

Anwendung von Trajektorien zur  
ENVISAT-Validierung und zur Untersuchung der  
Luftmassenherkunft in der Stratosphäre

Dissertation  
zur Erlangung des akademischen Grades des  
Doktors der Naturwissenschaften  
am Fachbereich Geowissenschaften  
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Katja Grunow

Gutachter:

PD Dr. Ulrike Langematz (Freie Universität Berlin)

Prof. Dr. Klaus Pfeilsticker (Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg)

Tag der Disputation: 19.01.2009

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>V</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>XI</b>
<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Dynamik und Chemie der Stratosphäre</b>	<b>5</b>
2.1. Thermischer Aufbau der Atmosphäre . . . . .	5
2.2. Grundlegende Größen zur Beschreibung der Dynamik . . . . .	6
2.2.1. Hydrostatisches Gleichgewicht und ideales Gasgesetz . . . . .	6
2.2.2. Geostrophischer Wind und Geopotential . . . . .	7
2.2.3. Potentielle Temperatur und Exnerfunktion . . . . .	9
2.2.4. Montgomery-Potential und Eulersche Bewegungsgleichung . . . . .	11
2.2.5. Potentielle Vorticity . . . . .	12
2.3. Dynamische Prozesse in der Stratosphäre . . . . .	15
2.3.1. Entstehung des Polarwirbels . . . . .	15
2.3.2. Variabilität der polaren Stratosphäre im Winter . . . . .	16
2.3.3. Variabilität der tropischen Stratosphäre . . . . .	19
2.3.4. Die globale Zirkulation . . . . .	20
2.4. Atmosphärische Spurengase . . . . .	23
2.4.1. Ozon ( $O_3$ ) . . . . .	23
2.4.2. Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ) . . . . .	26
2.4.3. Die langlebigen Spurengase Distickstoffoxid ( $N_2O$ ) und Methan ( $CH_4$ ) . . . . .	28
2.4.4. Spurengase zur Identifizierung mesosphärischer Luftmassen . . . . .	29
<b>3. Die Messung atmosphärischer Spurengase</b>	<b>31</b>
3.1. Prinzipielle Messverfahren und Grundlagen . . . . .	31
3.1.1. Wechselwirkungen zwischen Atmosphäre und Strahlung . . . . .	32
3.1.2. Optische Messverfahren . . . . .	37
3.2. Messinstrumente auf dem Satelliten ENVISAT . . . . .	38
3.2.1. SCIAMACHY . . . . .	39
3.2.2. MIPAS-E . . . . .	41

3.3.	Ballongebundene Messinstrumente . . . . .	42
3.3.1.	Das DOAS-Messgerät . . . . .	44
3.3.2.	Der Luftsammler BONBON auf TRIPLE/TWIN . . . . .	46
3.4.	Die Validierung von Satelliteninstrumenten . . . . .	47
<b>4.</b>	<b>Trajektorienmodelle: Grundlagen und Fehlerquellen</b>	<b>51</b>
4.1.	Physikalische Beschreibung der Bewegung von Luftpaketen . . . . .	51
4.1.1.	Die Trajektoriengleichung . . . . .	51
4.1.2.	Meteorologische Eingangsdaten . . . . .	52
4.1.3.	Annahmen über die Vertikalbewegung bei der Berechnung von Trajektorien . . . . .	55
4.1.4.	Berücksichtigung von Energie- und Massenerhaltung . . . . .	58
4.2.	Methoden zur Überprüfung der Genauigkeit von Trajektorien . . . . .	60
4.2.1.	Kenngrößen zur Validierung von Trajektorien . . . . .	61
4.2.2.	Validierung mit Hilfe von Ballonen . . . . .	62
4.2.3.	Dynamische Erhaltungsgrößen und Vorwärts-/Rückwärts-Test . . . . .	64
4.2.4.	Überblick über mögliche Testverfahren und zu untersuchende Parameter .	66
4.3.	Das Trajektorienmodell der FU Berlin . . . . .	67
4.3.1.	Meteorologische Eingangsdaten und ihre Umrechnung auf isentrope Flächen . . . . .	68
4.3.2.	Annahmen über Vertikalbewegungen: Berücksichtigung diabatischer Prozesse . . . . .	72
4.3.3.	Berücksichtigung von Energie- und Massenerhaltung . . . . .	77
<b>5.</b>	<b>Untersuchungen zur Güte des Trajektorienmodelles der FU Berlin</b>	<b>83</b>
5.1.	Datengrundlage und Methode . . . . .	84
5.2.	Sensitivitätsstudien . . . . .	92
5.2.1.	Horizontale Auflösung . . . . .	92
5.2.2.	Vertikale Auflösung . . . . .	95
5.2.3.	Berücksichtigung diabatischer Prozesse . . . . .	102
5.3.	Verfahren und Parameter zur Überprüfung der Trajektorienqualität . . . . .	105
5.3.1.	Vorwärts-/Rückwärts-Test . . . . .	106
5.3.2.	Änderung der PV entlang der Trajektorien . . . . .	109
5.4.	Vergleich mit anderen Trajektorienmodellen . . . . .	115
5.5.	Diskussion und Zusammenfassung . . . . .	119
5.5.1.	Horizontaler Abstand . . . . .	119
5.5.2.	Vertikaler Abstand . . . . .	123
5.5.3.	Temperaturdifferenzen . . . . .	125
5.5.4.	Zusammenfassung . . . . .	127

---

<b>6. Fallstudien zur ENVISAT-Validierung mit Hilfe von Ballonmessungen</b>	<b>131</b>
6.1. Planung stratosphärischer Ballonflüge mit Hilfe von Luftmassen-Trajektorien . . .	132
6.1.1. Kriterien für die Ballonflugplanung . . . . .	132
6.1.2. Methode zur Ermittlung der Matches . . . . .	135
6.2. Anwendung der Methode zur Match-Ermittlung bei Ballon-Messkampagnen . . .	138
6.3. SCIAMACHY-Validierung für Ozon und NO <sub>2</sub> anhand von LPMA/DOAS-Messungen . . . . .	141
6.3.1. Datenbasis und Methode . . . . .	141
6.3.2. Validierungsergebnisse für O <sub>3</sub> und NO <sub>2</sub> . . . . .	147
6.3.3. Sensitivität der SCIAMACHY-Limb-Koinzidenzen bezüglich der zugrundeliegenden Trajektorien . . . . .	152
6.3.4. Sensitivität der photochemischen Modellierung hinsichtlich der zugrundeliegenden Trajektorien . . . . .	153
6.3.5. Zusammenfassung der Sensitivitätsstudien . . . . .	160
6.4. MIPAS-E-Validierung für langlebige Spurengase anhand von BONBON-Messungen . . . . .	160
6.4.1. Datenbasis und Methode . . . . .	162
6.4.2. Parameter für die Bestimmung der Koinzidenzen anhand von Trajektorien . . . . .	164
6.4.3. Validierungsergebnisse für N <sub>2</sub> O und CH <sub>4</sub> . . . . .	168
6.5. Zusammenfassung . . . . .	175
<b>7. Der Eintrag mesosphärischer Luft in die Stratosphäre im Winter 2002/03</b>	<b>177</b>
7.1. Ballon-Messungen in Kiruna im Winter 2002/03 . . . . .	178
7.2. Synoptische Entwicklung des Winters 2002/03 . . . . .	179
7.3. Untersuchung der Luftmassenherkunft anhand von Trajektorien . . . . .	183
7.4. Diskussion . . . . .	190
7.5. Zusammenfassung . . . . .	194
<b>8. Zusammenfassung</b>	<b>195</b>
<b>Publikationen</b>	<b>199</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>201</b>
<b>Variablenverzeichnis</b>	<b>223</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>225</b>

<b>A. Das Trajektorienmodell der FU Berlin</b>	<b>229</b>
<b>B. Vergleichsstudien zum FUB-Modell</b>	<b>233</b>
B.1. Meteorologische Situation . . . . .	233
B.2. Ergänzende Abbildungen zu den Vergleichsstudien . . . . .	238
<b>C. Ergänzende Informationen zur ENVISAT-Validierung</b>	<b>249</b>
C.1. Datenbasis für die Messorte von SCIAMACHY und MIPAS-E . . . . .	249
C.1.1. SCIAMACHY . . . . .	249
C.1.2. MIPAS-E . . . . .	251
C.2. Messausfälle von SCIAMACHY und MIPAS-E während der Ballonkampagnen . . .	253
C.3. Beispiel für eine Textdatei mit ermittelten Matches . . . . .	254
C.4. Koinzidenzen zwischen LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen . . . .	257
C.5. Koinzidenzen zwischen BONBON- und MIPAS-E-Messungen . . . . .	261
<b>Danksagung</b>	<b>265</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1.	Thermischer Aufbau der Atmosphäre . . . . .	6
2.2.	Wirkung der Erdbeschleunigung in einer ruhenden Atmosphäre . . . . .	8
2.3.	Potentielle Temperatur bei adiabatischen bzw. diabatischen Prozessen . . . . .	10
2.4.	Temperatur und Druck bei gewölbten isentropen Flächen . . . . .	10
2.5.	Potentielle und relative Vorticity beim Überströmen eines Gebirges . . . . .	14
2.6.	Potentielle Temperatur und PV im Höhen-Breiten-Schnitt . . . . .	14
2.7.	Barokline Schichtung . . . . .	16
2.8.	30-hPa-Monatsmittelkarten für die Südhemisphäre im Juli und für die Nordhemisphäre im Januar . . . . .	17
2.9.	Zonaler Wind am Gitterpunkt 1,25°N, 103,75°E (Singapur) aus ECMWF-Daten . .	19
2.10.	Schema der globalen Meridionalzirkulation . . . . .	21
2.11.	Zonal gemittelte Methan-Verteilung im Januar . . . . .	22
2.12.	Zeitliche Entwicklung verschiedener Stickstoffverbindungen in Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel . . . . .	27
3.1.	Schema der Prozesse bei der Strahlungsübertragung . . . . .	33
3.2.	Prinzip des DOAS-Verfahrens . . . . .	37
3.3.	SCIAMACHY und GOME: Wellenlängenbereich und gemessene Spurengase . . . . .	40
3.4.	Messmodi von SCIAMACHY . . . . .	40
3.5.	Sichtgeometrien von MIPAS-E . . . . .	42
3.6.	Sichtgeometrien bei DOAS-Ballonmessungen . . . . .	45
4.1.	Absolute horizontale Abweichung zwischen einem Trajektorienpaar . . . . .	62
4.2.	Gitterpunkte auf Druckflächen und auf Theta-Flächen . . . . .	69
4.3.	Beispiel für die auf Druckflächen verfügbaren Daten . . . . .	70
4.4.	Beispiel für die auf Thetaflächen umgerechneten Daten . . . . .	71
4.5.	Im Trajektorienprogramm der FU Berlin verwendete $\Theta$ -Flächen in der 25-Flächen- Version (L25) . . . . .	72
4.6.	Erwärmungsraten im Trajektorienmodell der FU Berlin . . . . .	76
4.7.	Hybride Lösung aus dynamischen und kinematischen Ansatz zur Bestimmung der Trajektorienposition im Modell der FU Berlin . . . . .	79
4.8.	Wichtungsfaktor $w_1$ für den beobachteten Wind . . . . .	82

---

5.1.	Windgeschwindigkeit und Temperatur bei der Initialisierung der Trajektorien . . . . .	87
5.2.	Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener horizontaler Auflösung . . . . .	93
5.3.	Verwendete $\Theta$ -Flächen in der 59-Flächen-Version (L59) des Trajektorienprogrammes der FU Berlin . . . . .	96
5.4.	Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener vertikaler Auflösung . . . . .	97
5.5.	Zonaler Wind zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener vertikaler Auflösung für die subtropischen Fälle . . . . .	98
5.6.	Zonaler Wind zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener vertikaler Auflösung für die tropischen Fälle . . . . .	98
5.7.	Zonaler Wind für verschiedene vertikale Auflösungen der operationellen ECMWF- Daten in 5°S/42°W . . . . .	99
5.8.	Mittlerer vertikaler Abstand ( $\Theta$ ) für Vorwärtstrajektorien unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport . . . . .	103
5.9.	Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport . . . . .	104
5.10.	Mittlerer vertikaler Abstand (links: Höhe, rechts: Druck) für Trajektorienrechnungen unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport . . . . .	105
5.11.	Mittlerer horizontaler Abstand für den Vorwärts-/Rückwärts-Test . . . . .	107
5.12.	PV und MPV zum Zeitpunkt der Initialisierung der Trajektorien dargestellt über die potentielle Temperatur . . . . .	111
5.13.	Zeitlicher Verlauf der PV und der PV-Änderung für am 04.03.2003 um Kiruna in- itialisierte 5-Tages-Vorwärtstrajektorien . . . . .	111
5.14.	PV-Änderung entlang der Trajektorien innerhalb eines Zeitraumes von 5 Tagen . . .	113
5.15.	Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener horizontaler Auflösung klassifiziert nach der PV-Änderung . . . . .	113
5.16.	Verteilung der PV-Änderung innerhalb verschiedener Klassen des horizontalen Ab- standes . . . . .	114
5.17.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienmodellen: FUB (L59, 1,25°x1,25°) vs. AWI bzw. vs. CLaMS . . . . .	116
5.18.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen in unterschiedlichen Höhenbereichen . . . . .	120
5.19.	Fehlerwahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand nach einem Tag und nach 4,5 Tagen . . . . .	121
5.20.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für unterschiedliche geografische Breiten . . . . .	122
5.21.	Fehlerwahrscheinlichkeit für die potentielle Temperatur nach 4,5 Tagen . . . . .	124
5.22.	Fehlerwahrscheinlichkeit für die Höhe nach 4,5 Tagen . . . . .	124
5.23.	Fehlerwahrscheinlichkeit für die Temperatur nach 4,5 Tagen . . . . .	126

---

6.1.	Ballonstart in Teresina/Brasilien am 25.06.2005 . . . . .	133
6.2.	Messpunkte für die ENVISAT-Geräte SCIAMACHY und MIPAS-E . . . . .	134
6.3.	Vorhersage vom 24.03.2004 für Matches der Sonnenuntergangs-Messung von LPMA/DOAS mit SCIAMACHY-Limb-Messungen . . . . .	137
6.4.	Ozonkonzentration und Sichtlinien während einer Sonnenuntergangsmessung . . . .	145
6.5.	NO <sub>2</sub> -Konzentration während einer LPMA/DOAS-Sonnenuntergangsmessung . . . .	145
6.6.	Beispiele für den Vergleich der Ozonprofile aus LPMA/DOAS- und SCIAMACHY- Limb-Messungen . . . . .	148
6.7.	Relative Abweichungen zwischen LPMA/DOAS und SCIAMACHY für Ozon . . . .	148
6.8.	Beispiele für den Vergleich der NO <sub>2</sub> -Profile aus LPMA/DOAS- und SCIAMACHY- Limb-Messungen . . . . .	150
6.9.	Relative Abweichungen zwischen LPMA/DOAS und SCIAMACHY für NO <sub>2</sub> . . . .	150
6.10.	Einfluss der photochemischen Korrektur anhand unterschiedlicher Trajektorien auf die DOAS-NO <sub>2</sub> -Profile . . . . .	154
6.11.	Relative Abweichungen zwischen den basierend auf verschiedenen Trajektorien er- mittelten DOAS-NO <sub>2</sub> -Profilen . . . . .	155
6.12.	Temperaturverlauf entlang von 1-Tages-Rückwärtstrajektorien . . . . .	157
6.13.	1-Tages-Rückwärtstrajektorien und Temperatur in 20 hPa . . . . .	157
6.14.	Geopotentielle Höhe und Temperatur am 23.03.2003 in 50 hPa und in 10 hPa . . .	158
6.15.	Einfluss der Trajektorienlänge auf die Validierungsergebnisse am Beispiel der CH <sub>4</sub> - Messung vom 24.09.2002 . . . . .	166
6.16.	Vergleich zwischen MIPAS-E- und BONBON-Messungen für N <sub>2</sub> O . . . . .	168
6.17.	Vergleich zwischen MIPAS-E- und BONBON-Messungen für CH <sub>4</sub> . . . . .	172
6.18.	CH <sub>4</sub> -N <sub>2</sub> O-Korrelationen für MIPAS-E und BONBON . . . . .	174
7.1.	BONBON-Messungen am 06.03.2003 in Kiruna . . . . .	179
7.2.	Zeit-Höhen-Schnitte vom 01.11.2002 bis 30.04.2003 für $u_{60^\circ N}$ und $\Delta T_{90^\circ N-60^\circ N}$ . .	181
7.3.	Geopotentielle Höhe und Temperatur an ausgewählten Tagen im Winter 2002/03 in 1 hPa . . . . .	181
7.4.	Monatsmittel-Temperatur über dem Nordpol . . . . .	182
7.5.	Zeit-Höhen-Schnitt vom 01.11.2002 bis 30.03.2003 für $T_{Kiruna}$ . . . . .	182
7.6.	Potentielle Vorticity und Initialisierungspunkte der Trajektorien . . . . .	185
7.7.	Zeitliche Entwicklung der potentiellen Temperatur für ausgewählte Initialisierungs- höhen . . . . .	185
7.8.	Trajektorienpositionen an ausgewählten Tagen . . . . .	186
7.9.	Zeitliche Entwicklung des Anteils von Luftmassen verschiedener Herkunft . . . . .	187
7.10.	Höhenwelle 1 und 2 und Höhenverlauf der Trajektorien . . . . .	189
7.11.	Komponenten der mittleren meridionalen Restzirkulation und Höhenverlauf der Tra- jektorien . . . . .	190

---

A.1.	Programmablauf zur Umrechnung der Eingangsdaten auf $\Theta$ -Flächen . . . . .	229
A.2.	Referenzzeit für den Trajektorienstart und einzulesende Analyse- und Vorhersagedaten im operationellen Betrieb . . . . .	230
A.3.	Beispiel für eine Trajektorienstartdatei . . . . .	231
A.4.	Beispiel für eine Trajektoriendatei . . . . .	232
B.1.	PV und MPV zum Zeitpunkt der Initialisierung der Trajektorien dargestellt über die Höhe . . . . .	233
B.2.	Zeit-Höhen-Schnitte des zonalen Windes, des meridionalen Windes und der Temperatur während der durchgeführten Messkampagnen . . . . .	234
B.3.	Differenz in den Startwerten zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener horizontaler Auflösung . . . . .	236
B.4.	Differenz in den Startwerten zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener vertikaler Auflösung . . . . .	237
B.5.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen klassifiziert nach $\Theta_{t=0}$ . . . . .	239
B.6.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Trajektorien mit $\Theta_{t=0} \leq 380$ K . . . . .	240
B.7.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Trajektorien mit $\Theta_{t=0} > 380$ K . . . . .	241
B.8.	Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Trajektorien mit $\Theta_{t=0} > 380$ K klassifiziert nach der PV-Änderung . . . . .	242
B.9.	Mittlerer vertikaler Abstand (potentielle Temperatur) zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Vorwärtstrajektorien klassifiziert nach $\Theta_{t=0}$ . . . . .	244
B.10.	Mittlerer vertikaler Abstand (potentielle Temperatur) zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Vorwärtstrajektorien mit $\Theta_{t=0} > 380$ K . . . . .	245
B.11.	Wahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen nach 2 Tagen in Abhängigkeit von der geografischen Lage . . . . .	246
B.12.	Wahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen nach 4,5 Tagen in Abhängigkeit von der geografischen Lage . . . . .	246
B.13.	Fehlerwahrscheinlichkeit für die Temperatur nach einem Tag . . . . .	247
B.14.	Fehlerwahrscheinlichkeit für die Temperatur nach 2 Tagen . . . . .	247
C.1.	Von SOST bereitgestellte Datei für SCIAMACHY-Limb-Messungen . . . . .	250
C.2.	Aus ESA-Daten abgeleitete Datei für MIPAS-E-Messungen . . . . .	252
C.3.	Ausschnitt aus einer Datei mit berechneten Matches . . . . .	255
C.4.	Koinzidenzen von SCIAMACHY-Limb-Messungen mit der LPMA/DOAS-Ballon-aufstiegs-Messung am 09.10.2003 (Aire sur l'Adour) und zugrundeliegende 1-Tages-Trajektorien . . . . .	257
C.5.	Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 04.03.2003 (Kiruna) . . . . .	257

---

C.6.	Wie Abbildung C.4 für die Ballonaufstiegs-Messung am 23.03.2003 (Kiruna) . . . . .	258
C.7.	Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 23.03.2003 (Kiruna) . . .	258
C.8.	Wie Abbildung C.4 für die Ballonaufstiegs-Messung am 24.03.2004 (Kiruna) . . . . .	259
C.9.	Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 24.03.2004 (Kiruna) . . .	259
C.10.	Wie Abbildung C.4 für die Ballonaufstiegs-Messung am 17.06.2005 (Teresina) . . . . .	260
C.11.	Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 17.06.2005 (Teresina) . . .	260
C.12.	Koinzidenzen von geplanten MIPAS-E-Messungen (ESA) mit der BONBON-Messung am 24.09.2002 (Aire sur l'Adour) und zugrundeliegende 5-Tages-Trajektorien (2,5°, L25, klimatologisch) . . . . .	261
C.13.	Wie Abbildung C.12 für die verfügbaren CH <sub>4</sub> -Messungen (IMK) und zugrundelie- gende 5-Tages-Trajektorien (1,25°, L59, klimatologisch) . . . . .	261
C.14.	Wie Abbildung C.12 für die BONBON-Messung am 06.03.2003 (Kiruna) . . . . .	262
C.15.	Wie Abbildung C.13 für die BONBON-Messung am 06.03.2003 (Kiruna) . . . . .	262
C.16.	Wie Abbildung C.12 für die BONBON-Messung am 09.06.2003 (Kiruna) . . . . .	263
C.17.	Wie Abbildung C.13 für die BONBON-Messung am 09.06.2003 (Kiruna) . . . . .	263



# Tabellenverzeichnis

3.1.	Ballonmessinstrumente und gemessene Spurengase . . . . .	43
3.2.	Vergleich zwischen Satelliten- und Ballonmessungen . . . . .	48
4.1.	Trajektorienmodelle und Annahmen über die Vertikalbewegung . . . . .	57
5.1.	Trajektorienstartpunkte für die Sensitivitätsstudien zum FUB-Modell . . . . .	85
5.2.	Konfiguration der für die Vergleiche verwendeten Trajektorienmodelle . . . . .	90
5.3.	Trajektorienstartpunkte für den Vergleich mit CLaMS-Trajektorien . . . . .	91
5.4.	Horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener horizontaler Auflösung . . . . .	94
5.5.	Horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener vertikaler Auflösung . . . . .	101
5.6.	Horizontaler Abstand für den Vorwärts-/Rückwärts-Test . . . . .	108
5.7.	Horizontaler Abstand zwischen Trajektorienrechnungen verschiedener Modelle . . . . .	117
6.1.	Im Rahmen der ESABC-Kampagnen betreute Ballonflüge . . . . .	139
6.2.	LPMA/DOAS-Messungen und Koinzidenzen mit SCIAMACHY-Limb-Messungen . . . . .	143
6.3.	BONBON-Messungen und Koinzidenzen mit MIPAS-E-Messungen . . . . .	163
6.4.	Anzahl der ermittelten Koinzidenzen bei Anwendung unterschiedlicher Qualitätskriterien . . . . .	165
6.5.	N <sub>2</sub> O-Differenzen zwischen MIPAS-E und BONBON für Höhen $\geq 20$ km . . . . .	169
6.6.	CH <sub>4</sub> -Differenzen zwischen MIPAS-E und BONBON für Höhen $\geq 20$ km . . . . .	173
7.1.	Initialisierung der Trajektorien am 06.03.2003 12 UT . . . . .	184
B.1.	Mittlerer horizontaler Abstand für verschiedene Sensitivitätstudien und den Vorwärts-/Rückwärtstest . . . . .	243
C.1.	State-Ids und Orbitalpositionen für SCIAMACHY-Limb-Messungen . . . . .	250
C.2.	State-Ids und Orbitalpositionen für SCIAMACHY-Nadir-Messungen . . . . .	251
C.3.	Ausfallzeiten von SCIAMACHY während der Ballonmesskampagnen . . . . .	254
C.4.	Ausfallzeiten von MIPAS-E während der Ballonmesskampagnen . . . . .	254



# 1. Einleitung

Vom Menschen verursachte Emissionen von Treibhausgasen und Substanzen, die die stratosphärische Ozonschicht zerstören, verändern die natürliche Zusammensetzung der Atmosphäre. Dies hat Auswirkungen auf das komplexe Klima-System der Erde mit seinen – oft nicht-linear – gekoppelten Wechselwirkungen zwischen den verschiedensten physikalischen und chemischen Prozessen. Nur auf der Basis langjähriger, konsistenter Beobachtungsdaten lassen sich diese komplizierten Zusammenhänge erforschen und mögliche Maßnahmen zur Begrenzung anthropogener Klimaänderungen ableiten [IPCC, 2007; WMO, 2007].

Mit Hilfe von Satelliteninstrumenten ist es möglich, ein globales Bild der Atmosphärenzusammensetzung zu erhalten und – durch die Kombination der Daten mehrerer Instrumente – lange Zeitreihen zu erstellen. Voraussetzung für einen ausreichend genauen Nachweis der Spurengase ist einerseits eine sehr gute Kalibrierung der Satelliteninstrumente, d.h. die Geräte müssen zu einem bekannten Signal eine definierte Systemantwort liefern. Andererseits muss die Qualität der abgeleiteten Messdaten bzw. -profile mit unabhängigen Mitteln überprüft werden. Für diesen als *Validierung* bezeichneten Prozess werden u.a. ballongebundene Messgeräte eingesetzt, die in der Stratosphäre sehr genaue Spurengasprofile messen können. Der Vergleich einer Satellitenmessung mit einer Referenzmessung ist nur sinnvoll, wenn in beiden Fällen dieselben Luftmassen erfasst wurden. Dies lässt sich für Ballonmessungen nur selten direkt realisieren, da die Startzeit der Ballone nicht frei wählbar ist. Die Identifizierung von Luftmassen, die sowohl vom Ballonmessgerät als auch vom Satelliteninstrument gemessen wurden, ist aber mit Hilfe von *Trajektorien* möglich. Trajektorien beschreiben die von Luftpaketen zurückgelegten Wege. Messungen, bei denen dieselbe Luftmasse zweimal beprobt wird, werden als *Matches* bezeichnet. Die trajektorienbasierte Methode zur Ermittlung von Koinzidenzen zwischen zwei Messgeräten wurde bereits von verschiedenen Autoren erfolgreich zur Satellitenvalidierung eingesetzt [z.B. Lu et al., 2000; Danilin et al., 2002a; Lumpe et al., 2002].

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Methode zur Validierung von Messgeräten auf dem europäischen Umweltsatelliten ENVISAT (ENVIronmental SATellite), der 2002 in seine Umlaufbahn gebracht wurde, angewendet. Die Methode wird dafür erstmals so adaptiert, dass mögliche *Matches* zwischen Satelliten- und Ballonmessung bereits während der Ballonflugplanung Berücksichtigung finden. Für die durchgeführten Ballonflüge wird die Methode dann sowohl zur Validierung einzelner Messprofile als auch zur statistischen Auswertung mehrerer *Matches* in einzelnen Höhenbereichen angewendet. Die Güte der Koinzidenzen zwischen den Satelliten- und den Ballonmessungen – und damit auch die Güte der Validierungsergebnisse – hängt davon ab, inwieweit die

Trajektorien die Luftmassenbewegungen richtig wiedergeben. Ein wesentliches Ziel dieser Arbeit ist es daher, die Unsicherheiten bei der Trajektorienberechnung selbst sowie die Auswirkungen dieser Unsicherheiten auf die Validierungsergebnisse zu quantifizieren.

Die Berechnung der Trajektorien erfolgt mit einem Modell, das an der Freien Universität Berlin (FUB) entwickelt wurde [z.B. Reimer und Kaupp, 1997; Kolb und Reimer, 1989] und schon seit vielen Jahren auch für stratosphärische Fragestellungen Anwendung findet [z.B. Langematz et al., 1987; Rex et al., 1997; Carslaw et al., 1998; Waibel et al., 1999]. Das prinzipielle Vorgehen zur Aufbereitung der meteorologischen Felder, die als Eingangsdaten für das Trajektorienmodell dienen, wurde bereits mehrfach beschrieben [u.a. Reimer, 1977, 1980]. Eine Dokumentation darüber, wie die Trajektorienposition in der aktuellen Modellversion bestimmt wird, liegt bisher nur für troposphärische Berechnungen vor [Nüntel, 2001]. Sie soll im Rahmen dieser Arbeit auch für die stratosphärische Version des Trajektorienmodelles gegeben werden. Eine systematische Untersuchung zur Güte des Trajektorienmodelles in der Stratosphäre wurde bisher nicht durchgeführt.

Ein Problem bei der Bewertung von Trajektorien besteht darin, dass der tatsächliche Weg der Luftmassen nur unzureichend bestimmt werden kann [Stohl, 1998]. In der Stratosphäre berechnete Trajektorien werden zum Teil anhand der Daten von Langzeitballonflügen überprüft [z.B. Knudsen und Carver, 1994; Knudsen et al., 2006]. Solche Daten stehen nur bedingt zur Verfügung. Darüberhinaus erlaubt der Vergleich zwischen den Trajektorien und den von den Ballonen zurückgelegten Wegen nur eingeschränkte Rückschlüsse auf die Güte der Trajektorien, da Annahmen zur Vertikalbewegung getroffen werden müssen, die diesen Vergleich beeinflussen. Viele Studien untersuchen daher Unterschiede in der Trajektorienposition, die sich aufgrund verschiedener Modellparameter [z.B. Danielsen, 1961; Austin und Tuck, 1985; Stohl und Seibert, 1998] oder basierend auf unterschiedlichen meteorologischen Eingangsdaten [z.B. Knudsen et al., 2001] bzw. auf einer differierenden räumlichen oder zeitlichen Auflösung der Eingangsdaten [z.B. Kahl und Samson, 1986] ergeben. Vergleiche zwischen verschiedenen Trajektorienmodellen beschränken sich bisher auf die untere Troposphäre [Kahl et al., 1989; Harris et al., 2005] bzw. auf Untersuchungen entlang von Flugzeugpfaden in der oberen Troposphäre und untersten Stratosphäre [Stohl et al., 2001].

Die Güte des Trajektorienmodelles der FU Berlin wird hier anhand von Sensitivitätsstudien analysiert, bei denen einzelne Modellparameter (horizontale und vertikale Auflösung sowie Annahmen zum Vertikaltransport) variiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird dafür eine Modellversion mit einer verbesserten vertikalen Auflösung implementiert. Die Trajektorien werden an den Messpunkten der Ballonmessungen initialisiert, die auch zur ENVISAT-Validierung dienen, und jeweils für einen Zeitraum von 5 Tagen berechnet. Damit können – in Erweiterung zu bisherigen Untersuchungen dieser Art – Sensitivitätsstudien für 4 verschiedene geografische Orte (Kiruna, 68°N; Aire sur l'Adour, 44°N; Teresina, 5°S und Bauru, 22°S) unter unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen durchgeführt werden. Der Höhenbereich der Trajektorien erstreckt sich von der freien Troposphäre (ab ca. 5 km bzw. 500 hPa) bis maximal in die obere Stratosphäre (bis ca. 34 km bzw. 6 hPa). Ausgewählte Trajektorienrechnungen werden außerdem mit den Ergebnissen zweier weiterer Trajektorienmodelle – dem vom Forschungszentrum Jülich

---

betriebenen Modell CLaMS (Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere) [McKenna et al., 2002] und einem am Alfred-Wegener-Institut in Potsdam neu entwickelten Modell [Tegtmeier, 2006; Tegtmeier et al., 2008] – verglichen. Damit werden solche Vergleiche zwischen verschiedenen Trajektorienmodellen erstmals auch für die mittlere und obere Stratosphäre durchgeführt. Darüberhinaus werden Testverfahren bzw. Parameter angewendet, um Trajektorien zu identifizieren, die den Luftmassenweg mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht korrekt wiedergeben.

Eine einzelne Trajektorie kann nur für eine begrenzte Zeit als repräsentativ für den tatsächlichen Weg eines Luftpaketes angesehen werden. Die statistische Auswertung vieler Trajektorien macht aber die Untersuchung der verschiedensten Prozesse möglich. So lässt sich beispielsweise der chemische Ozonabbau in der Stratosphäre durch Ozonsonden-Matches bestimmen [Rex et al., 1997]. Der Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre kann anhand des Temperaturverlaufes entlang von Trajektorien quantifiziert werden [Fueglistaler et al., 2004]. Auch der prinzipielle Verlauf der Luftmassenbewegungen im Polarwirbel – einem Tiefdruckgebiet, das sich im Winter über dem Polargebiet ausbildet – sowie Austauschprozesse über den Polarwirbelrand können über Trajektorien beschrieben werden [z.B. Sutton, 1994; Öllers et al., 2002].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird mit Hilfe von Trajektorien die Luftmassenherkunft im arktischen Winter 2002/03 untersucht. Anlass für diese Untersuchungen waren ballongetragene Spurenstoffmessungen, die im Rahmen der ENVISAT-Validierung durchgeführt wurden. Diese Messungen zeigen Höhenbereiche mit ungewöhnlichen Spurengaskonzentrationen, die nur durch den Eintrag von Luftmassen aus Schichten oberhalb der Stratosphäre – der Mesosphäre – zu erklären sind. Anhand der Trajektorienrechnungen wird der Zeitpunkt des Luftmassen-Eintrages in die Stratosphäre bestimmt und im Hinblick auf die meteorologische Situation im Winter 2002/03 analysiert.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: In Kapitel 2 werden grundlegende dynamische und chemische Prozesse, die das Verhalten der Stratosphäre bestimmen, behandelt. Ozon, das wesentlich die thermische Struktur der Atmosphäre bestimmt, und weitere Spurengase, für die später eine Validierung der ENVISAT-Messungen erfolgt, werden vorgestellt. Prinzipielle Messverfahren zur Erfassung atmosphärischer Spurengase sowie verfahrensbedingte Unterschiede, die bei der Satellitenvalidierung zu berücksichtigen sind, werden in Kapitel 3 diskutiert. Es wird auf die ENVISAT-Instrumente SCIAMACHY<sup>1</sup> und MIPAS-E<sup>2</sup> sowie die ballongebundenen Messgeräte, die zu ihrer Validierung eingesetzt werden, eingegangen. In Kapitel 4 werden die Grundlagen zur Berechnung von Trajektorien behandelt. Es werden mögliche Fehlerquellen sowie Methoden zur Überprüfung der Genauigkeit von Trajektorien erörtert. Zum Abschluss dieses Kapitels wird das Trajektorienmodell der FU Berlin vorgestellt. In Kapitel 5 wird die Güte dieses Trajektorienmodelles anhand von Sensitivitätsstudien und durch den Vergleich mit anderen Modellen untersucht. Im Rahmen der Sensitivitätsstudien werden die horizontale und vertikale Auflösung sowie die Annahmen zum Vertikaltransport variiert. Anhand von Fallstudien zur ENVISAT-Validierung wird in Kapitel 6 der Einfluss der zugrundeliegenden Trajektorien auf die Validierungsergebnisse

---

<sup>1</sup> Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric Chartography

<sup>2</sup> Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding – ENVISAT

untersucht. Schließlich wird in Kapitel 7 die Luftmassenherkunft im arktischen Winter 2002/03 anhand von Trajektorienrechnungen analysiert. Die Ergebnisse dieser Arbeit werden in Kapitel 8 zusammengefasst und es werden mögliche zukünftige Untersuchungen diskutiert.

## 2. Dynamik und Chemie der Stratosphäre

Der Aufbau und das Verhalten der Atmosphäre werden von verschiedenen Prozessen bestimmt. Hauptenergiequelle für atmosphärische Prozesse ist die einfallende Sonnenstrahlung, die in Abhängigkeit von der geografischen Breite variiert. Durch die so entstehenden Unterschiede im Energiebudget werden Luftmassen-Bewegungen angetrieben, die außerdem aufgrund der Erdrotation eine breitenabhängige Veränderung erfahren. Transportprozesse beeinflussen die horizontale und vertikale Verteilung der durch chemische Auf- und Abbaureaktionen determinierten Spurengase. Die chemischen Reaktionen werden wegen ihrer Temperaturabhängigkeit bzw. bei der Photolyse ebenfalls durch die einfallende Sonnenstrahlung bestimmt. Die Verteilung der Spurengase wiederum greift in den Strahlungstransfer ein. Die Atmosphäre bildet damit ein komplexes System, das durch vielfältige Rückkopplungen zwischen dynamischen, chemischen und Strahlungsprozessen geprägt wird.

Im folgenden Kapitel wird zunächst auf den thermischen Aufbau und die damit verbundenen dynamischen Eigenschaften der Atmosphäre eingegangen. Es werden grundlegende Größen zur Beschreibung dynamischer Prozesse eingeführt, die beispielsweise in Etling [2002], Pichler [1997] und Andrews et al. [1987] ausführlich dargestellt sind. Diese Größen bilden die Basis für die Beschreibung von Luftmassenbewegungen, die in Kapitel 4 diskutiert wird. Dynamische Aspekte der Atmosphäre werden beschrieben, wobei in erster Linie auf Prozesse in der Stratosphäre eingegangen wird. Zum Abschluss des Kapitels werden atmosphärische Spurengase und die sie bestimmenden chemischen Prozesse vorgestellt. Der Schwerpunkt liegt dabei auf stratosphärischem Ozon, das aufgrund der Absorption von Solarstrahlung die thermische Struktur der Atmosphäre bestimmt. Außerdem wird kurz auf  $\text{NO}_2$  und die langlebigen Spurengase Methan und  $\text{N}_2\text{O}$  eingegangen, für die wie für Ozon in Kapitel 6 ein Vergleich zwischen Satelliten- und Ballonmessungen erfolgt. Grundlagen zum Strahlungstransfer werden dann in Kapitel 3 behandelt.

### 2.1. Thermischer Aufbau der Atmosphäre

Ausgehend von der vertikalen Temperaturstruktur wird die Atmosphäre in verschiedene Schichten eingeteilt, die durch spezifische dynamische Eigenschaften gekennzeichnet sind. Diese Schichten werden durch sogenannte Pausen getrennt, in denen sich der vertikale Temperaturgradient ändert. Abbildung 2.1 zeigt den mittleren Temperaturverlauf der Atmosphäre am Äquator, in der Arktis im Winter sowie in der Arktis im Sommer. Im Einzelfall können die tatsächlich auftretenden Temperaturen erheblich von den dargestellten Profilen abweichen.

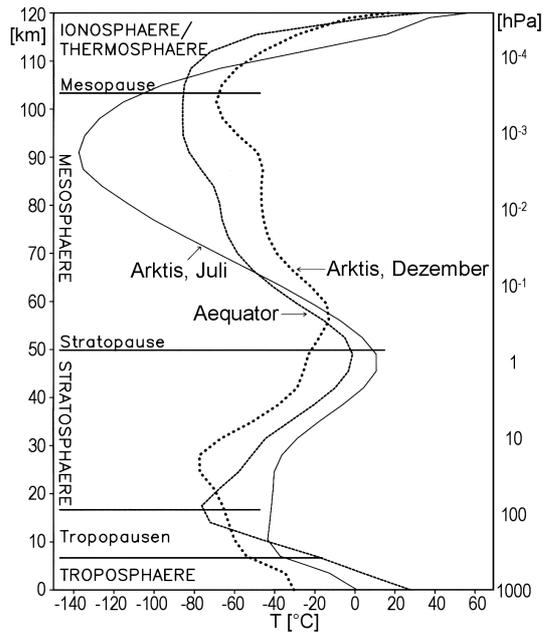


Abb. 2.1.: Thermischer Aufbau der Atmosphäre [nach Labitzke, 1999]

Die unterste Schicht der Atmosphäre – die Troposphäre – ist durch eine mit der Höhe abnehmende Temperatur gekennzeichnet. Die Temperaturabnahme beträgt im globalen Mittel ca. 6,5 K pro Kilometer [Salby, 1996]. In der Troposphäre können sich labile Schichtungen der Luftmassen ausbilden, die einen schnellen vertikalen Massen- und Energieaustausch zur Folge haben. Die Tropopause liegt in den Tropen in einer Höhe von ca. 17 Kilometern, in mittleren und hohen Breiten in ca. 8 Kilometern Höhe. Auch die Tropopausentemperatur ist abhängig von der geografischen Breite und der Jahreszeit. Die kälteste Tropopause ist mit ca.  $-80^{\circ}\text{C}$  in den Tropen zu beobachten. In hohen Breiten beträgt die Tropopausentemperatur im Sommer ca.  $-40^{\circ}\text{C}$  (vgl. Abb. 2.1).

Oberhalb der Tropopause befindet sich die Stratosphäre. In dieser Region nimmt aufgrund der Absorption von ultravioletter Sonnenstrahlung durch Ozon (siehe Kap. 2.4) die Temperatur mit der Höhe zu, d.h. hier liegt wärmere Luft über kälterer. Dadurch werden vertikale Austauschprozesse unterdrückt und es entsteht eine sehr stabile Schichtung. Die Stratosphäre erstreckt sich bis in eine Höhe von ca. 50 Kilometern (ca. 1 hPa), wo sie durch die Stratopause begrenzt wird. Im Gegensatz zur Troposphäre wird die Stratosphäre von Strahlungsprozessen dominiert und befindet sich annähernd im Strahlungsgleichgewicht. Vor allem im Winter in hohen Breiten führen planetarische Wellen, die sich aus der Troposphäre in die Stratosphäre ausbreiten, zu einer vom Strahlungsgleichgewicht abweichenden Temperaturverteilung (siehe Kap. 2.3).

In der Mesosphäre, die sich an die Stratopause anschließt, ist die Luftdichte so gering, dass nur noch wenige Sauerstoffatome zur Absorption von Sonnenstrahlung und zur Ozonproduktion (siehe Kap. 2.4) zur Verfügung stehen. Damit wird die aus der Absorption von Sonnenstrahlung resultierende Wärmequelle kleiner und die Temperatur nimmt mit der Höhe wieder ab. Die Mesopause über der Sommerhemisphäre liegt in etwa 85 bis 90 Kilometer Höhe und ist der kälteste Punkt der Atmosphäre. Oberhalb der Mesopause – in der Thermosphäre – kommt es erneut zu einem Temperaturanstieg, der auf Ionisationsprozesse zurückzuführen ist.

## 2.2. Grundlegende Größen zur Beschreibung der Dynamik

### 2.2.1. Hydrostatisches Gleichgewicht und ideales Gasgesetz

Wenn sich ein Luftpaket in Ruhe befindet und keine vertikalen Bewegungen auftreten, dann wird die Schwerkraft der Erde, die zu einer nach unten gerichteten Beschleunigung führt, genau durch die vertikale Druckkraft ausgeglichen. Die Luft befindet sich dann im *hydrostatischen*

*Gleichgewicht.* Vertikalbewegungen in der Atmosphäre sind i. Allg. sehr viel kleiner als horizontale Bewegungen, so dass die Atmosphäre annähernd durch das hydrostatische Gleichgewicht beschrieben werden kann. Für die Änderung des Druckes  $p$  mit der Höhe  $z$  ergibt sich daraus:

$$\frac{\partial p}{\partial z} = -\rho g. \quad (2.1)$$

Über das *ideale Gasgesetz* lässt sich der Zusammenhang zwischen den thermodynamischen Zustandsgrößen Temperatur  $T$ , Druck  $p$  und Volumen  $V$  bzw. Dichte  $\rho$  beschreiben:

$$p = \rho R_L T. \quad (2.2)$$

Durch Substitution der Dichte  $\rho$  und Integration ergibt sich aus Gleichung 2.1 die *barometrische Höhenformel*:

$$p = p_0 e^{\left(-\frac{gz}{R_L T}\right)}, \quad (2.3)$$

mit $g$ = Erdbeschleunigung [ $\frac{m}{s^2}$ ],	$T$ = Temperatur [ $K$ ],
$p$ = Druck [ $Pa$ ],	$z$ = Höhe [ $m$ ] und
$p_0$ = Druck [ $Pa$ ] in der Höhe $z = 0$ m,	$\rho$ = Dichte [ $\frac{kg}{m^3}$ ].
$R_L$ = Gaskonstante für trockene Luft [ $\frac{J}{kg \cdot K}$ ],	

Die barometrische Höhenformel drückt die exponentielle Druckabnahme mit der Höhe aus. Die Skalenhöhe  $H = \frac{R_L T}{g}$  stellt die Höhe dar, in der der Druck auf 1/e seines ursprünglichen Wertes abgenommen hat. Für eine isotherme Atmosphäre mit einer Temperatur von 240 K, wie sie näherungsweise in der Stratosphäre angenommen werden kann, ergibt sich eine Skalenhöhe von 7 Kilometern.

### 2.2.2. Geostrophischer Wind und Geopotential

In der Stratosphäre kann die Reibung vernachlässigt werden, so dass sich die horizontale Luftbewegung durch das Zusammenwirken von horizontaler Druckgradientkraft und Corioliskraft, die auf der Nordhemisphäre zu einer Rechtsablenkung der Luftmassen führt, beschreiben lässt. Unter stationären Bedingungen stellt sich für geradlinige Linien gleichen Druckes (Isobaren)<sup>1</sup> ein beschleunigungsfreies Gleichgewicht zwischen Druckgradient- und Corioliskraft ein, das als *geostrophisches Gleichgewicht* bezeichnet wird. Es führt zu einer Strömung, die parallel zu den Isobaren verläuft. Dieser *geostrophische Wind* ist umso stärker, je größer der Druckgradient ist und stellt eine gute Näherung für den tatsächlichen Wind dar. Er wird im  $z$ -System (mit der Höhe als Vertikalkoordinate) beschrieben durch<sup>2</sup>:

$$\vec{v}_g = \frac{1}{\rho f} \vec{k} \times \nabla_z p. \quad (2.4)$$

<sup>1</sup> Die Isobaren verlaufen dann krümmungsfrei und parallel zueinander. Für die in der Stratosphäre (und i. Allg. auch in der freien Troposphäre) gegebenen großräumigen Druckverhältnisse ist dies annähernd erfüllt.

