLS Messungen im Polarwirbel ausführte, auf der 465 K Isentrope angegeben.

Goutail et al. [1997] benutzten MLS Ozondaten um Ozon jeweils Anfang Dezember auf dem Gitter des REPROBUS (reactive processes ruling the ozone budget in the stratosphere) Chemie-Transport-Models (CTM) zu initialisieren. In Modellläufen mit abgeschaltetem Chemiemodul advektierten sie das Ozon als passiven Tracer. Das advektierte Modell-Ozon verglichen sie nun mit Ozonsäulenmessungen des SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zénithale) Netzwerkes und einigen Ozonprofilen, die von SAOZ Geräten an Ballonen gemessen worden waren. Sie quantifizierten den chemischen Verlust in der Ozonsäule und anhand jeweils zweier gegen Ende des Winters gemessener Profile auch den akkumulierten Verlust in einigen Niveaus für die Winter 1993/94 und 1994/95. Bei der Interpretation der Ergebnisse muß berücksichtigt werden, daß die Differenzen im Ozon zwischen Ozonmessungen völlig verschiedener Gerätetypen gebildet wurde, wobei das Ozon zwischen den Messungen über bis zu einige Monate mit dem Advektionsschema eines Modells advektiert wurde. Über diese lange Periode ergibt sich im advektierten Ozon außer den Fehlern, die durch Fehler der verwendeten Winddaten hervorgerufen werden im advektierten Ozon zwangsläufig auch ein Fehler durch die künstliche Diffusion des verwendeten Advektionsschemas. Das Advektionsschema des in diesem Falle verwendeten REPROBUS ist das semi-lagrangesche Verfahren [Lefèvre, 1996], welches eine verhältnismäßig große künstliche Diffusion verursacht [Prather, 1986].