<sup>2</sup> Vektoren werden hier durch einen Pfeil gekennzeichnet. Der Windvektor  $\vec{v}_g$  setzt sich aus den horizontalen Komponenten  $u_g$  und  $v_g$  [ $\frac{m}{s}$ ] zusammen. Der Einheitsvektor  $\vec{k}$  ist ein Vektor der Länge 1 in  $z$ -Richtung:

$$\vec{k} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \text{ Aus dem Vektorprodukt } \times \text{ ergibt sich für } u_g \text{ und } v_g: u_g = -\frac{1}{\rho f} \frac{\partial p}{\partial y} \text{ bzw. } v_g = \frac{1}{\rho f} \frac{\partial p}{\partial x}.$$

Durch Ersetzen der stark höhenabhängigen Dichte mit Hilfe der hydrostatischen Grundgleichung (Gl. 2.1) kann Gleichung 2.4 ins p-System (mit dem Druck als Vertikalkoordinate) überführt werden:

$$\vec{v}_g = \frac{g}{f} \vec{k} \times \nabla_p z. \quad (2.5)$$

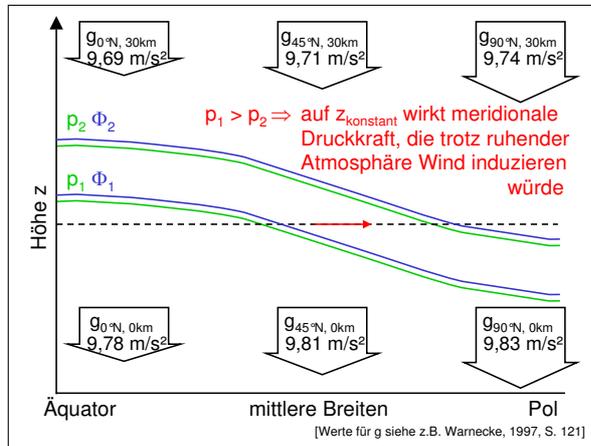


Abb. 2.2.: Wirkung der Erdbeschleunigung in einer ruhenden Atmosphäre

Durch die Breitenabhängigkeit der Erdbeschleunigung  $g$  wirkt in einer konstanten geometrischen Höhe  $z$  eine horizontale Komponente der Schwerkraft, die durch eine horizontale Druckkraft ausgeglichen werden muss [Salby, 1996, S. 144f]. Bei der Betrachtung horizontaler Druckgradienten auf einem  $z$ -Niveau (Gl. 2.4) bzw. horizontaler Gradienten der geometrischen Höhe auf einem Druckniveau (Gl. 2.5) würde eine meridionale<sup>3</sup> Druckkraft und somit ein Wind vorgetäuscht (siehe Abb. 2.2, vgl. auch Warnecke [1997], S. 122). Mit der Einführung des Geopotentials kann die Breiten- und

Höhenvariation der Erdbeschleunigung im p-System eliminiert werden. Das Geopotential  $\Phi$  ist die Arbeit, die gegen die Erdbeschleunigung geleistet werden muss, um eine Einheitsmasse aus der Höhe  $z_0 = 0$  (mittleres Meeresniveau) in die Höhe  $z$  zu heben:

$$\Phi = \frac{E_{pot}}{m} = gz. \quad (2.6)$$

Als Höhenmaß wird die geopotentielle Höhe  $h$  definiert, die sich durch Bezug des Geopotentials auf eine Referenzbeschleunigung  $g_N = 9,80 \frac{m}{s^2}$  ergibt und sich nur geringfügig von der geometrischen Höhe  $z$  unterscheidet:

$$h = \frac{\Phi}{9,80}. \quad (2.7)$$

Die Beschreibung des geostrophischen Windes vereinfacht sich unter Anwendung des Geopotentials im p-System zu:

$$\vec{v}_g = \frac{1}{f} \vec{k} \times \nabla_p \Phi, \quad (2.8)$$

- |                             |  |                  |   |
|-----------------------------|--|------------------|---|
| mit $E_{pot}$               | = potentielle Energie [J],               | $p$              | = Druck [Pa],   |
| $f$                         | = Coriolisparameter [ $\frac{1}{s}$ ],   | $\vec{v}_g$      | = geostrophischer Wind [ $\frac{m}{s}$ ],                                       |
| $g$                         | = Erdbeschleunigung [ $\frac{m}{s^2}$ ], | $z$              | = Höhe [m],   |
| $h$                         | = geopotentielle Höhe [gpm],             | $\rho$           | = Dichte [ $\frac{kg}{m^3}$ ],  |
| $\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}$ | = Einheitsvektoren [-],                  | $\Phi$           | = Geopotential [ $\frac{m^2}{s^2}$ ] und  |
| $m$                         | = Einheitsmasse [1 kg],                  | $\nabla_{h=p,z}$ | = $\vec{i} \frac{\partial}{\partial x} + \vec{j} \frac{\partial}{\partial y}$ . |

Auf einer Fläche konstanten Druckes weht der geostrophische Wind also parallel zu den Linien gleichen Geopotentials.

<sup>3</sup> in Nord-/Süd-Richtung

### 2.2.3. Potentielle Temperatur und Exnerfunktion

Der *erste Hauptsatz der Thermodynamik* besagt, dass die Änderung der inneren Energie  $E_{inn}$  eines System gleich der Summe aus zu- bzw. abgeführter Wärme  $Q$  und vom bzw. am System verrichteter Arbeit  $A$  ist. In spezifischer Form – auf die Einheitsmasse 1 kg bezogen – lässt er sich wie folgt formulieren<sup>4</sup>:

$$de_{inn} = \delta q - p dv \quad \text{bzw.} \quad (2.9)$$

$$de_{inn} = \delta q - d(pv) + v dp. \quad (2.10)$$

Mit Einführung der spezifischen Enthalpie  $h = e_{inn} + pv$  ergibt sich:

$$dh = \delta q + v dp \quad \text{bzw.} \quad (2.11)$$

$$c_p dT = \delta q + v dp. \quad (2.12)$$

Bei *adiabatischen* Prozessen tritt kein Wärmeaustausch mit der Umgebung auf ( $\delta q = 0$ ). Durch Ersetzen des spezifischen Volumens (mit Hilfe des idealen Gasgesetzes, Gl. 2.2) lässt sich schreiben:

$$c_p dT = \frac{R_L T}{p} dp. \quad (2.13)$$

Durch Integration und weitere Umformungen sowie Festlegen des Bezugsdruckes  $p_0$  auf 1000 hPa kann die *potentielle Temperatur*  $\Theta$  definiert werden als:

$$\Theta = T \left( \frac{p_0}{p} \right)^{\frac{R_L}{c_p}}. \quad (2.14)$$

Außerdem lässt sich die *Exnerfunktion*  $\Pi$  als dimensionslose Form des Druckes einführen<sup>5</sup>:

$$\Pi = \frac{T}{\Theta} = \left( \frac{p}{p_0} \right)^{\frac{R_L}{c_p}}, \quad (2.15)$$

mit $c_p$	= spezifische Wärmekapazität trockener Luft bei konstantem Druck $[\frac{J}{kg \cdot K}]$ ,	$R_L$	= Gaskonstante für trockene Luft $[\frac{J}{kg \cdot K}]$ ,
$e_{inn}$	= spezifische innere Energie $[\frac{J}{kg} = \frac{m^2}{s^2}]$ ,	$T$	= Temperatur $[K]$ ,
$h$	= spezifische Enthalpie $[\frac{m^2}{s^2}]$ ,	$v$	= spezifisches Volumen $[\frac{m^3}{kg}]$ ,
$p$	= Druck $[Pa]$ bzw. $[hPa]$ ,	$\Theta$	= potentielle Temperatur $[K]$ und
$p_0$	= 1000 $hPa$ ,	$\Pi$	= Exnerfunktion $[-]$ .
$q$	= spezifische Wärme $[\frac{m^2}{s^2}]$ ,		

Auf einer Fläche mit konstanter potentieller Temperatur gibt die Exnerfunktion die Temperaturverteilung wieder (für  $\Theta = \text{konstant}$  ist  $\Pi \sim T$ ).

<sup>4</sup> In ihrer spezifischen Form werden die einzelnen Größen mit kleinen Symbolen gekennzeichnet.

Der Operator  $d$  stellt ein totales Differential dar, während  $\delta$  eine kleine Quantität beschreibt, die nicht den Regeln der Differentialrechnung unterliegen muss. Die innere Energie ist eine Zustandsfunktion für ideale Gase, so dass ein totales Differential existiert. Dies trifft für die Wärmemenge nicht zu [z.B. Etling, 2002, S. 19].

<sup>5</sup> Zum Teil wird die Exnerfunktion auch dimensionsbehaftet als  $\Pi = c_p \frac{T}{\Theta}$  definiert [z.B. Pichler, 1997, S. 280].

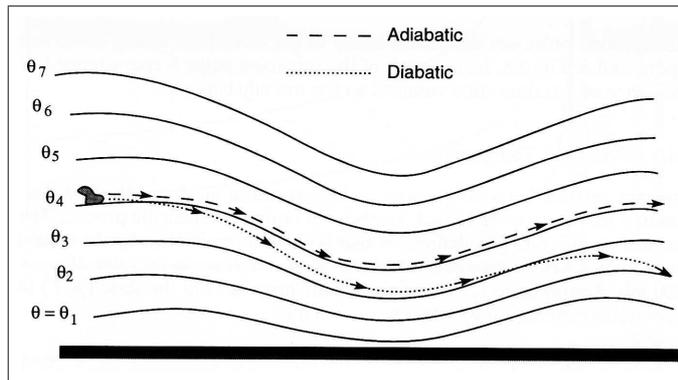


Abb. 2.3.: Potentielle Temperatur eines Luftpaketes bei adiabatischen bzw. diabatischen Prozessen [Salby, 1996]

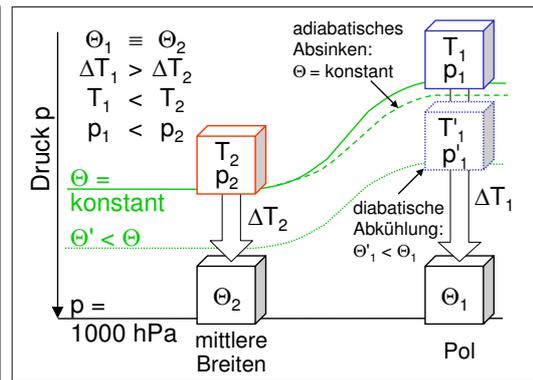


Abb. 2.4.: Temperatur- und Druckverteilung bei gewölbten isentropen Flächen [modifiziert nach Müller, 2001], weiteres siehe Text

Die potentielle Temperatur ist nach Gleichung 2.14 die Temperatur, die ein Luftpaket hätte, wenn es adiabatisch – also ohne Wärmeaustausch mit der Umgebung – vom Druckniveau  $p$  auf das Referenzniveau von 1000 hPa gebracht würde. Bei stabilen Luftschichten, die z.B. in der Stratosphäre vorliegen (siehe Kap. 2.1), nimmt die potentielle Temperatur mit der Höhe monoton zu ( $\frac{\partial \Theta}{\partial z} > 0$ ). Die potentielle Temperatur wird daher v.a. bei der Beschreibung stratosphärischer Prozesse als Vertikalkoordinate verwendet. Die entsprechenden Koordinatenflächen konstanter potentieller Temperatur werden *isentropen* Flächen oder *Theta*-Flächen genannt. Während sich Druck und Temperatur bei adiabatischen Prozessen ändern können, bleibt die potentielle Temperatur – definitionsgemäß – konstant (siehe Abb. 2.3). Unter adiabatischen Bedingungen findet somit im  $\Theta$ -System (mit der potentiellen Temperatur als Vertikalkoordinate) kein vertikaler Transport statt ( $\frac{d\Theta}{dt} = Q = 0$ ). Wärmeaustauschprozesse mit der Umgebung, die als *diabatische* Prozesse bezeichnet werden, führen zu einer Änderung der potentiellen Temperatur ( $\frac{d\Theta}{dt} = Q \neq 0$ ) und folglich zu einem von den isentropen Flächen abweichenden Vertikaltransport (siehe Abb. 2.3).

Eine Fläche mit konstanter potentieller Temperatur  $\Theta$  ist dort dem geringsten Druck ausgesetzt und liegt am höchsten, wo die Temperatur  $T$  ihr Minimum hat. Demzufolge sind die isentropen Flächen in der Stratosphäre über dem kalten Winterpol nach oben gewölbt und liegen höher als in mittleren Breiten. Dies ist schematisch in Abbildung 2.4 dargestellt. Das Luftpaket 1 (mit  $T_1, p_1$ ) hat dieselbe potentielle Temperatur  $\Theta$  wie das Luftpaket 2 (mit  $T_2, p_2$ ). Die Temperatur  $T_1$  des ersten Luftpaketes ist kleiner als die Temperatur  $T_2$  des Luftpaketes 2. Daher muss das Luftpaket 1 höher liegen, also geringerem Druck ausgesetzt sein, als das Luftpaket 2, um bei einer adiabatischen Bewegung auf das Referenz-Druckniveau von 1000 hPa dieselbe potentielle Temperatur zu erhalten [Müller, 2001]. Entsprechend führt adiabatisches Absinken dazu, dass die Luft einem höheren Druck ausgesetzt ist und sich erwärmt (vergleiche gestrichelte Linie in Abb. 2.4).

Im polaren Winter tritt nicht nur adiabatisches Absinken auf, sondern es kommt aufgrund von thermischer Abstrahlung zusätzlich zu einem diabatischen Absinken (siehe auch Abschnitt

2.3.1). Dabei sinken die Luftpakete im Laufe des Winters relativ zur potentiellen Temperatur  $\Theta$  ab, was ebenfalls schematisch in Abbildung 2.4 gezeigt ist (Luftpaket mit  $T'_1, p'_1$ ). Die Absinkraten betragen in nördlichen hohen Breiten im Winter im zonalen Mittel – dem entlang eines Breitenkreises gebildetem Mittelwert – ca.  $-0,5$  K/Tag in der unteren Stratosphäre und bis zu  $-8$  K/Tag in der oberen Stratosphäre [Kiehl und Solomon, 1986; Rosenfield et al., 1994]. Zu Beginn des Winters, wenn die stratosphärischen Temperaturen erheblich größer sind als im Strahlungsgleichgewicht, tritt das stärkste diabatische Absinken auf. Mit den im Laufe des Winters sinkenden Temperaturen verringern sich auch die Absinkraten [Rosenfield et al., 1994; Greenblatt et al., 2002]. Diabatische Erwärmung führt in den Tropen im zonalen Mittel zu einem Aufsteigen der Luftmassen von bis zu ca.  $+2$  K/Tag in der oberen Stratosphäre [Kiehl und Solomon, 1986].

#### 2.2.4. Montgomery-Potential und Eulersche Bewegungsgleichung

Im  $\Theta$ -System mit den Flächen gleicher potentieller Temperatur als Höhenkoordinate ergibt sich für den geostrophischen Wind folgende Beziehung:

$$\vec{v}_g = \frac{1}{f} \vec{k} \times \nabla_{\Theta} (c_p T + \Phi). \quad (2.16)$$

Erstmals formulierte Montgomery [1937] diese Beziehung durch Transformation der geostrophischen Windgleichung aus dem p-System ins  $\Theta$ -System<sup>6</sup>. Die Summe aus spezifischer potentieller Energie ( $\Phi$ ) und spezifischer Enthalpie ( $c_p T$ ) beschreibt die Stromfunktion auf isentropen Flächen und wird *isentropische Stromfunktion* oder *Montgomery-Potential*  $M$  [ $\frac{m^2}{s^2}$ ] genannt:

$$M = c_p T + \Phi \quad \text{bzw.} \quad (2.17)$$

$$M = c_p \Theta \Pi + gz. \quad (2.18)$$

Für quasistatische<sup>7</sup>, reibungsfreie Bewegungen ergibt sich im  $\Theta$ -System folgende Bewegungsgleichung [zur Herleitung siehe z.B. Pichler, 1997]:

$$\frac{\partial \vec{v}_h}{\partial t} + \vec{v}_h \cdot \nabla_{\Theta} \vec{v}_h + w_{\Theta} \frac{\partial \vec{v}_h}{\partial \Theta} = -\nabla_{\Theta} M - f \vec{k} \times \vec{v}_h. \quad (2.19)$$

Sie beschreibt die zeitliche und räumliche Änderung des horizontalen Geschwindigkeitsfeldes (linke Seite) unter dem Einfluss der horizontalen Druckgradientkraft ( $\nabla_{\Theta} M$ ) und der Corioliskraft ( $f \vec{k} \times \vec{v}_h$ ). Die Vertikalgeschwindigkeit  $w_{\Theta} = \frac{d\Theta}{dt}$  ist unter adiabatischen Bedingungen Null, so dass für die horizontalen Komponenten  $u$  und  $v$  [ $\frac{m}{s}$ ] formuliert werden kann:

$$\frac{du}{dt} = \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} = -\frac{\partial M}{\partial x} + fv, \quad (2.20)$$

$$\frac{dv}{dt} = \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} = -\frac{\partial M}{\partial y} - fu. \quad (2.21)$$

Dabei stehen  $x$  und  $y$  für die Ortskoordinaten und  $t$  für die Zeit. Mit Hilfe dieser Gleichungen lässt

<sup>6</sup> Die Herleitung durch Transformation aus dem z-System (Gl. 2.4) ist z.B. bei Pichler [1997] beschrieben.

<sup>7</sup> Eine Luftsäule wird dabei lokal als näherungsweise im hydrostatischen Gleichgewicht betrachtet.

sich die Bewegung eines individuellen Luftpaketes berechnen (siehe Abschnitt 4.1.4). Sie werden auch im Rahmen dieser Arbeit angewendet, um *Trajektorien* – also die von den Luftpaketen zurückgelegten Wege – zu bestimmen (siehe Abschnitt 4.3.3).

Im stationären Zustand fallen die Trajektorien mit den vom Montgomery-Potential beschriebenen Stromlinien zusammen. Unter adiabatischen, reibungsfreien Verhältnissen gilt dann auf isentropen Flächen [Pichler, 1997, S. 127]:

$$\frac{d}{dt} \left( c_p T + \Phi + \frac{1}{2} \vec{v}_h^2 \right) = 0. \quad (2.22)$$

Die Summe aus Enthalpie ( $c_p T$ ) sowie potentieller ( $\Phi$ ) und kinetischer Energie ( $\frac{1}{2} \vec{v}_h^2$ ) pro Masseneinheit ist unter den angegebenen Bedingungen längs einer Trajektorie konstant. Diese Gleichung wird bei der Berechnung von Trajektorien mit dem Modell der FU Berlin angewendet, um die Energie- und Massenbilanz zu überprüfen (siehe Abschnitt 4.3.3).

### 2.2.5. Potentielle Vorticity

Die Wirbelhaftigkeit horizontaler Strömungen wird in einem ruhenden Bezugssystem durch die vertikale Komponente  $\vec{k}$  der Rotation beschrieben und in der Meteorologie als (*relative*) *Vorticity*  $\zeta$  bezeichnet:

$$\zeta = \frac{\partial v}{\partial x} - \frac{\partial u}{\partial y} = \vec{k} \cdot \nabla_h \times \vec{v}_h. \quad (2.23)$$

Sie ist ein Maß für den Drehsinn **in** einer Strömung und nicht zwangsläufig für den Drehsinn der Strömung selbst. So besitzen geradlinige Strömungen mit horizontaler Windscherung eine Vorticity (Scherungsvorticity)<sup>8</sup>. In gekrümmten Strömungen entsteht die sogenannte Krümmungsvorticity. Dabei ist die Vorticity bei antizyklonaler Strömung (im Uhrzeigersinn) negativ, bei zyklonaler Strömung (entgegen dem Uhrzeigersinn) positiv. Zur Beschreibung der *absoluten Vorticity*  $\eta$  muss die Erdrotation berücksichtigt werden:

$$\eta = \zeta + f \quad (2.24)$$

Die absolute Vorticity ist in einer horizontalen, divergenzfreien Strömung eine Erhaltungsgröße. Eine solche Strömung liegt unter *barotropen* Bedingungen vor, bei denen die Isothermen parallel zu den Isobaren ( $\nabla T \times \nabla p = 0$ ) verlaufen. Aufgrund der Erhaltung der absoluten Vorticity verringert sich beispielsweise bei polwärts gerichteten Strömungen unter barotropen Bedingungen die relative (zyklonale) Vorticity, da sich der Betrag der Erdvorticity erhöht. In einer *baroklinen* Atmosphäre sind die Flächen gleicher Temperatur gegenüber den Flächen gleichen Druckes geneigt ( $\nabla T \times \nabla p \neq 0$ ). In einer Schicht – z.B. zwischen zwei Druckniveaus – ist dabei die vertikale Stabilität ( $\frac{\partial T}{\partial z}$  bzw.  $\frac{\partial \Theta}{\partial z}$ ) nicht konstant, d.h. die Schichtdicke ändert sich. Damit verbunden sind horizontale Divergenz und Vertikalbewegungen<sup>9</sup>, so dass die absolute Vorticity nicht mehr konstant ist. Beispielsweise bewirkt adiabatisches Aufsteigen eine Streckung der Luftsäule, die

<sup>8</sup> Es ergibt sich z.B. für  $u = f(y)$  und  $v = 0$ :  $\zeta = -\frac{\partial u}{\partial y}$ .

<sup>9</sup> Aufgrund der Massenerhaltung gilt für inkompressible Strömungen:  $\nabla_h \cdot \vec{v}_h = -\frac{\partial w}{\partial z}$ .

mit einer Verringerung der vertikalen Stabilität und mit einer Erhöhung der Vorticity verbunden ist [siehe z.B. Hoskins, 1997]. Daher führte Ertel [1942] die *potentielle Vorticity*  $PV$  ein, in der zusätzlich die Erhaltung der Masse bzw. ein Stabilitätsterm berücksichtigt ist. In koordinateninvarianter Form lässt sich mit Hilfe des dreidimensionalen Vektors der absoluten Vorticity  $\vec{\eta}$  schreiben:

$$PV = \frac{1}{\rho} \vec{\eta} \cdot \nabla \Theta. \quad (2.25)$$

Auf isentropen Flächen gilt unter adiabatischen Bedingungen definitionsgemäß  $\frac{\partial \Theta}{\partial x} = \frac{\partial \Theta}{\partial y} = 0$ , so dass  $\nabla \Theta = \frac{\partial \Theta}{\partial z}$  bzw.  $\nabla \Theta = \frac{\partial \Theta}{\partial p}$ . Somit lässt sich die potentielle Vorticity auf isentropen Flächen folgendermaßen berechnen:

$$PV = \frac{1}{\rho} (\zeta + f) \frac{\partial \Theta}{\partial z}, \quad \text{bzw.} \quad (2.26)$$

$$PV = -g (\zeta + f) \frac{\partial \Theta}{\partial p}, \quad (2.27)$$

mit $f$	= Coriolisparameter $[\frac{1}{s}]$ ,	$x, y$	= Ortskoordinaten [m],
$g$	= Erdbeschleunigung $[\frac{m}{s^2}]$ ,	$\zeta$	= relative Vorticity $[\frac{1}{s}]$ ,
$\vec{k}$	= vertikaler Einheitsvektor [-],	$\vec{\eta}$	= Vektor der absoluten
$p$	= Druck [Pa],		Vorticity $[\frac{1}{s}]$ ,
$PV$	= potentielle Vorticity $[\frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}]$ ,	$\eta$	= $\vec{k} \cdot \vec{\eta}$ , absolute Vorticity $[\frac{1}{s}]$
$u, v$	= horizontale Windkomponenten $[\frac{m}{s}]$ ,	$\Theta$	= potentielle Temperatur [K] und
$\vec{v}_h$	= horizontaler Windvektor $[\frac{m}{s}]$ ,	$\rho$	= Dichte $[\frac{kg}{m^3}]$ .

Die Einheit der potentiellen Vorticity wird oft in PVU (*Potential Vorticity Unit*) angegeben:

$$1 \text{ PVU} = 10^{-6} \frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}.$$

Unter reibungsfreien, adiabatischen Bedingungen ist die potentielle Vorticity, auch *isentropische PV* oder *Ertelsche PV* genannt, eine materielle Erhaltungsgröße. Die PV beschreibt in diesem Fall die individuelle Erhaltung eines Luftpaketes und das Mischungsverhältnis eines auf der betrachteten Zeitskala konservativen<sup>10</sup> Spurengases wird qualitativ durch die Isolinien der PV abgebildet [Haynes und McIntyre, 1990 und dort genannte Referenzen]. Im stationären Fall verlaufen Luftmassenbewegungen auf Flächen konstanter potentieller Temperatur exakt parallel zu den Isolinien der PV. Die Isolinien des Montgomery-Potentials liegen unter reibungsfreien, adiabatischen Bedingungen annähernd parallel zu den Isolinien der PV. Geringe Abweichungen zwischen den Isolinien ergeben sich aus im Montgomery-Potential nicht berücksichtigten ageostrophischen Komponenten.

In Abbildung 2.5 ist beispielhaft die Änderung der relativen Vorticity bei Divergenz bzw. Konvergenz des horizontalen Geschwindigkeitsfeldes dargestellt. Die Abbildung zeigt eine Strömung mit konstanter Geschwindigkeit, die auf ein Hindernis – hier ein Gebirge – trifft. Unter

<sup>10</sup> Das Spurengas muss materiell erhalten bleiben: es darf keine chemische Quellen oder Senken geben und Prozesse wie Diffusion oder Sedimentation dürfen nicht auftreten.

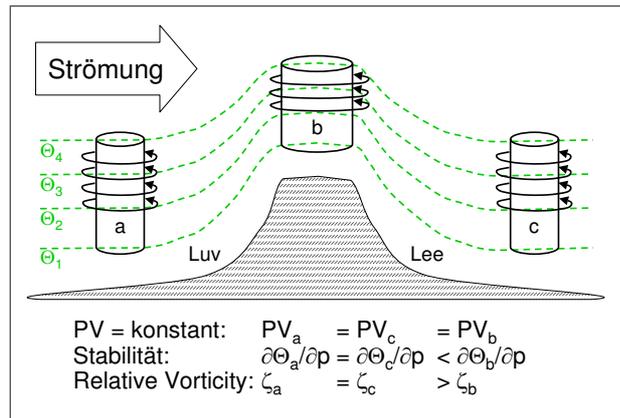


Abb. 2.5.: Potentielle und relative Vorticity beim Überströmen eines Gebirges unter Annahme adiabatischer, reibungsfreier Bedingungen

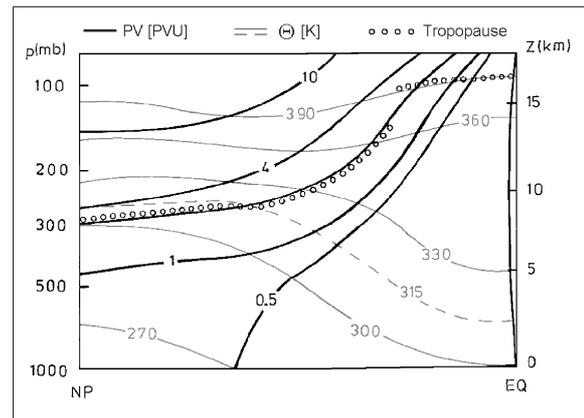


Abb. 2.6.: Potentielle Temperatur und PV im Höhen-Breiten-Schnitt vom Nordpol zum Äquator [Hoskins, 1997]

adiabatischen, reibungsfreien Bedingungen bleibt die potentielle Vorticity während der Gebirgsüberströmung konstant. Beim Anströmen des Hindernisses wird die Luftsäule gestaucht, d.h. ihre Vertikalerstreckung nimmt ab. Aus Kontinuitätsgründen ergibt sich bei der Annäherung an das Gebirge eine Zunahme der Windgeschwindigkeit und somit eine Geschwindigkeitsdivergenz. Die Stauchung der Luftsäule führt zu einer Erhöhung der vertikalen Stabilität ( $\frac{\partial\Theta_a}{\partial z} < \frac{\partial\Theta_b}{\partial z}$ ). Damit ist eine Verringerung der relativen zyklonalen (und der absoluten) Vorticity verbunden ( $\zeta_a > \zeta_b$ ). Auf der Leeseite des Gebirges sinkt die vertikale Stabilität und es kommt zur Expansion, die eine Verlangsamung der Strömung, also eine Geschwindigkeitskonvergenz zur Folge hat. Dies führt zu einem Ansteigen der relativen Vorticity<sup>11</sup>. Hinter dem Gebirge ist die relative Vorticity genauso groß wie davor ( $\zeta_a = \zeta_c$ ). Treten während der Gebirgsüberströmung diabatische Prozesse – z.B. durch freiwerdende Wärme aufgrund von Kondensation – auf, dann ändert sich auch die potentielle Vorticity.

Unter diabatischen Bedingungen ist die Massenerhaltung für eine Schicht, die von zwei isentropen Flächen begrenzt wird, nicht mehr gegeben. Es kommt zu einem Massentransport durch die isentropen Flächen und zu einer Änderung der PV. Wie sich die PV ändert, hängt von der vertikalen Verteilung der diabatischen Erwärmung bzw. Abkühlung ab. Bei einer diabatischen Erwärmung, die mit der Höhe zunimmt, verringert sich die Masse in der betrachteten Schicht und die PV erhöht sich [Davis, 1996]. Die Analogie zwischen der PV und einem konservativen Spurengas ist dann nur noch eingeschränkt gültig [Haynes und McIntyre, 1990].

In Abbildung 2.6 ist schematisch die Verteilung der potentiellen Temperatur und der potentiellen Vorticity in einem Höhen-Breiten-Schnitt für die untere Atmosphäre gezeigt [Hoskins, 1997]. In den Tropen ist der Abstand zwischen den Theta-Flächen in der Troposphäre durch die geringe Stabilität aufgrund konvektiver Prozesse größer als in hohen Breiten. Entsprechend liegt die tropische Tropopause höher ( $\Theta \sim 390\text{ K}$ ) als die Tropopause in mittleren und hohen Breiten ( $\Theta \sim 300\text{ K} - 320\text{ K}$ ). Die potentielle Vorticity nimmt in Richtung Nordpol und mit der Höhe

<sup>11</sup> Es bildet sich ein Leeseitentrog [siehe z.B. Etling, 2002].

zu. Im Tropopausenniveau beträgt sie in mittleren und hohen Breiten ca. 2-3 PVU [Hoskins, 1997]. Damit lässt sich anhand der PV die sogenannte dynamische Tropopause definieren. In Äquatornähe werden die PV-Werte sehr klein (wegen  $f \rightarrow 0$ ), so dass die potentielle Vorticity in niedrigen Breiten nicht mehr zur Definition der Tropopausenhöhe herangezogen werden kann. In der Stratosphäre steigt der Betrag der PV schnell mit der Höhe an, da hier die Stabilität kontinuierlich zunimmt. In Höhe der Stratopause (ca. 1 hPa bzw. 50 km) erreicht die potentielle Temperatur Werte von bis zu 2000 K (siehe auch Abb. 4.5). Die PV-Werte können in dieser Höhe in nördlichen hohen Breiten bei über 10 000 PVU liegen. Auf der Südhemisphäre ergeben sich negative PV-Werte in entsprechender Größenordnung.

Durch die exponentielle Zunahme der PV in der Stratosphäre wird ihre Interpretation bei Betrachtungen über einen größeren Höhenbereich erschwert. Daher wurden verschiedene Skalierungen entwickelt, mit deren Hilfe sich die Höhenabhängigkeit der Ertelschen PV weitgehend eliminieren lässt [siehe Müller und Günther, 2003 und dort genannte Referenzen]. Häufig angewendet wird die *modifizierte potentielle Vorticity (MPV)* nach Lait [1994]:

$$MPV = PV \left( \frac{\Theta}{\Theta_0} \right)^{-9/2}. \quad (2.28)$$

Mit der potentiellen Temperatur  $\Theta_0$  wird festgelegt, in welcher Höhe die Werte von PV und MPV übereinstimmen. Für die Untersuchungen zur Trajektoriengüte in Kapitel 5 sowie für die Fallstudien zur Satelliten-Validierung in Kapitel 6 wird der von Lait [1994] vorgeschlagene Wert  $\Theta_0 \equiv 420 \text{ K}$  angewendet.

Müller und Günther [2003] zeigen, dass mit einem Exponenten von 8/2 der PV-Wert am Polarwirbelrand in großen Höhen ( $\Theta \geq 1000 \text{ K}$ ) besser erfasst werden als mit Hilfe des von Lait [1994] verwendeten Exponenten 9/2. In Kapitel 7 wird der Polarwirbelrand in einem Bereich zwischen ca. 475 K und 1600 K bestimmt. Dazu wird die  $MPV_{MG03}$  nach Müller und Günther [2003] wie folgt berechnet:

$$MPV_{MG03} = PV \left( \frac{\Theta}{475 \text{ K}} \right)^{-8/2}. \quad (2.29)$$

## 2.3. Dynamische Prozesse in der Stratosphäre

### 2.3.1. Entstehung des Polarwirbels

Wie in den folgenden Abschnitten 2.3.2 und 2.3.4 noch gezeigt wird, bewirkt die globale Zirkulation einen Transport von Luftmassen in Richtung Pol und ein adiabatisches Absinken in hohen Breiten. Dabei werden die Luftmassen komprimiert und erwärmen sich, was einem weiteren Absinken entgegenwirkt. Mit dem Einsetzen der Polarnacht kühlt sich die Stratosphäre an den Polen aufgrund der fehlenden solaren Einstrahlung stark ab. Die thermische Abstrahlung der Atmosphäre führt zu einer negativen Netto-Strahlungsbilanz, d.h. das System Atmosphäre gibt Energie an die Umgebung (Weltraum) ab. Die damit verbundene diabatische Abkühlung ist größer als die adiabatische Erwärmung, so dass sich die Luftmassen weiter abkühlen und

absinken. In der Folge bildet sich über dem Winterpol ein Tiefdruckgebiet, das als Polarwirbel bezeichnet wird [vgl. Salby und Callaghan, 2006; Labitzke, 1999, S. 52].

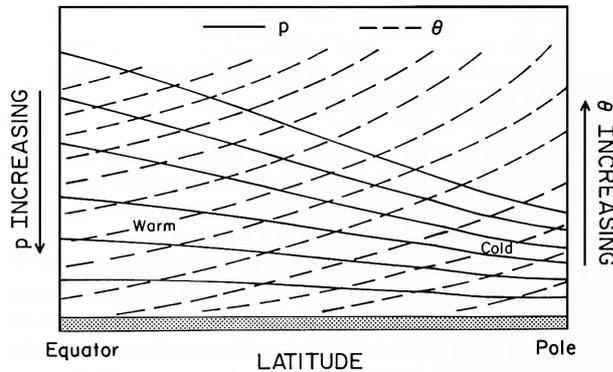


Abb. 2.7.: Barokline Schichtung [Salby, 1996]

Druck- und Theta-Verteilung schematisch gezeigt. Die Druckgradientkraft wirkt vom hohen zum niedrigen Druck in Richtung Pol, so dass sich durch die ablenkende Wirkung der Corioliskraft entsprechend dem geostrophischen Gleichgewicht (siehe Abschnitt 2.2.2) ein Westwind ausbildet. Dieser Westwind nimmt mit der Höhe proportional zur horizontalen Temperaturdifferenz in der betrachteten Schicht zu (*thermischer Wind*). Die Windzunahme mit der Höhe ist umso größer, je stärker die Baroklinität ist [Etling, 2002, S. 142]. Das entstehende Starkwindband hat sein Maximum in etwa  $60^\circ$  geografischer Breite. Es stellt den Rand des polaren Wirbels dar und ist durch hohe PV-Gradienten gekennzeichnet [Rummukainen et al., 1994]. Damit wird am Wirbelrand ein Austausch zwischen Luft aus dem Wirbelinneren und Luftmassen, die den Wirbel umgeben (mittlere Breiten), weitgehend verhindert.

### 2.3.2. Variabilität der polaren Stratosphäre im Winter

Die Ausprägung des Polarwirbels variiert auf der Nordhemisphäre sehr stark von Jahr zu Jahr. Ursache dafür sind hauptsächlich großräumige Wellen, die aufgrund ihrer horizontalen Wellenlängen von bis zu 10 000 km als planetarische Wellen bezeichnet werden<sup>12</sup>. Sie werden an großen Gebirgszügen sowie durch die Land-See-Verteilung, die infolge der unterschiedlichen Wärmekapazität von Wasser und Land zu Temperatur- und Druckunterschieden führt, vor allem in nördlichen Breiten angeregt. Ihre rückwirkende Kraft ist durch die Corioliskraft – also die Rotation der Erde – gegeben. Bei nicht zu starken Westwinden [Charney und Drazin, 1961] breiten sich diese Wellen von der Troposphäre in die Stratosphäre aus, wobei ihre Amplitude aufgrund der abnehmenden Luftdichte zunimmt. Instabilitäten führen zu einem Brechen der Wellen, dabei geben die Wellen Impuls und Energie an die Atmosphäre ab. In der winterlichen Stratosphäre wirkt diese Impuls- und Energieübertragung abbremsend auf die Westwindströmung und der

<sup>12</sup> Die Amplituden und Phasen der Wellen können über eine Fourieranalyse entlang eines Breitenkreises ermittelt werden. Eine starke Höhenwelle 1 ist mit einer Verschiebung des Polarwirbels in Richtung Süden verbunden. Entlang eines Breitenkreises lässt sich in diesem Fall ein Maximum und ein Minimum des Geopotentials feststellen. Ein stark elongierter oder in zwei Zentren geteilter Wirbel wird durch eine starke Höhenwelle 2 hervorgerufen.

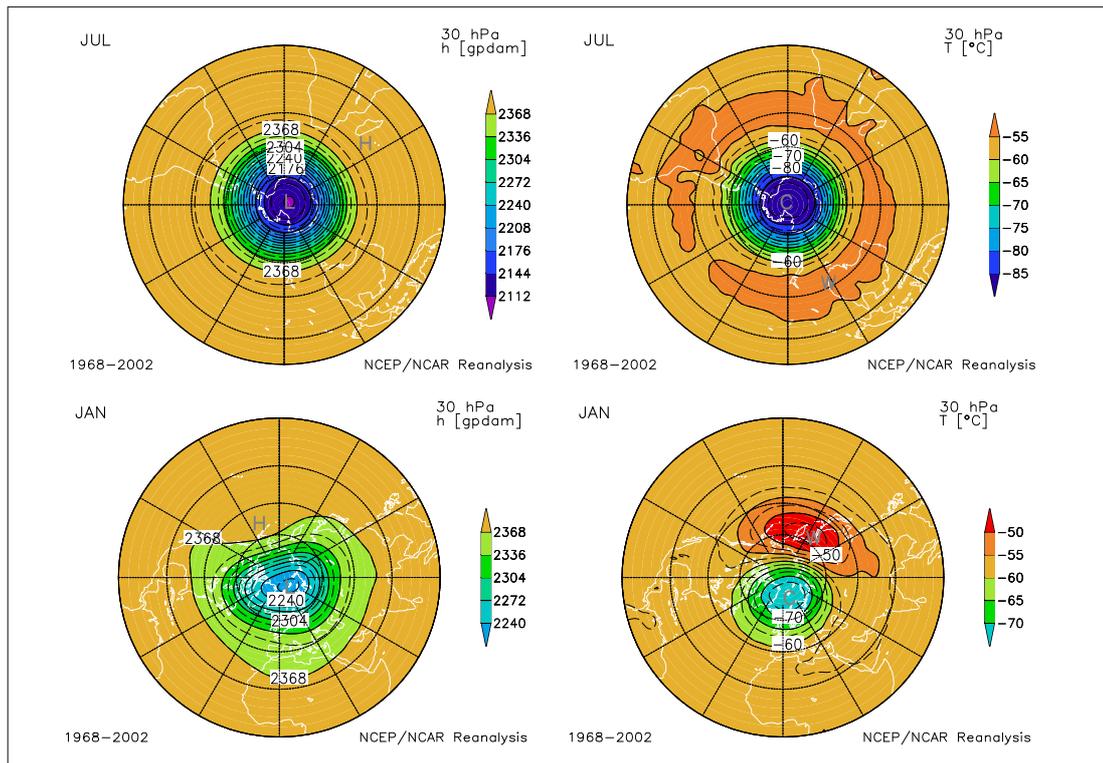


Abb. 2.8.: 30-hPa-Monatsmittelkarten oben für die Südhemisphäre im Juli und unten für die Nordhemisphäre im Januar: geopotentielle Höhe (links) und Temperatur (rechts)

Polarwirbel wird abgeschwächt. Dies führt zu einer Störung des geostrophischen Gleichgewichtes und durch den Coriolis-Effekt zu einer meridionalen, polwärts gerichteten Strömung. Der Luftmassentransport in Richtung Pol ist mit einer Druckerhöhung über den polaren Breiten verbunden, die eine adiabatische Kompression und somit eine Erwärmung der Luftmassen zur Folge hat (siehe auch Abschnitt 2.3.4).

Auf der Südhemisphäre ist die Aktivität der planetarischen Wellen und damit auch die Variabilität der Stratosphäre geringer als auf der Nordhemisphäre. Über der Antarktis kann sich daher i. Allg. ein ungestörter Polarwirbel entwickeln. Dieser Wirbel liegt zusammen mit dem Kältegebiet, das sich zu Beginn des Winters ausprägt, zonal symmetrisch um den Südpol (siehe Abb. 2.8 oben). Auf der Nordhemisphäre bildet sich im Winter über dem Nordpazifik das sogenannte Aläutenhoch. Dieses warme, quasi-stationäre Hochdruckgebiet sorgt für eine Verschiebung des Polarwirbels in Richtung Europa. Dadurch liegen der arktische Polarwirbel und das mit ihm verbundene Kältegebiet nicht mehr symmetrisch über dem Pol, sondern ihre Zentren sind zur europäischen Arktis verschoben (siehe Abb. 2.8 unten). Aufgrund der geringeren Wellenaktivität ist der antarktische Polarwirbel im Mittel kälter und tiefer und mit stärkeren Westwinden verbunden als der Polarwirbel über der Arktis [z.B. Labitzke, 1999].

Planetarische Wellen sind auch die Ursache für *Stratosphärenenerwärmungen*, bei denen innerhalb weniger Tage ein extremer Temperaturanstieg in der Stratosphäre zu beobachten ist. Die hohe Variabilität auf der Nordhemisphäre ist zu einem Großteil auf diese plötzlichen Erwärmungen zurückzuführen. Stratosphärenenerwärmungen werden in Abhängigkeit vom Betrag des

Temperaturanstieges, von ihrer vertikalen und räumlichen Ausdehnung sowie von ihrem Einfluss auf die stratosphärische Zirkulation in verschiedenen Typen unterteilt [Naujokat, 1992; Labitzke, 1999]:

- *Canadian Warmings* (Kanadische Erwärmungen)  
treten auf der Nordhemisphäre im Frühwinter (November oder Dezember) auf. Sie entstehen in der unteren Stratosphäre durch die Verstärkung des Aläutenhochs, das sich polwärts nach Kanada verlagert. Kanadische Erwärmungen können die Umkehr des Temperaturgradienten zwischen Pol und mittleren Breiten zu positiven Werten bewirken und z.T. sogar eine kurzzeitige Umkehr der Zirkulation zu Ostwinden in 60°N zur Folge haben. Sie führen aber nicht zu einem Zusammenbruch des Polarwirbels.
- *Minor Warmings* (kleine Erwärmungen)  
sind durch einen starken Temperaturanstieg von mindestens 25 K innerhalb einer Woche in einer beliebigen stratosphärischen Schicht in irgendeinem Gebiet der Winterhemisphäre definiert. Sie können zwar zu einem positiven Temperaturgradienten zwischen Pol und mittleren Breiten führen, der Polarwirbel bleibt jedoch relativ unbeeinflusst, so dass es nicht zu einer Umstellung der Zirkulation auf Ostwinde in 10 hPa oder darunter kommt. Minor Warmings sind in der oberen Stratosphäre (oberhalb von 10 hPa) stärker ausgeprägt als in den unteren Schichten; z.T. bleiben sie auch auf die obere Stratosphäre beschränkt. Sie treten auf der Nordhemisphäre in unterschiedlicher Stärke in jedem Winter auf. Aufgrund der bereits beschriebenen geringeren Wellenaktivität auf der Südhemisphäre sind Minor Warmings hier seltener zu beobachten als in nördlichen Breiten.
- *Major Warmings* (große Erwärmungen)  
haben – wie Minor Warmings – eine Erwärmung des Polargebietes mit einer Umkehr des meridionalen Temperaturgradienten zur Folge. Sie führen aber zusätzlich zu einem Zusammenbruch des Polarwirbels. In 10 hPa oder darunter liegen dann polwärts von 60° Breite Ostwinde vor, d.h. der Polarwirbel ist während eines Major Warmings sehr stark in Richtung mittlere Breiten verschoben und kann dabei auch geteilt sein. Im Anschluss an ein Major Warming bildet sich der Polarwirbel wieder aus. Major Warmings ereignen sich über der Arktis von Dezember bis Februar – allerdings nicht in jedem Winter. Zwei Major Warmings pro Winter sind sehr selten<sup>13</sup> [Naujokat et al., 2002]. Auf der Südhemisphäre wurde bisher nur ein Major Warming im September 2002 beobachtet [Roscoe et al., 2005; Naujokat und Roscoe, 2005].
- *Final Warmings* (Frühjahrserwärmungen)  
führen zur endgültigen Umstellung auf sommerliche Temperatur- und Zirkulationsbedingungen. Diese Umstellung kann allmählich geschehen. Sie kann aber auch wie bei einem Major Warming innerhalb weniger Tage ablaufen. In diesem Fall wird die Erwärmung als *Major Final Warming* bezeichnet. Der Zeitpunkt des Final Warmings variiert stark von Jahr zu Jahr, es werden daher frühe und späte Final Warmings unterschieden.

---

<sup>13</sup> Seit 1952 wurden lediglich in zwei Wintern (1998/99 und 2001/02) zwei Major Warmings beobachtet [Naujokat et al., 2002 und dort genannte Referenzen].

### 2.3.3. Variabilität der tropischen Stratosphäre

In den Tropen wird die Variabilität der Stratosphäre durch zwei Phänomene geprägt. Der zonale Wind<sup>14</sup> in der unteren und mittleren Stratosphäre wird von der QBO (*Quasi-Biennial Oscillation*) – einer annähernd zweijährigen Schwingung – dominiert. In der oberen Stratosphäre und der unteren Mesosphäre herrscht eine halbjährliche Schwingung des zonalen Windes – die SAO (*Semiannual Oscillation*) – vor. Im Folgenden soll auf die beobachtete Struktur des zonalen Windes in den Tropen eingegangen werden. Eine ausführliche Beschreibung der QBO und ihrer Dynamik wird von Baldwin et al. [2001] und Marquardt [1998] gegeben. Naujokat [1986] erstellte auf der Basis von Radiosondenmessungen einen Datensatz zur QBO, der laufend aktualisiert wird<sup>15</sup>. Die SAO und die sie anregenden Wellen werden beispielsweise von Ray et al. [1998] beschrieben.

Der zonale Wind in den Tropen wird inzwischen weitgehend realistisch in den Analysen und Reanalysen (ERA-40) des ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts) wiedergegeben [Naujokat, 2005; Baldwin und Gray, 2005]. Da Radiosondendaten nur bis maximal ca. 10 hPa vorliegen, wird in Abbildung 2.9 auf ECMWF-Daten zurückgegriffen, um den zonalen Wind für einen Gitterpunkt in den Tropen in einem Zeit-Höhen-Schnitt darzustellen.

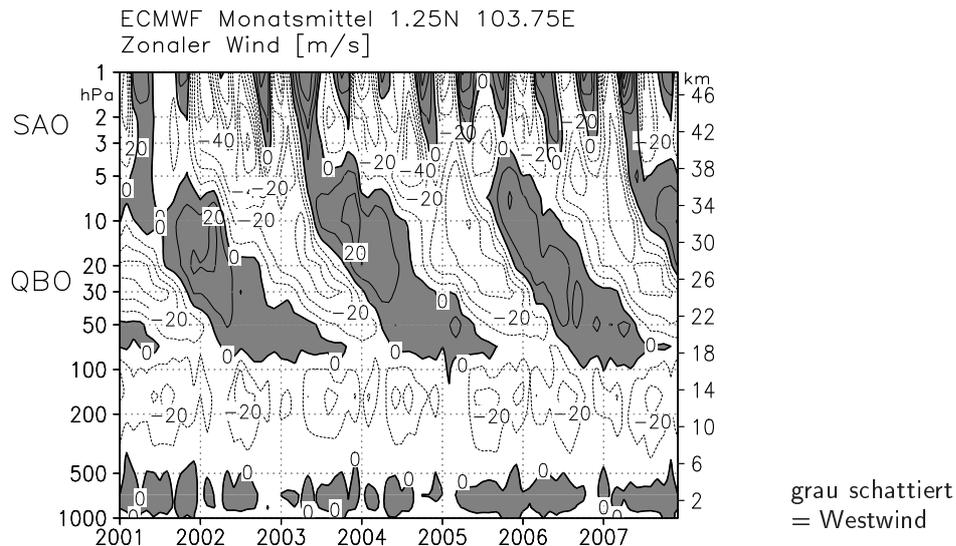


Abb. 2.9.: Zeit-Höhen-Schnitt der Monatsmittel des zonalen Windes am Gitterpunkt 1,25°N, 103,75°E (Singapur) aus ECMWF-Daten

In der unteren und mittleren Stratosphäre (100–10 hPa, 16–32 km) sind in Abbildung 2.9 sich abwechselnde Ost- und Westwind-Regime zu erkennen, die sich mit der Zeit von oben nach unten durchsetzen. Die Periode dieser Schwingung schwankt zwischen 22 und 34 Monaten, im Mittel beträgt sie 28 Monate. Die Westwinde setzen sich schneller und regelmässiger durch als die Ostwinde. Häufig verzögert sich der Übergang zur Ostwind-Phase zwischen 30 und 50 hPa (ca. 25 bzw. 21 km). Die maximalen Amplituden beider Phasen liegen um 20 hPa. Dabei sind die Ostwinde i. Allg. stärker als die Westwinde. Sowohl die Dauer als auch die Amplituden

<sup>14</sup> Wind in Ost-/West-Richtung; Ostwind (negativ): Wind aus Ost; Westwind (positiv): Wind aus West

<sup>15</sup> siehe <http://www.geo.fu-berlin.de/met/ag/strat/produkte/qbo/index.html>

variieren sehr stark von Zyklus zu Zyklus. Die Amplitude der QBO folgt annähernd einer Gauss-Verteilung um den Äquator mit dem Halbwert bei  $12^\circ$  geografischer Breite. Die QBO-Phase weist eine geringe Abhängigkeit von der geografischen Breite auf. Amplitude und Phase der QBO sind annähernd unabhängig von der geografischen Länge, d.h. in der Nähe des Äquators kann die QBO unabhängig von der Radiosondenstation (bzw. dem Gitterpunkt in einem Modell) beobachtet (bzw. simuliert) werden. An der tropischen Tropopause (in 100 hPa) verschwindet die QBO. Oberhalb der mittleren Stratosphäre setzt sich die QBO fort. Die Amplitude sinkt im Stratopausenniveau (1 hPa) auf ca. 5 m/s und wird ab ca. 5 hPa von der SAO überlagert [Baldwin et al., 2001; Naujokat, 1986; siehe auch Abb. 2.9].

Die SAO ist eine periodische Schwingung, bei der sich Ost- und Westwinde innerhalb eines halben Jahres abwechseln. Sie dominiert das Windregime in den Tropen in der oberen Stratosphäre und der unteren Mesosphäre. Die größte Amplitude der SAO liegt im Stratopausenniveau oder etwas darüber. Das Maximum der Ostwinde tritt während der Sonnenwende (Dezember bzw. Juni), das Maximum der Westwinde während der Tagundnachtgleiche (März bzw. Oktober) auf (vgl. auch Abb. 2.9). Während der Übergang von der Ost- zur Westphase in den oberen Schichten beginnt und sich zeitverzögert nach unten durchsetzt, tritt der Übergang von der West- zur Ostphase in allen Schichten in etwa gleichzeitig auf. Die Amplitude der SAO ist in der ersten Jahreshälfte stärker ausgeprägt als in der zweiten. Sowohl die Phase als auch die Amplitude der SAO sind abhängig von der geografischen Breite. In den südlichen Subtropen ist die Amplitude der SAO am größten. Der Beginn eines SAO-Zyklus erfolgt in den nördlichen Subtropen früher als in anderen Regionen. Die Stärke der SAO ist abhängig von der QBO-Phase. In der Westphase der QBO ist die Westphase der SAO schwächer ausgebildet als in der Ostphase der QBO [Ray et al., 1998].

### 2.3.4. Die globale Zirkulation

Die Zirkulation in der Stratosphäre wird durch Strahlungsprozesse sowie durch Wechselwirkungen zwischen Wellen und dem zonalen Grundstrom bestimmt. Die in der Stratosphäre dominierenden zonalen Strömungen entstehen aufgrund unterschiedlicher, breitenabhängiger solarer Einstrahlung. Der sich ausbildende meridionale Temperaturgradient führt im geostrophischen Gleichgewicht über dem Winterpol zu zonalen Westwinden (siehe Abschnitt 2.3.1) und über dem Sommerpol entsprechend zu Ostwinden.

Die großräumigen meridionalen und vertikalen Bewegungen in der mittleren Atmosphäre sind in Abbildung 2.10 durch weiße Pfeile dargestellt. Sie sind im Vergleich zu den zonalen Winden sehr langsam und werden durch in der Troposphäre angeregte Wellen verursacht (durch die sogenannte "wellenangetriebene extratropische Pumpe", englisch: wave-driven extratropical pump [Holton et al., 1995]). Dabei spielen neben den bereits erwähnten planetarischen Wellen v.a. Schwerewellen eine Rolle, die durch die Wirkung der Schwerkraft auf vertikal verschobene Luftpakete entstehen. Die Wellen können sich in die Stratosphäre und Mesosphäre ausbreiten und brechen, so dass eine westwärts gerichtete Kraft erzeugt wird. Dadurch wird ein meridionaler – von den Tropen polwärts gerichteter – Massentransport induziert, der über dem Winterpol eine adiabatische Erwärmung zur Folge hat (siehe Abschnitt 2.3.2). Die Luftmassen erwärmen sich

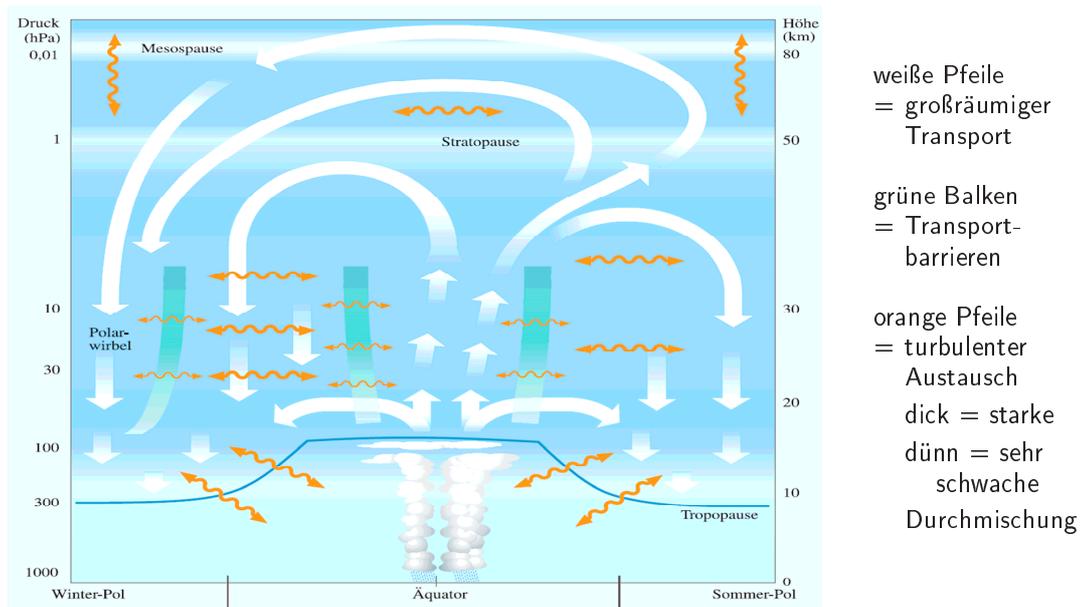


Abb. 2.10.: Schema der globalen Meridionalzirkulation [Schmidt et al., 2002]

dabei auf Temperaturen oberhalb des Strahlungsgleichgewichtes, womit ein zusätzliches diabatisches Absinken über dem Pol hervorgerufen wird. Die Wellendissipation – also die Übertragung von Impuls und Energie an den zonalen Grundstrom – findet in den Extratropen in der sogenannten Wellenbrecherzone (englisch: surf zone [McIntyre und Palmer, 1984]) statt. Sie geht einher mit einer starken horizontalen Durchmischung, die in Abbildung 2.10 anhand der dicken orangen Pfeile dargestellt ist. Über den Tropen findet als Ausgleich zum meridionalen Luftmassentransport ein großräumiges Aufsteigen statt. Die damit verbundene adiabatische Expansion bedingt eine Abkühlung unter die Strahlungsgleichgewichtstemperatur, die sich in der kalten tropischen Tropopause manifestiert. In der tropischen Stratosphäre zieht dies ein großräumiges diabatisches Aufsteigen nach sich, das in einem von den mittleren Breiten nahezu isolierten Bereich stattfindet [Plumb, 1996]. Ähnlich wie am Polarwirbelrand (siehe Abschnitt 2.3.1) lässt sich hier eine Transportbarriere beobachten (grüne Balken in Abb. 2.10), die einen horizontalen Luftmassenaustausch weitgehend verhindert und zu starken Gradienten in den beobachteten Spurengaskonzentrationen führt [z.B. Dessler, 2000].

Die beschriebene Meridionalzirkulation wurde schon früh vermutet. Bereits 1929 schlugen Dobson et al. ausgehend von Ozonbeobachtungen einen polwärtigen Transport der Luftmassen in der mittleren Atmosphäre mit einem Absinken über dem Pol vor. Die wenigen damals verfügbaren Messungen zeigten ein Ozonminimum in den Tropen und maximale Ozonkonzentrationen im Frühjahr über der Arktis. Da Ozon aufgrund der dort höheren Solarstrahlung (siehe auch folgendes Kap. 2.4) in tropischen Breiten produziert wird, konnte nur die vorgestellte Zirkulation die beobachteten Ozonkonzentrationen hervorrufen. Brewer [1949] erklärte den geringen Wasserdampfgehalt der Stratosphäre damit, dass die Luftmassen in den Tropen von der Troposphäre in die Stratosphäre gelangen. Lediglich die tropische Tropopause weist so geringe Temperaturen auf, dass der in der Troposphäre zu beobachtende Wasserdampf auf dem Weg in die Stratosphäre

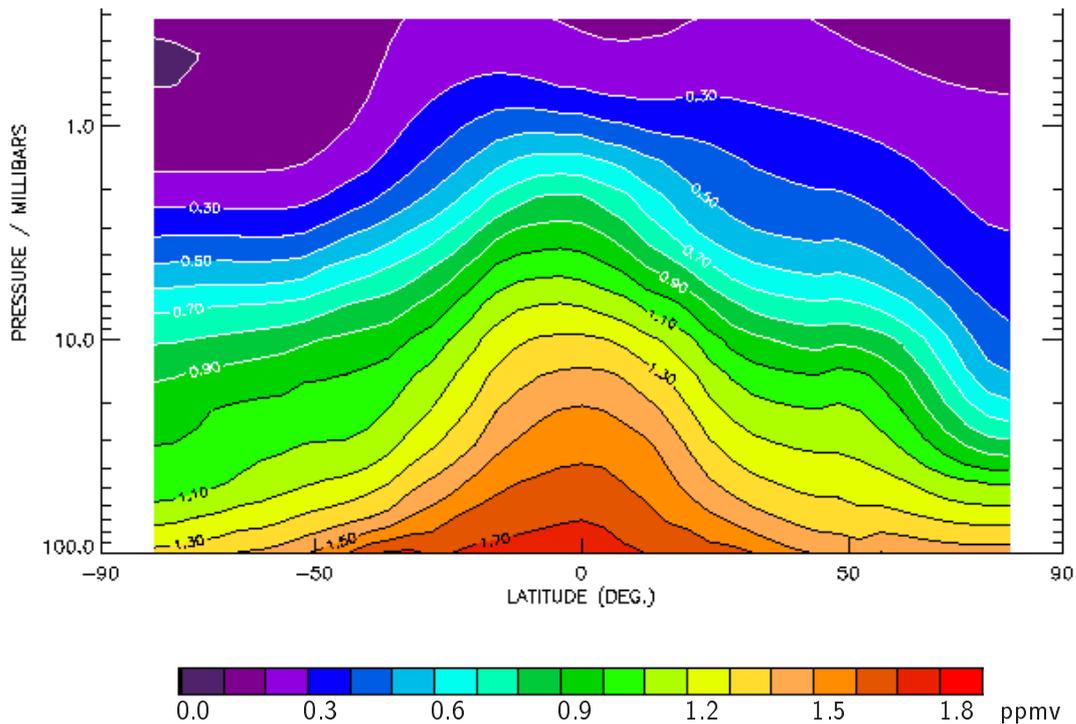


Abb. 2.11.: Zonal gemittelte Methan-Verteilung im Januar [URAP, 2001]

ausreichend kondensieren kann. Bei einem Luftmasseneintrag in mittleren oder hohen Breiten müsste sich aufgrund der dort höheren Tropopausentemperaturen eine höhere Wasserdampfkonzentration in der Stratosphäre einstellen. Brewer [1949] ergänzte die von Dobson et al. [1929] vorgeschlagene Zirkulation um einen aufsteigenden Ast in den Tropen. Weitere Spurengasmessungen von Dobson [1956] bestätigten die früheren Beobachtungen. Die globale Meridionalzirkulation wird heute auch als *Brewer-Dobson-Zirkulation* bezeichnet.

Aufgrund der Brewer-Dobson-Zirkulation ergibt sich für langlebige Spurengase (siehe Kap. 2.4) eine typische Verteilung, wie sie in Abbildung 2.11 für Methan dargestellt ist [vgl. auch Groß und Russell, 2005]. Das Aufsteigen in den Tropen hebt die Isoplethen – die Linien gleichen Mischungsverhältnisses – im Vergleich zu mittleren und hohen Breiten an. Die subtropische Mischungsbarriere zeigt sich in einem sprunghaften Abfall der Konzentration zwischen 20 und 30° geografischer Breite. Auch am Rand des Polarwirbels zwischen 60 und 70°N ist ein starker Gradient in der Spurengaskonzentration feststellbar. Durch das großräumige Absinken im Bereich des Polarwirbels und den nur geringen Luftmassenaustausch über den Polarwirbelrand sind die Isoplethen in hohen nördlichen Breiten im Vergleich zu den mittleren Breiten nach unten versetzt. Die Profile langlebiger Spurengase weisen damit im Winter innerhalb des Polarwirbel in der unteren Stratosphäre einen ausgeprägten vertikalen Gradienten mit nach oben abnehmenden Konzentrationen auf [vgl. Loewenstein et al., 1990]. Ab einer bestimmten Höhe, die von der Stärke des Absinkens abhängt, ergeben sich sehr niedrige, annähernd konstante Spurengaswerte. Auf der Südhemisphäre fehlt aufgrund der Sommerzirkulation der Polarwirbelrand als Transportbarriere, so dass zwischen mittleren und hohen Breiten kaum Unterschiede in der Konzentration feststellbar sind (Abb. 2.11).

## 2.4. Atmosphärische Spurengase

Die Verteilung von Spurengasen in der Atmosphäre ist abhängig von chemischen Auf- und Abbauprozessen und – wie bereits dargestellt – von dynamischen Prozessen. Als Lebenszeit  $\tau_{global}$  eines Spurengases ist der Quotient aus der gesamten atmosphärischen Menge des Gases und der gesamten Verlustrate definiert [z.B. Dessler, 2000]. Die atmosphärische Lebenszeit eines Spurengases beschreibt die Zeitdifferenz zwischen der Entstehung bzw. Emission und der Zerstörung des Gases. Spurengase, deren chemische Lebenszeit  $\tau_{chemisch}$  größer ist als die Zeitskala, auf der dynamische Prozesse ablaufen ( $\tau_{dynamisch}$ ), können für die Untersuchung atmosphärischer Transportprozesse eingesetzt werden. Solche langlebigen Spurengase oder Tracer sind z.B. Methan und Distickstoffoxid. Im Folgenden wird zunächst auf Ozon eingegangen, dessen Konzentration in der Stratosphäre je nach Region und Jahreszeit entweder von chemischen oder von dynamischen Prozessen oder aus einer Kombination von beiden bestimmt wird [Dessler, 2000]. Zum Abschluss des Kapitels werden weitere Spurengase vorgestellt, die sich insbesondere zur Identifizierung mesosphärischer Luftmassen eignen.

### 2.4.1. Ozon ( $O_3$ )

Stratosphärisches Ozon kann energiereiche, ultraviolette Strahlung absorbieren und ist daher für die Biosphäre zum Schutz vor schädlicher Sonneneinstrahlung lebensnotwendig. Die Absorption (siehe Abschnitt 3.1.1) führt zu einer Temperaturerhöhung, so dass die Ozonkonzentration auch für die vertikale Temperaturverteilung der Atmosphäre eine entscheidende Rolle spielt (siehe Kap. 2.1). Ca. 90 % des in der Atmosphäre vorhandenen Ozons befinden sich in der Stratosphäre. Seine maximale Konzentration erreicht Ozon in einer Höhe von etwa 25 Kilometern [Dameris et al., 2007].

Die vertikale Ozonverteilung kann im Wesentlichen durch den *Chapman-Zyklus* erklärt werden [z.B. Dessler, 2000]:



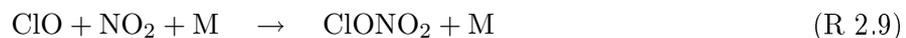
Unter solarer Einstrahlung mit einer Wellenlänge  $\lambda < 242$  nm dissoziiert molekularer Sauerstoff (R 2.1). Die so entstehenden Sauerstoffatome können mit einem Sauerstoffmolekül zu Ozon reagieren. Für diese Reaktion (R 2.2) ist zum Ausgleich der Energie- und Impulsbilanz ein Stoßpartner M erforderlich, so dass sie mit zunehmender Höhe wegen der abnehmenden Dichte langsamer abläuft. Der Ozonabbau erfolgt über eine Photodissoziation bei  $\lambda < 1200$  nm. Auch durch die Reaktion R 2.4 wird ein Ozonmolekül zerstört. Es bildet sich wieder atomarer Sauerstoff und der Zyklus ist geschlossen. Unter dem so beschriebenen photochemischen Gleichgewicht werden die tatsächlich beobachteten Ozonkonzentrationen fast um einen Faktor 2 überschätzt [z.B. Dameris et al., 2007] und die Ozonschicht – der Höhenbereich mit der maximalen Ozonkonzentration – liegt höher als in der Realität [z.B. Dütsch, 1970].

Erst die Berücksichtigung weiterer *katalytischer Abbaureaktionen* ermöglicht eine auch quantitativ richtige Beschreibung der vertikalen Ozonverteilung. Bei diesen Reaktionen wird Ozon bzw. atomarer Sauerstoff abgebaut, ohne dass der an der Reaktion beteiligte Katalysator X verbraucht wird. Ein solcher Ozonabbauzyklus ist z.B.:



Mögliche Katalysatoren X sind die Radikale OH, NO, Cl, Br und I. Es sind viele weitere katalytische Abbauzyklen bekannt, die häufig über mehr Reaktionsgleichungen führen als der hier angegebene Zyklus und an denen z.T. mehrere Katalysatoren beteiligt sind [siehe z.B. Dessler, 2000 und dort genannte Referenzen].

Die Ozonabbauzyklen laufen solange ab, bis sich durch Reaktionen zwischen den Katalysatoren sogenannte *Reservoirgase* bilden. Solche Kettenabbruchreaktionen sind z.B.:



Die Reservoirgase sind stabiler als die Radikale und nicht am Ozonabbau beteiligt. Sie können aber unter dem Einfluss von Sonnenlicht über photolytische Reaktionen dissoziieren, so dass die Radikale reaktiviert werden und erneut katalytische Ozonabbaureaktionen ablaufen können.

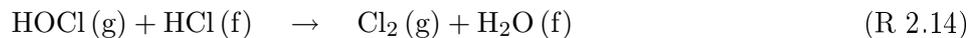
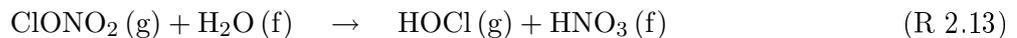
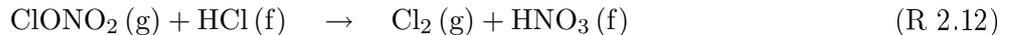
Die natürliche globale Ozonverteilung lässt sich aus dem Zusammenwirken der beschriebenen chemischen Reaktionen und der Dynamik der Stratosphäre erklären. Ozon wird aufgrund der einfallenden Solarstrahlung hauptsächlich in den Tropen produziert. Über die Brewer-Dobson-Zirkulation wird das Ozon aus seinem Entstehungsgebiet zu mittleren und hohen Breiten transportiert, so dass in den Tropen ein Ozonminimum entsteht. Während der Polarnacht ist aufgrund der fehlenden Solarstrahlung der Ozonabbau, der aus den bisher beschriebenen Reaktionen resultiert, stark eingeschränkt. Im Laufe des Winters kann das Ozon daher innerhalb des Polarwirbels akkumulieren und absinken, so dass die höchsten Ozonwerte im Frühjahr in den Polarregionen auftreten.

Seit Beginn der 1980er Jahre zeigt sich jedoch über der Antarktis anstelle des Frühjahrsmaximums ein ausgeprägtes Ozon-Minimum [Farman et al., 1985]. Im Oktober ist hier fast das gesamte Ozon im Höhenbereich zwischen 14 und 21 Kilometern zerstört. Der Gesamtzongehalt sinkt dabei auf Werte unter 220 DU<sup>16</sup> ab, was als Ozonloch definiert wird [z.B. Dameris et al., 2007]. Auch über der Arktis lässt sich im Spätwinter und Frühjahr ein Ozonabbau feststellen, der aber nicht zu Ozonwerten unterhalb von 220 DU führt. Der Ozonabbau auf der Nordhemisphäre unterliegt außerdem von Jahr zu Jahr sehr großen Variationen. Eine Ursache für den starken Ozonabbau ist das Halogen-Budget in der Stratosphäre, das aufgrund anthropogener Emissio-

<sup>16</sup> Die Gesamtmenge an Ozon in einer Säule über einem bestimmten Ort wird häufig in Dobson-Einheiten (englisch: Dobson units, DU) angegeben. Dobson-Einheiten sind ein Maß für die Höhe einer reinen Ozonsäule unter Standardbedingungen (273 K, 1013 hPa). 300 DU entsprechen unter Standardbedingungen einer Höhe der Ozonsäule von 3 mm.

nen von Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen (FCKW) und weiterer halogenhaltiger Verbindungen stark angestiegen ist. Desweiteren ist entscheidend für den Ozonabbau, ob die Temperaturen in der winterlichen Stratosphäre tief genug sind ( $< 195\text{ K}$ ), um die Bildung sogenannter *polarer stratosphärischer Wolken* (englisch: polar stratospheric clouds, PSCs) zu ermöglichen.

An den PSCs laufen *heterogene Reaktionen* ab, die für die gleiche Spezies i. Allg. schneller sind und weniger Aktivierungsenergie benötigen als die bereits beschriebenen Gasphasenreaktionen. Durch die heterogenen Reaktionen werden Cl- und Br-Verbindungen, die in den Reservoirgasen gebunden sind, in kurzlebige Halogenverbindungen überführt (*Chlor- bzw. Bromaktivierung*). Beispielsweise wird mit den folgenden Reaktionen molekulares Chlor freigesetzt, wobei (g) für die Gasphase und (f) für die feste Phase steht:



Gleichzeitig werden durch diese Reaktionen die reaktiven Stickstoffverbindungen NO und NO<sub>2</sub>, die auch als NO<sub>x</sub><sup>17</sup> zusammengefasst werden, in das Reservoir HNO<sub>3</sub> überführt. Bei Sedimentation der PSC-Partikel wird NO<sub>x</sub> damit irreversibel aus der entsprechenden stratosphärischen Schicht entfernt (*Denitrifikation*) und steht nicht mehr für Kettenabbruchreaktionen zur Verfügung (siehe R 2.9–R 2.11). Unter Sonneneinstrahlung photolysiert molekulares Chlor leicht zu Chlorradikalen, so dass mit dem Ende der Polarnacht über den katalytischen Zyklus (R 2.5–R 2.6) Ozon abgebaut werden kann. Allerdings ist die Konzentration an atomarem Sauerstoff aufgrund der noch geringen solaren Einstrahlung zu klein, um den beobachteten Ozonabbau zu erklären.

Bei Vorliegen sehr hoher ClO-Konzentrationen kann sich das thermisch instabile Dimer Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> bilden und der Ozonabbau kann auch in Abwesenheit von Sauerstoffatomen erfolgen [Molina und Molina, 1987]:



Dieser ClO-ClO-Zyklus läuft am effektivsten bei tiefen Temperaturen (wegen R 2.15) unter Sonnenlicht (wegen R 2.16) ab. In einem weiteren Zyklus erfolgt der Ozonabbau ebenfalls in Abwesenheit von Sauerstoffatomen über ClO und BrO [McElroy et al., 1986]. Inwieweit der beobachtete Ozonabbau anhand dieser Reaktionen annähernd vollständig beschrieben wird, ist zur Zeit Gegenstand der wissenschaftlichen Diskussion [von Hobe, 2007 und dort genannte Referenzen]. Neue Laboruntersuchungen [Pope et al., 2007] und Flugzeugmessungen [Schofield et al., 2008] deuten darauf hin, dass die Reaktionsraten für R 2.15 und R 2.16 bisher überschätzt wurden.

<sup>17</sup> Mit einem Index werden Spezies einer Spurengasfamilie zusammengefasst, die relativ schnell untereinander reagieren, während ihre Summe konstant bleibt. Mit anderen Worten: NO und NO<sub>2</sub> haben eine sehr viel kürzere Lebenszeit als NO<sub>x</sub>. Dabei bezeichnet der Index x reaktive Spezies, die am katalytischen Ozonabbau beteiligt sind. Der Index y fasst die reaktiven Spezies und die Reservoirgase zusammen [Dessler, 2000].

Sind diese Untersuchungen richtig, dann würden sowohl der ClO-ClO- als auch der ClO-BrO-Zyklus langsamer ablaufen und zu weniger Ozonabbau führen, als bisher angenommen und es müsste ein weiterer bisher unbekannter Mechanismus zum Ozonabbau existieren [z.B. von Hobe, 2007].

Sowohl die PSC-Bildung als auch der Dimer-Zyklus sind stark von der Temperatur und damit von den meteorologischen Bedingungen abhängig. Wie in Abschnitt 2.3.2 erläutert wurde, ist der Polarwirbel auf der Südhemisphäre ungestörter und kälter als auf der Nordhemisphäre. Damit werden über der Antarktis regelmäßig die Temperaturen, die zur Bildung polarer stratosphärischer Wolken nötig sind, unterschritten. Seit Anfang der 1980er ist in jedem Frühjahr über der Antarktis ein Ozonabbau zu beobachten, der zu sehr kleinen Ozonsäulendichten mit Werten unterhalb von 220 DU führt. Auf der Nordhemisphäre ist der Ozonabbau wegen der höheren Temperaturen nicht so stark wie auf der Südhemisphäre. Die große Variabilität in der Stärke des Ozonabbaus über der Arktis ist auf die hohe dynamische Variabilität der polaren Stratosphäre auf der Nordhemisphäre zurückzuführen.

### 2.4.2. Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ )

Stickstoffdioxid ist ein reaktives Spurengas, das tagsüber mit Stickstoffmonoxid NO in einem photochemischen Gleichgewicht steht. Auch bei weiteren chemischen Reaktionen werden  $\text{NO}_2$  und NO schnell ineinander umgewandelt. Chemische Reaktionen anderer Stickstoffverbindungen sorgen für eine langsame Änderung des  $\text{NO}_x$ -Budgets – der Summe der reaktiven Stickstoffverbindungen NO und  $\text{NO}_2$ . Für  $\text{NO}_2$  ergibt sich ein ausgeprägter Tagesgang, der beim Vergleich zwischen zwei Messungen berücksichtigt werden muss und hier anhand der wesentlichen chemischen Reaktionen kurz vorgestellt wird.

Die Hauptquelle für  $\text{NO}_x$  in der Stratosphäre ist  $\text{N}_2\text{O}$ , das in der Troposphäre entsteht. Auf dieses langlebige Spurengas wird in Abschnitt 2.4.3 eingegangen. Stickstoffverbindungen entstehen in der Stratosphäre auch durch die Dissoziation von  $\text{N}_2$ , die durch solare Protonen und kosmische Strahlung verursacht wird. Außerdem können Stickstoffverbindungen, die in der Mesosphäre und Thermosphäre durch Photolyse und Dissoziation von  $\text{N}_2$  produziert werden, im Winter und Frühjahr durch großräumiges Absinken in die polare Stratosphäre eingetragen werden [Dessler, 2000, siehe auch Kap. 2.3]. In einigen Wintern kommt es bedingt durch eine besondere meteorologische Situation zu einem verstärkten Absinken von Luftmassen aus höheren Schichten in die Stratosphäre, was in Kapitel 7 für den arktischen Winter 2002/03 anhand von Trajektorienrechnungen untersucht wird. Solare Ereignisse, bei denen eine verstärkte Emission von solaren Protonen mit höherer Energie oder von energiereichen Partikeln auftritt, führen sporadisch v.a. in der oberen Atmosphäre zu einer erhöhten Produktion von Stickstoffverbindungen [z.B. Vogel et al., 2008 und dort genannte Referenzen]. Die Auswirkungen dieser solaren Ereignisse auf das  $\text{NO}_x$ -Budget [z.B. Funke et al., 2005; Seppälä et al., 2007] und den damit zusammenhängenden Ozonabbau [z.B. Konopka et al., 2007; Vogel et al., 2008] in der Stratosphäre sind Gegenstand aktueller Untersuchungen.

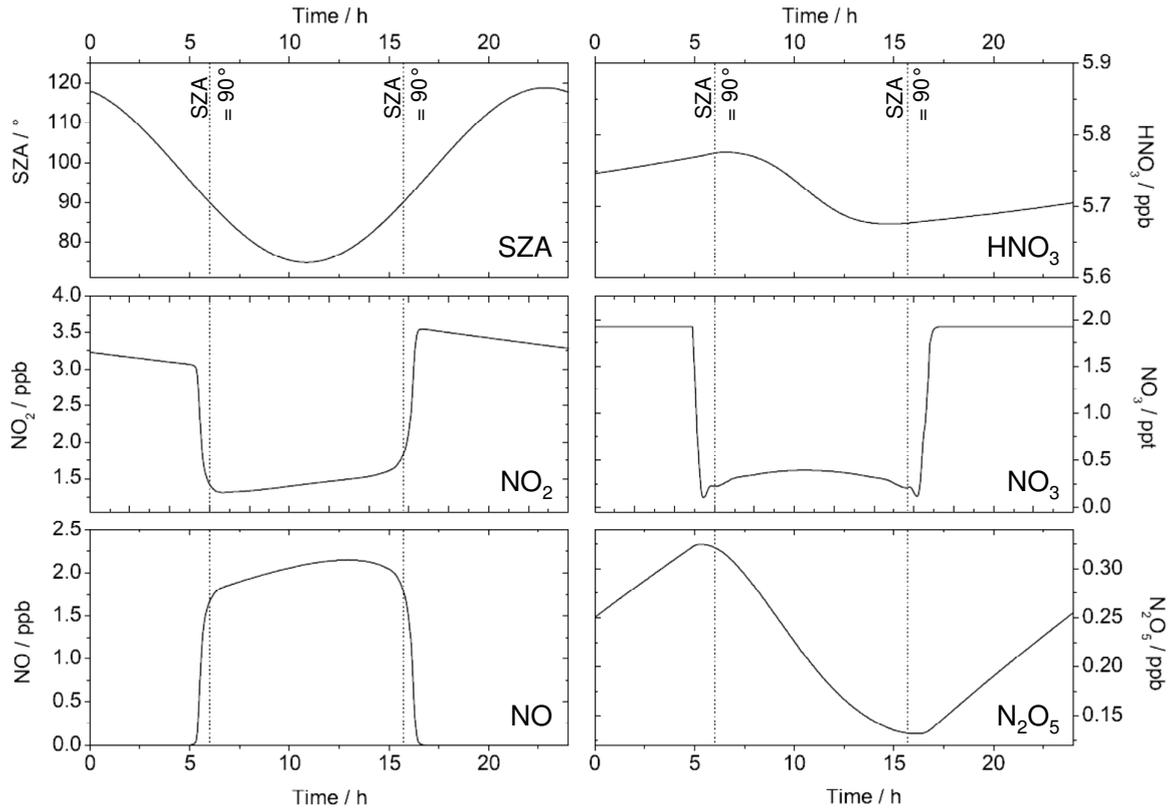
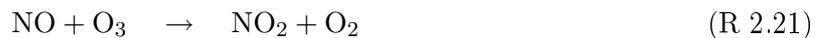


Abb. 2.12.: Zeitliche Entwicklung verschiedener Stickstoffverbindungen in Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel (SZA) aus einem Chemie-Modell für die Stratosphäre bei  $\Theta = 615 \text{ K}$  (ca. 25 km) [nach Butz, 2006]

In der oberen Stratosphäre wird  $\text{NO}_x$  in das inerte<sup>18</sup>  $\text{N}_2$  überführt [Dessler, 2000]:



$\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  werden beim katalytischen Ozonabbau (siehe R 2.5–R 2.6) schnell ineinander umgewandelt:



Anstelle der Reaktion R 2.22 kann  $\text{NO}_2$  auch photolytisch dissoziieren. Da das dabei entstehende Sauerstoffatom zu Ozon reagieren kann (siehe R 2.2), wird in diesem Fall kein Ozon zerstört:



Die Umwandlung von  $\text{NO}$  zu  $\text{NO}_2$  kann auch über verschiedene Reaktionen ohne Ozon ablaufen, beispielsweise durch eine Reaktion mit  $\text{ClO}$ :



Während des Tages stehen  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  in einem photolytischen Gleichgewicht. Mit dem Einsetzen der Dämmerung lässt die  $\text{NO}_2$ -Photolyse (R 2.23) nach, so dass  $\text{NO}$  schnell in  $\text{NO}_2$  umgewandelt wird. Dieses reagiert mit Ozon zu  $\text{NO}_3$ :

<sup>18</sup> reaktionsträge



Unter dem Einfluss von Sonnenlicht photolysiert  $\text{NO}_3$  sehr schnell zu  $\text{NO}_2$  oder  $\text{NO}$ , daher ist tagsüber kaum  $\text{NO}_3$  vorhanden. Während der Nacht reagiert es mit  $\text{NO}_2$  zum Reservoir  $\text{N}_2\text{O}_5$ :



Tagsüber erfolgt eine langsame Photolyse von  $\text{N}_2\text{O}_5$  zu  $\text{NO}_2$  und  $\text{NO}_3$ . Weitere Reservoirgase ( $\text{HNO}_3$ ,  $\text{ClONO}_2$  und  $\text{BrONO}_2$ ) entstehen über die bereits beschriebenen Kettenabbruchreaktionen R 2.9–R 2.11, die den katalytischen Ozonabbau begrenzen.

Abbildung 2.12 zeigt den typischen Tagesgang für  $\text{NO}_2$  und einige weitere Stickstoffverbindungen. In der Nacht liegt das gesamte  $\text{NO}_x$  als  $\text{NO}_2$  vor. Aus  $\text{NO}_2$  und  $\text{NO}_3$  wird im Laufe der Nacht  $\text{N}_2\text{O}_5$  gebildet (R 2.26), so dass die  $\text{NO}_2$ -Konzentration allmählich absinkt. Mit dem Sonnenaufgang setzt die  $\text{NO}_2$ -Photolyse (R 2.23) ein, was mit einem sprunghaften Abfall der  $\text{NO}_2$ -Konzentration und einem ebenso rapiden Anstieg der  $\text{NO}$ -Konzentration verbunden ist. Aus der sehr langsamen  $\text{N}_2\text{O}_5$ -Photolyse erwächst während des Tages eine kontinuierliche Zunahme von  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  bei gleichzeitiger Abnahme der  $\text{N}_2\text{O}_5$ -Konzentration. Mit dem Sonnenuntergang hören die Photolyse-Reaktionen auf, so dass  $\text{NO}$  schnell vollständig zu  $\text{NO}_2$  reagiert. Der ausgeprägte  $\text{NO}_2$ -Tagesgang erschwert den Vergleich zweier Messungen, die nicht genau zur gleichen Tageszeit am gleichen Ort erfolgen. Um solche Messungen untereinander vergleichbar zu machen, muss eine photochemische Korrektur erfolgen (siehe Abschnitt 6.3.1).

### 2.4.3. Die langlebigen Spurengase Distickstoffoxid ( $\text{N}_2\text{O}$ ) und Methan ( $\text{CH}_4$ )

Distickstoffoxid  $\text{N}_2\text{O}$ , das auch als Lachgas bezeichnet wird, ist ein stabiles Molekül mit troposphärischem Ursprung. Die wichtigsten natürlichen Quellen sind die Ozeane und die tropischen Regenwäldern. Landwirtschaft, Viehzucht und Biomasseverbrennung bilden die größten anthropogenen Quellen.  $\text{N}_2\text{O}$  ist ein Treibhausgas mit einer atmosphärischen Lebenszeit von ca. 120 Jahren [WMO, 2007]. Das  $\text{N}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis in der Troposphäre betrug im Jahr 2005 laut IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) 319 ppb<sup>19</sup> mit einem Anstieg von ca. 8 ppt<sup>19</sup> pro Jahr innerhalb der letzten zwei Dekaden [Forster et al., 2007]. Aufgrund seiner Stabilität wird es unverändert in die Stratosphäre transportiert, wo es photolysiert und hauptsächlich über eine Reaktion mit atomarem Sauerstoff die Hauptquelle für  $\text{NO}_x$  bildet [Dessler, 2000]:



Die Photolysereaktion R 2.27 ist für ca. 90% des  $\text{N}_2\text{O}$ -Abbaus in der Stratosphäre verantwortlich, die Reaktionen R 2.28 und R 2.29 tragen zu 6–7% bzw. 3–4% zum  $\text{N}_2\text{O}$ -Abbau bei. Die Abbaureaktionen führen in der Stratosphäre i. Allg. zu einer kontinuierlichen Abnahme der  $\text{N}_2\text{O}$ -Konzentration mit der Höhe. Infolge solarer Störungen (siehe Abschnitt 2.4.2) kann die  $\text{N}_2\text{O}$ -Konzentration aber auch in oberen Schichten sporadisch erhöht sein [z.B. Funke et al., 2008a,b].

<sup>19</sup> 1 ppb (parts per billion) = 1 Teilchen pro  $10^9$  Luftteilchen

1 ppt (parts per trillion) = 1 Teilchen pro  $10^{12}$  Luftteilchen

Auch Methan  $\text{CH}_4$  wird in der Troposphäre emittiert und in der Stratosphäre abgebaut. Allerdings gibt es relevante Senken in der Troposphäre (Reaktionen mit OH bzw. Cl und Aufnahme durch den Erdboden), so dass die atmosphärische Lebenszeit von Methan mit ca. 9 Jahren [WMO, 1999] kleiner ist als die von  $\text{N}_2\text{O}$ . Die troposphärischen Quellen für Methan sind hauptsächlich biogene Prozesse z.B. in Feuchtgebieten und beim Reisanbau. Methan entsteht auch durch Biomasseverbrennung und bei der Viehzucht. Außerdem treten Methan-Emissionen bei industriellen Prozessen wie bei der Gewinnung und Verteilung von fossilen Brennstoffen auf [WMO, 2007]. 2005 betrug die Methan-Konzentration in der Troposphäre 1774 ppb. Dies entspricht einem Anstieg um ca. 30% seit dem Ende der 1970er. Die Anstiegsrate unterliegt starken Variationen von Jahr zu Jahr und hat in den letzten Jahren auf Werte nahe Null abgenommen [Forster et al., 2007]. Methan ist ein Treibhausgas und beeinflusst die stratosphärische Ozonchemie. Die Methan-Oxidation liefert einen wesentlichen Beitrag zum Wasserdampfgehalt der Stratosphäre. Sie führt zu einem Anstieg der  $\text{H}_2\text{O}$ - und einem Abfall der  $\text{CH}_4$ -Konzentration mit der Höhe [Dessler, 2000]. Bei der Oxidation von Wasser und Methan entstehen OH-Radikale, die über die katalytischen Reaktionszyklen (z.B. R 2.5–R 2.6) zum Ozonabbau beitragen. Über die Kettenabbruchreaktion R 2.8 stellt Methan eine Senke für das Cl-Radikal. Oberhalb der Stratopause wird Methan durch Photolyse abgebaut [Brasseur und Solomon, 2005].

Die Konzentrationen langlebiger Spurengase zeigen kompakte Korrelationen, die in Abhängigkeit von der meteorologischen Situation einen typischen Verlauf aufweisen [Plumb, 2007 und dort genannte Referenzen]. Aus der  $\text{CH}_4$ - $\text{N}_2\text{O}$ -Korrelation lassen sich daher Rückschlüsse auf Transportprozesse ziehen [Michelsen et al., 1998a]. Auch die Korrelation zwischen Ozon und langlebigen Spurengasen wie  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  zeigt einen typischen Verlauf [Michelsen et al., 1998b], der u.a. zur Berechnung des Ozonabbaus im Verlaufe eines Winters herangezogen werden kann [z.B. Tilmes et al., 2003].

#### 2.4.4. Spurengase zur Identifizierung mesosphärischer Luftmassen

Das Absinken im Winter innerhalb des Polarwirbels (siehe Abschnitt 2.3.1) kann dazu führen, dass Luftmassen aus der Mesosphäre in die Stratosphäre transportiert werden. Finden keine Mischungsprozesse mit Luftmassen stratosphärischen Ursprunges statt, dann bleibt ein hoher mesosphärischer Anteil auch in der Stratosphäre erhalten (siehe Kap. 7). Die Identifizierung solcher mesosphärischer Luftmassen ist anhand von Spurengasen möglich, die eine ausreichend große Lebenszeit haben und bei denen es gut messbare Unterschiede zwischen der Konzentration in der Stratosphäre und in der Mesosphäre gibt.

Die Mischungsverhältnisse von CO und NO sind in der Mesosphäre höher als in der Stratosphäre [Thomas, 1987; Solomon et al., 1987]. Beide Spurengase haben unter dem Einfluss von Sonnenlicht eine relativ kurze Lebenszeit. Gelangen diese Spurengase in hohen Breiten im Winter aber unter den Einfluss der Polarnacht, dann steigt ihre Lebenszeit an, so dass sich jeweils hohe Konzentrationen für CO und NO in der winterlichen Mesosphäre ergeben [Thomas, 1987; Solomon et al., 1987]. In der Stratosphäre kann aufgrund der Lebenszeit von CO erwartet werden,

dass die CO-Konzentration innerhalb von einigen Monaten ihre üblichen stratosphärischen Werte erreicht [Engel et al., 2006]. NO steht in der Stratosphäre im chemischen Gleichgewicht mit NO<sub>2</sub> und weiteren Stickoxidverbindungen, so dass die Summe der als NO<sub>y</sub> zusammengefassten Spurengase bei einem Eintrag mesosphärischer Luftmassen erhöht ist [Dessler, 2000; Engel et al., 2006; siehe auch Abschnitt 2.4.2].

SF<sub>6</sub> und CO<sub>2</sub> eignen sich aufgrund des Anstieges ihrer troposphärischen Konzentrationen zur Bestimmung des Alters der Luft [siehe Hall und Plumb, 1994]. Beide Spurengase werden in der oberen Atmosphäre durch Photolyse zerstört. Die CO<sub>2</sub>-Photolyse, bei der CO entsteht, ist unter Sonnenlicht bei einem Absinken der Luftmassen in die Stratosphäre über eine Reaktion von CO mit OH-Radikalen reversibel [Engel et al., 2006]. Für SF<sub>6</sub> existieren weitere Abbauprozesse in der Mesosphäre [siehe Reddmann et al., 2001], die eine genaue Bestimmung des Alters der Luft erschweren. Details zur Altersbestimmung aus CO<sub>2</sub> und SF<sub>6</sub> und den damit verbundenen Unsicherheiten finden sich z.B. in Strunk et al. [2000] und Engel et al. [2002].

Auf CH<sub>4</sub> und N<sub>2</sub>O, die als langlebige Spurengase ebenfalls zur Untersuchung von Transportprozessen anwendbar sind, wurde bereits im vorigen Abschnitt eingegangen. Weitere zur Identifizierung mesosphärischer Luftmassen geeignete Spurengase sind z.B. Wasserdampf [Kouker et al., 1995; Thomas, 1987] und H<sub>2</sub> [Le Texier et al., 1988].

## 3. Die Messung atmosphärischer Spurengase

Die Erfassung und kontinuierliche Überwachung der Zusammensetzung der Atmosphäre ist wichtig, um z.B. eine akute Gefährdung von Mensch und Umwelt durch schädliche Stoffe zu erkennen und durch entsprechende Gegenmaßnahmen zu vermeiden (z.B. Schadstoff-Filter in Industrieanlagen, Fahrverbote bzw. -einschränkungen für Fahrzeuge mit hohen Schadstoff-Emissionen). Sie ist aber auch unerlässlich, um auf längeren Zeitskalen Änderungen des Klimas feststellen zu können. Nur mit Hilfe langjähriger Datenreihen kann überprüft werden, inwieweit Klimamodelle die bisherige Entwicklung des Zustandes der Atmosphäre realistisch wiedergeben. Dies ist eine wesentliche Voraussetzung für die Berechnung von Zukunftsszenarien, auf deren Basis Maßnahmen zur Reduktion der Emissionen von Treibhausgasen [IPCC, 2007] und ozonzerstörenden Substanzen [WMO, 2007] abgeleitet werden können.

Über das angewendete Messverfahren wird die Genauigkeit sowie die zeitliche und räumliche Auflösung von Spurengasmessungen bestimmt. Auch die zwischen zwei unabhängigen Messungen erzielbare Übereinstimmung ist von den zugrundeliegenden Messverfahren abhängig. In Kapitel 3.1 werden einführend prinzipielle Verfahren zur Messung atmosphärischer Spurengase vorgestellt. Der Schwerpunkt liegt dabei auf optischen Verfahren, die sich auch zur Fernerkundung – beispielsweise mittels Satelliten – einsetzen lassen. Mit Hilfe von Satelliteninstrumenten ist es möglich, ein globales Bild der Atmosphärenzusammensetzung zu erhalten und – durch die Kombination der Daten mehrerer Instrumente – lange Zeitreihen zu erstellen. Mit dem europäischen Umwelt-Satelliten ENVISAT wurde 2002 ein weiterer Satellit in die Umlaufbahn gebracht, der u.a. Instrumente zur Erfassung atmosphärischer Spurengase an Bord hat. Auf diesen Satelliten und die Messgeräte an Bord wird in Kapitel 3.2 eingegangen. Mit ballongebunden Messgeräten, die in Kapitel 3.3 vorgestellt werden, können sehr genaue Spurengasprofile gemessen werden. Neben vielen weiteren Daten dienen die Messungen der Balloninstrumente u.a. dazu, die Qualität der aus den Satellitendaten abgeleiteten Spurengasprofile zu überprüfen. In Kapitel 3.4 wird dieser als *Validierung* bezeichnete Prozess vorgestellt und es werden verschiedene Verfahren zur Validierung von Satelliteninstrumenten diskutiert.

### 3.1. Prinzipielle Messverfahren und Grundlagen

Messverfahren zur Bestimmung der Konzentration von atmosphärischen Spurenstoffen lassen sich nach verschiedenen Kriterien klassifizieren. Ein wichtiges Unterscheidungsmerkmal stellt der

Ort der Probenahme bzw. der Signalerfassung dar. Es kann entweder eine sogenannte *in-situ*-Messung erfolgen, bei der die Luft direkt vor Ort analysiert bzw. in Probebehältern gesammelt wird oder es können *Fernerkundungsverfahren* angewendet werden, bei denen mit Hilfe optischer Sensoren die Eigenschaften entfernter Luftmassen ermittelt werden. Optische Verfahren können auch als *in-situ*-Messungen zum Einsatz kommen. Wird der zu bestimmende Strahlungstransfer durch eine interne Strahlungsquelle angeregt (z.B. mit Lasern), so wird das Verfahren als *aktives* Verfahren bezeichnet. Bei *passiven* Verfahren ist eine externe Strahlungsquelle (Sonne, Mond oder die thermische Strahlung der Atmosphäre selbst) vorhanden.

Als *in-situ*-Verfahren kommen die verschiedensten Messmethoden in Frage, so dass das angewendete Verfahren an das zu bestimmende Spurengas bzw. die Spurengasfamilie angepasst werden kann [z.B. Burrows et al., 2007]. Im Vergleich zu Fernerkundungsverfahren sind *in-situ*-Verfahren daher i. Allg. genauer. Außerdem ist die vertikale Auflösung bei *in-situ*-Messungen häufig besser als bei Fernerkundungsverfahren. Ein Nachteil der *in-situ*-Verfahren besteht in einer möglichen Veränderung der Probe während der Probenahme. So kann die Probe durch Ausgasungen aus Instrumententeilen kontaminiert oder über chemische Reaktionen mit der Oberfläche des Messgerätes verändert werden. Ehhalt [1980] und Burrows et al. [2007] geben einen Überblick über *in-situ*-Verfahren, die für stratosphärische Messungen angewendet werden, sowie über ihre Vor- und Nachteile.

Die physikalischen Prozesse, die mit den optischen Verfahren erfasst werden können, sowie ihre theoretischen Grundlagen werden in den folgenden Abschnitten kurz vorgestellt.

#### 3.1.1. Wechselwirkungen zwischen Atmosphäre und Strahlung

Elektromagnetische Strahlung führt auf ihrem Weg durch die Atmosphäre oder durch ein mit Luft gefülltes Probenvolumen zu Wechselwirkungen mit den Atomen oder Molekülen der Luftinhaltsstoffe. Dabei entstehen charakteristische, stoffspezifische Signaturen, die sich zur Detektion von Spurengasen nutzen lassen [z.B. Klein und Werner, 1993; Demtröder, 2000]. Abbildung 3.1 zeigt schematisch die verschiedenen Prozesse, die die Strahlungsübertragung beeinflussen. Der Strahlungstransport in der Atmosphäre wird z.B. von Liou [2002], Platt et al. [2007] sowie von Goody und Yung [1989] ausführlich diskutiert und soll hier nur einführend behandelt werden.

#### Streuung

Streuprozesse können einerseits zur Strahlungsabschwächung in Ausbreitungsrichtung führen, andererseits kann aus anderen Richtungen einfallende Strahlung in die betrachtete Raumrichtung gestreut werden, so dass sich der Strahlungsfluss erhöht. Die Strahlungsabschwächung über eine Schicht  $s$  lässt sich wie folgt beschreiben:

$$\frac{dI_{s^-}(\lambda)}{ds} = -k_s(\lambda)I_0(\lambda). \quad (3.1)$$

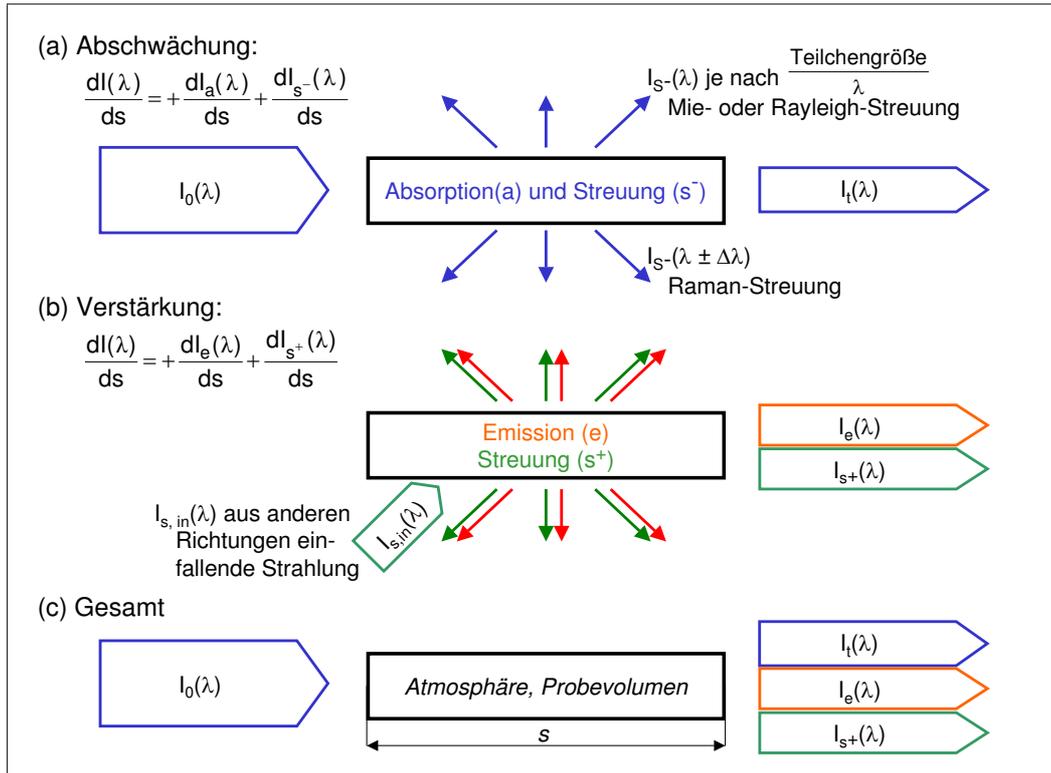


Abb. 3.1.: Schema der Prozesse bei der Strahlungsübertragung (siehe auch Text)

Durch Integration ergibt sich das Lambert-Beer-Gesetz<sup>1</sup> [z.B. Warnecke, 1997; Liou, 2002]:

$$I_t(\lambda) = I_0(\lambda)e^{-\int k_s(\lambda)ds}, \quad (3.2)$$

- mit  $\lambda$  = Wellenlänge [nm],  
 $I_0(\lambda)$  = einfallende Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],  
 $I_{s-}(\lambda)$  = gestreute Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],  
 $I_t(\lambda)$  = transmittierte Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],  
 $k_s$  = Streukoeffizient [ $\frac{1}{cm}$ ] und  
 $ds$  = Schichtdicke [cm].

Der Streukoeffizient  $k_s$  ist eine stoffspezifische Größe, die durch die Teilchenzahldichte und den Wirkungsquerschnitt bestimmt ist. Der Wirkungsquerschnitt ist temperatur- und druckabhängig.

$$k_s = \sigma_s n, \quad (3.3)$$

- mit  $\sigma_s$  = Wirkungsquerschnitt für Streuung [ $cm^2$ ] und  
 $n$  = Teilchenzahldichte (Anzahl der Moleküle pro Volumeneinheit) [ $\frac{1}{cm^3}$ ].

Die aus anderen Raumrichtungen in die Ausbreitungsrichtung gestreute Strahlung ergibt sich zu:

$$\frac{dI_{s+}(\lambda)}{ds} = k_s(\lambda) \frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} I(\lambda, \vec{\Omega}') P(\vec{\Omega}, \vec{\Omega}') d\vec{\Omega}', \quad (3.4)$$

<sup>1</sup> Das Gesetz wird auch als Lambert-Bouguer- bzw. im englischen Sprachraum als Beersches Gesetz bezeichnet.

mit	$\lambda$	=	Wellenlänge [nm],
	$\vec{\Omega}', \vec{\Omega}$	=	Raumwinkel [sr],
	$I(\lambda, \vec{\Omega}')$	=	aus dem Raumwinkel $\vec{\Omega}'$ einfallende Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],
	$I_{s+}(\lambda)$	=	in Richtung $\vec{\Omega}$ gestreute Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],
	$P(\vec{\Omega}, \vec{\Omega}')$	=	Phasenfunktion, die die Wahrscheinlichkeit dafür angibt, dass aus $\vec{\Omega}'$ einfallende Strahlung in Richtung $\vec{\Omega}$ gestreut wird [-],
	$k_s$	=	Streukoeffizient [ $\frac{1}{cm}$ ] und
	$ds$	=	Schichtdicke [cm].

### Rayleigh- und Mie-Streuung

Rayleigh- und Mie-Streuung sind elastische Streuungen, die die Wellenlänge der Strahlung nicht beeinflussen. Die einfallende Strahlung erfährt eine Änderung ihrer Richtung, so dass die Strahlung in der ursprünglichen Ausbreitungsrichtung abgeschwächt wird.

Für Teilchen, deren Radius  $r_{Teilchen}$  im Vergleich zur betrachteten Wellenlänge sehr klein ist, hängt die Streuung reziprok von der 4. Potenz der Wellenlänge des gestreuten Lichtes ab, d.h. es gilt:  $k_{s,Rayleigh} \sim \lambda^{-4}$ . Somit werden kürzere Wellenlängen stärker gestreut als längere. Dieser als Rayleigh-Streuung bezeichnete Prozess tritt an Luftmolekülen auf und führt zu einer gleichmäßigen Streuung in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung. Mie-Streuung erfolgt an Teilchen, deren Durchmesser gleich oder größer als die Wellenlänge der einfallenden Strahlung ist. Sie ist daher v.a. an festen oder flüssigen Aerosolen (z.B. Wolken) zu beobachten. Für den Streukoeffizienten gilt hier:  $k_{s,Mie} \sim 2\pi r_{Teilchen} \lambda^{-f}$ , wobei der Exponent  $f$  im Mittel ca. 1,3 beträgt. Die Mie-Streuung ist damit annähernd wellenlängenunabhängig und das gestreute Licht erscheint weiß (Wolken). Bei der Mie-Streuung überwiegt die Vorwärtsstreuung [z.B. Warnecke, 1997].

### Raman-Streuung

Die Raman-Streuung ist im Gegensatz zur Rayleigh- und Mie-Streuung eine inelastische Streuung, bei der sich die Intensität des Strahlungsfeldes ändert. Die molekülspezifische Verschiebung der Frequenz des einfallenden Photons kann sowohl zu einer Verstärkung als auch zu einer Abschwächung der einfallenden Strahlung führen. Durch die Änderung des Rotations- bzw. Vibrationszustandes des streuenden Moleküles entstehen mehrere eng beieinander liegende Banden im Raman-Spektrum. Die Wirkungsquerschnitte für die Raman-Streuung sind im Vergleich zur Rayleigh-Streuung sehr klein; beide Querschnitte unterscheiden sich i. Allg. um einen Faktor 1000. Daher ist eine messtechnische Ausnutzung der Raman-Streuung relativ schwierig [Klein und Werner, 1993]. Andererseits kann die Raman-Streuung insbesondere im UV-Bereich die Absorptionsstrukturen von schwachen Absorbern überlagern [Wagner et al., 2001]. Sie führt als sogenannter *Ringeffekt* zum Auffüllen (*“filling-in“*) der Fraunhofer-Linien<sup>2</sup> [Grainger und Ring, 1962]. Beim DOAS-Verfahren (siehe Abschnitte 3.1.2 und 3.3.1) werden verschiedene Methoden angewendet, um den Ringeffekt zu korrigieren [siehe z.B. Langford et al., 2007 und dort genannte Referenzen].

---

<sup>2</sup> Fraunhofer-Linien sind dunkle Linien im Sonnenspektrum. Sie entstehen dadurch, dass Gasatome in der Sonnenatmosphäre einen Teil des Sonnenlichtes absorbieren.

## Absorption und Emission

Der Energietransfer zwischen Strahlung und Materie basiert bei der Absorption und bei der Emission auf denselben physikalischen Wechselwirkungen. Während bei der Absorption die Energie des einfallenden Lichtphotons auf ein Atom bzw. Molekül übertragen wird, gibt das Teilchen bei der Emission durch Abstrahlung eines Photons Energie an die Umgebung ab. Atome und Moleküle können außerdem durch Zusammenstöße mit anderen Teilchen Energie aufnehmen oder abgeben [z.B. Liou, 2002].

Entsprechend ihrem Aufbau nehmen Atome bzw. Moleküle nur diskrete Energiezustände ein. Auch eine Erhöhung ihres Energiezustandes durch Absorption von Strahlung erfolgt daher in diskreten Schritten, die zu stoffspezifischen Absorptionslinien führen. Aufgrund von Zusammenstößen zwischen benachbarten Molekülen (Druckverbreiterung) und der Dopplerverschiebung durch die thermisch bedingte Relativbewegung der Moleküle zueinander (Dopplerverbreiterung) werden die Spektrallinien z.T. erheblich verbreitert. Die energetische Lage der Linien ist durch die Art der beteiligten Übergänge im Atom bzw. Molekül bestimmt. Elektronische Übergänge, bei denen sich der Energiezustand der Elektronen innerhalb eines Atomes ändert, werden durch ultraviolette (UV) oder sichtbare (VIS) Strahlung angeregt. Vibrationsübergänge, die zu veränderten Schwingungen der Atome innerhalb eines Moleküles führen, lassen sich im infraroten (IR) Spektralbereich beobachten. Die Änderung der Rotation von Molekülen ist mit der geringsten Energieänderung verbunden. Die aus einer Rotationsanregung resultierenden Absorptionslinien liegen dementsprechend im infraroten oder Mikrowellen-Spektrum.

Die Absorption von energiereicher Strahlung kann zur Aufspaltung von Molekülen in Atome (Photodissoziation) oder zur Abspaltung von Elektronen aus dem Atomverband (Ionisation) führen. Beide Prozesse sind beim Überschreiten einer bestimmten Schwellenenergie möglich, so dass sie – im Gegensatz zu den beschriebenen Übergängen – mit kontinuierlichen Absorptionsspektren verbunden sind.

Die Strahlungsabschwächung durch Absorption  $dI_a(\lambda)$  lässt sich analog zur Streuung über das Lambert-Beer-Gesetz beschreiben. Entsprechend ist der Absorptions-Koeffizient  $k_a$  über den Absorptions-Wirkungsquerschnitt  $\sigma_a$  und die Teilchendichte  $n$  in der durchquerten Schicht bestimmt und es gilt (siehe Gleichungen 3.1–3.3):

$$\frac{dI_a(\lambda)}{ds} = -k_a(\lambda)I_0(\lambda). \quad (3.5)$$

Im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht, das bei ausreichender Luftdichte – in Höhen bis zu ca. 60 Kilometern – angenommen werden kann, emittiert die Erdatmosphäre Strahlung entsprechend ihrer Temperaturverteilung. Aufgrund des Kirchhoffschen Gesetzes ist das Emissionsvermögen eines Körpers gleich seinem Absorptionsvermögen ( $k_e = k_a$ ). Die emittierte, thermische Strahlung kann somit über das Plancksche Strahlungsgesetz wie folgt beschrieben werden:

$$B(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5 \left[ \exp\left(\frac{hc}{k\lambda T}\right) - 1 \right]}, \quad (3.6)$$

$$\frac{dI_e(\lambda)}{ds} = B(\lambda, T)k_a(\lambda), \quad (3.7)$$

mit	$\lambda$	=	Wellenlänge [nm],
	$T$	=	Temperatur [K],
	$h$	=	Plancksches Wirkumsquantum [ $J \cdot s$ ] ( $h = 6,62 \cdot 10^{-34} J \cdot s$ ),
	$c$	=	Lichtgeschwindigkeit [ $\frac{m}{s}$ ] ( $c = 3 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$ ),
	$k$	=	Boltzmann-Konstante [ $\frac{J}{K}$ ] ( $k = 1,38 \cdot 10^{-23} \frac{J}{K}$ ),
	$B(\lambda, T)$	=	abgestrahlte Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],
	$I_e(\lambda)$	=	emittierte Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ],
	$k_a$	=	Absorptionskoeffizient [ $\frac{1}{cm}$ ] und
	$ds$	=	Schichtdicke [cm].

### Die Strahlungsübertragungsgleichung

Aus der Bilanzierung aller am Strahlungstransfer beteiligten Prozesse lässt sich die Strahlungsübertragungsgleichung ableiten (vgl. auch Abb. 3.1 sowie die Gleichungen 3.1, 3.4, 3.5 und 3.7):

$$\frac{dI(\lambda)}{ds} = +\frac{dI_a(\lambda)}{ds} + \frac{dI_{s^-}(\lambda)}{ds} + \frac{dI_e(\lambda)}{ds} + \frac{dI_{s^+}(\lambda)}{ds}, \quad (3.8)$$

$$\begin{aligned} \frac{dI(\lambda)}{ds} &= -I_0(\lambda) [k_a(\lambda) + k_s(\lambda)] \\ &\quad + B(\lambda, T)k_a(\lambda) + k_s(\lambda) \frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} I(\lambda, \vec{\Omega}') P(\vec{\Omega}, \vec{\Omega}') d\vec{\Omega}'. \end{aligned} \quad (3.9)$$

Eine exakte Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung ist häufig nicht möglich. Vor allem die Beschreibung der Streuung ist nicht im Detail realisierbar, da hierfür z.B. das einfallende Strahlungsfeld und die Phasenfunktion  $P(\vec{\Omega}, \vec{\Omega}')$  der einzelnen Streuzentren bekannt sein müssten. Für viele Anwendungen lassen sich aber vereinfachende Annahmen treffen. So kann die Streuung im infraroten Spektralbereich i. Allg. vernachlässigt werden, wenn keine Wolken in der Atmosphäre vorhanden sind. Im kurzwelligen Bereich spielt demgegenüber die thermische Strahlung praktisch keine Rolle.

Mit der Strahlungsübertragungsgleichung kann (über sogenannte Vorwärtsmodelle) aus einer bekannten Spurengasverteilung die z.B. an einem Sensor ankommende Strahlung bestimmt werden. Bei Verfahren zur Fernerkundung ist die Fragestellung umgekehrt. Hier gilt es, aus der am Messgerät erfassten Strahlung ein Spurengasprofil zu ermitteln. Dafür ist eine Inversion der Strahlungsübertragungsgleichung erforderlich. Die Formulierung dieses Inversionsproblems führt zu einem oft nichtlinearem Gleichungssystem ohne eindeutige Lösung. In viele Verfahren zur Ableitung von Spurengasprofilen geht daher *a priori* Wissen ein, das unabhängig von der durchgeführten Messung ist. *A priori* Informationen können beispielsweise klimatologische Werte für

die Druck- und Temperaturverteilung oder für das gesuchte Spurengasprofil selbst sein. Verschiedene Methoden zur Lösung des Inversionsproblems bei der Fernerkundung sowie mögliche Fehlerquellen sind bei Rodgers [2000] beschrieben.

### 3.1.2. Optische Messverfahren

Zur Messung des Spurengasgehaltes der Atmosphäre haben sich eine Reihe von optischen Verfahren etabliert. Einige dieser Verfahren, die auch in der Stratosphäre Anwendung finden, werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt. Weiterführende Angaben sind bei Sigrist [1994] sowie bei Klein und Werner [1993] zu finden.

Bei der *FTIR*-Spektroskopie (Fourier-Transformations-Infrarot) werden Interferogramme aufgezeichnet, aus denen Spektren abgeleitet werden können. Dazu wird das in das Gerät einfallende Licht mit Hilfe eines Strahlteilers in zwei Strahlbündel getrennt, die unterschiedliche Weglängen durchlaufen. Die Strahlbündel werden durch Spiegel reflektiert und wieder vereinigt zu einem Detektor geführt. Einer der beiden Reflektionsspiegel ist beweglich, so dass bei der spektralen Analyse unterschiedliche Weglängendifferenzen erzeugt werden. Am Detektor entsteht ein zeitlich variierendes Überlagerungs- bzw. Interferenzsignal, das sich mit Hilfe der Fourier-Transformation in ein Spektrum umwandeln lässt. Beim klassischen Michelson-Interferometer ist der Strahlteiler und der teildurchlässige Spiegel zum Zusammenführen der Strahlen ein Geräteteil. Die unterschiedlichen Weglängen können durch verschiedene Bauweisen der FTIR-Spektrometer realisiert werden. Im einfachsten Fall erfährt der bewegliche Spiegel einen linearen Vorschub. Häufig wird die Wegdifferenz auch durch die Rotationsbewegung eines Doppelpendels erzeugt. Damit sind größere Weglängendifferenzen realisierbar und es ergibt sich ein robuster mechanischer Aufbau des Gerätes. Durch eine Kühlung des Detektors kann das Signal-zu-Rausch-Verhältnis und damit auch die Nachweisgrenze verbessert werden. Mit der FTIR-Spektroskopie lassen sich bei hoher spektraler Auflösung viele Komponenten durch eine Messung bestimmen. Bei der Anwendung als passives Verfahren ist außerdem vorteilhaft, dass die Messungen nicht an die Sonne als Strahlungsquelle gebunden sind und damit unabhängig von der Tageszeit durchgeführt werden können. Fischer [1992] gibt einen Überblick über verschiedene Realisierungen, die zur Messung stratosphärischer Profile angewendet werden.

Das *DOAS*-Verfahren (Differentielle Optische Absorption-Spektroskopie) wurde zunächst als aktives Verfahren zur Ermittlung des Spurengasgehaltes in der Troposphäre konzipiert und erfolgreich angewendet [siehe Platt et al., 2007; Platt, 1994 und dort genannte Referenzen]. Für stratosphärische Messungen wird es als passives Verfahren eingesetzt [z.B. Pfeilsticker und Platt, 1994; Ferlemann et al., 2000]. Wesentliches Prinzip des DOAS-Verfahrens, mit dem Spektren im UV-/VIS-Bereich ausgewertet werden, ist die differentielle Messung der Strahlungsintensität (siehe Abb. 3.2). Damit lässt sich die Abschwächung der

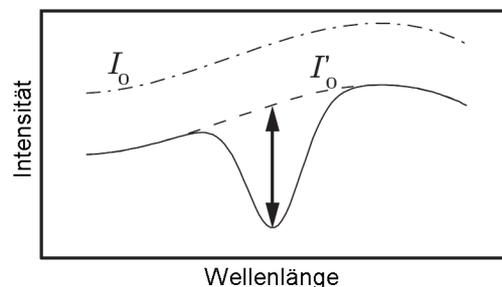


Abb. 3.2.: Prinzip des DOAS-Verfahrens  
[nach Stutz, 1996]

Strahlung in einen schmalbandigen Anteil, der sich stark mit der Wellenlänge ändert, und einen breitbandigen Anteil, der annähernd wellenlängenunabhängig ist, aufteilen. Da Streuprozesse im betrachteten Wellenlängenbereich (UV/VIS) einen breitbandigen Wirkungsquerschnitt haben, kann ihr Einfluss durch diese Methode vernachlässigt werden. Außerdem muss die einfallende Strahlungsintensität  $I_0$  nun nicht mehr genau bekannt sein. Für passive, stratosphärische Messungen ist damit kein extra-terrestrisches Sonnenspektrum, das nur schwer exakt bestimmbar ist, nötig. Anstelle dessen kann ein Referenz-Spektrum  $I'_0$  verwendet werden, in dem die Absorptionslinien so klein wie möglich sind. Bei Ballonmessungen wird dieses Spektrum am höchsten Punkt des Ballonfluges beim kleinsten Sonnenzenitwinkel aufgenommen [Dorf, 2005, siehe auch Abb. 3.2]. Für das DOAS-Verfahren können die verschiedensten Spektrometer und Strahlungsempfänger eingesetzt werden [Platt, 1994]. Der Aufbau eines DOAS-Instrumentes wird in Abschnitt 3.3.1 am Beispiel eines ballongebundenen Messgerätes dargestellt. Mit dem DOAS-Verfahren können viele Spurengase anhand einer Messung simultan bestimmt werden. Das Verfahren ist dabei auf solche Spezies beschränkt, die schmale Absorptionsbanden besitzen [Platt, 1994]. Dazu gehören eine Reihe von Spurengasen, die für die Untersuchung chemischer und dynamischer Prozesse in der Stratosphäre eine wichtige Rolle spielen (z.B.  $O_3$ ,  $BrO$ ,  $OCIO$ ,  $IO$ ,  $NO_2$ ,  $H_2O$ ).

Regelbare Laserdioden (*TDL* für englisch: Tunable Diode Laser) werden in einem aktiven Verfahren zur Messung der Absorption einzelner Spurengase eingesetzt. Diese Dioden emittieren Strahlung in einem sehr schmalen Wellenlängenbereich. Sie werden so konzipiert, dass ihre Emission in unmittelbarer Nähe einer Absorptionslinie des zu bestimmenden Gases liegt. Eine Laserdiode ist damit nur für die Bestimmung eines oder einiger weniger Spurengase einsetzbar. Durch die Variation der Betriebstemperatur oder des Betriebsstromes kann die emittierte Wellenlänge in sehr kleinen Schritten reguliert werden, so dass eine sehr hohe spektrale Auflösung erzielt werden kann. Die Dioden können so auf das Absorptionsmaximum des Spurengases abgestimmt werden. Um Störungen des Signals durch die thermische Emission des Messgerätes selbst zu verhindern, muss das Instrument gekühlt werden. Die hohe spektrale Auflösung erlaubt sehr genaue Messungen mit geringen Nachweisgrenzen [Klein und Werner, 1993]. Dieses Verfahren wird beispielsweise als ballongebundenes in-situ-Messgerät für stratosphärische Messungen eingesetzt (siehe auch Tab. 3.1). Dabei werden mehrere Diodenlaser in ein System integriert. Das Messvolumen mit einer Länge von 3,5 Metern ermöglicht durch Mehrfachspiegelung optische Weglängen von mehreren hundert Metern. Damit sind Spurenstoffe noch bei einer Konzentration von einigen wenigen Molekülen auf  $10^{12}$  Luftteilchen – also im ppt-Bereich<sup>3</sup> – nachweisbar. Die Aufnahme einer Absorptionslinie dauert nur ca. eine Sekunde, so dass eine hohe vertikale Auflösung der gewonnenen Profile (ca. 5 Meter) realisiert werden kann [Moreau et al., 2005].

## 3.2. Messinstrumente auf dem Satelliten ENVISAT

ENVISAT (ENVironmental SATellite) ist ein europäischer Satellit, der am 1. März 2002 von der Europäischen Raumfahrtagentur ESA gestartet wurde. Der Satellit fliegt auf einer polnahen,

---

<sup>3</sup> parts per trillion

sonnensynchronen<sup>4</sup> Umlaufbahn in ca. 800 Kilometer Höhe. Ein Erdumlauf (Orbit) dauert ca. 100 Minuten, damit werden pro Tag 14 Orbits abgeschlossen. Nach ca. 3 Tagen ist eine globale Überdeckung erreicht. Ein Zyklus bis zur Wiederholung genau identischer Orbits dauert 35 Tage [z.B. ESA, 1998].

An Bord von ENVISAT befinden sich insgesamt 10 Messgeräte, die

- atmosphärische Parameter (z.B. Temperatur, Druck, Wolkenobergrenze, Spurengase),
- Landoberflächenparameter (z.B. Vegetationsindex, Oberflächentemperatur und -druck) sowie
- marine Parameter (z.B. Wasserinhaltsstoffe)

bestimmen. Drei dieser Instrumente messen Spurengasprofile: GOMOS (Global Ozone Monitoring by Occultation of the Stars), MIPAS-E und SCIAMACHY. Durch die Kombination der drei Messgeräte ist es möglich, Informationen über die globale Zusammensetzung der Atmosphäre von der Troposphäre bis zur Mesosphäre abzuleiten und die Auswirkungen natürlicher und anthropogener Einflüsse auf die Spurengaszusammensetzung zu untersuchen. In Kapitel 6 werden Beispiele zur Validierung von SCIAMACHY- und MIPAS-E-Messungen vorgestellt. Im Folgenden soll auf diese beiden Instrumente eingegangen werden.

### 3.2.1. SCIAMACHY

SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric Chartography) ist ein passives Instrument, das die Transmission, die Reflektion und die Streuung des Sonnenlichtes durch die Erdatmosphäre bzw. die Erdoberfläche misst. Die Messungen werden in 8 Kanälen in einem Wellenlängenbereich von 240 bis 2380 nm durchgeführt, wodurch die Konzentrationen vieler Spurengase sowie Informationen über Wolken und Aerosole abgeleitet werden können [Bovensmann et al., 1999]. Die von SCIAMACHY erfassten Wellenlängenbereiche und die entsprechenden Spurengase sind in Abbildung 3.3 dargestellt. Die Abbildung zeigt im Vergleich dazu den von GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) abgedeckten Wellenlängenbereich, der kleiner ist als bei SCIAMACHY. GOME ist eine Vorgängerversion von SCIAMACHY, die 1995 mit dem europäischen Satelliten ERS-2 ins All gebracht wurde. Wie bei SCIAMACHY wird als Messverfahren die differentielle optische Absorptions-Spektroskopie (DOAS, siehe Kap. 3.1) angewendet.

SCIAMACHY misst in drei verschiedenen Modi bzw. Sichtgeometrien [Noël et al., 2002; Gottwald et al., 2006], die in Abbildung 3.4a schematisch gezeigt werden. Im *Nadir-Modus* wird das von der Erdoberfläche senkrecht zum Satellitensensor zurückgestrahlte Sonnenlicht gemessen. D.h. es wird die Transmission durch die Atmosphäre bestimmt, die sich unmittelbar unter dem Satelliten befindet. Damit lassen sich in erster Linie Informationen über den Gesamtgehalt an Absorbern bzw. Spurengasen in dieser Luftsäule ableiten (sogenannte Säulendichten). Das Vorgängerinstrument GOME misst nur im Nadir-Modus. Im *Limb-Modus* werden nacheinander

<sup>4</sup> Die Umlaufbahn ist so festgelegt, dass der Satellit den gleichen Ort immer zur selben lokalen Zeit überfliegt.

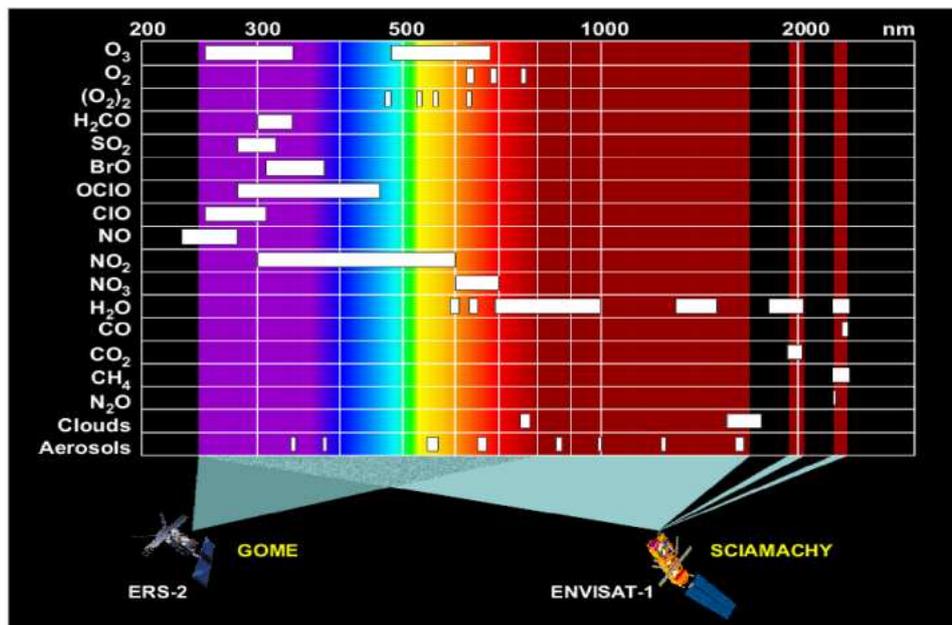
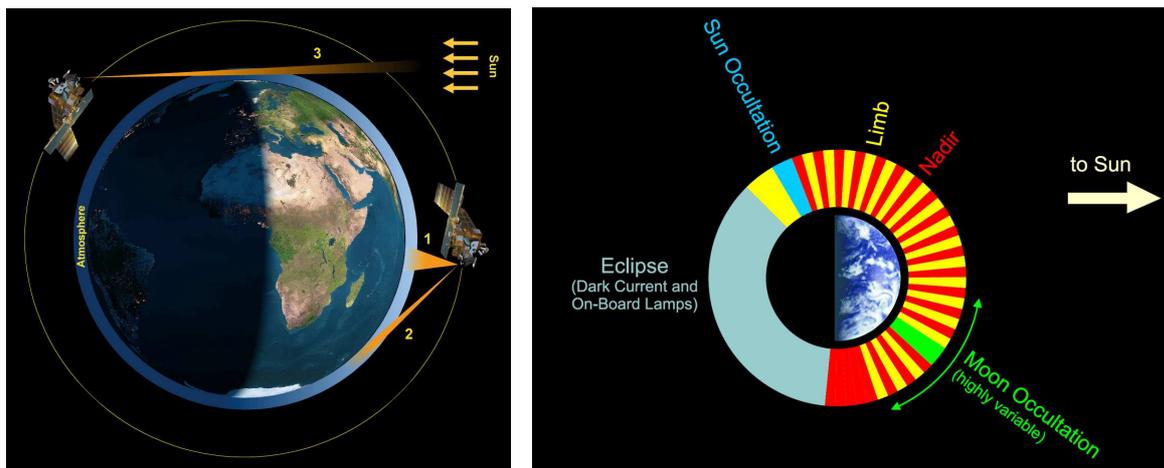


Abb. 3.3.: SCIAMACHY und GOME: Wellenlängenbereich und gemessene Spurengase [http://www-iup.physik.uni-bremen.de/sciamachy/images/molscia.jpg]



(a) Sichtgeometrien

(b) Mess-Reihenfolge während eines Orbits

Abb. 3.4.: Messmodi von SCIAMACHY (a) Sichtgeometrien: 1 = NADIR, 2 = LIMB, 3 = Okkultation [Gottwald et al., 2006], (b) typischer Messablauf während eines Orbits [Noël et al., 2000]

Sondierungen in verschiedenen Höhen durchgeführt, so dass die Atmosphäre tangential zur Erdoberfläche abgetastet wird. Der vertikale Abstand zwischen den verschiedenen Sondierungen, die bei SCIAMACHY vom Erdboden bis zu einer Höhe von ca. 100 Kilometern erfolgen, beträgt ca. 3 Kilometer. In der Horizontalen erfasst der Sensor bei einer Messung über die gesamte Höhe einen Bereich, der am Boden 960 x 240 Kilometer entspricht [Hoogen et al., 1999]. In Flugrichtung, die bei SCIAMACHY der Blickrichtung entspricht, ist die tatsächlich vermessene Luftmasse größer als der beschriebene Bodenpixel, da die Transmission integral entlang der Sichtlinie als

sogenannte schräge Säule bestimmt wird. Die mit einem Limb-Scan erfasste Luftmasse erstreckt sich entlang der Flugrichtung auf ca. 400 Kilometer [Bracher et al., 2005a]. Eine Messung über den gesamten Höhenbereich dauert ca. 1 bis 2 Minuten, eine einzelne Sondierung in einer Höhe wenige Sekunden. Als *Okkultationsmessungen* werden Messungen bezeichnet, die bei Auf- oder Untergang von Sonne oder Mond stattfinden. Dabei befindet sich die Strahlungsquelle (Sonne oder Mond) direkt im Sichtfeld des Sensors, so dass die direkte Transmission durch die Atmosphäre gemessen wird. Durch die Anordnung der Instrumente auf ENVISAT sind mit SCIAMACHY Messungen zum Sonnenaufgang zwischen 50°N und 70°N sowie zum Monduntergang zwischen 20°S und 90°S möglich [Noël et al., 2002]. Die verschiedenen Sichtgeometrien von SCIAMACHY erlauben es, dieselbe Luftmasse zunächst im Limb-Modus und ca. 7 Minuten später im Nadir-Modus zu messen. Das hat den Vorteil, dass aus der Differenz beider Messungen troposphärische Säulendichten bestimmbar sind. In Abbildung 3.4b ist die typische Abfolge der verschiedenen Messungen während eines Orbits gezeigt.

Alle in Kapitel 6 verwendeten SCIAMACHY-Profile sind aus dem Limb-Modus abgeleitet. Die von verschiedenen Gruppen (IUP Heidelberg, IUP Bremen, Harvard) angewendeten Algorithmen zur Bestimmung von O<sub>3</sub>- und NO<sub>2</sub>-Konzentrationen sind bei Butz et al. [2006] und den dort genannten Referenzen beschrieben. Im Höhenbereich zwischen 15 und 35 Kilometern beträgt der Gesamtfehler für O<sub>3</sub> 8–14% und für NO<sub>2</sub> 15–25% [Butz et al., 2006]. Weitere Details zu SCIAMACHY finden sich z.B. in Bovensmann et al. [1999] und Gottwald et al. [2006] sowie den dort genannten Referenzen.

### 3.2.2. MIPAS-E

MIPAS-E (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding – ENVISAT) ist ein passives Messgerät, das aus einem Fourier-Transformations-Infrarot-Spektrometer besteht. Es erfasst die Emission verschiedener Spurengase in 5 Banden im mittleren Infrarot-Bereich (4,15 bis 14,6  $\mu\text{m}$ ). Im Gegensatz zu Messungen mit SCIAMACHY sind MIPAS-Messungen damit nicht an das Sonnenlicht gebunden und können unabhängig von der Tages- oder Jahreszeit (auch in der Polarnacht) erfolgen. Mit MIPAS-E kann die Konzentration von über 20 Spurengasen – u.a. fast aller NO<sub>y</sub>-Spezies und verschiedener FCKW (Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe) – bestimmt werden. Außerdem lässt sich der Aerosolgehalt ermitteln und es können Informationen zu Wolken abgeleitet werden [Fischer und Oelhaf, 1996; ESA, 1998].

Die atmosphärischen Emissionen werden mittels *Limb*-Messungen erfasst. Die Atmosphäre wird dabei im Höhenbereich von 5 bis 150 Kilometern von oben nach unten mit einem vertikalen Abstand von ca. 3 Kilometern abgetastet. Die Sichtlinie kann entweder in einem 35°-Bereich entgegengesetzt zur ENVISAT-Flugrichtung oder seitwärts auf der sonnenabgewandten Seite des Satelliten verlaufen (siehe Abb. 3.5). Die Aufnahme eines hochaufgelösten Spektrums in einer bestimmten Höhe dauert weniger als 5 Sekunden, für eine Messung über den gesamten Höhenbereich werden ca. 75 Sekunden benötigt [Fischer und Oelhaf, 1996; ESA, 1998]. Die vom Sensor erfasste Luftmasse ist ca. 30 Kilometer breit (quer zur Flugrichtung) und erstreckt sich entlang der Flugrichtung über etwa 500 Kilometer [Bracher et al., 2005a].

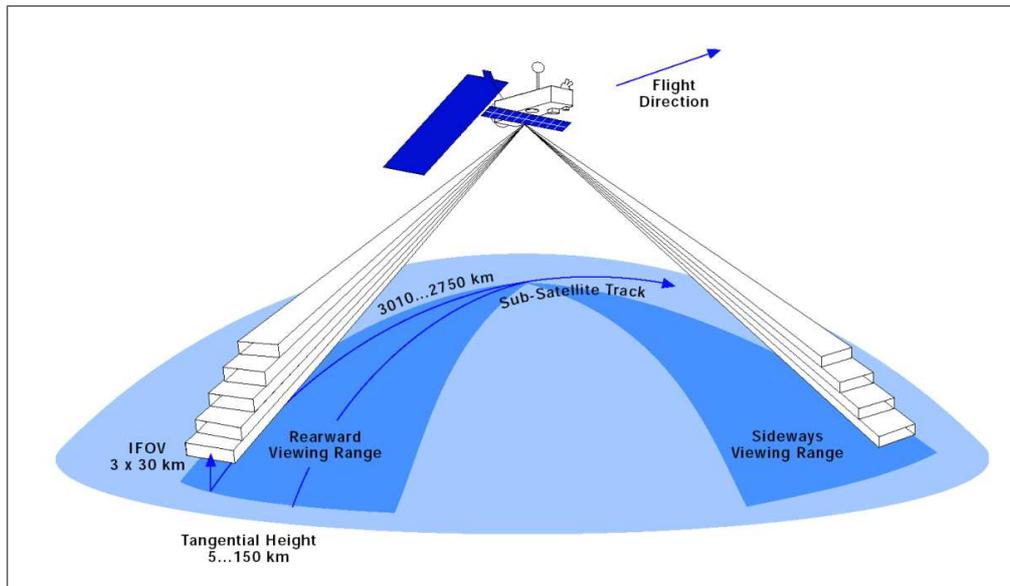


Abb. 3.5.: Sichtgeometrien von MIPAS-E [ESA, 1998]

Im Höhenbereich zwischen 7 und 35 Kilometern beträgt die Genauigkeit für  $\text{CH}_4$  10–22% und für  $\text{N}_2\text{O}$  10–30% [Payan et al., 2007]. Weitere Details zu MIPAS-E finden sich z.B. in Fischer und Oelhaf [1996] und Fischer et al. [2008].

### 3.3. Ballongebundene Messinstrumente

Mit Hilfe ballongebundener Messungen ist es möglich, zeitlich und räumlich sehr hochaufgelöste Spurengasprofile mit hoher Genauigkeit an einzelnen Orten zu bestimmen. Solche Messungen werden seit vielen Jahren durchgeführt, um chemische und dynamische Prozesse in der Stratosphäre im Detail zu untersuchen. Da der organisatorische und technische Aufwand für einen einzelnen Ballonflug sehr hoch ist, werden häufig koordinierte Messkampagnen durchgeführt, bei denen im Verlauf von einigen Wochen mehrere Ballonflüge stattfinden (z.B. 1983: MAP/GLOBUS [Offermann, 1987], 1991/1992: EASOE [Knudsen und Carver, 1994], 1999/2000: SOLVE/THESEO [Newman et al., 2002]). Dabei kommen verschiedenste Messgeräte zum Einsatz, die sich hinsichtlich des zugrundeliegenden Messverfahrens und der Messgeometrie unterscheiden (siehe Kap. 3.1 und Tab. 3.1). Dementsprechend vielfältig sind die erfassten Spurengase sowie die horizontale und vertikale Auflösung der abgeleiteten Profile. Die Art des Messgerätes bestimmt auch, unter welchen Restriktionen ein Ballonstart erfolgen kann (siehe Abschnitt 6.1.1) und wieviele Messprofile während eines Ballonfluges aufgenommen werden können. So lassen sich z.B. mit in-situ-Messgeräten für ein bestimmtes Spurengas maximal zwei Profile pro Ballonflug realisieren (beim Ballonaufstieg und beim Ballonabstieg). Demgegenüber sind mit MIPAS-B2 – der Ballonversion von MIPAS-E – aufgrund einer flexiblen, sehr gut stabilisierten Sichtgeometrie Profilsondierungen über fast den gesamten Zeitraum eines Ballonfluges möglich. Tabelle 3.1 gibt einen Überblick über die bei der ENVISAT-Validierung eingesetzten Messinstrumente, für die im Rahmen dieser Arbeit eine gezielte Beratung und Unterstützung der Flugplanung im Hin-

Tab. 3.1.: Ballonmessinstrumente und gemessene Spurengase

Akronym (Gondel)	Messinstrument	Messmethode (Sichtgeometrie)	ausgenutzter Messeffekt	gemessene Spurengase (Beispiele)	Referenzen (Auswahl)
BONBON (TRIPLE/TWIN)	kryogener Luftsammler	in situ, meist gas- chromatographische Analyse im Labor	abhängig vom Analyse- verfahren	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , FCKW, SF <sub>6</sub> , CO <sub>2</sub> , CO	Schmidt et al. [1987]; Engel et al. [1997]; Strunk et al. [2000]
DOAS (LPMA/DOAS) <i>Differential Optical Absorption Spectroscopy</i>	Absorptions- spektrometer	Fernerkundung, passiv (Limb, Okkultation)	Absorption (UV/Vis)	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, BrO, OClO, IO, OIO	Ferlemann et al. [2000]; weitere siehe Text
LPMA (LPMA/DOAS) <i>Limb Profile Monitor of the Atmosphere</i>	Fourier-Transfor- mations-Infrarot- spektrometer	Fernerkundung, passiv (Limb, Okkultation)	Absorption (IR)	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O, CO	Camy-Peyret [1995]; Camy-Peyret et al. [1995]
LPMA-IASI (LPMA-IASI) <i>Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications – Infrared Atmospheric Sounding Interferometer</i>	Fourier-Transfor- mations-Infrarot- spektrometer	Fernerkundung, passiv (Nadir)	Emission (IR)	O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , CO <sub>2</sub> , CO, H <sub>2</sub> O	Té et al. [2002]
Mini-DOAS (verschiedene) <i>Differential Optical Absorption Spectroscopy</i>	Absorptions- spektrometer	Fernerkundung, passiv (Limb, Nadir)	Absorption (UV/Vis)	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O, BrO	Weidner et al. [2005]
MIPAS-B2 (MIPAS) <i>Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding – Balloon 2</i>	Michelson-Inter- ferometer	Fernerkundung, passiv (Limb)	Emission (IR)	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> O	Fischer und Oelhaf [1996]; Friedl-Vallon et al. [2004]
SAOZ (SAOZ) <i>Système d'Analyse par Observation Zenithale</i>	Absorptions- spektrometer	Fernerkundung, passiv (Okkultation)	Absorption (UV/Vis)	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , BrO	Pommereau und Piquard [1994]; Pundt et al. [2002]
SPIRALE (SPIRALE) <i>SPectromètre InfraRouge pour l'étude de l'Atmosphère par diodes Laser Embarquées</i>	regelbare Diodenlaser	in situ, optisch, aktiv	Absorption (IR)	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub>	Moreau et al. [2005]

blick auf die stratosphärischen Bedingungen und mögliche Koinzidenzen mit den zu validierenden ENVISAT-Geräten erfolgte (vgl. auch Kap. 6 und Tab. 6.1). Angaben zu weiteren Ballonmessungen, die für die Validierung der ENVISAT-Geräte verwendet wurden, finden sich z.B. bei Piters et al. [2006]. Teilweise werden auf einer Ballongondel zwei oder mehr Messinstrumente betrieben – z.B. auf der TWIN- bzw. TRIPLE-Gondel (siehe Abschnitt 3.3.2). Auch die beiden Messgeräte DOAS und LPMA (Limb Profile Monitor of the Atmosphere) – ein FTIR-Instrument (siehe Abschnitt 3.1.2) – werden gemeinsam auf einer Gondel eingesetzt. In Kapitel 6 werden anhand von LPMA/DOAS- und BONBON-Messungen Fallbeispiele zur ENVISAT-Validierung diskutiert. In den folgenden Abschnitten werden das DOAS- und das BONBON-Instrument kurz beschrieben. Details zum LPMA-Messgerät finden sich in Camy-Peyret [1995] bzw. Camy-Peyret et al. [1995] (siehe auch Tab. 3.1).

#### 3.3.1. Das DOAS-Messgerät

Das DOAS-Instrument wurde am IUP Heidelberg als ballongebundenes Messgerät zur Erfassung stratosphärischer Spurengase entwickelt [z.B. Bauer, 1997; Ferlemann et al., 1998, 2000]. Es misst über zwei Spektrographen die Absorption von direktem Sonnenlicht im UV- bzw. VIS-Bereich. Seit Mitte der 1990er Jahre wird es zusammen mit dem LPMA-Instrument auf einer Ballongondel betrieben. Die LPMA/DOAS-Gondel kann so gedreht und in der entsprechenden Himmelsrichtung stabilisiert werden, dass die Optik direktes Sonnenlicht empfängt [Camy-Peyret et al., 1995 und Referenzen darin].

Beim DOAS-Instrument führen zwei kleine Teleskope die einfallende Sonnenstrahlung über Quarzfaserbündel zu den beiden Spektrographen. Über holographische Gitter wird das Sonnenlicht in den jeweiligen Spektralbereich (UV: 316,5–417,3 nm; VIS: 399,9–653,0 nm) zerlegt. Thermisch stabilisierte Photo-Dioden-Zeilen erfassen das Spektrum und wandeln es in ein elektronisches Signal um. Beide Spektrographen sind in einem Druckbehälter aus Edelstahl montiert. Um Druckschwankungen auszuschließen und kondensierenden Wasserdampf auf den Photo-Dioden-Zeilen zu vermeiden, wird dieser Behälter evakuiert. Eine Wasser-Eis-Mischung um den Behälter sorgt für eine konstante Temperatur des Gerätes um 0°C. In Bauer [1997] wird eine detaillierte Beschreibung des Instrumentes gegeben. Aktuelle optische und mechanische Modifikationen sind bei Dorf [2005] dargestellt. Die überarbeitete Konfiguration der elektronischen Komponenten wird von Butz [2006] beschrieben.

Da mit dem Gerät direktes Sonnenlicht erfasst wird, ist zur Bestimmung von Spurengasprofilen eine Relativbewegung zwischen Sonne und Ballonmessgerät nötig. Wie in Abbildung 3.6 dargestellt, können Profil-Messungen während des Ballonauf- oder -abstieges sowie während einer Sonnenokkultation erfolgen. Üblicherweise werden die Messungen beim Ballonaufstieg und beim Sonnenuntergang durchgeführt, wodurch sich zwei Profil-Sondierungen ergeben. Der Ballonstart erfolgt dabei so, dass kurz nach dem Erreichen des höchsten Flugniveaus der Sonnenuntergang beginnt. Messungen während des Sonnenaufganges können nur in wenigen Fällen realisiert werden. Ein Start unmittelbar vor dem Sonnenaufgang müsste im Dunkeln erfolgen, so dass die Messung während des Ballonaufstieges entfallen würde. Optimal wäre es, den Ballonstart kurz

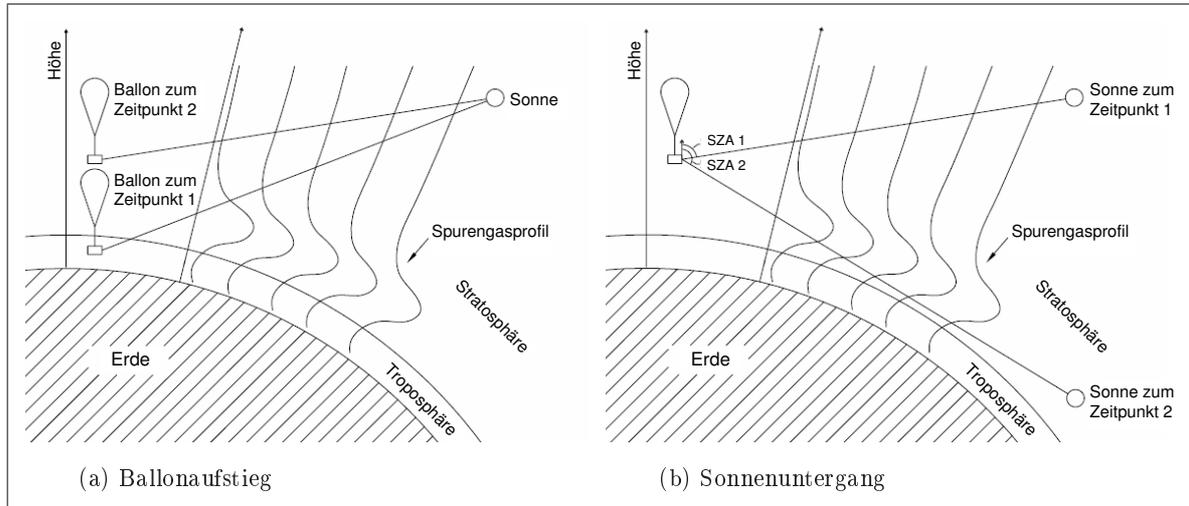


Abb. 3.6.: Sichtgeometrien bei DOAS-Ballonmessungen [nach Osterkamp, 1997]

vor Sonnenuntergang durchzuführen und den Ballon bis zum nächsten Morgen fliegen zu lassen. Dann könnten insgesamt vier Profil-Sondierungen durchgeführt werden. Dies ist aber nur in Ausnahmefällen realisierbar. So sind in hohen Breiten im Sommer die Windgeschwindigkeiten in der Ballonflughöhe relativ gering und die erforderliche Flugdauer ist aufgrund der kurzen Nacht verhältnismässig gering, was die Durchführung von insgesamt vier Messungen ermöglicht. In den Tropen ist bei günstiger QBO-Phase und entsprechender Gestaltung des Flugprofils<sup>5</sup> ebenfalls die Realisierung aller vier Messungen denkbar.

Die räumliche Auflösung der ermittelten Spurengasprofile wird von mehreren, z.T. von Flug zu Flug variierenden Faktoren beeinflusst (z.B. Ballonflugbahn und -aufstiegsgeschwindigkeit, zeitliche Auflösung der aufgenommenen Spektren). Ein wesentlicher Parameter für die vertikale Auflösung ist das zu bestimmende Spurengas selbst. Die horizontale Auflösung hängt u.a. von der Sichtgeometrie ab. Beim Ballonaufstieg sind die gemessenen Spektren aufgrund der mit der Höhe abnehmenden Dichte v.a. von den Spurengaskonzentrationen in Ballonhöhe dominiert, so dass die horizontale Auflösung im Bereich von einigen Kilometern liegt. Während des Sonnenunterganges werden immer tiefere Luftmassen von der Messung erfasst und der Tangentialpunkt, an dem der Abstand zwischen der Sichtlinie und der Erdoberfläche minimal ist, entfernt sich immer mehr vom Ballon. Die gemessene Strahlung durchquert dabei Luftschichten unterhalb der Ballonhöhe zweimal. Die letzten Spektren der Sonnenuntergangsmessung werden bei einem Tangentialpunkt aufgenommen, der mehrere hundert Kilometer vom Ballonmessgerät entfernt ist.

In dem vom DOAS-Instrument abgedeckten Wellenlängenbereich können viele Spurengase bestimmt werden, z.B.  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $H_2O$ ,  $BrO$ ,  $OCIO$ ,  $IO$ ,  $OIO$  [siehe z.B. Ferlemann et al., 1998, 2000; Bösch et al., 2003; Dorf et al., 2006; Butz et al., 2006]. Typischerweise beträgt die Genauigkeit für  $O_3$  5% und für  $NO_2$  10% [Butz et al., 2006]. Details zum Algorithmus für die Ableitung der Profile sind z.B. in Butz et al. [2006] und Butz [2006] beschrieben. Durch eine

<sup>5</sup> Die Flughöhe könnte in der Nacht auf ein Niveau abgesenkt werden, in dem der Wind entgegengesetzt zum Wind in der maximalen Flughöhe gerichtet ist. Damit ließe sich ein Rücktransport in Richtung Ausgangspunkt bewerkstelligen.

absolute Kalibrierung des DOAS-Instrumentes, die mit einer sehr genauen Strahlungsquelle vor einem Ballonflug erfolgt, kann zusätzlich zu den Spurengasprofilen auch das Sonnenspektrum im UV/VIS-Bereich ermittelt werden. Die bei verschiedenen Ballonflügen bestimmten Spektren wurden im Rahmen der ENVISAT-Validierung zur Überprüfung des von SCIAMACHY erfassten solaren Spektrums verwendet [Gurlit et al., 2005]. Am IUP Heidelberg wurde neben dem bisher beschriebenen DOAS-Gerät ein kleines, leichtes Spektrometer (Mini-DOAS) neu entwickelt [Weidner et al., 2005], mit dem ebenfalls das DOAS-Verfahren im UV/VIS-Bereich angewendet wird. Aufgrund der geringen Größe und des geringen Gewichtes kann dieses Gerät relativ einfach in verschiedene Ballongondeln integriert werden und damit als zusätzliches Instrument bei großen Ballonmessgeräten mitfliegen.

#### 3.3.2. Der Luftsammler BONBON auf TRIPLE/TWIN

Mit dem kryogenen<sup>6</sup> Luftsammler BONBON werden während des Ballonfluges komplette Luftproben gesammelt, die später im Labor analysiert werden können. Das Gerät wurde am Forschungszentrum Jülich gebaut [Schmidt et al., 1983] und wird jetzt am Institut für Meteorologie und Geophysik der Universität Frankfurt betrieben [z.B. Engel et al., 2002].

Der Sammler besteht aus 15 Stahlzylindern (5 Behälter á 0,58 Liter und 10 Behälter á 0,31 Liter), die sich in einem mit flüssigen Neon auf 30 K gekühltem Behälter befinden [Schmidt et al., 1987]. Um eine Kontamination der Proben z.B. durch Ausgasungen aus der Ballonhülle zu verhindern, erfolgt die Probenahme i. Allg. während des Ballonabstieges. Der Ballonabstieg wird über ein ferngesteuertes Ventil durch Ablassen von Helium aus der Ballonhülle geregelt, so dass die Geschwindigkeit beim Sinken des Ballones zwischen 1 und 4 m/s beträgt [Schmidt et al., 1983; Haase, 2004]. Der Beginn und das Ende einer einzelnen Probenahme können vom Boden aus gesteuert werden. Die Probebehälter werden vor dem Flug auf einen Druck von mindestens  $10^{-6}$  hPa evakuiert. Zur Probenahme wird die Glaskappe, die die Behälter verschließt, abgeschlagen, so dass Luft in den evakuierten Behälter fließen kann. Die einströmende Luft kondensiert an der inneren, kalten Oberfläche des Probenahmebehälters. Zum Schließen des Behälters wird das Goldrohr am Einlass mit Hilfe von zwei Klemmbacken, die durch eine kleine Sprengung gegeneinander gedrückt werden, kalt verschweißt [Schmidt et al., 1983; Haase, 2004]. Die Sammelzeit beträgt je nach Höhe 1 bis 8 Minuten. Die vertikale Auflösung ist abhängig vom Außendruck und von der Sammelzeit. Sie liegt zwischen 100 Metern und einem Kilometer [Haase, 2004]. Die Komponenten der kondensierten Luft gehen unter Laborbedingungen (ca. 20°C) in die Gasphase über, so dass nach ca. einer Woche die ursprüngliche, homogene Luftzusammensetzung wieder erreicht wird. Die Luftproben können mit verschiedenen Analyseverfahren untersucht werden. Hauptsächlich werden dafür gaschromatographische Verfahren angewendet [Haase, 2004].

Mit dem beschriebenen Verfahren kann die Konzentration einer Vielzahl von Spurengasen bestimmt werden. Dazu gehören z.B. verschiedene FCKW, die aufgrund ihrer sehr geringen

---

<sup>6</sup> gekühlten (*kryo*: griechisch kalt, Kälte)

Konzentration<sup>7</sup> kaum mit anderen Verfahren bestimmbar sind, aber auch andere langlebige Spurenstoffe wie N<sub>2</sub>O und CH<sub>4</sub>. Die mit dem Verfahren erzielte Genauigkeit liegt für N<sub>2</sub>O bei 1% der aktuellen troposphärischen Werte und für CH<sub>4</sub> bei 2 ppb<sup>8</sup> [Engel et al., 2002].

Der kryogene Luftsammler wird häufig zusammen mit zwei anderen Messgeräten – einem Lyman- $\alpha$ -Hygrometer zum Bestimmen des Wasserdampfgehaltes und einem Messgerät für ClO und BrO [siehe z.B. Referenzen bei Engel et al., 2006] – auf einer sogenannten TRIPLE-Gondel betrieben. Die Gondel besteht aus 3 Hexagonen, die aus einem Stangengerüst gebildet werden. In dieses Stangengerüst werden die Messgeräte eingehängt. Der Luftsammler kann aber auch allein (SINGLE-Gondel) oder mit einem weiteren Gerät auf einer TWIN-Gondel (zwei Hexagone) geflogen werden.

### 3.4. Die Validierung von Satelliteninstrumenten

Satelliteninstrumente messen als Rohdaten unkorrigierte Spektren (sogenannte Level-0-Daten), die entlang der Sichtlinie integral die Absorption oder die Emission von Spurengasen enthalten. Die Detektoren werden vor dem Satellitenstart und während des Fluges mit Hilfe von Strahlungsquellen, die sich an Bord des Satelliten befinden, kalibriert. Damit wird sichergestellt, dass auf ein bekanntes Signal eine definierte Systemantwort erfolgt. Die Rohdaten werden entsprechend um Instrumenteneffekte korrigiert und dem Ort der Signalerfassung, d.h. der geografischen Lage und der Höhe bzw. dem Druck zugeordnet (Level-1-Daten).

Für die Ableitung von Spurengasprofilen (Level-2-Daten) sind verschiedene Hilfsmittel, wie z.B. Strahlungstransportmodelle oder klimatologische Daten, notwendig. Vereinfachungen oder falsche Auslegungen bei der Erstellung der Algorithmen zur Profilberechnung können zu systematischen Fehlern führen, die von geophysikalischen oder instrumentellen Parametern bzw. von im Algorithmus verwendeten Parametern abhängen [Piters et al., 2006]. Um solche Fehler zu erkennen und um die Algorithmen verbessern zu können, ist eine umfangreiche Validierung der Level-2-Daten nötig. Dazu wird die Qualität der abgeleiteten Spurengasprofile mit unabhängigen Daten überprüft. Die den Algorithmen zugrundeliegenden Annahmen (a priori Informationen, siehe Abschnitt 3.1.1) sowie die Spurengasprofile selbst unterliegen räumlichen und zeitlichen Änderungen (z.B. Tages- und Jahresgang), so dass die Validierung für verschiedene geografische Breiten unter unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen und Sonnenständen erfolgt. Nach dem Satellitenstart dient die Validierung zunächst dazu, die prinzipielle Funktionsfähigkeit des Instrumentes und die Anwendbarkeit der Algorithmen zu verifizieren. Mittel- und langfristig können Änderungen im Instrumentenverhalten auftreten, so dass die Validierung einen kontinuierlichen Prozess während der gesamten Betriebszeit der Satellitengeräte darstellt. Beispielsweise traten im Jahr 2004 technische Probleme mit dem Interferometer von MIPAS-E auf, so dass das Gerät in der Folgezeit mit einer verringerten spektralen Auflösung betrieben wurde [Fischer et al., 2008]. Dies machte eine Anpassung der Algorithmen zur Profibleitung nötig.

<sup>7</sup> Die Konzentrationen liegen z.T. im ppt-Bereich (parts per trillion), d.h. je 10<sup>12</sup> Luftteilchen gibt es einige wenige Teilchen des Spurenstoffes.

<sup>8</sup> 1 ppb (parts per billion) = 1 Teilchen pro 10<sup>9</sup> Luftteilchen

Tab. 3.2.: Vergleich zwischen Satelliten- und Ballonmessungen

Instrument	Satellit	Ballon
Messmethode	Fernerkundung	Fernerkundung oder in situ
Auflösung		
horizontal	SCIAMACHY-Limb: ~ 960 x 400 km MIPAS-E: ~ 30 x 500 km	in situ: sehr klein ( $< 1 \text{ m}^2$ ) Fernerkundung: kleiner als bei den Satelliten-Geräten (je nach Messgerät, Höhe und Sichtgeometrie)
vertikal	ca. 3 km	einige m – 2 km (je nach Messgerät, Spurengas und Höhe)
zeitlich	1–2 Minuten pro Profil	20–100 Minuten pro Profil (je nach Messgerät)
Anzahl der Profile	an einem Ort pro Tag max. 2 Profile, global bis zu ca. 1000 Profile pro Tag	in situ: max. 2 Profile pro Flug LPMA/DOAS: max. 4 Profile pro Flug MIPAS-B2: mehrere Profile (abhängig von Flugdauer)

Für die Validierung stehen verschiedene, etablierte Messinstrumente zur Verfügung, die auf den unterschiedlichsten Plattformen (Boden, Schiff, Flugzeug, Ballon, Satellit) betrieben werden. Ein *direkter Vergleich* zwischen den Messungen zweier Instrumente ist nur sinnvoll, wenn bei beiden Messungen dieselbe Luftmasse erfasst wurde. Im Idealfall erfolgen beide Messungen zur gleichen Zeit am gleichen Ort. Anderenfalls können Unterschiede in den abgeleiteten Spurengasprofilen auch durch die räumliche und zeitliche Variabilität der Zusammensetzung der Atmosphäre verursacht sein. Direkte Koinzidenzen zwischen den Messpunkten zweier Instrumente sind aber nur für relativ wenige Validierungsmessungen realisierbar. Direkte Vergleiche werden außerdem durch die unterschiedliche räumliche und zeitliche Auflösung der Messinstrumente erschwert. Bedingt durch unterschiedliche Probenahme-Verfahren oder Sichtgeometrien werden häufig verschieden große Luftmassen erfasst, so dass sich z.B. die vertikale Auflösung der Spurengasprofile unterscheidet. Tabelle 3.2 zeigt beispielhaft die Unterschiede einiger Messparameter zwischen Satelliten- und Balloninstrumenten.

Neben den direkten Vergleichen werden bei der Validierung von Satelliteninstrumenten weitere Verfahren angewendet. Die Auswertung *zonaler Mittel* erlaubt es, Differenzen in den Mittelwerten zwischen verschiedenen Instrumenten bzw. Datensätzen auf einer statistischen Basis zu erkennen. Dabei gehen allerdings Informationen über die entlang eines Breitenkreises vorhandenen Gradienten in der Spurengaskonzentration verloren [z.B. Morris et al., 2000]. Langlebige Spurengase zeigen in bestimmten Höhenbereichen typische Korrelationen zueinander (siehe z.B. Plumb und Ko [1992] und Abschnitt 2.4.3). Solche *Tracer-Tracer-Korrelationen* können unabhängig von direkten Koinzidenzen Aufschluss über mögliche Fehler beim zu validierenden Instrument geben. Die Konsistenz der von einem Instrument für verschiedene Spurenstoffe ermittelten Konzentratio-

nen lässt sich auch mit Hilfe von *Modellen* überprüfen. Sind die chemischen Reaktionen zwischen den Spurengasen bekannt, so kann ein chemisches Daten-Assimilations-Modell angewendet werden. Beispielsweise verwendeten Marchand et al. [2004] ein solches Modell, um ausgehend von O<sub>3</sub>- und NO<sub>2</sub>-Messungen des ENVISAT-Instrumentes GOMOS NO<sub>3</sub>-Konzentrationen zu simulieren und mit den GOMOS-NO<sub>3</sub>-Messungen zu vergleichen. Die Berücksichtigung *dynamischer Erhaltungsgrößen* (potentielle Temperatur, potentielle Vorticity) ermöglicht es, meteorologische Einflüsse zu eliminieren. Damit kann auch ohne direkte Koinzidenz sichergestellt werden, dass verschiedene Instrumente die gleichen Luftmassen beprobt haben. Die gemessenen Spurengase werden dazu als Funktion der potentiellen Temperatur über der potentiellen Vorticity (PV, siehe Kapitel 2.2) oder über der äquivalenten Breite<sup>9</sup> dargestellt (siehe Manney et al. [2007]; Danilin et al. [2002b] und dort genannte Referenzen). Das Verfahren ist nur anwendbar, wenn das zu untersuchende Spurengas eine ausreichend große Lebenszeit hat ( $\tau_{\text{chemisch}} > \tau_{\text{dynamisch}}$ ) und damit gut mit der PV korreliert [Manney et al., 2001].

Eine weitere Möglichkeit, die dynamische Variabilität bei der Validierung zu berücksichtigen, besteht in der Anwendung von *Trajektorien*. Trajektorien beschreiben den Luftmassenweg (siehe Kap. 4) und dienen dazu, zeitlich und räumlich entfernte Messungen für die Validierung nutzbar zu machen. Beim *Trajectory Mapping* werden synoptische Karten der Spurengasverteilung erzeugt, indem eine große Anzahl von Messungen, die zu verschiedenen Zeiten erfolgten, mit Hilfe von Trajektorien auf einen einheitlichen Zeitpunkt projiziert werden [Morris et al., 1995, 2000]. Mit der *Trajectory Hunting Technique (THT)* können Luftmassen identifiziert werden, die zu unterschiedlichen Zeiten zwei- oder mehrfach gemessen wurden [Danilin et al., 2002b]. An den geografischen Orten einer Messung werden dazu Trajektorien initialisiert und zeitlich vorwärts und rückwärts berechnet. Entlang der ermittelten Trajektorien wird dann nach der Verfügbarkeit von Vergleichs-Messpunkten eines zweiten Gerätes gesucht<sup>10</sup>. Dieses Verfahren wurde bereits von verschiedenen Autoren zur Validierung von Satellitendaten eingesetzt [z.B. Danilin et al., 2002a,b; Lu et al., 2000; Lumpe et al., 2002] und wird auch in der vorliegenden Arbeit zur Validierung der ENVISAT-Geräte verwendet. Durch die Anwendung photochemischer Modelle entlang der Luftmassen-Trajektorien können mit diesem Verfahren auch reaktive Gase (z.B. Spezies mit Tagesgang) validiert werden [z.B. Pierce et al., 1997]. Der Einsatz von Chemie-Transport-Modellen, die die dynamische und chemische Entwicklung entlang von Luftmassen-Ensembles reproduzieren, erlaubt außerdem u.a. die Validierung von Satellitenmessungen für verschiedene Spurengase anhand zonaler Mittel [z.B. Considine et al., 2008 und dort genannte Referenzen].

Im folgenden Kapitel wird zunächst das prinzipielle Vorgehen zur Berechnung von Trajektorien dargestellt. Außerdem werden die nötigen meteorologischen Eingangsdaten und Fehlerquellen sowie die Umsetzung im Trajektorienmodell der FU Berlin diskutiert. Im Kapitel 5 werden über verschiedene Vergleichsstudien die Güte des FUB-Modelles und Unsicherheiten in den berechneten Trajektorien untersucht. Beispiele für die Anwendung von Trajektorien im Rahmen der ENVISAT-Validierung werden im Kapitel 6 vorgestellt und diskutiert.

<sup>9</sup> Die äquivalente Breite ist die geografische Breite, die dieselbe Fläche umfasst wie der korrespondierende PV-Wert.

<sup>10</sup> Als sogenanntes Match-Verfahren wird diese Technik auch dazu benutzt, mit Hilfe von Ozonsondenmessungen den Ozonabbau im polaren Winter zu bestimmen [z.B. Rex et al., 1999].



## 4. Trajektorienmodelle: Grundlagen und Fehlerquellen

Transportprozesse bestimmen neben chemischen Umwandlungen und Mischungsprozessen die Verteilung der in die Atmosphäre eingebrachten Spurenstoffe. Ihre korrekte Beschreibung ist daher eine wesentliche Voraussetzung für Untersuchungen über die Auswirkungen natürlicher und anthropogener Spurengase, sowohl auf langen Zeitskalen (z.B. klimatologische Auswirkungen der Treibhausgase) als auch während kurzer Zeitabschnitte (z.B. Ozon-Minilöcher, Episoden mit erhöhtem bodennahem Ozon). Dabei wird prinzipiell zwischen der Eulerschen und der Lagrangeschen Betrachtungsweise unterschieden [siehe z.B. Warnecke, 1997; Stohl, 1998]. Während bei Eulerschen Untersuchungen die zeitliche Änderung bestimmter Parameter in einem konstanten Gitterraum beschrieben wird, bewegt sich bei der Lagrange-Methode das Koordinatensystem mit dem betrachteten Luftpaket mit. Die Bewegung eines individuellen Luftpaketes wird also bei der Lagrangeschen Betrachtungsweise durch die zeitliche Änderung seiner Raumkoordinaten verfolgt und als Luftbahn (Trajektorie) dargestellt.

Im folgenden Kapitel wird zunächst auf die physikalische Beschreibung der Luftmassenbewegung und ihre numerische Umsetzung eingegangen. Weiterhin werden die bei der Berechnung von Trajektorien möglichen Fehlerquellen sowie Methoden zur Überprüfung der Güte von Trajektorienmodellen diskutiert. Abschließend wird das an der FU Berlin zur Berechnung von Trajektorien entwickelte und im Rahmen dieser Arbeit angewendete Modell beschrieben.

### 4.1. Physikalische Beschreibung der Bewegung von Luftpaketen

Eine Trajektorie beschreibt den Weg eines Luftpaketes in Abhängigkeit von der Zeit. Dabei kann die Bewegung der Luft ausgehend vom Initialisierungszeitpunkt sowohl für die folgenden als auch für die zurückliegenden Zeitschritte (Vorwärts- bzw. Rückwärtstrajektorie) berechnet werden.

#### 4.1.1. Die Trajektoriengleichung

Mathematisch lässt sich der Weg eines infinitesimal kleinen Luftpaketes durch folgende differentielle Trajektoriengleichung beschreiben [Stohl, 1998]:

$$\frac{d\vec{X}}{dt} = \vec{v}[X(t)], \quad (4.1)$$

mit  $\vec{X}$  = Positionsvektor des Luftpaketes,  
 $\vec{v}$  = Windgeschwindigkeitsvektor und  
 $t$  = Zeit.

In der Realität ist es jedoch aufgrund der unzureichenden Informationen über die vorliegenden Windgeschwindigkeiten nicht möglich, die Bahn eines infinitesimal kleinen Luftpaketes zu verfolgen. Ein reales Luftpaket mit seiner finiten Größe kann in einem inhomogenen Windfeld deformiert und geteilt werden. Im Allgemeinen ist deswegen eine einzelne Trajektorie nicht ausreichend, um den Weg eines Luftpaketes zu beschreiben und das Massenzentrum des Luftpaketes entspricht nicht exakt der berechneten Trajektorie. Daher kann eine Trajektorie nur für eine begrenzte Zeit als repräsentativ für den tatsächlichen Luftpaketweg angesehen werden [Stohl, 1998]. Häufig werden deswegen nicht einzelne bzw. wenige Trajektorien berechnet, sondern es werden viele, z.T. mehrere tausend Trajektorien als Ensembles oder Trajektorienscharen betrachtet, um z.B. Transportvorgänge in der Stratosphäre über längere Zeitskalen zu untersuchen [siehe z.B. Sutton, 1994].

#### 4.1.2. Meteorologische Eingangsdaten

Zur Lösung der Trajektoriengleichung (Gleichung 4.1) müssen entsprechende meteorologische Daten – insbesondere Informationen zu den Windfeldern – vorliegen. Auch wenn im Prinzip Trajektorien direkt durch Interpolation aus gemessenen Winddaten abgeleitet werden können, wird in den meisten Fällen auf die Ergebnisse numerischer Modelle zurückgegriffen [Stohl, 1998]. Diese Modelle, wie z.B. das Wettervorhersagemodell des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (englisch: European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF), berechnen ausgehend von den Beobachtungsdaten unter Berücksichtigung physikalischer Annahmen meteorologische Felder, die auf Längen-Breiten-Gitterpunkten zur Verfügung stehen.

In der Stratosphäre werden operationelle Messungen mit Radiosonden und Satelliteninstrumenten durchgeführt. Radiosondenaufstiege erfolgen i.d.R. alle 12 Stunden – auf der Nordhalbkugel an ca. 700 Stationen [Malberg, 1997, S. 198f]. Dabei werden Profile der Temperatur, des Druckes und der horizontalen Windkomponenten aufgenommen, die die untersten 20-30 Kilometer der Atmosphäre abdecken [Randel et al., 2004]. Für die Stratosphäre oberhalb von 10 hPa, über den Ozeanen und in Polarregionen liegen kaum Radiosondenmessungen vor, so dass hier Satellitenmessungen die Hauptquelle für meteorologische Beobachtungsdaten sind [Uppala et al., 2004]. Operationelle, polarumlaufende Satelliten können zweimal täglich annähernd global Temperaturprofile bis in eine Höhe von etwa 50 Kilometern aufnehmen. Allerdings ist hierbei die vertikale Auflösung sehr viel schlechter ( $> 10$  km) als bei den Radiosonden [Randel et al., 2004]. Weitere Satelliteninstrumente messen außerdem den Wasserdampfgehalt (z.B. HIRS = High Resolution Infrared Radiation Sounder) und die Ozonsäulendichte (TOMS = Total Ozone Mapping Spectrometer) bzw. Ozonprofile (SBUV = Solar Backscatter Ultra-Violet radiometer) [Uppala et al., 2004]. Auch Satellitenmessungen anderer Spurengase (z.B.  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}$ ) sollen zukünftig als Eingangsdaten für numerische Wettervorhersagemodelle (englisch: NWP = numerical weather prediction) benutzt werden [Thépaut und Andersson, 2003].

Meteorologische Analysen werden von den numerischen Wettervorhersagemodellen durch eine sogenannte Datenassimilation erzeugt. Die meteorologischen Beobachtungsdaten werden dabei derart in eine Kurzfrist-Vorhersage eingefügt, dass die berechneten meteorologischen Felder so nah wie möglich an den Beobachtungsdaten liegen und gleichzeitig die dynamischen Grundgleichungen erfüllt werden [Stohl et al., 2004]. Vereinfachungen und numerische Approximationen bei der Formulierung der Modellgleichungen führen jedoch dazu, dass die Integration der Beobachtungsdaten in die Modellrechnungen die dynamische Konsistenz der Modellanalysen stört [Scheele et al., 2005]. Die Ergebnisse dieser operationell durchgeführten Rechnungen sind üblicherweise alle 6 Stunden verfügbar.

Die verschiedenen numerischen Modelle greifen im Wesentlichen auf dieselben Eingangsdaten aus Radiosonden- und Satellitenmessungen zurück [Randel et al., 2004]. Trotzdem führen unterschiedliche Analyse- bzw. Datenassimilationstechniken z.T. zu erheblichen Differenzen in den analysierten Wind- und Temperaturfeldern. Randel et al. [2004] vergleichen klimatologische Datensätze der Temperatur und des zonalen Windes für die mittlere Atmosphäre, die neben Modelldaten auch Satellitenmessungen und subjektive Daten der FU Berlin umfassen. Sie stellen eine insgesamt gute Übereinstimmung zwischen den Datensätzen fest. Sie zeigen aber auch, dass trotz der Verbesserungen der Modellanalysen weiterhin Differenzen in den Klimatologien für die Temperatur der tropischen Tropopause, die tropischen Windfelder und die Temperatur der polaren unteren Stratosphäre bestehen. Darüberhinaus gibt es global große Variationen zwischen den verschiedenen Datensätzen bei der Bestimmung der Temperatur und der Ausprägung der Stratopause. Randel et al. [2004] führen dies zum einen auf die relativ geringe vertikale Auflösung der zugrundeliegenden Satellitendaten zurück, die in der oberen Stratosphäre die einzige Quelle von globalen Beobachtungsdaten sind. Zum anderen wirkt sich hier aus, dass bei vielen der untersuchten Modelle die Stratopausenregion am oberen Rand der Modelle liegt, was zu größeren Fehlern in den analysierten Daten führt. Die synoptische Entwicklung konkreter meteorologischer Situationen, beispielsweise die südhemisphärische Stratosphärenenerwärmung im Jahr 2002, wird von den operationellen Modellen nahezu identisch wiedergegeben [z.B. Manney et al., 2005a,b]. So zeigen die Modellanalysen eine gute Übereinstimmung für die Temperatur- und Windentwicklung sowie ihre drei-dimensionale Struktur während dieser Erwärmung. Manney et al. [2005a] stellen fest, dass es trotz dieser guten Erfassung der wesentlichen Strukturen kleine, aber z.T. signifikante Unterschiede zwischen den meteorologischen Feldern der verschiedenen Modellanalysen gibt. Sie weisen darauf hin, dass die Auswahl der meteorologischen Eingangsdaten die Ergebnisse von Chemie- bzw. Transport-Modellstudien und die Ergebnisse detaillierter Untersuchungen zur kleinskaligen, dynamischen Entwicklung beeinflussen können. Auch Parrondo et al. [2007] betonen den Einfluss der verwendeten Temperaturfelder auf die Güte des von Chemie-Transport-Modellen berechneten Ozonverlustes. Sie vergleichen für einige antarktische Stationen für den Winter 2003 Radiosondendaten mit operationellen NCEP- (National Centers for Environmental Prediction) und ECMWF-Daten. Die NCEP-Temperaturen stimmen in der unteren Stratosphäre gut mit den Radiosondendaten überein, sind aber in der mittleren Stratosphäre um bis zu +3 K zu hoch. Hingegen weichen die ECMWF-Analysen bei sehr kalten Bedingungen ( $T < -85^\circ\text{C}$ ) um bis zu -3 K von den Temperaturen ab, die mit den Radiosonden gemessen wurden. Wie Par-

rondo et al. [2007] zeigen, kann dies zu einer Überschätzung des Bildungspotentials für polare stratosphärische Wolken (englisch: polar stratospheric clouds, PSCs) und damit auch zu einer Überschätzung des Ozonabbaus führen (vgl. Abschnitt 2.4.1). Weitere Studien zur Qualität der verschiedenen Modellanalysen kommen zu ähnlichen Ergebnissen. Beispielsweise ermitteln Knudsen et al. [2002] für einzelne Tage im arktischen Winter Fehler in den Temperaturen von über 14 K. Knudsen et al. [2006] stellen eine mittlere Abweichung der operationellen ECMWF-Daten (T511, 60 Modellflächen) von den bei Langzeit-Ballonflügen ermittelten In-Situ-Messwerten von  $-0,9\text{ K}$  für die Temperatur und von bis zu  $-0,7\text{ m/s}$  für den zonalen Wind (in den Tropen bei Ostwind) fest. Borsche et al. [2007] vergleichen die Temperaturen im Bereich der tropischen Tropopause, die aus Messungen des Satelliten CHAMP gewonnen wurden, mit ECMWF- und NCEP-Daten. Für die Tropopausentemperatur stellen sie im saisonalen Mittel signifikante Unterschiede von bis zu  $+4\text{ K}$  für die NCEP-Daten bzw. bis zu  $-2\text{ K}$  für die ECMWF-Daten fest. Mit der ab Februar 2006 operationell eingesetzten Modellversion des ECMWF (T799, 91 Modellflächen), bei der die vertikale Auflösung um die Tropopause annähernd verdoppelt wurde, wird die Variabilität der Atmosphäre wesentlich besser erfasst als mit der ECMWF-Vorversion, da über die höhere horizontale und vertikale Auflösung auch kleinskaligere Wellen richtig wiedergegeben werden. Die Differenzen zwischen den CHAMP- und den ECMWF-Tropopausentemperaturen sind dementsprechend für die letzten beiden Saisons, die Borsche et al. [2007] untersucht haben (MAM und JJA 2006), signifikant geringer und annähernd Null. Lyjak und Yudin [2005] zeigen, dass die aus den verschiedenen meteorologischen Analysen abgeleiteten Parameter zur Beschreibung großskaliger Mischungsprozesse für die obere Troposphäre und die untere Stratosphäre gut übereinstimmen. Für die mittlere und obere Stratosphäre werden Regionen mit schwacher bzw. starker Mischung qualitativ identisch wiedergegeben, es bestehen aber wesentliche Unterschiede bei der quantitativen Ableitung der Mischungsparameter. Manney et al. [2003] untersuchen für zwei kalte, arktische Winter (1995–96 und 1999–2000) den Einfluss der verwendeten meteorologischen Analyse auf das abgeleitete Potential zur PSC-Bildung. Auch sie stellen fest, dass die wesentlichen Strukturen der Temperaturverteilung identisch wiedergegeben werden. Die Minimum-Temperaturen der verschiedenen Analysen in der unteren Stratosphäre variieren typischerweise um bis zu ca.  $5\text{ K}$ . Anhand von Fallstudien zum Temperaturverlauf entlang von Luftpaketen zeigen Manney et al. [2003], dass in den meisten Fällen Unterschiede in den Temperaturfeldern die Ergebnisse für das PSC-Bildungspotential dominieren. Z.T. beeinflussen aber auch die zugrundeliegenden Windfelder die Ergebnisse wesentlich, da sie zu unterschiedlichen Positionen der Luftpakete führen, an denen andere Temperaturen herrschen. Auf die aus diesen Unterschieden zwischen den meteorologischen Feldern resultierenden Fehler in der Trajektorienberechnung wird in Abschnitt 4.2.2 eingegangen.

Vor allem die Vertikalkomponente  $w$  des Windes ist mit großen Unsicherheiten behaftet [Stohl und Seibert, 1998]. Während die horizontalen Windkomponenten  $u$  und  $v$  typischerweise einige Meter pro Sekunde betragen und durch Messungen sehr gut bestimmbar sind, ist die Vertikalkomponente  $w$  des Windes um ca. einen Faktor 100 kleiner und beträgt maximal einige Zentimeter pro Sekunde [Brasseur und Solomon, 2005]. Dadurch kann sie messtechnisch nur sehr schwer erfasst werden und es gibt keine routinemässigen Beobachtungsdaten für die

Vertikalkomponente  $w$  des Windes. Der Vertikalwind  $w$  liegt daher lediglich als Ergebnis von Modellrechnungen vor. Innerhalb numerischer Wettervorhersagemodelle wird er aus den vertikal integrierten horizontalen Winddivergenzen abgeleitet, so dass dynamische Inkonsistenzen und unzureichende Parametrisierungen bei der Modellformulierung zu ungenauen Ergebnissen für  $w$  führen [Stohl, 1998; Bregman et al., 2006]. Die Vertikalgeschwindigkeit kann auch aus dem diabatischen Auf- bzw. Absteigen von Luftmassen bestimmt werden, die durch die Berechnung von Erwärmungsraten aus Strahlungstransfermodellen gewonnen werden (siehe auch Abschnitt 4.1.3). Eine weitere Möglichkeit besteht darin, aus der Konzentration langlebiger Spurengase (z.B.  $N_2O$ ) das Alter der Luft und damit die Transportzeit von der Troposphäre zur Stratosphäre zu abzuschätzen [z.B. Hall und Plumb, 1994; Waugh und Hall, 2002]. In verschiedenen Studien [vgl. z.B. Schoeberl et al., 2003; Meijer et al., 2004; Scheele et al., 2005; Bregman et al., 2006] wurde die Güte des Vertikalwindes  $w$  anhand des Alters der Luft untersucht. Dabei konnte gezeigt werden, dass bei Modellen, die mit Windfeldern aus der Datenassimilation angetrieben werden, der Vertikaltransport in der Stratosphäre im Vergleich zu Beobachtungen überschätzt wird. Das Alter extra-tropischer stratosphärischer Luft ist dementsprechend niedriger (jünger) als das aus Beobachtungen abgeleitete. Pawson et al. [2007] verwenden anstelle der sonst üblichen Datenfelder, die den Modellzustand alle 6 Stunden beschreiben, ein während der Datenassimilation gebildetes 6-Stunden-Mittel der Vertikalgeschwindigkeit als Eingangsdaten für ein Chemie-Transport-Modell. Sie zeigen, dass der Vertikaltransport damit realistischer beschrieben wird, aber weiterhin Diskrepanzen zum aus Beobachtungen abgeleiteten Alter der Luft bestehen. Diese Überschätzung des Vertikaltransportes ist vor allem für Transportuntersuchungen über sehr lange Zeiträume (mehrere Monate bis Jahre) relevant. Laut Schoeberl et al. [2003] ist dies aber für Transportstudien über einige Wochen bis Monate vernachlässigbar.

Die räumliche Auflösung der Modelldaten und damit auch die Qualität der Modellanalysen verbessert sich durch die steigende Leistungsfähigkeit und Kapazität der Großrechner permanent. Seit Februar 2006 werden z.B. vom ECMWF operationelle Berechnungen mit einem horizontalen Gitterabstand von unter 30 km (T799) durchgeführt [ECMWF, 2006]. Weitere Verbesserungen des Assimilationssystems werden in Zukunft zu einer realistischeren Beschreibung v.a. des vertikalen Transportes im operationellen ECMWF-Vorhersagemodell führen [vgl. Monge-Sanz et al., 2007]. Inzwischen liegen erste Ergebnisse von Simulationen mit einem japanischen Klimamodell vor, das auf dem Earth-Simulator global mit einer horizontalen Auflösung von 20 km rechnet [Noda et al., 2005; Satoh et al., 2008]. Trotzdem bestehen weiterhin Probleme, die zeitliche und räumliche Konsistenz von analysierten Feldern meteorologischer Größen zu erhalten [Stohl und Seibert, 1998; Stohl et al., 2004].

#### 4.1.3. Annahmen über die Vertikalbewegung bei der Berechnung von Trajektorien

Die Vielzahl der in der Literatur beschriebenen Trajektorienmodelle unterscheidet sich v.a. in den über den Vertikalwind  $w$  gemachten Annahmen bzw. Vereinfachungen [z.B. Stohl und Seibert, 1998; Schoeberl und Sparling, 1995]. Wie bereits im vorigen Abschnitt 4.1.2 erläutert wurde, ist

die Vertikalkomponente  $w$  des Windes mit größeren Unsicherheiten behaftet als die horizontalen Windkomponenten. Stohl et al. [1995] zeigten außerdem, dass aufgrund der hochfrequenten Variabilität von  $w$  bei der vertikalen Interpolation größere Fehler auftreten als bei der Interpolation des horizontalen Windes. Tabelle 4.1 gibt einen Überblick über die im Folgenden vorgestellten Trajektorienmodelle und die ihnen zugrundeliegenden Annahmen zum Vertikalwind. Auf verschiedene Methoden zur Untersuchung der Genauigkeit von Trajektorienmodellen wird in Kapitel 4.2 eingegangen.

Im einfachsten Fall wird die Vertikalkomponente des Windes vollständig vernachlässigt und die Trajektorien werden z.B. auf *isobaren* Flächen (Flächen gleichen Druckes) oder *Isosigma*-Flächen (d.h. dem Verlauf der Modellflächen folgend<sup>1</sup>) berechnet. Unter der Annahme, dass vertikale Bewegungen nur durch adiabatische Prozesse – d.h. ohne Wärmeaustausch mit der Umgebung – verursacht werden, können *isentrop*e Trajektorien berechnet werden, die sich auf Flächen gleicher potentieller Temperatur bewegen. Wie in Kapitel 2.2 bereits dargestellt wurde, steigt unter typischen atmosphärischen Bedingungen die potentielle Temperatur  $\Theta$  mit der Höhe über dem Boden an und kann als Vertikalcoordinate verwendet werden. Die Vertikalbewegungen der Luft werden somit durch die zeitliche Entwicklung der Topographie der  $\Theta$ -Flächen beschrieben. Die Beschränkung auf adiabatische Änderungen kann dabei nur aufrecht erhalten werden, wenn Wärmeaustauschprozesse mit der Umgebung im Vergleich zu dynamischen Prozessen sehr langsam verlaufen [Schoeberl und Sparling, 1995]. Dies ist i. Allg. in der Stratosphäre bei Berechnungen für bis zu drei oder vier Tagen gültig [Austin und Tuck, 1985].

Zur Berücksichtigung diabatischer Prozesse werden *quasi-isentrop*e Trajektorien berechnet [z.B. Austin und Tuck, 1985]. Ausgehend von bekannten Erwärmungsraten, die über Strahlungstransportberechnungen ermittelbar sind, wird die Änderung der potentiellen Temperatur als Funktion der Zeit bestimmt. Die ursprüngliche  $\Theta$ -Fläche wird um diese Änderung korrigiert, so dass sich das Luftpaket auf einer neuen isentropen Fläche weiter bewegt. Der tatsächliche Weg der Luftpakete wird durch die *quasi-isentrop*e Annäherung am ehesten physikalisch korrekt wiedergegeben. Austin und Tuck [1985] stellen fest, dass dies in der Stratosphäre unter ruhigen Bedingungen (z.B. bei einem annähernd stationären, barotropen<sup>2</sup> Polarwirbel) für Berechnungen bis zu 10 Tagen der Fall ist und bei sehr gestörten Verhältnissen (z.B. während Stratosphären-erwärmungen) für Betrachtungen über bis zu vier oder fünf Tage gilt.

Durch Verbesserungen in den Modellen können inzwischen auch aus *drei-dimensionalen* Windfeldern unter expliziter Berücksichtigung des Vertikalwindes abgeleitete Trajektorien den Transportweg realistisch beschreiben. Während Stohl und Seibert [1998] zeigen, dass bei troposphärischen Anwendungen die *drei-dimensionalen* Trajektorien sogar genauer als alle anderen aus den oben beschriebenen Annahmen abgeleiteten Trajektorien sind, stellen Harris et al. [2005] – ebenfalls für die Troposphäre – fest, dass sich aufgrund der fehlenden Referenz für den

---

<sup>1</sup> Die Modellflächen sind dabei so angelegt, dass sie in den untersten, bodennahen Schichten dem Verlauf der Oberfläche folgen und sich, je höher sie liegen, den Druckflächen annähern.

<sup>2</sup> Unter barotropen Bedingungen verlaufen die Druck- und Temperaturflächen parallel zueinander [z.B. Warnecke, 1997, S. 183]. Das Zentrum des Polarwirbeltiefs liegt in diesem Fall genau über dem Kältezentrum und die Wirbelachse verläuft senkrecht, weist also mit zunehmender Höhe keine Neigung auf. Somit können keine Änderungen der Zirkulation auftreten.

Tab. 4.1.: Trajektorienmodelle und die zugrundeliegenden Annahmen über die Vertikalbewegung

Koordinatensystem	Zweidimensional				Dreidimensional
	Isosigma/ Isoeta	Isobar	Isentrop	Quasi-Isentrop	
Annahmen zur Vertikalbewegung	vernachlässigt	vernachlässigt	adiabatisch	diabatisch	aus Windkomponenten explizit berücksichtigt
Vertikale Koordinate	$\sigma$ (Modellflächen, die in Bodennähe der Oberfläche folgen und am Modelloberrand den Druckflächen entsprechen)	$p$ (Flächen gleichen Druckes)	$\Theta$ (Flächen gleicher potentieller Temperatur)	$\dot{\Theta}$ (Flächen gleicher potentieller Temperatur, für die eine diabatische Korrektur erfolgt)	—
Nachteile/ Probleme bei der Realisierung	Keine realistische Beschreibung der Vertikalbewegungen	Keine realistische Beschreibung der Vertikalbewegungen	Bewegungen, die aus diabatischen Prozessen resultieren, werden nicht berücksichtigt	Diabatische Prozesse müssen bekannt sein bzw. modelliert werden (Strahlungs-transportmodell)	Vertikalwind $w$ muss in ausreichender Genauigkeit bekannt sein
Beispiele/ Referenzen	Kuo et al. [1985]; Haagensohn et al. [1987]	Danielsen [1961], NOAA-isobaric [Kahl et al., 1989]	Danielsen [1961], Petersen und Uccellini [1979], ARL HYSPLIT [Draxler und Hess, 2004], CMDL [Harris et al., 2005]	CLaMS [McKenna et al., 2002], AWI-Transportmodell [Tegtmeyer, 2006]	ARL HYSPLIT [Draxler und Hess, 2004], CMDL [Harris et al., 2005], FLEXTRA [Stohl et al., 1995]

wahren Transportweg nicht in jedem Fall entscheiden lässt, ob *isentrop* oder *drei-dimensionale* Trajektorien die realistischeren Ergebnisse liefern. Auch für die Stratosphäre lässt sich nach Stohl und Seibert [1998] keine abschließende Aussage darüber treffen, ob *drei-dimensionale* oder *isentrop* Trajektorien den realen Transportweg besser beschreiben. Öllers et al. [2002] stellen demgegenüber fest, dass Transportvorgänge durch den antarktischen Polarwirbelrand besser von *drei-dimensionalen* als von *isentropen* Trajektorien simuliert werden. Für die Zukunft ist zu erwarten, dass weitere Verbesserungen in den Modellen die Genauigkeit der Windfelder und damit auch die Qualität *drei-dimensionaler* Trajektorien erhöhen.

#### 4.1.4. Berücksichtigung von Energie- und Massenerhaltung

Die horizontalen Windkomponenten können messtechnisch zwar sehr gut bestimmt werden, sie liegen aber nur in einer zeitlich und räumlich begrenzten Auflösung vor (siehe Abschnitt 4.1.2). Werden sie als Eingangsdaten für Trajektorienmodelle verwendet, so ist eine Interpolation erforderlich, die zu Fehlern in der Beschreibung der Windfelder führen kann [siehe z.B. Kahl und Samson, 1986; Stohl et al., 1995]. Die zeitliche und räumliche Interpolation kann zur Folge haben, dass die der Trajektorienberechnung zugrundegelegten Windfelder nicht das Energieerhaltungsgesetz erfüllen. Rein *kinematisch* – also nur aus den Windgeschwindigkeiten – berechnete Trajektorien sind damit u.U. nicht energie- und massenerhaltend.

Daher entwickelte schon Danielsen [1961] eine *dynamische* Methode zur grafischen Konstruktion von isentropen Trajektorien, bei der die Energieerhaltung berücksichtigt wird. Diese Methode hat jedoch den Nachteil, dass nicht immer eine eindeutige Lösung existiert. Außerdem ist es aufgrund der mangelnden zeitlichen Auflösung der Eingangsdaten schwierig, Partikelbeschleunigungen entlang des Trajektorienweges zu berücksichtigen.

Im Gegensatz zu der *impliziten*<sup>3</sup> Methode von Danielsen schlugen Petersen und Uccellini [1979] ein *explizites*<sup>3</sup> Gleichungssystem auf der Basis der von Greenspan [1972, 1973] entwickelten Theorie eines „diskreten Modelles“ vor, das auch die Grundlage für das Trajektorienmodell der FU Berlin bildet (siehe Kapitel 4.3). Dabei wird zu sukzessiven Zeitschritten mit Hilfe der Eulerschen Bewegungsgleichung für reibungsfreie Strömungen (siehe auch Abschnitt 2.2.4) zunächst die Partikelbeschleunigung bestimmt:

$$a_x(t_n) = -\frac{\Delta M}{\Delta x}(t_n) + f(t_n)v(t_n), \quad (4.2)$$

$$a_y(t_n) = -\frac{\Delta M}{\Delta y}(t_n) - f(t_n)u(t_n). \quad (4.3)$$

Anschließend werden aus Greenspans Differenzgleichungen die neuen Geschwindigkeits- und Entfernungsvektoren berechnet.

$$u(t_{n+1}) = u(t_n) + \Delta t \left[ \frac{3}{2}a_x(t_n) - \frac{1}{2}a_x(t_{n-1}) \right], \quad (4.4)$$

<sup>3</sup> Implizite Gleichungen lassen sich erst nach Umformung bzw. nur näherungsweise (z.B. über Iterationsverfahren) lösen. Aus expliziten Gleichungen kann die gesuchte abhängige Veränderliche direkt abgeleitet werden, sofern eine analytische Lösung der Gleichung existiert.

$$v(t_{n+1}) = v(t_n) + \Delta t \left[ \frac{3}{2}a_y(t_n) - \frac{1}{2}a_y(t_{n-1}) \right], \quad (4.5)$$

$$x(t_{n+1}) = x(t_n) + \Delta t \left[ \frac{u(t_{n+1}) + u(t_n)}{2} \right], \quad (4.6)$$

$$y(t_{n+1}) = y(t_n) + \Delta t \left[ \frac{v(t_{n+1}) + v(t_n)}{2} \right], \quad (4.7)$$

- mit  $a_x, a_y$  = Beschleunigung in x- bzw. y-Richtung,  
 $M$  = Montgomery-Potential,  
 $x, y$  = Ortskoordinaten,  
 $f$  = Coriolis-Parameter,  
 $u, v$  = horizontale Windkomponenten und  
 $t$  = Zeit zum angegebenen Zeitschritt.

Die Energieerhaltung ist nur für geschlossene Systeme gültig, so dass die Güte der mit Greenspan's Gleichungssystem berechneten Trajektorien davon abhängt, inwieweit das System energiekonsistent betrieben wird. Durch die Vernachlässigung der Reibung sowie die Interpolation auf die jeweilige Trajektorienposition können aber künstliche Energiequellen oder -senken in das System eingeführt werden. Petersen und Uccellini [1979] führten daher verschiedene idealisierte Experimente durch, bei denen in einem konstanten geostrophischen Windfeld Trajektorien mit unterschiedlichen Anfangswindgeschwindigkeiten initialisiert wurden. Sie konnten durch Variationen des Zeitschrittes (5 bis 30 Minuten) zeigen, dass die Energieerhaltung umso besser erfüllt wird, je kleiner der Zeitschritt zur Lösung des Gleichungssystems gewählt wird. Außerdem stellten sie fest, dass die maximale Änderung der Gesamtenergie um zwei bis drei Größenordnungen kleiner ist als die jeweilige individuelle Änderung der potentiellen bzw. der kinetischen Energie. Sie schlussfolgerten daraus, dass der Fehler im Luftmassenweg, der aus ihrer impliziten Methode resultiert, minimal ist.

Letztlich muss der Zeitschritt zur Lösung des Gleichungssystems so klein gewählt werden, dass innerhalb des Zeitschrittes Stationarität angenommen werden kann. Im stationären Zustand entsprechen die durch das Montgomery-Potential beschriebenen Stromlinien genau dem Trajektorienweg. Während diese Annahme in der oberen Troposphäre und in der Stratosphäre als realistisch angesehen werden kann, ist in der unteren Troposphäre aufgrund kleinskaliger Prozesse Stationarität auch bei kleinen Zeitschritten von einigen Minuten nicht zwingend gegeben. Darüberhinaus kann auch die Reibung in der unteren Troposphäre nicht vernachlässigt werden, so dass das Verfahren hier nur bedingt einsetzbar ist.

Verschiedene Autoren untersuchten, welcher Ansatz zur Beschreibung des Trajektorienweges die realistischeren Ergebnisse liefert. Dabei wurden neben rein kinematischen oder rein dynamischen Methoden auch Verfahren untersucht, bei denen der kinematische und der dynamische Ansatz in einem *hybriden* Modell gemischt wird. Stohl und Seibert [1998] kommen in ihrer Studie zu dem Schluss, dass dynamische Trajektorien unrealistischen Oszillationen unterliegen, die

in ageostrophischen, im Montgomery-Potential nicht berücksichtigten, Windkomponenten und in Inkonsistenzen in den zugrundeliegenden meteorologischen Eingangsfeldern begründet sind. Trajektorien, die mit einem hybriden Modell berechnet wurden, zeigten zwar keine Oszillationen, unterlagen aber in den Untersuchungen von Stohl und Seibert [1998] ebenfalls größeren Fehlern als kinematische Trajektorien. Im Gegensatz dazu konnten Dvorkin et al. [2001] und Paldor et al. [2002] mit ihrem hybriden Modell eine bessere Übereinstimmung mit den in der freien Troposphäre von Ballonen zurückgelegten Wegen feststellen als mit kinematischen Trajektorien. Merrill et al. [1986] stellen fest, dass dynamische Methoden auch dann realistische Ergebnisse liefern, wenn die meteorologischen Eingangsdaten in einer geringen zeitlichen Auflösung vorliegen (nur zweimal pro Tag). Sie weisen außerdem darauf hin, dass die Güte *aller* Methoden zur Trajektorienberechnung entscheidend von der Genauigkeit und Konsistenz der meteorologischen Eingangsdaten abhängt.

### 4.2. Methoden zur Überprüfung der Genauigkeit von Trajektorien

Für die Anwendung von Trajektorien z.B. im Rahmen der Validierung von Satellitendaten (vgl. Kapitel 6) oder zur Untersuchung von Transportprozessen (vgl. Kapitel 7) muss sichergestellt sein, dass die Trajektorien den tatsächlichen Weg der Luftmassen ausreichend genau wiedergeben. Es muss also bekannt sein bzw. abgeschätzt werden, wie groß die Abweichungen zwischen den Trajektorien und den realen Transportwegen sind, um die Qualität solcher Untersuchungen bewerten zu können. Verschiedene Annahmen und Fehler können bei der Berechnung von Trajektorien zu Ungenauigkeiten in der Beschreibung des Luftpaketweges führen. Die wichtigsten Fehlerquellen sind [vgl. z.B. Stohl, 1998; Stohl und Seibert, 1998; Stunder, 1996]:

- Vereinfachungen in der physikalischen Beschreibung der Trajektorien (z.B. ungenügende Beschreibung der Vertikalbewegung, siehe 4.1.3),
- Annäherungen bei der numerischen Umsetzung und Interpolation (z.B. Approximationsfehler),
- die geringe zeitliche und räumliche Auflösung der meteorologischen Eingangsdaten bzw. fehlerhafte Eingangsdaten (siehe 4.1.2) sowie
- Fehler bei der Startposition der Trajektorien.

Eine große Schwierigkeit bei der Untersuchung dieser Fehlerquellen und beim Vergleich verschiedener Trajektorienmodelle besteht darin, dass es keine "wahre" Referenztrajektorie gibt [Stohl, 1998]. Es ist nicht möglich, den tatsächlichen Weg eines Luftpaketes direkt zu messen. Dieser kann lediglich indirekt über verschiedene Hilfsmittel und sogenannte Tracer (*trace = engl. Spur*) abgeschätzt werden. Stohl [1998] gibt einen Literaturüberblick über die Möglichkeiten zur Bestimmung der Trajektoriengüte und die von verschiedenen Autoren ermittelten absoluten und relativen Fehler bei der Trajektorienberechnung. Er geht auch auf die hier nicht vorgestellten Methoden zur Trajektorienvalidierung anhand von chemischen Tracern (inerte Spurengase wie

z.B. Sulfur-Hexafluorid) und natürlichem Material (z.B. Pollen, Wüstensand) ein, die v.a. für troposphärische Untersuchungen relevant sind.

#### 4.2.1. Kenngrößen zur Validierung von Trajektorien

Die Qualität von Trajektorienmodellen wird üblicherweise anhand statistischer Parameter überprüft [Stohl, 1998], d.h. es wird nicht die Güte einer einzelnen Trajektorie bewertet, sondern es werden Ensembles von Trajektorien zur Bestimmung der Güteparameter verwendet. Von vielen Autoren wird die mittlere absolute horizontale Abweichung (engl.: AHTD = absolute horizontal transport deviation) der Testtrajektorien von den Referenztrajektorien nach einer bestimmten Transportzeit  $t$  als Gütemaß verwendet [Stohl, 1998]:

$$AHTD(t) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \sqrt{[X_n(t) - x_n(t)]^2 + [Y_n(t) - y_n(t)]^2}, \quad (4.8)$$

mit  $N$  = Anzahl der Trajektorien,  
 $x, y$  = Position der Referenztrajektorien zum Zeitpunkt  $t$ ,  
 $X, Y$  = Position der Testtrajektorien zum Zeitpunkt  $t$  und  
 $t$  = Zeit.

Als Referenztrajektorien werden je nach Untersuchung z.B. die von realen Ballonen zurückgelegten Wege oder Trajektorien, die unter bestimmten Annahmen berechnet wurden, verwendet. Der reale Transportweg der Luftmassen ist, wie bereits erwähnt, nicht bekannt. Letztlich ist also nur eine Abschätzung der aus der Trajektorienrechnung resultierenden Unsicherheiten möglich. Für ein einzelnes Trajektorienpaar zeigt Abbildung 4.1 beispielhaft die berechnete absolute horizontale Abweichung. Ein äquivalentes Gütemaß kann für die vertikale Abweichung bestimmt werden.

Die mittlere absolute horizontale Abweichung wird häufig zu einem mittleren Transportweg bzw. einer mittleren Referenzlänge in Bezug gesetzt, um die relative horizontale Abweichung (engl.: RHTD = relative horizontal transport deviation) zu bestimmen:

$$RHTD(t) = \frac{AHTD(t)}{L(t)}, \quad (4.9)$$

mit  $AHTD$  = absolute horizontale Abweichung (siehe Gleichung 4.8),  
 $L$  = Länge der Trajektorie (siehe auch Abbildung 4.1) und  
 $t$  = Zeit.

Diese Referenzlänge wird von verschiedenen Autoren unterschiedlich definiert [Stohl, 1998]. Zum Teil wird die mittlere Länge der Referenztrajektorien als Bezug verwendet, zum Teil ein Mittelwert aus der Länge der Referenz- und der Testtrajektorien. Auch die Trajektorienlänge wird nicht einheitlich definiert. Während einige Autoren die Länge als kürzeste Verbindung zwischen Start- und Endpunkt definieren, wird in vielen Studien der von der Trajektorie beschriebene Weg – also

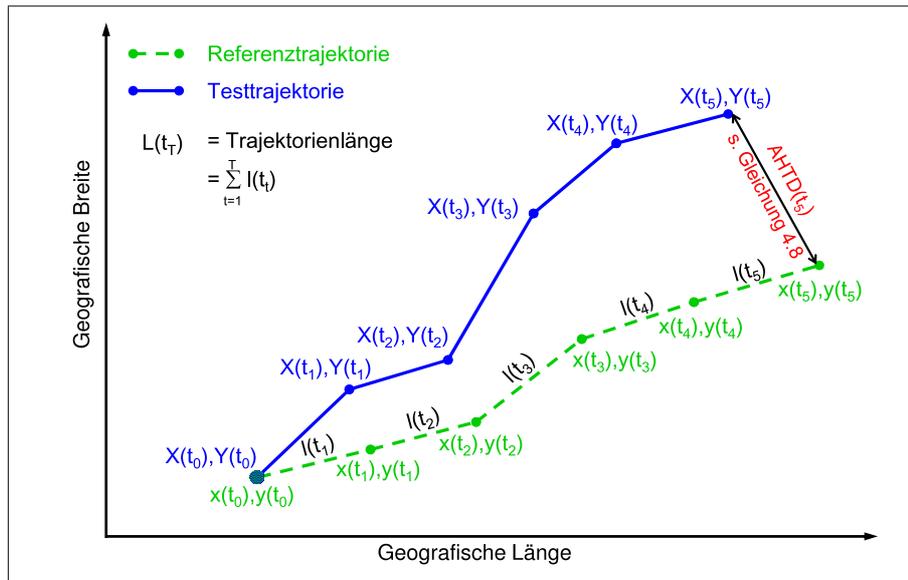


Abb. 4.1.: Absolute horizontale Abweichung zwischen einem einzelnen Trajektorienpaar zu einem bestimmten Zeitschritt

die Summe der für jeden Zeitschritt zurückgelegten Teilwege – als Trajektorienlänge verwendet (siehe auch Abbildung 4.1). Bei den Untersuchungen zur Güte des Trajektorienmodells der FU Berlin in Kapitel 5 wird die mittlere relative horizontale Abweichung in Bezug auf die Länge der Referenztrajektorie angegeben. Die Trajektorienlänge wird als Summe der zurückgelegten Teilwege definiert. Als Referenztrajektorien dienen für die programminternen Sensitivitätsstudien jeweils die Trajektorien, bei denen eine bessere Beschreibung des realen Transportweges erwartet werden kann (z.B. die Trajektorien, die basierend auf einer höheren horizontalen oder vertikalen Auflösung berechnet wurden.). Für die Vergleiche mit anderen Trajektorienmodellen werden die mit dem Modell der FU Berlin berechneten Trajektorien als Referenz benutzt.

#### 4.2.2. Validierung mit Hilfe von Ballonen

Eine häufig angewendete Methode zur Bestimmung der Trajektoriengüte besteht im Vergleich der Trajektorien mit den von Tetraeder-Formen zurückgelegten Wegen. Diese tetraeder-förmigen Ballone werden für die Sondierung horizontaler Luftbewegungen eingesetzt [siehe z.B. Businger et al., 1999]. Ein wesentliches Problem für den Vergleich ist dabei, dass sich die Ballone meist auf Flächen gleicher Dichte bewegen, während die Luftpakete eher dem Verlauf von Flächen gleicher potentieller Temperatur folgen. Außerdem sind die von den Ballonen zurückgelegten Wege oft nur ca. 100 km lang, so dass die Daten nicht für die Untersuchung von großräumigen Transportprozessen geeignet sind [Stohl et al., 1995]. Die Daten von bemannten Ballonen wurden ebenfalls von verschiedenen Autoren zur Validierung von Trajektorienmodellen benutzt [z.B. Baumann und Stohl, 1997]. Die Flughöhe bemannter Ballone wird durch den Piloten aktiv bestimmt. Sie kann entweder durch Ablassen von Gas verringert oder durch Abwerfen von Ballast erhöht werden. Daher muss diese Änderung der Flughöhe bei einem Vergleich im Trajektorienmodell explizit berücksichtigt werden. Die Daten sowohl der Tetraeder-Ballone als auch der bemannten

Ballonflüge sind aufgrund der geringen Flughöhen (maximal ca. 5000 Meter) nur zur Validierung troposphärischer Trajektorien geeignet.

Stratosphärische Trajektorien wurden von Knudsen und Carver [1994] und Knudsen et al. [1996] mit Langzeitflügen von Ballonen verglichen, die sich auf konstanten Druckflächen bewegten. Die Ballonflüge wurden im Rahmen verschiedener Messkampagnen (EASOE = European Arctic Stratospheric Ozone Experiment, POVORBEX = Polar Vortex Balloon Experiment) im polaren Nordwinter durchgeführt und dauerten bis zu 6 Tage. Die Trajektorien wurden basierend auf operationellen ECMWF-Daten (T106) mit verschiedenen Annahmen zum Vertikalwind berechnet (isobar, isentrop, diabatisch bzw. dreidimensional). Die relative horizontale Abweichung der Trajektorien von den tatsächlichen Ballonwegen betrug typischerweise ca. 20 %. In Einzelfällen konnte der Fehler jedoch schon nach 24 Stunden auf 40 Prozent anwachsen.

Knudsen et al. [2001] untersuchten, inwieweit die meteorologischen Eingangsdaten Einfluss auf die Trajektoriengüte haben. Sie verglichen die Daten von 5 stratosphärischen Ballonflügen im polaren Nordwinter mit einer Dauer von 6 bis 22 Tagen mit Trajektorien, die auf der Basis verschiedener Modellanalysen (ECMWF, NCEP bzw. UKMO = U.K. Meteorological Office) berechnet wurden. Nach 2 Tagen betrug die absolute horizontale Abweichung im Mittel ca. 250 bis 600 km. Für die basierend auf den ECMWF-Analysen berechneten Trajektorien lag sie im Extremfall bei 1500 km. Zum Teil konnten Knudsen et al. [2001] signifikante Unterschiede zwischen den aus den verschiedenen meteorologischen Analysen abgeleiteten Trajektorienfehlern feststellen. Eine generelle Aussage, welches der verwendeten meteorologischen Modelle die besten Trajektorien liefert, ließ sich jedoch nicht treffen. Das verbesserte, seit Mai 1999 operationelle ECMWF-Modell mit 50 Modellflächen führte i. Allg. zu kleineren Fehlern, stand aber nur für die Untersuchung von 2 der insgesamt 5 Ballonflüge zur Verfügung.

Hertzog et al. [2004] konnten in einer neueren Untersuchung zeigen, dass die ausgehend von einer weiterentwickelten Modellversion des ECMWF mit 60 Modellflächen (T511, operationell seit 2000) berechneten Trajektorien den Luftmassenweg besser wiedergeben als Trajektorien aus NCEP-Daten. Sie untersuchten für 6 Ballonflüge mit einer Dauer von 8 bis 45 Tagen die Güte der meteorologischen Analysen von ECMWF und NCEP sowie daraus resultierende Fehler in der Trajektorienberechnung. Die Ballonflüge fanden im Januar und Februar 2002 im arktischen Winter in der unteren Stratosphäre statt. Nach 5 Tagen betrug der horizontale Abstand zu den realen Ballonwegen für die NCEP-Trajektorien  $1700 \pm 1400$  km und für die ECMWF-Trajektorien  $270 \pm 230$  km. Hertzog et al. [2004] führen als mögliche Ursache für diese Unterschiede die höhere vertikale und horizontale Auflösung des ECMWF-Modelles in der unteren Stratosphäre an. Knudsen et al. [2006] kommen zu vergleichbaren Ergebnissen. Sie analysierten die Daten von 11 Langzeitflügen, die 7 bis 79 Tage dauerten und überwiegend in den Tropen zwischen 80 und 15 hPa (ca. 17 bis 28 km) stattfanden. Nach 5 Tagen war die mittlere Abweichung zu den realen Ballonpositionen für die auf operationellen ECMWF-Daten beruhenden Trajektorien ca. 500 km und für die basierend auf NCEP/NCAR-Reanalysen berechneten Trajektorien ca. 1300 km.

Keil et al. [2001] werteten ebenfalls die Daten von Langzeitflügen in der Stratosphäre aus. Zum einen überprüften sie die analysierten Windgeschwindigkeiten von UKMO und DAO (Data Assimilation System, NASA Goddard Space Flight Center) anhand der während der Flüge

gemessenen Winde. Zum anderen untersuchten sie die Güte von Trajektorien, die auf der Basis von 5-Tages-Vorhersagen berechnet wurden. Es wurden insgesamt 7 Flüge mit einer Dauer von 9 bis 118 Tagen ausgewertet, die zum überwiegenden Teil im südhemispherischen Sommer durchgeführt wurden (1 Flug während des Nordsommers, 1 Flug im Südwinter). Die Trajektorien wurden einerseits aus den Vorhersagen der beiden Modelle UKMO und DAO berechnet, andererseits aus den an der aktuellen Ballonposition gemessenen Winddaten. Für den Winterflug ergaben sich aufgrund der stärkeren Winde die größten Abweichungen zur tatsächlichen Ballonposition. Der mittlere relative Fehler betrug hier nach 5 Tagen 36 % (UKMO) bzw. 43 % (DAO), für einzelne Trajektorien wuchs der Fehler auf bis zu 77 %. Für die Sommerfälle lag der relative Trajektorienfehler unter 40 %. Die besten Ergebnisse wurden zum Teil aus dem Fortschreiben der aktuellen Winddaten gewonnen, was auf die hohe zeitliche Autokorrelation der schwachen Winde im stratosphärischen Sommer zurückzuführen ist.

Der wesentliche Nachteil der ballon-basierten Trajektorienprüfung liegt darin, dass die Ballone nicht der realen dreidimensionalen Luftbewegung folgen. Damit aber kann die vertikale Bewegung der Trajektorien – die ja bei der Formulierung eines Trajektorienmodells verschieden approximiert werden kann (siehe 4.1.3) – nicht mit dieser Methode überprüft werden. Außerdem sind Daten zur Ballonposition während des Fluges nicht in jedem Fall verfügbar. Die Daten bemannter Flüge und von Tetroon-Ballonen sind darüberhinaus nur für die Validierung von troposphärischen Trajektorien geeignet.

### 4.2.3. Dynamische Erhaltungsgrößen und Vorwärts-/Rückwärts-Test

Für adiabatische, reibungsfreie Prozesse stellen sowohl die *potentielle Temperatur*  $\Theta$  als auch die *potentielle Vorticity* (*PV*) dynamische Erhaltungsgrößen dar (siehe auch Kapitel 2.2). Im Allgemeinen verlaufen Strahlungsaustauschprozesse in der Stratosphäre relativ langsam und der Energieeintrag durch kleinskalige Turbulenzen (Eddy Dissipation) ist vernachlässigbar, so dass sowohl  $\Theta$  als auch die PV entlang einer Trajektorie annähernd konstant sind [Schoeberl und Sparling, 1995]. Sie lassen sich daher mit gewissen Einschränkungen [siehe Stohl und Seibert, 1998] zur Überprüfung von Trajektorienmodellen anwenden. Die *potentielle Temperatur* ist entlang isentroper Trajektorien per Definition konstant, so dass sie sich nur zur Überprüfung anderer Trajektorienarten (z.B. drei-dimensionaler oder isobarer) eignet. Auch die Erhaltung der *potentiellen Vorticity* ist auf Prozesse beschränkt, die auf konstanten isentropen Flächen ablaufen, so dass in der Stratosphäre aufgrund diabatischer Prozesse nach einigen Tagen mit Abweichungen zu rechnen ist (siehe Abschnitt 4.1.3). Knudsen [1993] untersuchte die zeitliche Entwicklung der PV entlang stratosphärischer Trajektorien und stellte z.T. schnelle Änderungen der PV fest. Er führt diese teilweise auf die lineare Interpolation der zugrundeliegenden Variablen zurück, von denen die PV nichtlinear abhängt. Auch Ziv und Alpert [1994] zeigen für die Troposphäre, dass die angewendete Interpolationsmethode bei der Transformation von Druck- auf Thetaflächen v.a. kleinskalige Strukturen der abgeleiteten PV beeinflussen. Sie stellen außerdem fest, dass die Güte der berechneten PV stark von der vertikalen Auflösung der gegebenen Druckflächen abhängt. Eine weitere Ursache für die PV-Änderung entlang von Trajektorien können fehlerhafte kleinskalige

Variationen in den meteorologischen Feldern sein, die aus der Datenassimilation resultieren. Auch nach der Bildung eines gleitenden 24-Stunden-Mittels zeigten sich bei den von Knudsen [1993] untersuchten isentropen Trajektorien starke Änderungen der PV. Für 5-Tages-Trajektorien, die zwischen 350 und 700 K berechnet wurden, betrug die mittlere Änderung der über 24 Stunden gemittelten PV ca. 10 bis 14 Prozent. Knudsen [1993] folgert daraus, dass nur große Änderungen in der PV auf fehlerhafte Trajektorien schließen lassen, da unter bestimmten Bedingungen auch bei Betrachtungen über nur wenige Tage tatsächlich starke PV-Änderungen auftreten können.

Nach Schoeberl und Sparling [1995] lässt sich die numerische Güte eines Trajektorienmodells am besten über einen Vorwärts-/Rückwärtstest überprüfen. Dazu werden zunächst für einen bestimmten Zeitraum Vorwärtstrajektorien berechnet. Anschließend werden an den Endpunkten dieser Trajektorien Rückwärtstrajektorien initialisiert und über denselben Zeitraum zurücktransportiert. In einem idealen Modell erreichen die Rückwärtstrajektorien genau die Startkoordinaten der Vorwärtstrajektorien. Aufgrund numerischer Annäherungen und Interpolationen ist bei realen Modellen mit Abweichungen zwischen den Startpunkten der Vorwärts- und den Endpunkten der Rückwärtstrajektorien zu rechnen. Laut Schoeberl und Sparling [1995] können diese Abweichungen bei Trajektorienrechnungen über einen Tag für Zeitschritte zwischen 0,005 und 0,02 Tagen (7,2 bis 28,8 Minuten) je nach verwendetem Integrationsverfahren im Mittel ca.  $10^{-6}$  bis  $10^{-2}$  Grad (1 Grad  $\approx$  110 km) betragen. Treten zwischen der Vorwärts- und der Rückwärtsrechnung kleine Abweichungen auf, so können diese bei starken Gradienten in den zugrundeliegenden meteorologischen Feldern in den folgenden Zeitschritten zu extremen Unterschieden zwischen der Vorwärts- und der Rückwärtsrechnung führen.

Die Anwendung des Tests zur Überprüfung der numerischen Güte ist auf nicht-hybride Modelle beschränkt. Das sind Trajektorienmodelle, bei denen die Trajektorienposition aus *einem* mathematisch/physikalischen Ansatz mit einer Lösung bestimmt wird, also beispielsweise rein kinematische Modelle (siehe auch Abschnitt 4.1.4). Diese Modelle können über einen ausreichend kleinen Zeitschritt und eine genügend hohe Anzahl von Iterationen so konstruiert werden, dass Vorwärts- und Rückwärtsrechnung zu einer annähernd identischen Lösung führen.<sup>4</sup> Der Vorwärts-/Rückwärts-Test bietet bei solchen Modellen eine gute Möglichkeit, das numerische Verfahren festzulegen und den für die gewünschte Genauigkeit aufzuwendenden Rechenaufwand zu optimieren. Mit dem Test kann überprüft werden, wie groß die Unsicherheiten im Modell durch numerische Approximationen und Interpolationen sind. Eine Aussage darüber, inwieweit die berechneten Trajektorien die Realität widerspiegeln, lässt sich nicht treffen.

Bei hybriden Modellen – wie dem Trajektorienmodell der FU Berlin (siehe Abschnitt 4.3.3) – wird der aktuelle Trajektorienpunkt durch eine Mischung von zwei oder mehr Verfahren berechnet. Stimmen die Lösungen dieser Verfahren überein, so lässt sich auch hier über die Wahl des Zeitschrittes und die Anzahl der Iterationen eine annähernd identische Lösung für die Vorwärts- und Rückwärtsrechnung konstruieren. Bestehen aber beispielsweise kleinste Inkonsistenzen in den zugrundeliegenden meteorologischen Feldern, so gibt es keine eindeutige Lösung. Auch bei sehr kleinem Zeitschritt und sehr hoher Iterationszahl treten dann Abweichungen zwischen der

<sup>4</sup> Fuelberg et al. [1996] ermittelten bei einem Zeitschritt von einer Minute nach einer Transportzeit von 5 Tagen mittlere Abstände von 0,007 km für isentrope und 21,7 km für kinematische Trajektorien in der Troposphäre.

Vorwärts- und der Rückwärtsrechnung auf. Damit wird hier über den Vorwärts-/Rückwärtstest nicht ausschließlich die Güte der numerischen Approximationen getestet, sondern der Test zeigt auch die bei der Ableitung der Trajektorien auftretenden Unsicherheiten. Für Trajektorien, die im Test große Abweichungen aufweisen, ist der Luftmassenweg nicht eindeutig bestimmbar. Es ist in diesem Fall unwahrscheinlich, dass der reale Weg der Luftmassen richtig beschrieben wird. Der Vorwärts-/Rückwärtstest erlaubt damit bei hybriden Modellen, unsichere Trajektorien von den weiteren Untersuchungen auszuschließen. Der Umkehrschluss für Trajektorien mit geringen oder keinen Abweichungen ist nicht möglich. Durch Fehler und Unsicherheiten z.B. in den meteorologischen Eingangsdaten und bei der Interpolation der Daten ist auch eine 100-prozentige Übereinstimmung der Rückwärtstrajektorie mit der zugrundeliegenden Vorwärtstrajektorie kein Indiz für die richtige Wiedergabe des realen Luftmassenweges.

### 4.2.4. Überblick über mögliche Testverfahren und zu untersuchende Parameter

Wie bereits erläutert, besteht die größte Schwierigkeit bei der Bewertung von Trajektorien darin, dass es keine "wahre" Referenztrajektorie gibt. Es ist lediglich möglich, durch verschiedene Testverfahren und Variationen der Modellparameter, mögliche Fehlerquellen und ihre Größenordnung abzuschätzen. Im Folgenden sind die Annahmen und Parameter, die die Güte eines Trajektorienmodelles bestimmen und die bei der Entwicklung und Anwendung von Modellen zu berücksichtigen sind, aufgeführt:

- Numerische Umsetzung des Modelles,  
Dazu zählen:
  - Art des numerischen Verfahrens [z.B. Schoeberl und Sparling, 1995; Tegtmeier, 2006],
  - Art der Interpolationsverfahren [z.B. Stohl et al., 1995],
  - Anzahl der Iterationen und
  - Größe des Zeitschrittes [z.B. Schoeberl und Sparling, 1995; Tegtmeier, 2006].
- Auflösung des Modelles (horizontal und vertikal) sowie  
Auflösung der meteorologischen Eingangsdaten (horizontal, vertikal und zeitlich)  
(siehe Abschnitt 4.1.2 und z.B. Scheele et al. [1996]; Rolph und Draxler [1990]; Kahl und Samson [1986]),
- Art der meteorologischen Eingangsdaten (z.B. ECMWF, UKMO, NCEP, siehe Abschnitt 4.1.2 und Abschnitt 4.2.2) und
- Annahmen zum Vertikaltransport (siehe Abschnitt 4.1.3).

Die genannten Einflussgrößen können über Sensitivitätsstudien – also Variation des jeweiligen Parameters – untersucht werden. Dabei können sowohl künstliche als auch reale meteorologische Felder den Ausgangspunkt der Untersuchungen bilden. Wie im vorigen Kapitel ausführlich diskutiert, kann die numerische Güte eines nicht-hybriden Modelles über einen Vorwärts-/Rückwärtstest beschrieben werden. Auch die Überprüfung von dynamischen Erhaltungsgrößen entlang der berechneten Trajektorien kann Aufschluss über mögliche Fehler und Ungenauigkeiten bei der Umsetzung des Trajektorienmodelles geben.

Zur Validierung eines Trajektorienmodelles kann auch ein

- Vergleich mit externen Daten durchgeführt werden. Dabei können
  - Ballone (siehe Abschnitt 4.2.2),
  - Tracer (inerte Spurengase bzw. natürliches Material, siehe Stohl [1998]) oder
  - andere Trajektorienmodelle [z.B. Stohl et al., 2001]
 als externe Vergleichsdaten herangezogen werden.

Abgesehen davon, dass die genannten externen Daten häufig nicht zur Verfügung stehen, unterliegt ihre Anwendung verschiedenen Annahmen und Einschränkungen (siehe auch Abschnitt 4.2.2). Ob bzw. wie gut die berechneten Trajektorien den tatsächlichen Luftweg wiedergeben, lässt sich daher nicht abschließend feststellen. Jedoch können über

- Verfahren zum Ausschluss unsicherer Trajektorien Fälle identifiziert werden, bei denen der Luftmassenweg nicht eindeutig bestimmbar ist und die berechneten Trajektorien großen Unsicherheiten unterliegen. Solche Verfahren sind:
  - der Vorwärts-/Rückwärtstest (siehe Abschnitt 4.2.3),
  - die Überprüfung dynamischer Erhaltungsgrößen entlang der Trajektorien (siehe Abschnitt 4.2.3) sowie
  - die Verschiebung des Startpunktes der Trajektorien (siehe z.B. Merrill et al. [1985], bzw. Clustertrajektorien beim Ozonsondenmatch [z.B. Rex et al., 1999]).

Für all diese Verfahren gilt, dass lediglich unsichere Trajektorien identifiziert und von weiteren Anwendungen ausgeschlossen werden können. Auch mit Trajektorien, für die die Testverfahren positive Ergebnisse liefern, ist der Luftmassenweg nicht zwingend realistisch beschrieben, da z.B. die meteorologischen Eingangsdaten fehlerbehaftet sein können (siehe auch Abschnitt 4.2.3).

### 4.3. Das Trajektorienmodell der FU Berlin

Das in der vorliegenden Arbeit angewendete Trajektorienmodell wurde bereits vor über 20 Jahren von Dr. E. Reimer u.a. an der Freien Universität Berlin entwickelt. Eine erste computerbasierte Version wurde 1985 von Kirch implementiert und seitdem mehrfach verbessert. Das Trajektorienmodell wurde bei einer Vielzahl von Studien eingesetzt, z.B. zur Untersuchung der Luftmassenherkunft in der Troposphäre [Reimer und Kaupp, 1997] bzw. in der Stratosphäre [Langematz et al., 1987; Petzold und Schmidt, 1993] und zur Bestimmung des arktischen Ozonabbaus durch Denitrifikation [Waibel et al., 1999]. Seit dem Winter 1994/95 wird das Trajektorienmodell regelmäßig zur Koordinierung von Ozonsondenmessungen (Match) eingesetzt, um den chemischen Ozonabbau im polaren Winter zu bestimmen [z.B. Rex et al., 1999].

Das Trajektorienmodell der FU Berlin ist ein hybrides *kinematisch-dynamisches* Modell, das auf der von Petersen und Uccellini [1979] vorgestellten *expliziten* Methode zur Berechnung *dynamischer* Trajektorien basiert (siehe Abschnitt 4.3.3). Meteorologische Felder des operationellen ECMWF-Modelles dienen als Eingangsdaten für die hier vorgestellte stratosphärische Modellversion (siehe Abschnitt 4.3.1). Trajektorien in der planetarischen Grenzschicht können mit einer separaten Modellversion berechnet werden, die auch Radiosondendaten als meteorologische Eingangswerte verarbeitet [siehe Reimer, 1980]. Bei dieser Modellversion werden weitere Parameter

(z.B. Bodenreibung und Topographie) berücksichtigt, die in der oberen, freien Troposphäre und in der Stratosphäre vernachlässigt werden können. Die Trajektorien werden hier rein *kinematisch* berechnet, da die Anwendung des *dynamischen* Ansatzes von Petersen und Uccellini [1979] u.a. von reibungsfreien Prozessen ausgeht, die in der bodennahen Schicht nicht gegeben sind. Auf die Besonderheiten für Trajektorien in der planetarischen Grenzschicht soll an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden. Im Folgenden ist mit dem Trajektorienmodell der FU Berlin immer die stratosphärische Version des Modelles gemeint. Um Kontinuitätsprobleme am Pol zu vermeiden, werden die Trajektorien in einem transformierten Gitterraum berechnet, bei dem ein Eckpunkt des Gitters den Bezugspunkt bildet (siehe Abschnitt 4.3.1). Das Modell der FU Berlin erlaubt die Ableitung *isentrop* oder *quasi-isentrop* Trajektorien. Zur Berechnung der *quasi-isentropen* Trajektorien werden entweder klimatologische oder aktuelle, extern bereitgestellte Erwärmungsraten verwendet (siehe Abschnitt 4.3.2).

Da bisher keine vollständige Dokumentation des Modelles vorliegt, wird im Folgenden auf einzelne Aspekte des Trajektorienprogrammes genauer eingegangen. Informationen zum prinzipiellen Programmablauf und weitere Details zum Format der Eingangsdaten (Trajektorienstartpunkte) sowie zum Ausgabeformat (Trajektoriendateien) finden sich im Anhang A. Untersuchungen zur Güte des Modelles werden in Kapitel 5 vorgestellt.

### 4.3.1. Meteorologische Eingangsdaten und ihre Umrechnung auf isentrope Flächen

Als meteorologische Eingangsdaten für das Trajektorienmodell der FU Berlin stehen operationelle ECMWF-Daten zur Verfügung. Das globale, atmosphärische ECMWF-Modell rechnet seit November 2000 mit einer horizontalen Auflösung von ca. 40 km (T511). In der Vertikalen wurden die Variablen auf 60 Modell-Flächen dargestellt, die sich vom Erdboden bis 0.1 hPa ( $\sim 65$  km) erstreckten [ECMWF, 2002; Simmons et al., 2005]. Seit Februar 2006 läuft das ECMWF-Modell operationell auf 91 Modellflächen bis 0.01 hPa ( $\sim 80$  km) mit einem Gitterabstand von ca. 30 km (T799; ECMWF, 2006). Die Ergebnisse des ECMWF-Modelles werden als spektrale Daten täglich automatisiert an einen Rechner der FU Berlin übertragen (siehe auch Abb. A.1). Die Daten werden, um den Speicherbedarf zu verringern, in einer reduzierten spektralen Auflösung gesendet (T106, ca. 120 km horizontaler Gitterabstand). Sie liegen auf 21 Standard-Druckflächen zwischen 1000 und 1 hPa ( $\sim 50$  km) vor. Der zeitliche Abstand zwischen den Analysen beträgt 6 Stunden. Außerdem stehen täglich Vorhersagen basierend auf der 12-Uhr-Analyse vom Vortag zur Verfügung, die bis zu einer Vorhersagezeit von 96 Stunden ebenfalls alle 6 Stunden vorliegen. Dadurch wird auch die Berechnung von Vorhersage-Trajektorien möglich. Dies ist z.B. für die Planung von Messkampagnen (siehe Kap. 6) sehr wichtig.

Die spektrale Auflösung der Daten von T106 erlaubt eine Umrechnung auf ein Längen-Breiten-Gitter mit einem Abstand von  $1,125^\circ \times 1,125^\circ$ . Das Trajektorienmodell der FU Berlin kann Daten mit einem Gitterabstand von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  (288x144 Gitterpunkte) oder  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  (144x72 Gitterpunkte) verarbeiten. Die Umrechnung der spektralen Daten auf das jeweilige Längen-Breiten-Gitter erfolgt mit Hilfe eines vom ECMWF bereitgestellten Programmpaketes.

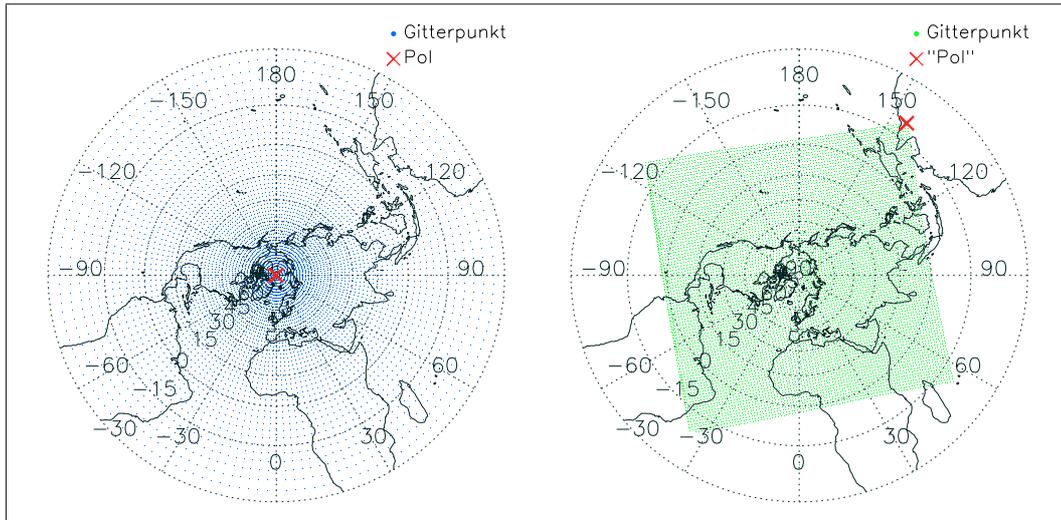


Abb. 4.2.: Gitterpunkte links auf Druckflächen (Ausschnitt) und rechts auf Theta-Flächen (Nordhemisphäre)

Als Ergebnis liegen Dateien vor, die auf den Standard-Druckflächen das Geopotential  $\Phi$ , die Temperatur  $T$  sowie die beiden horizontalen Windkomponenten  $u$  und  $v$  enthalten (siehe auch Abb. A.1).

Zur Interpolation auf isentrope Flächen erfolgt zunächst eine Transformation des Längen-Breiten-Gitters auf ein rechtwinkliges, stereografisches Gitter [Reimer, 1977] und eine Verschiebung des Pols zur rechten, oberen Ecke des neuen stereografischen Gitters (siehe Abb. 4.2). Die stereografische Projektion wird getrennt für die Nord- und Südhemisphäre durchgeführt, die Projektionsebene liegt in  $60^\circ\text{N}$  bzw.  $60^\circ\text{S}$ . Die Verzerrung eines Erdkugelsegmentes kann durch den Maßstabsfaktor  $s$  beschrieben werden [z.B. Reimer, 1977]:

$$s = \frac{1 + \sin 60^\circ}{1 + \sin \varphi}, \quad (4.10)$$

mit  $s$  = Maßstabsfaktor für die polarstereografische Projektion und  
 $\varphi$  = geografische Breite.

Der Maßstabsfaktor gibt das Längenverhältnis zwischen einer durch die Projektion abgebildeten Strecke und der tatsächlichen Strecke auf der Kugelfläche an. Bei der Berechnung der Trajektorienposition muss über den Faktor eine entsprechende Rückrechnung auf geografische Längen/Breiten erfolgen (siehe Abschnitt 4.3.3). Das stereografische Gitter wird so angelegt, dass die jeweilige Hemisphäre vollständig dargestellt wird, d.h. die Kanten des Gitters überdecken den Äquator (siehe Abb. 4.2). In der  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ -Version besteht das Gitter aus  $97 \times 97$  äquidistanten Gitterpunkten, in der  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ -Version bilden  $193 \times 193$  Punkte das neue stereografische Gitter.

Aus den auf Druckflächen vorliegenden Variablen werden die Exnerfunktion  $\Pi$  (siehe Gl. 2.15, S. 9) und das Montgomery-Potential  $M$  (siehe Gl. 2.17, S. 11) abgeleitet. Die horizontalen Windkomponenten  $u$  und  $v$  werden so transformiert, dass sie sich auf den neu festgelegten "Pol"

04.03.2003, 12 UT, 50 hPa (Datei: EC03030412.000)

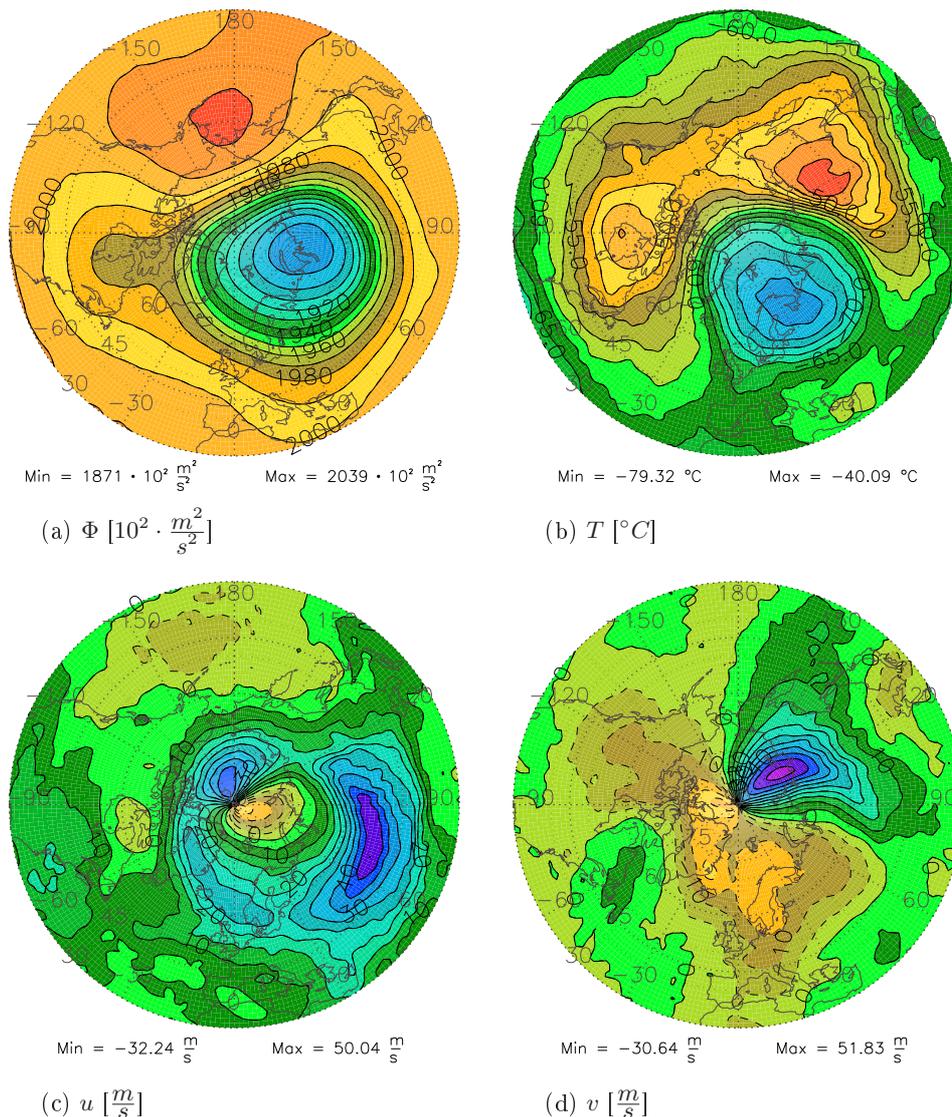


Abb. 4.3.: Beispiel für die auf Druckflächen verfügbaren Daten – 4. März 2003, 12 UT, 50 hPa:  
 (a) Geopotential, (b) Temperatur, (c) zonaler Wind und (d) meridionaler Wind

beziehen. Damit werden Kontinuitätsprobleme am jeweiligen Pol verhindert. Die vertikale Interpolation auf die isentropen Flächen erfolgt linear in  $\ln(p)$ . Die Abbildungen 4.3 und 4.4 zeigen beispielhaft für den 4. März 2003, 12 UT die vom ECMWF auf Druckflächen bereitgestellten Variablen für 50 hPa sowie die daraus abgeleiteten Größen für die 480 K-isentrope Fläche ( $\sim 50$  hPa). Montgomery-Potential und Exnerfunktion auf der isentropen Fläche geben die Strukturen von Geopotential bzw. Temperatur auf der isobaren Fläche wieder (siehe Kapitel 2). Für die horizontalen Windkomponenten  $u$  und  $v$  verdeutlichen die beiden Abbildungen den Vorteil der Transformation des Bezugspunktes. Während in Abbildung 4.3 für  $u$  und  $v$  am Nordpol abrupte Vorzeichenwechsel auftreten, die bei einer Interpolation für die Trajektorienrechnung zu uneindeutigen numerischen Lösungen bzw. zu Fehlern führen, ändern sich die Felder für  $u$  und  $v$  in Abbildung 4.4 kontinuierlich, so dass numerische Probleme am jeweiligen Pol (hier: Nordpol) ausgeschlossen sind.

04.03.2003, 12 UT, 480 K (Datei: TH03030412.000)

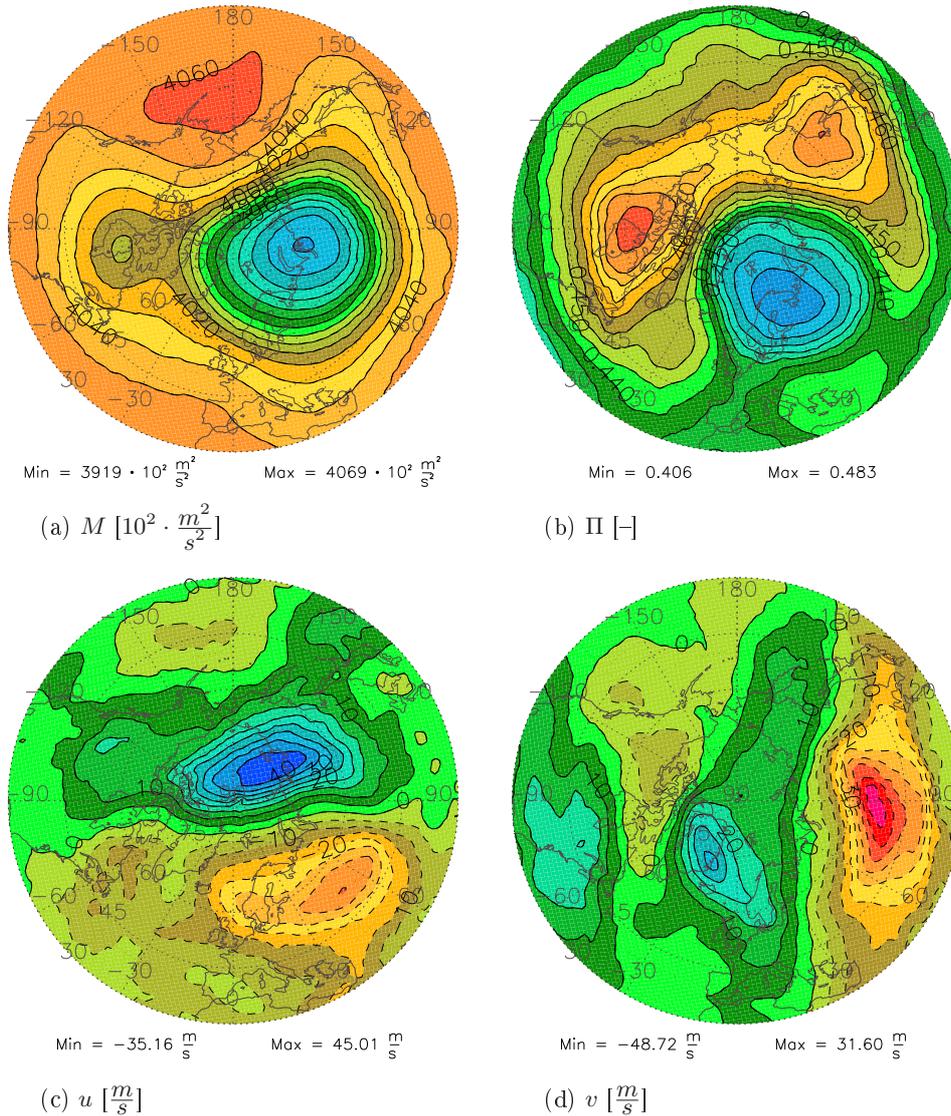


Abb. 4.4.: Beispiel für die auf Thetaflächen umgerechneten Daten – 4. März 2003, 12 UT, 480 K ( $\sim 50$  hPa): (a) Montgomery Potential, (b) Exnerfunktion, (c) u-Komponente des Windes und (d) v-Komponente des Windes

In der ursprünglichen Modellversion werden 25 Theta-Flächen (L25) verwendet, die im Programmcode (im Unterprogramm *ecmgridact*, siehe Abb. A.1) frei gewählt werden können. Die für die Trajektorienrechnungen in der vorliegenden Arbeit in der 25-Flächen-Version eingestellten isentropen Flächen sind – zusammen mit den durch die ECMWF-Daten gegebenen Druckflächen – in Abbildung 4.5 in einem Druck-Temperatur-Diagramm dargestellt. Sie sind so gewählt, dass sie annähernd äquidistant die gesamte Stratosphäre (100 – 1 hPa bzw. ca. 380 – 1600 K) abdecken. Als oberste isentrope Fläche wurde 1600 K ausgewählt, damit auch bei extrem kalten stratosphärischen Bedingungen eine Interpolation der Variablen aus den gegebenen ECMWF-Druckflächen möglich ist (vgl. in Abb. 4.5 dargestelltes Standard-Temperaturprofil und eingezeichnete Temperatur-Extremwerte). Da auch Trajektorien in der freien Troposphäre berechnet werden, liegen einige isentrope Flächen in der Troposphäre. In der Nähe der Tropopause

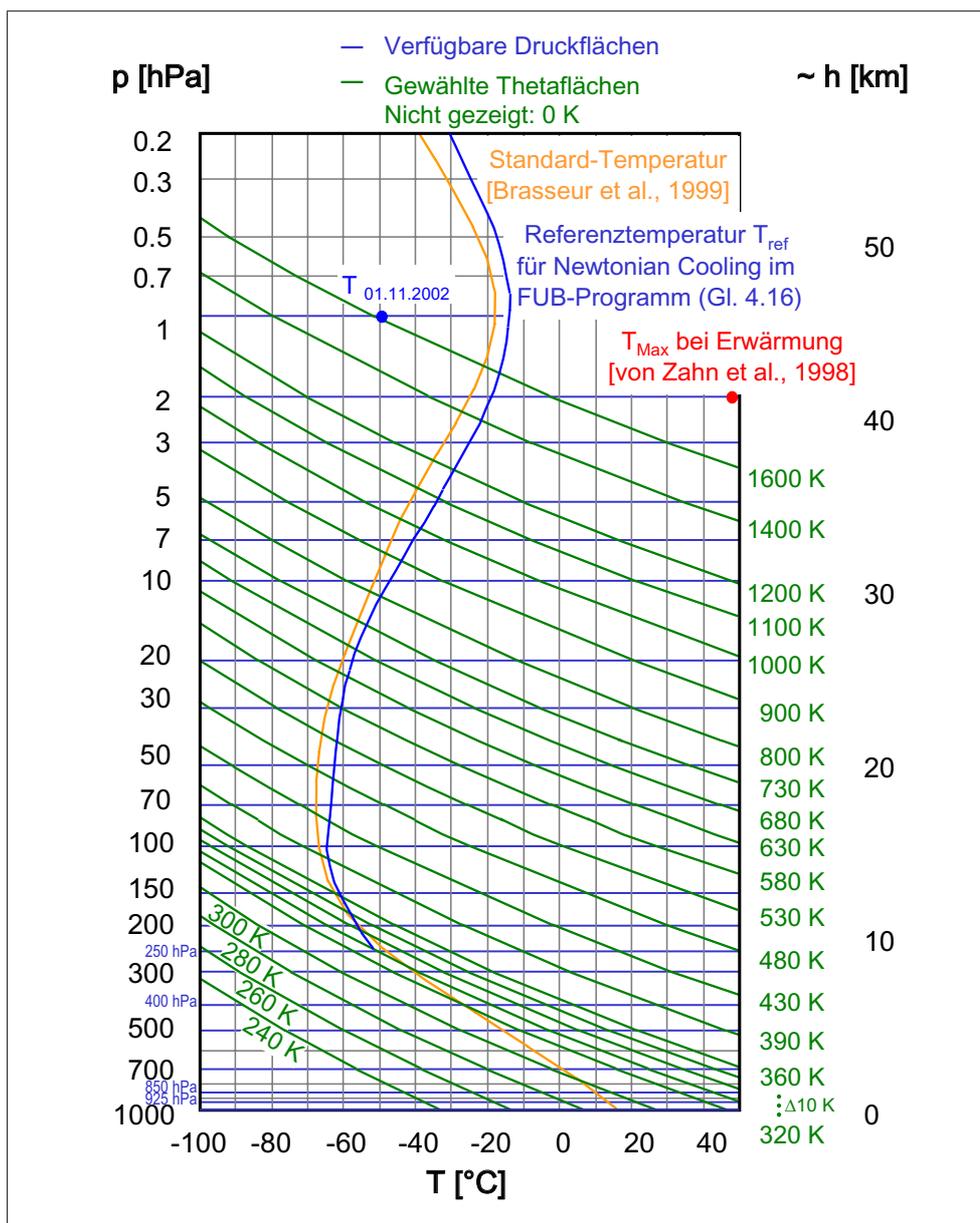


Abb. 4.5.: Im Trajektorienprogramm der FU Berlin verwendete  $\Theta$ -Flächen in der 25-Flächen-Version (L25)

treten höhere Gradienten in den Variablenfeldern auf, daher ist in diesem Bereich der Abstand zwischen den gewählten isentropen Flächen mit 10 K minimal. Um den Einfluss der vertikalen Auflösung des Modelles auf die Berechnung der Trajektorien zu untersuchen, wurde die Anzahl der Theta-Flächen im Rahmen dieser Arbeit auf 59 Flächen erhöht (siehe Abb. 5.3).

#### 4.3.2. Annahmen über Vertikalbewegungen: Berücksichtigung diabatischer Prozesse

Der Vertikaltransport kann im Trajektorienmodell der FU Berlin basierend auf folgenden drei Annahmen berücksichtigt werden (siehe auch Abschnitt 4.1.3):

- isentroper Transport,
- quasi-isentroper Transport mithilfe intern berechneter Erwärmungsraten (klimatologische Erwärmungsraten) oder
- quasi-isentroper Transport mithilfe extern bereitgestellter Erwärmungsraten (aktuelle Erwärmungsraten).

### Isentroper Transport

Dem isentropen Transport liegt die Annahme zugrunde, dass vertikale Bewegungen nur durch adiabatische Prozesse, also nicht durch Wärmeaustausch mit der Umgebung, verursacht werden. In diesem Fall ist der Vertikaltransport vollständig durch die Bewegung auf isentropen Flächen beschrieben und es erfolgt keine Korrektur der potentiellen Temperatur (siehe auch Kap. 2.2 bzw. Abschnitt 4.1.3).

### Quasi-isentroper Transport

Unter Berücksichtigung diabatischer Prozesse ändert sich die potentielle Temperatur, so dass eine entsprechende Korrektur erfolgt [z.B. Austin und Tuck, 1985; Reid et al., 1998]:

$$\Theta(t_{n+1}) = \Theta(t_n) + \frac{d\Theta}{dt}, \quad (4.11)$$

$$= \Theta(t_n) + Q\Delta t, \quad (4.12)$$

mit $\Theta$	=	potentielle Temperatur [K],
$Q$	=	Netto-Erwärmungsrate [ $\frac{K}{s}$ ],
$t$	=	Zeit zum angegebenen Zeitpunkt und
$\Delta t$	=	Zeitschritt [s].

Die benötigten Nettoerwärmungsraten können im Trajektorienmodell über einfache Parametrisierungen intern berechnet oder als externe Daten zur Verfügung gestellt werden.

### Intern berechnete Erwärmungsraten (klimatologische Erwärmungsraten)

Diabatische Prozesse treten in Form von Absorption oder Emission von Strahlung auf (siehe auch Abschnitt 3.1.1). Je nach betrachteter Wellenlänge spielen dabei unterschiedliche Spurengase eine Rolle [siehe z.B. Pawson, 1993; Warnecke, 1997]. Ozon  $O_3$  und molekularer Sauerstoff  $O_2$  absorbieren überwiegend im ultravioletten Teil des Sonnenspektrums. Diese Absorption und die daraus folgende Erwärmung ist die Ursache für die mit der Höhe zunehmende Temperatur in der Stratosphäre. Auch Kohlendioxid  $CO_2$  liefert – überwiegend in der Mesosphäre zwischen 60–80 km – einen Beitrag zur Absorption der Solarstrahlung [Houghton, 1969]. In der Troposphäre bildet Wasserdampf  $H_2O$  den Hauptabsorber für die solare Strahlung. Weitere Spurengase, v.a. Methan und die anthropogenen FCKW, gewinnen zunehmend Bedeutung als Absorber [Warnecke, 1997]. Die Emission langwelliger Strahlung – in der Stratosphäre hauptsächlich durch Kohlendioxid und Ozon – führt zu einer Abkühlung [z.B. Liou, 2002].

Eine genaue Berücksichtigung der genannten Strahlungstransport-Prozesse erfordert detaillierte Kenntnisse über die aktuelle Verteilung der Spurengase und eine rechenaufwändige Beschreibung des Strahlungstransfers. Dies ist im Rahmen des Trajektorienprogrammes nicht zu leisten, so dass hier auf einfache Parametrisierungen und globale Mittel zurückgegriffen wird. Die entsprechenden Routinen wurden Anfang der 1990er Jahre von A. Beck in das Trajektorienmodell der FU Berlin integriert. Die Netto-Erwärmungsraten werden im Modell durch folgende Anteile beschrieben<sup>5</sup>:

$$Q_H = Q_{H,Solar} - Q_{C,IR,global} - Q_{C,IR,T}, \quad (4.13)$$

mit

$$\begin{aligned}
Q_H &= \text{Netto-Erwärmungsrate } \left[\frac{K}{s}\right], \\
Q_{H,Solar} &= \text{Erwärmungsrate dr. Absorption von Solarstrahlung } \left[\frac{K}{s}\right], \\
Q_{C,IR,global} &= \text{global gemittelte Abkühlungsrate durch infrarote} \\
&\quad \text{Strahlung } \left[\frac{K}{s}\right] \text{ und} \\
Q_{C,IR,T} &= \text{Abkühlungsrate, die aus der Abweichung der aktuellen} \\
&\quad \text{Temperatur von einer Referenztemperatur resultiert } \left[\frac{K}{s}\right].
\end{aligned}$$

Kähler [1988] hat unter Annahme mittlerer Spurengasverteilungen ein Vertikalprofil für die täglichen Erwärmungsraten bei senkrecht einfallender Sonneneinstrahlung  $Q_{H,Solar,SZA=0^\circ}$  und für global gemittelte Erwärmungsraten  $Q_{H,Solar,global}$  berechnet<sup>6</sup>. Dabei wurden folgende Parametrisierungen benutzt [siehe Kähler, 1988]:

- für die Absorption durch O<sub>3</sub> und H<sub>2</sub>O: Lacis und Hansen [1974],
- für die Absorption durch O<sub>2</sub>: Strobel [1978] und
- für die Absorption durch CO<sub>2</sub>: Houghton [1969].

Die Erwärmungsrate  $Q_{H,Solar}$  an der jeweiligen Trajektorienposition wird in Abhängigkeit des aktuellen Sonnenstandes berechnet. Sie wird allein durch die Zenitdistanz der Sonne bzw. den Sonnenzenitwinkel (*englisch: Solar Zenith Angle*) und durch  $Q_{H,Solar,SZA=0^\circ}$  bestimmt [siehe auch Kähler, 1988]:

$$Q_{H,Solar} = Q_{H,Solar,SZA=0^\circ} \cos\left(SZA \frac{\pi}{180}\right) \frac{1}{86400}, \quad (4.14)$$

mit

$$\begin{aligned}
Q_{H,Solar} &= \text{Erwärmungsrate durch Absorption von Solar-} \\
&\quad \text{strahlung an der aktuellen Trajektorienposition } \left[\frac{K}{s}\right], \\
Q_{H,Solar,SZA=0^\circ} &= \text{mittlere Erwärmungsrate durch Absorption} \\
&\quad \text{bei senkrecht einfallender Solarstrahlung } \left[\frac{K}{Tag}\right] \text{ und} \\
SZA &= \text{Sonnenzenitwinkel } [^\circ].
\end{aligned}$$

---

<sup>5</sup> Im Folgenden werden Erwärmungsraten mit dem Index H (für englisch: Heating) und Abkühlungsraten mit dem Index C (für englisch: Cooling) bezeichnet. Eine positive Abkühlungsrate steht für eine Abkühlung. Mit einer negativen Abkühlungsrate, die sich z.B. aus Gl. 4.16 bei einer positiven Abweichung der aktuellen Temperatur von der Referenztemperatur ergibt, wird effektiv eine Erwärmung beschrieben. Dementsprechend bedeutet eine negative Erwärmungsrate Abkühlung der Atmosphäre.

<sup>6</sup> Im Programmcode werden diese Daten in der Subroutine `heastr` eingelesen.  $Q_{H,Solar,SZA=0^\circ}$  ist dort explizit angegeben,  $Q_{H,Solar,global}$  wird aus der Datei `ir_alt.dat` eingelesen.

Für Höhen, die zwischen den modellierten Daten  $Q_{H,Solar,SZA=0^\circ}$  liegen, wird zur Ermittlung von  $Q_{H,Solar}$  linear interpoliert. Aufgrund des Strahlungsgleichgewichtes entsprechen die von Kähler [1988] berechneten globalen Erwärmungsraten  $Q_{H,Solar,global}$  im globalen Mittel genau den globalen Abkühlungsraten  $Q_{C,IR,global}$  durch Emission infraroter Strahlung:

$$Q_{C,IR,global} = Q_{H,Solar,global} \frac{1}{86400}, \quad (4.15)$$

mit  $Q_{C,IR,global}$  = global gemittelte Abkühlungsrate durch infrarote Strahlung [ $\frac{K}{s}$ ] und  
 $Q_{H,Solar,global}$  = global gemittelte Erwärmungsrate durch Absorption von Solarstrahlung [ $\frac{K}{Tag}$ ].

Auch für  $Q_{C,IR,global}$  erfolgt eine lineare Interpolation in der Vertikalen. Durch  $Q_{C,IR,global}$  ist eine mittlere Abkühlung beschrieben, die sich für ein globales, mittleres Temperaturprofil ergibt. Weicht die aktuelle Temperatur von diesem globalen Mittel  $T_{Ref}$  ab, so tritt eine zusätzliche Abkühlung (oder Erwärmung) ein, die durch ein *Newtonian Cooling* beschrieben werden kann. Beim Newtonian Cooling wird davon ausgegangen, dass es keine Wechselwirkungen der betrachteten Luftschicht mit den umgebenden Schichten gibt (isothermische Atmosphäre), so dass die infrarote Abstrahlung nur von der lokalen Temperatur der betrachteten Schicht abhängt. Über die Temperaturdifferenz der aktuellen Temperatur zum globalen Mittel kann die aktuelle, zusätzliche Abkühlungsrate bestimmt werden [z.B. Liou, 2002]:

$$Q_{C,IR,T} = - \left( T - T_{Ref} \right) \alpha, \quad (4.16)$$

Die im Programm verwendete Referenztemperatur  $T_{Ref}$  ist in Abbildung 4.5 dargestellt<sup>7</sup>. Der Newtonian-Cooling-Koeffizient wird zwischen 10 und 60 Kilometer Höhe stark vereinfacht wie bei Holton [1976] approximiert:

$$\alpha(z) = \left[ 1,5 + \tanh \left( \frac{z - 35}{7} \right) \right] \cdot 10^{-6}, \quad (4.17)$$

mit  $Q_{C,IR,T}$  = Abkühlungsrate durch infrarote Strahlung [ $\frac{K}{s}$ ]  
aufgrund der Abweichung der aktuellen Temperatur  
von der Referenztemperatur,

$T$  = Temperatur an der aktuellen Trajektorienposition [K],

$T_{Ref}$  = Referenztemperatur [K],

$\alpha$  = Newtonian-Cooling-Koeffizient [ $\frac{1}{s}$ ] und

$z$  = Höhe [km].

Die Relaxationszeit  $\tau(z) = \alpha(z)^{-1}$  beträgt mit dieser Approximation zwischen 10 und 20 km Höhe ca. 20 Tage. In der oberen Stratosphäre (oberhalb von 40 km) ergibt sich eine Relaxationszeit von ca. 5 Tagen. Im dazwischenliegenden Bereich nimmt die Relaxationszeit annähernd linear von 20 auf 5 Tage ab, in 35 km beträgt sie ca. 8 Tage. Sie entspricht damit nahezu den von Newman und Rosenfield [1997] im globalen, jährlichen Mittel berechneten Werten, die zwischen 28 Tagen in 100 hPa und 4 Tagen in 1 hPa liegen.

<sup>7</sup> Die Referenztemperatur ist in der Datei *tglob.dat* abgelegt und wird im Programmcode in der Subroutine *cnewt* eingelesen. Sie liegt zwischen 10 und 60 Kilometern vor.

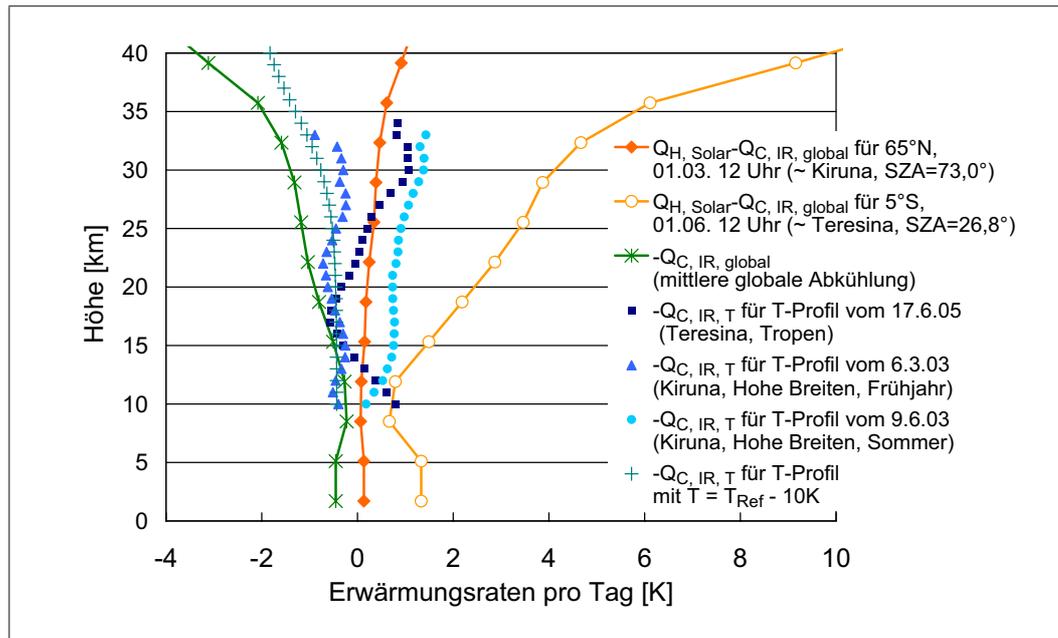


Abb. 4.6.: Erwärmungsraten im Trajektorienmodell der FU Berlin für ausgewählte Beispiele<sup>8</sup>

In Abbildung 4.6 sind beispielhaft einige Erwärmungs- bzw. Abkühlungsraten<sup>8</sup> dargestellt, wie sie sich aus den beschriebenen Parametrisierungen ergeben. Die intern berechneten Erwärmungsraten werden bei Vorhersagerechnungen – z.B. während der Messkampagnen (siehe Abschnitt 6.1.2) – oder bei Analyserechnungen benutzt, wenn keine extern ermittelten Erwärmungsraten verfügbar sind. Sie werden im Folgenden als klimatologische Erwärmungsraten bezeichnet.

### Extern bereitgestellte Erwärmungsraten (aktuelle Erwärmungsraten von SLIMCAT)

Als externe Erwärmungsraten werden Daten aus SLIMCAT-Modellläufen benutzt, die von Dr. M. Chipperfield bereitgestellt werden. SLIMCAT ist ein isentropes 3-dimensionales Chemie-Transport-Modell [Chipperfield et al., 1996; Chipperfield, 1999], das z.B. mit UKMO- oder ECMWF-Daten angetrieben werden kann. Die Erwärmungsraten für den diabatischen, vertikalen Transport werden über das MIDRAD-Strahlungsschema [Shine, 1987] berechnet. Als Ergebnis der SLIMCAT-Modellrechnungen liegen für die analysierten Zeiträume alle 6 Stunden Erwärmungsraten zwischen 380 K und 2250 K auf einem Längen-Breiten-Gitter von ca.  $2,8^{\circ} \times 2,8^{\circ}$  vor. Bei der Trajektorienberechnung werden diese Erwärmungsraten zeitlich und räumlich zur aktuellen Position interpoliert, so dass eine entsprechende Korrektur der potentiellen Temperatur entlang der Trajektorie erfolgt. Unter 380 K wird auf die innerhalb des Trajektorienmodelles berechneten klimatologischen Erwärmungsraten zurückgegriffen. Prinzipiell können nach entsprechenden Anpassungen im Programmcode auch andere externe Daten zur Beschreibung des quasi-isentropen Transportes verwendet werden.

<sup>8</sup> Die den Abkühlungsraten zugrundeliegenden Temperaturprofile sind in Abbildung 5.3 (S. 96) dargestellt. Weitere Informationen zu den meteorologischen Bedingungen an den gezeigten Tagen sind in Tabelle 5.1 (S. 85) angegeben.

Die SLIMCAT-Erwärmungsraten werden bei der Trajektorien-Berechnung mit ECMWF-Analyse-Daten verwendet. Da sie auf der detaillierten Modellierung des tatsächlichen Zustandes der Atmosphäre beruhen, werden sie in den folgenden Kapiteln als aktuelle Erwärmungsraten bezeichnet. Ein Vergleich zwischen Trajektorien, die unter unterschiedlichen Annahmen zum Vertikaltransport berechnet wurden, folgt in Abschnitt 5.2.3.

### 4.3.3. Berücksichtigung von Energie- und Massenerhaltung

Die ursprünglich von Kirch [1985] implementierte Version des Trajektorienmodelles der FU Berlin basierte ausschließlich auf dem *dynamischen* Ansatz zur Beschreibung von Trajektorien, wie er von Petersen und Uccellini [1979] vorgeschlagen wurde (siehe Abschnitt 4.1.4). Schon Kirch [1985] zeigte ausgehend von verschiedenen Sensitivitäts- und Fallstudien, dass der Ansatz insbesondere bei unbalancierten Anfangsbedingungen instabil ist und unrealistische Trägheitsschwingungen entstehen. Sie schlug die zusätzliche Berücksichtigung eines *kinematischen* Ansatzes vor, der die Überprüfung der Energie- und Massenerhaltung anhand von Gleichung 2.22 (S. 12) ermöglichen sollte<sup>9</sup>.

Durch die Einführung eines Euler-Rückwärts-Schrittes [siehe z.B. Reimer, 1977] anstelle des von Petersen und Uccellini [1979] benutzten Gleichungssystems nach Greenspan [1972, 1973] konnte eine Stabilisierung der dynamischen Lösung erreicht werden [Reimer, 2006, persönliche Mitteilung]. Das Euler-Rückwärts-Verfahren ist ein sogenanntes Zwei-Schritt-Verfahren, das erstmals von Matsuno [1966] auf meteorologische Fragestellungen angewendet wurde<sup>10</sup>. Mit einem kleinen Vorwärtsschritt, bei dem die Integration nur über einen Teil des Gesamtzeitschrittes erfolgt, wird dabei zunächst eine Zwischenlösung berechnet. Ausgehend von dieser Zwischenlösung wird in einem zweiten Schritt die gesuchte Lösung am Ausgangspunkt durch die Rückwärts-Differenzen-Methode über den gesamten Zeitschritt bestimmt. Matsuno [1966] zeigt, dass dieses Verfahren wie ein numerischer Tiefpassfilter wirkt. D.h. die hochfrequenten, unrealistisch großen Trägheitsschwingungen werden unterdrückt, ohne dass die großräumigen Bewegungen signifikant beeinflusst werden. Die niederfrequenten Schwingungen (planetarische Wellen, siehe auch Abschnitt 2.3.2) werden zwar auch gedämpft, dies ist aber laut Matsuno [1966] i. Allg. vernachlässigbar.

Die über den Euler-Rückwärts-Schritt gefundene dynamische Lösung wird in der aktuellen Modellversion mit der aus den Winden interpolierten Lösung so gemischt, dass die am besten energieerhaltende Position gefunden wird. Wie in Abschnitt 4.2.3 ausführlich diskutiert, erlaubt es die Anwendung dieser hybriden Methode über einen Vor-/Rückwärtstest, Unsicherheiten in den berechneten Trajektorien zu erkennen, die durch inkonsistente meteorologische Felder verursacht werden. Ein solches hybrides Verfahren wurde Ende der 1980er Jahre in das Trajektorienmodell der FU Berlin eingeführt [z.B. Kolb und Reimer, 1989]. Im Laufe der Zeit wurden

<sup>9</sup> Im Folgenden wird vereinfachend von Energieerhaltung gesprochen, wenn die Bilanz nach Gleichung 2.22 gemeint ist. Annähernd stationäre Bedingungen, die eine Voraussetzung für die Anwendbarkeit von Gleichung 2.22 sind, können aufgrund des kleinen Zeitschrittes von 10 Minuten angenommen werden.

<sup>10</sup> Das Verfahren wird daher in der Literatur auch als Matsuno-Verfahren bezeichnet [siehe z.B. Lilly, 1965; Haltiner und Williams, 1980, S. 134].

verschiedene Varianten zum Finden der kinematischen Lösung (z.B. Fortschreiben des aktuellen Windes und/oder iterative Bestimmung des mittleren Windes zwischen zwei Zeitpunkten) angewendet. Z.T. wurde dabei die hybride Lösung in einem durch drei oder mehr verschiedene Methoden ermittelten Lösungsraum bestimmt [z.B. Nüntel, 2001]. Durch die Hinzunahme weiterer Lösungsmöglichkeiten stieg zwar der Rechen- bzw. Zeitaufwand zum Ermitteln der nächsten Trajektorienposition, es konnte aber keine wesentliche Verbesserung der Güte des Trajektorienmodelles erzielt werden [Reimer, 2006, persönliche Mitteilung]. Daher wird in der aktuellen Version des Modelles auf die Erweiterung des Lösungsraumes um eine dritte Lösung verzichtet.

Die Bestimmung der kinematischen Lösung aus der Wegegleichung (siehe z.B. Gl. 4.6 und Gl. 4.7) erfolgt häufig mit Hilfe eines iterativen Verfahrens. Damit läßt sich die kinematisch ermittelte Trajektorienposition in genaue Übereinstimmung mit der durch den mittleren Windvektor bestimmten Trajektorienposition bringen. Innerhalb des Trajektorienprogrammes der FU Berlin wird mit einem Zeitschritt von 10 Minuten gerechnet. Dieser – im Verhältnis zu den großräumigen Bewegungen in der Stratosphäre – kleine Zeitschritt und die Mischung mit der dynamischen Lösung erlauben es, auf eine ausführliche Iteration zu verzichten. Die Iteration zur Bestimmung der kinematischen Lösung wird daher in der hier verwendeten Modellversion nach der einmaligen Bestimmung der Trajektorienposition abgebrochen.

Im Folgenden werden die im Programmcode verwendeten Gleichungen für isentrope Berechnungen dargestellt. Die Vorgehensweise ist schematisch in Abbildung 4.7 gezeigt. Bei der Berücksichtigung diabatischer Prozesse, also unter der Annahme quasi-isentropen Transportes, erfolgt zusätzlich zum hier dargestellten Vorgehen vor dem Bestimmen der nächsten Trajektorienposition eine Korrektur der potentiellen Temperatur. Außerdem wird bei der Überprüfung der Energieerhaltung (Punkt 3.2.) ein weiterer Term, der die Energieänderung durch den quasi-isentropen Transport beschreibt, berücksichtigt.

## 1. Bestimmen der dynamischen Lösung über einen Euler-Rückwärts-Schritt

### 1.1. Positionsbestimmung für halben Zeitschritt

Dazu werden zunächst die Beschleunigungen in x- und y-Richtung entsprechend den Gleichungen 4.2 und 4.3 (S. 58) bestimmt. Dann werden die Geschwindigkeits- und Entfernungsvektoren für einen halben Zeitschritt ermittelt:

$$u_{dyn}(t_{n+0,5}) = u(t_n) + \frac{\Delta t}{2} a_x(t_n), \quad (4.18)$$

$$v_{dyn}(t_{n+0,5}) = v(t_n) + \frac{\Delta t}{2} a_y(t_n), \quad (4.19)$$

$$x_{dyn}(t_{n+0,5}) = x(t_n) + \frac{\Delta t}{2} \left[ \frac{u_{dyn}(t_{n+0,5}) + u(t_n)}{2s} \right], \quad (4.20)$$

$$y_{dyn}(t_{n+0,5}) = y(t_n) + \frac{\Delta t}{2} \left[ \frac{v_{dyn}(t_{n+0,5}) + v(t_n)}{2s} \right]. \quad (4.21)$$

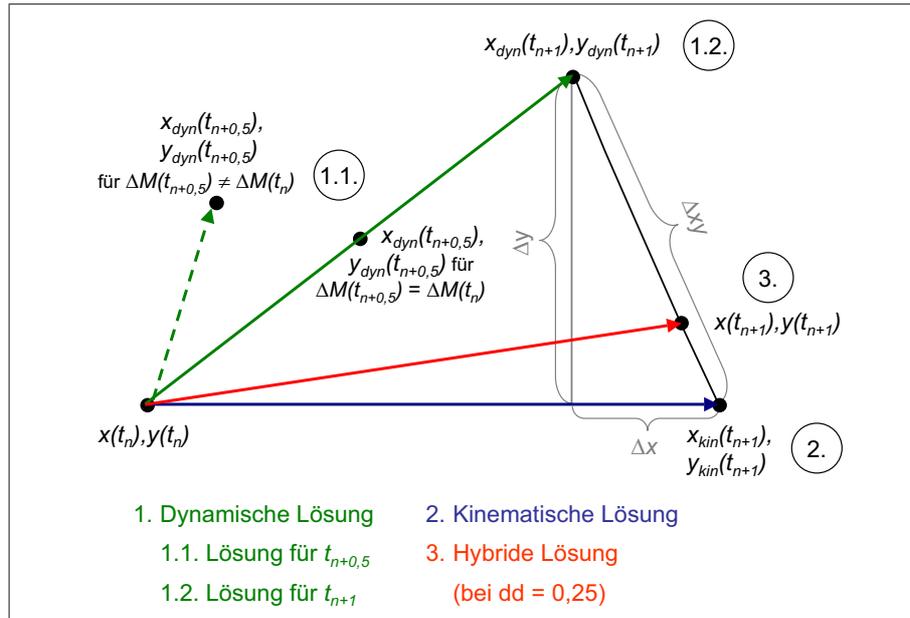


Abb. 4.7.: Hybride Lösung aus dynamischen und kinematischen Ansatz zur Bestimmung der Trajektorienposition im Modell der FU Berlin

## 1.2. Ermitteln der dynamischen Lösung

Die Beschleunigungen sowie die Geschwindigkeits- und Entfernungsvektoren werden basierend auf den für den halben Zeitschritt bestimmten Variablen neu ermittelt:

$$a_x(t_{n+0,5}) = -\frac{\Delta M}{\Delta x_{dyn} s}(t_{n+0,5}) + f(t_{n+0,5})v_{dyn}(t_{n+0,5}), \quad (4.22)$$

$$a_y(t_{n+0,5}) = -\frac{\Delta M}{\Delta y_{dyn} s}(t_{n+0,5}) - f(t_{n+0,5})u_{dyn}(t_{n+0,5}), \quad (4.23)$$

$$u_{dyn}(t_{n+1}) = u(t_n) + \Delta t a_x(t_{n+0,5}), \quad (4.24)$$

$$v_{dyn}(t_{n+1}) = v(t_n) + \Delta t a_y(t_{n+0,5}), \quad (4.25)$$

$$x_{dyn}(t_{n+1}) = x(t_n) + \Delta t \left[ \frac{u_{dyn}(t_{n+1}) + u(t_n)}{2s} \right], \quad (4.26)$$

$$y_{dyn}(t_{n+1}) = y(t_n) + \Delta t \left[ \frac{v_{dyn}(t_{n+1}) + v(t_n)}{2s} \right], \quad (4.27)$$

mit  $u, v$  = horizontale Windkomponenten,  
 $x, y$  = Ortskoordinaten,  
 $a_x, a_y$  = Beschleunigung in x- bzw. y-Richtung,  
 $M$  = Montgomery-Potential,  
 $f$  = Coriolis-Parameter,  
 $s$  = Maßstabsfaktor für stereografische Projektion  
 (siehe Gl. 4.10, S. 69) und  
 $t$  = Zeit zum angegebenen Zeitschritt.

2. Bestimmen der kinematischen Lösung an der dynamisch ermittelten Position

$$u_{kima}(t_{n+1}) = u(x_{dyn}(t_{n+1}), y_{dyn}(t_{n+1})), \quad (4.28)$$

$$v_{kima}(t_{n+1}) = v(x_{dyn}(t_{n+1}), y_{dyn}(t_{n+1})), \quad (4.29)$$

$$x_{kima}(t_{n+1}) = x(t_n) + \Delta t \left[ \frac{u_{kima}(t_{n+1}) + u(t_n)}{2s} \right], \quad (4.30)$$

$$y_{kima}(t_{n+1}) = y(t_n) + \Delta t \left[ \frac{v_{kima}(t_{n+1}) + v(t_n)}{2s} \right], \quad (4.31)$$

mit  $u, v$  = horizontale Windkomponenten,  
 $x, y$  = Ortskoordinaten,  
 $dyn, kima$  = dynamische bzw. kinematische Lösung,  
 $s$  = Maßstabsfaktor für stereografische Projektion und  
 $t$  = Zeit zum angegebenen Zeitschritt.

3. Bestimmen der endgültigen Lösung über die beste Energieerhaltung

3.1. Ermitteln der Differenz zwischen dynamischer und kinematischer Lösung

$$\Delta x(t_{n+1}) = x_{dyn}(t_{n+1}) - x_{kima}(t_{n+1}), \quad (4.32)$$

$$\Delta y(t_{n+1}) = y_{dyn}(t_{n+1}) - y_{kima}(t_{n+1}), \quad (4.33)$$

$$\Delta xy(t_{n+1}) = \sqrt{\Delta x(t_{n+1})^2 + \Delta y(t_{n+1})^2}. \quad (4.34)$$

Der dynamische und der kinematische Ansatz ergeben dann dieselbe Lösung, wenn sowohl die meteorologischen Eingangsdaten als auch die zu den aktuellen Trajektorienpositionen interpolierten Daten energiekonsistent sind. In diesem Fall ist  $\Delta xy(t_{n+1})$  gleich Null und die im folgende beschriebene Korrektur zur Energieerhaltung erfolgt nicht.

3.2. Überprüfen der Energieerhaltung

Die Änderung der Gesamtenergie innerhalb des letzten Zeitschrittes kann für beide Lösungen durch die Summe der Änderungen der kinetischen und der potentiellen Energie sowie der Enthalpie beschrieben werden (siehe Gl. 2.22). Die Summe der potentiellen Energie und der Enthalpie ist dabei durch das Montgomery-Potential gegeben. Die kinetische Energie wird jeweils aus den Windgeschwindigkeiten ermittelt:

$$e_{kin}(t) = \frac{u(t)^2 + v(t)^2}{2}, \quad (4.35)$$

$$de_{kima} = M_{kima}(t_{n+1}) - M(t_n) - e_{kin,kima}(t_{n+1}) + e_{kin}(t_n), \quad (4.36)$$

$$de_{dyn} = M_{dyn}(t_{n+1}) - M(t_n) - e_{kin,dyn}(t_{n+1}) + e_{kin}(t_n). \quad (4.37)$$

Die Differenz im Energiebudget zwischen der kinematischen und der dynamischen Lösung lässt sich damit wie folgt beschreiben:

$$\begin{aligned} de_{kima} - de_{dyn} &= M_{kima}(t_{n+1}) - e_{kin,kima}(t_{n+1}) - \\ &\quad \left[ M_{dyn}(t_{n+1}) - e_{kin,dyn}(t_{n+1}) \right], \end{aligned} \quad (4.38)$$

$$\begin{aligned} de_{kima} - de_{dyn} &= e_{kin,dyn}(t_{n+1}) - e_{kin,kima}(t_{n+1}) - \\ &\quad M_{dyn}(t_{n+1}) + M_{kima}(t_{n+1}). \end{aligned} \quad (4.39)$$

### 3.3. Bestimmen der hybriden Lösung

In dem durch  $\Delta xy(t_{n+1})$  beschriebenen Lösungsraum wird nun die Stelle ermittelt, an der die Energieerhaltung am besten gewährleistet ist:

$$\begin{aligned} dd &= \frac{de_{kima}}{de_{kima} - de_{dyn}} & 0 \leq dd \leq 1 & \quad (4.40) \\ dd < 0 &\rightarrow dd := 0 \\ dd > 1 &\rightarrow dd := 1 \end{aligned}$$

Die Trajektorienposition wird so korrigiert, dass sie an der Stelle mit der besten Energieerhaltung liegt:

$$x(t_{n+1}) = x_{kima}(t_{n+1}) + \Delta x(t_{n+1}) dd, \quad (4.41)$$

$$y(t_{n+1}) = y_{kima}(t_{n+1}) + \Delta y(t_{n+1}) dd, \quad (4.42)$$

mit $x, y$	=	Ortskoordinaten,
$u, v$	=	horizontale Windkomponenten,
$e_{kin}$	=	kinetische Energie pro Masseneinheit,
$e$	=	Gesamtenergie pro Masseneinheit,
$M$	=	Montgomery-Potential (siehe Gl. 2.17),
$dd$	=	Korrekturfaktor,
$dyn, kima$	=	dynamische bzw. kinematische Lösung und
$t$	=	Zeit zum angegebenen Zeitschritt.

Diese Korrektur stellt sicher, dass die Energieänderung innerhalb des letzten Zeitschrittes Null bzw. minimal ist. Es lassen sich folgende Fälle unterscheiden:

- i. Die Energieänderungen für die kinematische und die dynamische Lösung haben ungleiche Vorzeichen, d.h.  $\frac{de_{kima}}{|de_{kima}|} \neq \frac{de_{dyn}}{|de_{dyn}|}$ .

In diesem Fall beschreibt der Korrekturfaktor  $dd$  im Lösungsraum  $\Delta xy(t_{n+1})$  die Stelle, an der keine Energieänderung auftritt. Die Energieerhaltung ist dann vollständig gewährleistet und  $de_{hybrid} = 0$ .

Für  $de_{dyn} = -de_{kima}$  ist  $dd = 0,5$ . Die hybride Lösung, für die  $de_{hyb} = 0$  gilt, liegt genau zwischen der kinematischen und der dynamischen Lösung.

Für  $de_{dyn} < -de_{kima}$  ist  $0,5 < dd < 1$ , so dass die hybride Lösung näher an der  $\rightarrow$  dynamischen Lösung liegt.

Für  $de_{dyn} > -de_{kima}$  ist  $0 < dd < 0,5$ , so dass die hybride Lösung näher an der  $\rightarrow$  kinematischen Lösung liegt.

- ii. Die Energieänderungen für die kinematische und die dynamische Lösung haben das gleiche Vorzeichen, d.h.  $\frac{de_{kima}}{|de_{kima}|} = \frac{de_{dyn}}{|de_{dyn}|}$ .

Stimmen die beiden Lösungen nicht überein, so liegt die Stelle mit vollständiger Energieerhaltung außerhalb des Lösungsraumes  $\Delta xy(t_{n+1})$ . Über  $dd$  wird in diesem Fall die Lösung als hybride Lösung festgelegt, bei der die Energieänderung minimal ist ( $|de_{hybrid}| = \text{Min}(|de_{kima}|, |de_{dyn}|)$ ).

Für  $de_{dyn} > de_{kima}$  ist  $dd < 0$ , so dass die hybride Lösung der  
 → kinematischen Lösung entspricht.

Für  $de_{dyn} < de_{kima}$  ist  $dd > 1$ , so dass die hybride Lösung der  
 → dynamischen Lösung entspricht.

Für  $de_{dyn} = de_{kima}$  stimmen kinematische und dynamische Lösung überein. In diesem Fall wird  $dd$  nicht berechnet und es erfolgt keine Korrektur (siehe Punkt 3.1.).

Die durch die so gefundene hybride Lösung beschriebene Trajektorienposition bildet den Ausgangspunkt für die Berechnung der folgenden Position im nächsten Zeitschritt.

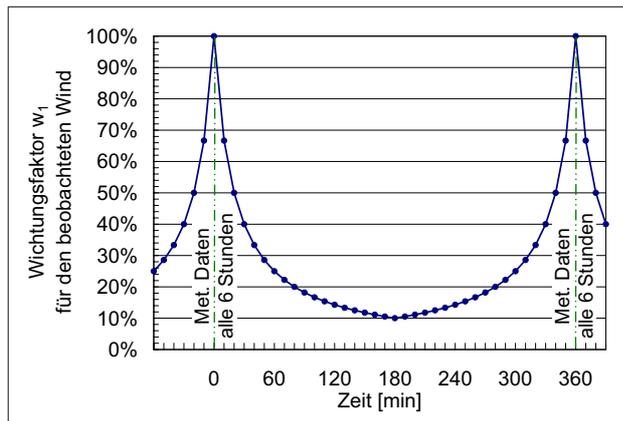


Abb. 4.8.: Wichtungsfaktor  $w_1$  für den beobachteten Wind

Um zu verhindern, dass der berechnete Wind zu stark von den meteorologischen Eingangsdaten abweicht, werden in Vorbereitung des nächsten Zeitschrittes die Windkomponenten zu den gegebenen Winden hingezogen. Eine solche Abweichung tritt auf, wenn sich die kinematische und die dynamische Lösung unterscheiden und die hybride Lösung nicht der kinematischen Lösung entspricht. Zu einem Zeitschritt, bei dem die meteorologischen Eingangsdaten vorliegen, wird der Wind den beobachteten Daten gleichgesetzt. So ist zum Zeitpunkt der Analyse gewährleistet,

dass die Trajektorie den Stromlinien der beobachteten Winde folgt. Bei den hier verwendeten ECMWF-Feldern ist dies alle 6 Stunden der Fall. Zwischen den 6-Stunden-Terminen erfolgt eine parabolische Annäherung der Windkomponenten zu den aus der hybriden Lösung abgeleiteten Winden. Abbildung 4.8 zeigt den Wichtungsfaktor  $w_1$  für die beobachteten Winde aus den meteorologischen Eingangsdaten. Die Winde aus der hybriden Lösung werden entsprechend mit  $w_2 = 1 - w_1$  gewichtet.

## 5. Untersuchungen zur Güte des Trajektorienmodelles der FU Berlin

Eine Trajektorie kann aufgrund verschiedener Annahmen und Fehler bei ihrer Berechnung den realen Weg eines Luftpaketes nur für eine begrenzte Zeit ausreichend genau beschreiben (siehe auch Kap. 4.1 und Kap. 4.2). Bei der Anwendung von Trajektorienmodellen ist es demzufolge wichtig, die Güte des Modelles sowie die Parameter, die die Modellgenauigkeit beeinflussen, zu kennen.

Das Trajektorienmodell der FU Berlin wird seit vielen Jahren für die verschiedensten Studien angewendet (siehe Kap. 4.3). Systematische Untersuchungen zu seiner Güte fehlen aber bisher bzw. sind nicht veröffentlicht. Im Rahmen dieser Arbeit wurden deshalb umfangreiche Studien zur Güte des Trajektorienmodelles der FU Berlin durchgeführt. Anhand von Sensitivitätsstudien, bei denen die räumliche Auflösung des Modelles bzw. der meteorologischen Eingangsdaten sowie die Annahmen zum Vertikaltransport variiert werden, wird im Folgenden zunächst der Einfluss dieser Parameter auf die berechneten Trajektorien untersucht (Kap. 5.2). Trajektorien, die mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht den realen Weg der Luftmassen beschreiben, können bei hybriden Trajektorienmodellen über einen Vorwärts-/Rückwärtstest identifiziert werden. Die Anwendbarkeit von dynamischen Erhaltungsgrößen auf diese Fragestellung wird ebenfalls untersucht (Kap. 5.3). Außerdem wird das Trajektorienmodell der FU Berlin mit zwei anderen Trajektorienmodellen verglichen, die wie das FUB-Modell operationelle ECMWF-Daten als meteorologische Eingangsfelder verwenden (Kap. 5.4). Abschließend werden die Ergebnisse zusammengefasst und hinsichtlich der späteren Anwendung diskutiert (Kap. 5.5).

Trajektorien, die mit dem Modell der FU Berlin berechnet wurden, bilden die Grundlage für die in Kapitel 6 dargestellte Methode zur Validierung von Satellitendaten. Sie dienen dabei zur Identifizierung von Luftmassen (*Matches*), die sowohl von einem Ballonmessgerät als auch vom zu validierenden Satellitenmessgerät beprobt wurden. Dabei werden entweder individuelle Profile (siehe Kap. 6.3) verglichen oder es erfolgt eine statistische Auswertung vieler Matches (siehe Kap. 6.4). Im Hinblick auf diese Anwendung des Trajektorienmodelles werden folgende Fragestellungen untersucht:

- Wie groß sind die Unsicherheiten im Trajektorienmodell der FU Berlin bei der Bestimmung der horizontalen Position der Trajektorien?
- Gibt es Höhenbereiche bzw. meteorologische Situationen, in denen diese Unsicherheiten besonders klein oder besonders groß sind?

- Wie groß sind die Unterschiede bei der Bestimmung der vertikalen Position (Höhe) der Trajektorien, v.a. hinsichtlich verschiedener Annahmen zum Vertikaltransport?
- Welche Unterschiede in der Trajektorienposition ergeben sich im Vergleich zu anderen Trajektorienmodellen?
- Welche Testverfahren oder Parameter sind geeignet, die Genauigkeit der Trajektorien einzuschätzen und damit die Qualität der Matches abzusichern?

## 5.1. Datengrundlage und Methode

Die Qualität eines Trajektorienmodelles wird von den verschiedensten Parametern bestimmt (siehe Abschnitt 4.2.4). Diese können entweder anhand idealisierter, künstlich vorgegebener meteorologischer Felder oder für reale meteorologische Situationen untersucht werden. Während sich bei der Anwendung idealisierter Felder nur allgemeine Rückschlüsse auf die Güte des Modelles ziehen lassen, erlaubt es die Untersuchung konkreter meteorologischer Situationen, Unsicherheiten in den Trajektorien für genau diese Situationen zu quantifizieren. Daher werden in dieser Arbeit die Studien zur Güte des Trajektorienmodelles anwendungsbezogen anhand realer meteorologischer Daten durchgeführt.

Im Rahmen der ENVISAT-Validierung (siehe Kapitel 6) wurde eine Vielzahl von Trajektorien berechnet, die jeweils an den Messpunkten der Ballonmessgeräte initialisiert wurden. Die Ballonflüge fanden zwischen August 2002 und Juni 2005 in verschiedenen geografischen Breiten zu verschiedenen Jahreszeiten statt. Die Version des Trajektorienmodelles, die als Eingangsdaten die höher aufgelösten ECMWF-Daten ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ) verarbeiten kann, stand erst im Laufe des Jahres 2004 zur Verfügung. Aktuelle Erwärmungsraten aus dem Strahlungstransport-Modul von SLIMCAT (siehe Abschnitt 4.3.2) waren nicht für alle Zeiträume verfügbar. Daher wurden alle Trajektorien zunächst ausgehend von ECMWF-Daten mit einem Gitterpunktabstand von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  berechnet, der quasi-isentrope Transport erfolgte unter Verwendung klimatologischer Erwärmungsraten (siehe Abschnitt 4.3.2). Diese Trajektorien bilden den Ausgangspunkt für die im Folgenden dargestellten Untersuchungen zur Güte des Trajektorienmodelles der FU Berlin.

Der Einfluss verschiedener Modellparameter ist abhängig von der meteorologischen Situation. Beispielsweise wird sich eine Änderung der räumlichen Auflösung der meteorologischen Eingangsdaten bei großen Gradienten in den meteorologischen Feldern viel stärker auf die berechneten Trajektorien auswirken, als bei homogenen Feldern mit nur geringen Gradienten. Daher wird im Folgenden auf die meteorologische Situation in der Stratosphäre während der Messkampagnen eingegangen. Tabelle 5.1 gibt einen Überblick über die jeweilige Initialisierung der Trajektorien. Die Tabelle zeigt Datum und Ort des zugrundeliegenden Ballonfluges sowie die Jahreszeit und die meteorologischen Bedingungen. Als Initialisierungspunkte für die Trajektorien dienten die Messpunkte des jeweiligen Messfluges, d.h. die Trajektorien wurden immer an dem Ort und zu der Zeit gestartet, an dem eine Ballonmessung durchgeführt wurde (siehe auch Abschnitt 6.1.2). Je nach Art des Messgerätes ergibt sich eine unterschiedliche Anzahl von Profilsondierungen

Tab. 5.1.: Trajektorienstartpunkte für die Sensitivitätsstudien zum FUB-Modell

Datum	Geografische Lage: Ort <sup>1)</sup>	Jahreszeit/ met. Bedingungen in der Stratosphäre	n <sup>2)</sup>	Höhenbereich			akt. Erwärmungsraten
				h [km]	Θ [K]	p [hPa]	
<i>Hohe Breiten (Frühjahr)</i>							
04.03.2003 <sup>A)</sup>	Kiruna	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel	76	9–31	306–903	281– 7	verfügbar
06.03.2003 <sup>A)</sup>	Kiruna	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel	171	5–31	297–911	538– 7	verfügbar
16.03.2003	Kiruna	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel	106	5–29	295–809	496–10	verfügbar
23.03.2003	Kiruna	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel	86	6–32	297–927	438– 7	verfügbar
30.03.2003	Kiruna	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel	143	5–30	289–784	508–11	verfügbar
24.03.2004	Kiruna	Frühjahr/ ungestörter Polarwirbel	151	6–33	294–904	475– 6	–
<i>Hohe Breiten, Sommer</i>							
12.08.2002 <sup>A)</sup>	Kiruna	Sommer/ Umstellung auf Westwind	178	5–30	309–833	537–12	verfügbar
09.06.2003	Kiruna	Sommer/ Ostwind	155	5–34	303–983	512– 7	–
<i>Mittlere Breiten</i>							
24.09.2002 <sup>A)</sup>	Aire sur l'Adour	Herbst/ Umstellung auf Westwind	163	5–34	307–958	543– 7	verfügbar
01.10.2002 <sup>A)</sup>	Aire sur l'Adour	Herbst/ Umstellung auf Westwind	98	10–30	332–798	284–13	verfügbar
09.10.2003	Aire sur l'Adour	Herbst/ Umstellung auf Westwind	66	17–33	408–951	94– 7	–
<i>Subtropen</i>							
23.02.2003	Bauru	Sommer/ Ostwind	61	13–29	350–782	197–14	–
31.01.2004	Bauru	Sommer/ Ostwind	127	5–30	321–835	551–11	–
05.02.2004	Bauru	Sommer/ Ostwind	99	5–29	325–801	539–13	–
<i>Tropen</i>							
08.06.2005	Teresina	Ostphase der QBO, Westphase der SAO	65	12–34	347–974	210– 7	verfügbar
17.06.2005	Teresina	Ostphase der QBO, Wechsel der SAO von West- zu Ostphase	169	5–33	323–974	544– 7	verfügbar
25.06.2005	Teresina	Ostphase der QBO, Wechsel der SAO von West- zu Ostphase	51	14–34	355–984	153– 7	verfügbar
<i>Gesamt</i>							
Σ			1965	5–34	289–984	551– 6	
<sup>1)</sup> Geografische Lage der Orte: Aire sur l'Adour/Frankreich: 43,7°N; 0,3°W; Kiruna (Esrange)/Schweden: 67,9°N; 21,1°E; Bauru/Brasilien: 22,4°S; 49,0°W; Teresina/Brasilien: 5,1°S; 42,9°W <sup>2)</sup> n = Anzahl der Messpunkte, an denen jeweils Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien initialisiert wurden. Es wurden pro Modellvariante 2*n Trajektorien berechnet. Einige Trajektorien erreichten innerhalb von 5 Tagen den Modellrand (d.h. sie verließen den durch die Gitterpunkte beschriebenen Bereich der jeweiligen Hemisphäre, s. Abb. 4.2b). Die Trajektorienzahl in den folgenden Vergleichen ist deswegen z.T. kleiner als hier angegeben. <sup>A)</sup> Die Trajektorien wurden auch für den Vergleich mit dem AWI-Modell benutzt (siehe Tab. 5.2 und Text S. 89).							

(siehe Kap. 3.3), die sich aus verschiedenen vielen einzelnen Messungen über einen bestimmten Höhenbereich zusammensetzt. Bei den meisten Ballonmessgeräten erfolgen die Messungen während des Ballonaufstieges, in einigen Fällen wird ein zweites Messprofil während des Ballonabstieges bzw. beim Sonnenauf- oder -untergang aufgenommen. Die Anzahl der Messpunkte ( $n$ ), die als Initialisierungspunkte der Trajektorien dienen, ist in Tabelle 5.1 aufgeführt, sie variiert je nach zugrundeliegendem Messgerät. An jedem dieser Initialisierungspunkte wurden pro Modellversion eine Vorwärts- und eine Rückwärtstrajektorie gestartet. Insgesamt wurden für jede Modellversion  $2*n$  Trajektorien berechnet. Außerdem ist in Tabelle 5.1 der Höhenbereich (für die Höhe, die potentielle Temperatur und den Druck) ersichtlich, in dem die Initialisierung der Trajektorien

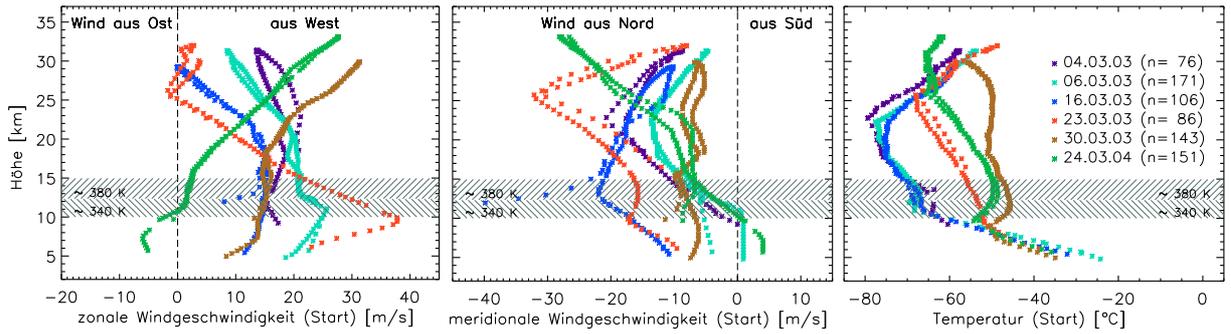
erfolgte. Schließlich ist angegeben, ob die aktuellen Erwärmungsraten (siehe Abschnitt 4.3.2) für den jeweiligen Zeitraum verfügbar sind.

Abbildung 5.1 zeigt die zonale (Ost/West) und meridionale (Nord/Süd) Windkomponente sowie die Temperatur am Initialisierungspunkt der Trajektorien als Funktion der Höhe, wie sie vom Trajektorienmodell mit einer vertikalen Auflösung von 25 Flächen basierend auf einer horizontalen Auflösung von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  unter Annahme klimatologischer Erwärmungsraten berechnet wurden. Die Temperaturwerte stellen die vom Trajektorienmodell für Ort und Zeit der Initialisierung interpolierten Temperaturen dar, sie zeigen also den ersten Temperaturwert der jeweiligen Trajektorie. Die Windgeschwindigkeiten wurden anhand des in der ersten Stunde nach der Initialisierung der Trajektorien zurückgelegten Weges berechnet. Dazu wurde ausgehend von den Ortsangaben (geografische Länge und Breite) der jeweils ersten beiden Trajektorienpunkte (zur Initialisierung und eine Stunde später) die zurückgelegte Entfernung in Ost/West- bzw. Nord/Südrichtung bestimmt und daraus die entsprechende Windkomponente berechnet. Die Höhenbereiche, in denen die potentielle Temperatur 340 K bzw. 380 K beträgt, sind schraffiert eingezeichnet. Sie sind ebenfalls anhand der Trajektorienpunkte bei der Initialisierung abgeleitet. In Abhängigkeit von den einzelnen Temperaturprofilen ergeben sich unterschiedliche Höhenzuordnungen für die Isentropen (siehe auch Gl. 2.14), so dass ein schraffierter Höhenbereich angegeben ist. In Anhang B.1 sind außerdem die potentielle Vorticity bzw. die modifizierte potentielle Vorticity zum Initialisierungszeitpunkt (Abb. B.1) sowie Zeit-Höhen-Schnitte für die Windkomponenten und die Temperatur (Abb. B.2) dargestellt. Bei der Trajektorienberechnung mit einer anderen Modellversion (höhere horizontale oder vertikale Auflösung) bzw. anderen Annahmen zum Vertikaltransport ergeben sich z.T. andere Werte für die Windkomponenten und die Temperatur (siehe auch Abb. B.3 und Abb. B.4), auf die in den folgenden Abschnitten noch eingegangen wird. Die wesentlichen Strukturen der Wind- und Temperaturprofile zum Initialisierungszeitpunkt stimmen aber bei allen Trajektorien überein.

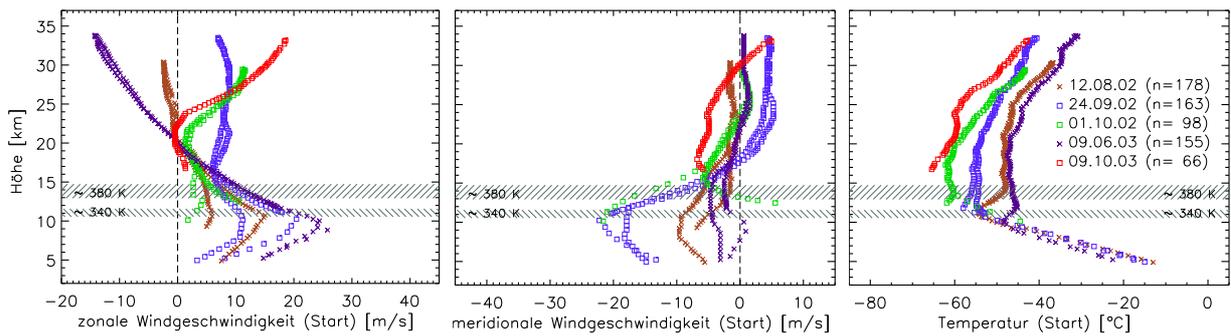
Die Profile der einzelnen Größen spiegeln die unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen wider. Abbildung 5.1a fasst Termine zusammen, an denen typische – gestörte und ungestörte – winterliche Zirkulationsbedingungen herrschten. Der Winter 2002/03 war durch mehrere Stratosphärenerwärmungen<sup>1</sup> gekennzeichnet, die zur Störung bzw. zum Zusammenbruch des Polarwirbels führten (siehe auch Kap. 7.2). Auch Anfang März 2003 trat ein *Minor Warming*<sup>1</sup> auf, das zu einer Abschwächung des Polarwirbels und teilweise zu einer Umkehr des zonalen Windes auf Ostwind führte. Entsprechend zeigen die Windprofile vom März 2003 eine Abschwächung der zonalen Windgeschwindigkeit in den größeren Höhen und z.T. kleinere Bereiche mit Ostwinden (am 23.03.2003 in rot um 26 km und am 16.03.2003 in blau um 29 km). In den Temperaturprofilen ist deutlich eine Erwärmung der unteren und mittleren Stratosphäre über Kiruna zwischen Mitte und Ende März zu erkennen, die auf die jahreszeitlich bedingte Intensivierung der solaren Einstrahlung zurückzuführen ist. Ein entsprechendes Temperaturprofil zeigt sich auch ein Jahr später für den 24.03.2004 (siehe Abb. 5.1a in grün). Im Windprofil dieses Tages ist in der Stratosphäre die für einen ungestörten Polarwirbel typische Zunahme des Westwindes mit der Höhe zu erkennen. Abbildung 5.1b zeigt Situationen unter sommerlichen Bedingungen (mit

---

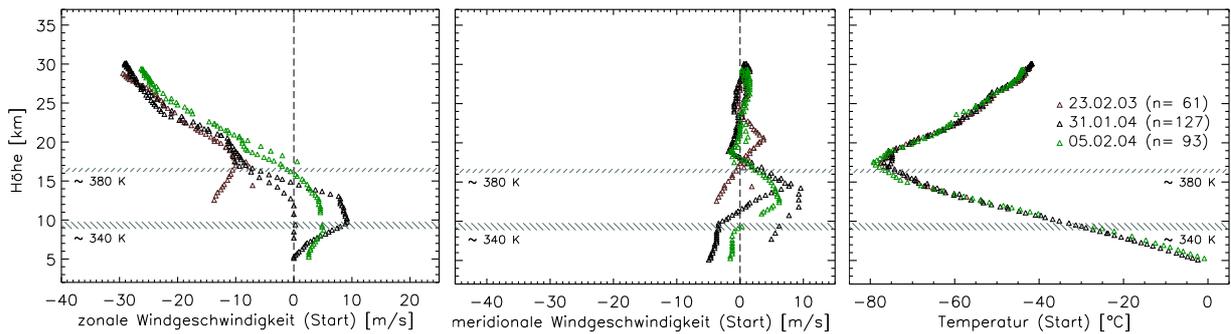
<sup>1</sup> siehe Abschnitt 2.3.2



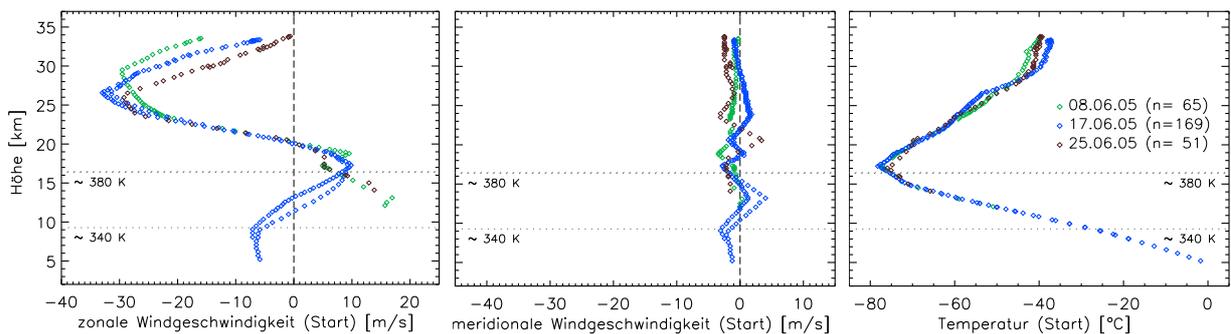
(a) Hohe Breiten (Kiruna,  $\sim 68^\circ\text{N}$ ,  $21^\circ\text{E}$ ): Frühjahr



(b) Hohe Breiten (Kiruna) und mittlere Breiten (Aire sur l'Adour,  $\sim 44^\circ\text{N}$ ,  $^\circ\text{E}$ ): Sommer/Herbst



(c) Subtropen (Bauru,  $\sim 22^\circ\text{S}$ ,  $49^\circ\text{W}$ )



(d) Tropen (Teresina,  $\sim 5^\circ\text{S}$ ,  $43^\circ\text{W}$ )

\* Hohe Breiten    × Hohe Breiten, Sommer    □ Mittlere Breiten    △ Subtropen    ◇ Tropen  
 n = Anzahl der Initialisierungspunkte, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84ff

Abb. 5.1.: Windgeschwindigkeit (links: zonale Komponente, Mitte: meridionale Komponente) und Temperatur (rechts) bei der Initialisierung der Trajektorien ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, klimatologische Erwärmungsraten)

der Höhe zunehmender Ostwind am 09.06.2003) bzw. während der Umstellung von der Sommer- zur Winterzirkulation mit insgesamt relativ niedrigen Windgeschwindigkeiten. Die subtropischen Trajektorien (Abb. 5.1c) wurden unter sommerlichen Bedingungen bei Ostwinden – in der mittleren Stratosphäre bis zu -30 m/s – berechnet. Die Temperaturprofile für die subtropischen Fälle zeigen eine stark ausgeprägte Tropopause in ca. 17 Kilometer Höhe (ca. 410 K) mit Temperaturen um -80°C. Während die Temperaturen für die tropischen Fälle (Abb. 5.1d) einen sehr ähnlichen Verlauf wie in den Subtropen aufweisen, sind im zonalen Wind die verschiedenen Phasen der QBO (siehe Abschnitt 2.3.3) gut zu erkennen. Die obere und mittlere Stratosphäre wird von Ostwinden mit einem ausgeprägten Maximum von über -30 m/s zwischen 25 und 30 Kilometer Höhe beherrscht. In der unteren Stratosphäre ist die West-Phase der QBO mit Windgeschwindigkeiten von bis zu 10 m/s ersichtlich.

Damit stehen für die Vergleichstudien zum Trajektorienmodell der FU Berlin Daten in verschiedenen geografischen Breiten und für verschiedene meteorologische Situationen zur Verfügung. Sensitivitätsstudien zum Trajektorienmodell der FU Berlin wurden für folgende Parameter durchgeführt (Kap. 5.2, vgl. auch Abschnitt 4.2.4):

- horizontale Auflösung (1,25°x1,25° vs. 2,5°x2,5°),
- vertikale Auflösung (59 vs. 25 Theta-Flächen) und
- Annahmen zum Vertikaltransport (quasi-isentroper Transport basierend auf aktuellen Erwärmungsraten vs. quasi-isentroper Transport basierend auf klimatologischen Erwärmungsraten und vs. isentroper Transport).

Die Frage, wie gut die Trajektorien den realen Luftmassenweg repräsentieren, wird anhand

- des Vorwärts-/Rückwärtstestes und
- der Erhaltung dynamischer Größen entlang der Trajektorien

diskutiert (Kap. 5.3).

Es war nicht Ziel der durchgeführten Studien, ein neues Trajektorienmodell zu entwickeln. Daher wurde auf Untersuchungen zur numerischen Umsetzung des Modelles (numerisches Verfahren, Interpolation, Zeitschritt) verzichtet. Es wurden lediglich Kontrollrechnungen auf zwei verschiedenen Rechnersystemen mit entsprechend unterschiedlichen Betriebssystemen (VAX/VMS und SUN/UNIX) durchgeführt. Auf beiden Systemen ist die 2,5°-Version mit 25 Theta-Flächen (L25) implementiert. Die Vergleichsrechnungen mit klimatologischen Erwärmungsraten zeigten nur geringe Unterschiede zwischen beiden Rechnersystemen<sup>2</sup>. Die Ergebnisse dieses Vergleiches werden deswegen nicht im Detail diskutiert, sondern nur in der abschließenden Diskussion gezeigt (Kap. 5.5). Alle weiteren Trajektorienrechnungen mit dem FUB-Modell wurden unter SUN/UNIX durchgeführt. Die Modellversionen mit 25 vertikalen Theta-Flächen (L25) wurden ausgehend von der ursprünglichen Modellversion unter VAX/VMS von Holger Deckelmann (AWI Potsdam) nach UNIX portiert und zur Verfügung gestellt. Die 59 Flächen-Versionen (L59) wurden im Rahmen dieser Arbeit selbstständig implementiert. Als meteorologische Eingangsdaten

---

<sup>2</sup> Nach 5 Tagen betrug der mittlere Abstand zwischen den auf den verschiedenen Rechnersystemen ermittelten Trajektorien 28 km. Bei 90% der Trajektorien betrug der horizontale Abstand nach 5 Tagen weniger als 70 km.

dienten die operationellen ECMWF-Analysen auf Druckflächen mit einem Analyseabstand von 6 Stunden. Aus einer Vielzahl von Studien ist bekannt, dass die meteorologischen Eingangsdaten und ihre zeitliche Auflösung die Ergebnisse von Trajektorienrechnungen wesentlich beeinflussen können (z.B. Stohl [1998]; Manney et al. [2003]; siehe auch Abschnitt 4.1.2). Bei verschiedenen Vergleichen mit den von Ballonen zurückgelegten Wegen konnten mit basierend auf den operationellen ECMWF-Analysen berechneten Trajektorien gleich gute oder – insbesondere mit der seit 2000 operationellen ECMWF-Version mit 60 vertikalen Flächen – bessere Ergebnisse erzielt werden als mit anderen meteorologischen Eingangsdaten (siehe Abschnitt 4.2.2). Deshalb wurden im Rahmen dieser Arbeit keine Untersuchungen zum Einfluss der Art der meteorologischen Eingangsdaten durchgeführt. Eine höhere zeitliche Auflösung von meteorologischen Analysedaten steht nicht zur Verfügung<sup>3</sup>, daher wird von Untersuchungen zur zeitlichen Auflösung ebenfalls abgesehen.

Die auf dem FUB-Modell basierenden Trajektorienrechnungen wurden außerdem mit den Ergebnissen von zwei anderen Trajektorienmodellen verglichen (Kap. 5.4), die in Tabelle 5.2 dem FUB-Modell gegenübergestellt sind. Mit dem von Susann Tegtmeier am AWI Potsdam neu entwickelten Modell [Tegtmeier, 2006; Tegtmeier et al., 2008] wurden folgende in Tabelle 5.1 beschriebenen Trajektorien gerechnet: hohe Breiten, Frühjahr: 04.03.2003 und 06.03.2003; hohe Breiten, Sommer: 12.08.2002; mittlere Breiten, Herbst: 24.09.2002 und 01.10.2002. Desweiteren stellte Paul Konopka (FZ Jülich) Trajektorien zur Verfügung, die mit dem Trajektorienmodul von CLaMS (Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere [McKenna et al., 2002]) berechnet wurden. Diese Trajektorien wurden an Messorten von Flugzeug- bzw. Ballonmessungen initialisiert, die ebenfalls der ENVISAT-Validierung dienten. Die Messkampagnen fanden im Herbst 2002 in mittleren Breiten (Forli/ Italien) und im Winter bzw. Frühjahr 2002/03 in hohen Breiten (Kiruna/ Schweden) statt. Tabelle 5.3 zeigt im Überblick die Initialisierungspunkte der CLaMS-Trajektorien, an denen für den Vergleich Trajektorien mit dem FUB-Modell gestartet wurden. Für alle Zeiträume, in denen CLaMS-Trajektorien berechnet wurden, standen für das FUB-Modell aktuelle Erwärmungsraten von SLIMCAT zur Verfügung.

Die Trajektorien wurden mit dem FUB-Modell für mindestens 5 Tage vorwärts und rückwärts gerechnet. Im Mittel über alle in Tabelle 5.1 aufgeführten Fälle hatten die Trajektorien in diesem Zeitraum ca. 6 500 Kilometer zurückgelegt. Die kürzeste zurückgelegte Distanz innerhalb von 5 Tagen betrug ca. 400 km, die längste ca. 20 000 km. Die CLaMS-Trajektorien wurden teilweise für weniger als 5 Tage berechnet, so dass für den Vergleich mit CLaMS nur 4,5 Tage ausgewertet wurden. In diesem Zeitraum legten die Trajektorien (Tab. 5.3) im Mittel eine Distanz von ca. 6 750 Kilometern zurück (Minimum: 1 700 km, Maximum: 14 600 km).

Für den Vergleich verschiedener Trajektorienensembles wurde der absolute horizontale Abstand (in km, siehe Abschnitt 4.2.1, Abbildung 4.1) zunächst zwischen zwei am gleichen Punkt initialisierten Trajektorien im Verlauf der gesamten Transportzeit von 5 bzw. 4,5 Tagen berechnet. Aus diesen horizontalen Abständen für einzelne Trajektorienpaare wurden Mittelwerte gebildet, die entweder die Starttage (siehe Tab. 5.1) oder Klassen von Parametern, wie z.B.

<sup>3</sup> Vom ECMWF werden zu den Zwischenterminen (3, 9, 15, 21 UTC) lediglich vom Modell prognostizierte Felder bereitgestellt.

Tab. 5.2.: Konfiguration der für die Vergleiche verwendeten Trajektorienmodelle<sup>1)</sup>

	FU Berlin	AWI	CLaMS
Eingangsdaten	ECMWF	ECMWF	ECMWF
Auflösung			
Horizontal	2,5°x2,5° oder 1,25°x1,25°	2,5°x2,5°	1,125°x1,125°
Vertikal	21 Druckflächen (1000–1 hPa)	21 Druckflächen (1000–1 hPa)	28 Druckflächen (1013–0,1 hPa)
Zeitlich	6 h	6 h	6 h
Koordinatensystem			
Horizontal	polarstereografisch, getrennt für Nord- und Süd- hemisphäre	sphärisch; polwärts von 85°: Großkreise <sup>2)</sup>	sphärisch; polwärts von 72°: polarstereografisch
Vertikal <sup>3)</sup>	25 oder 59 $\Theta$ -Flächen (0; 240–1600 bzw. –1635 K)	$\Theta$	27 $\Theta$ -Flächen (300–2000 K)
Integrations- methode	Euler-Rückwärts-Verfahren	Trapezregel	4-stufiges Runge- Kutta-Verfahren
Zeitschritt	10 Minuten	20 Minuten	30 Minuten
Interpolation			
Horizontal	parabolisch/bilinear	bilinear	bilinear
Vertikal	linear in ln(Druck)	linear in ln(Druck)	linear in $\Theta$
Zeitlich	linear	linear	linear
Transport			
Horizontal	hybrid (kinemat./dynamisch)	kinematisch	kinematisch
Vertikal	isentrop oder quasi-isentrop: klimatolog. [Kähler, 1988 und Newtonian Cooling] oder SLIMCAT [Shine, 1987]	quasi-isentrop: Mor- crette-Schema [Mor- crette et al., 1998; Morcrette, 1991]	quasi-isentrop: modi- fiziertes Morcrette- Schema [Zhong und Haigh, 1995]
Referenzen	siehe Kap. 4.3	Tegtmeier [2006]; Tegtmeier et al. [2008]	McKenna et al. [2002]
<sup>1)</sup> Sowohl das AWI- als auch das CLaMS-Modell sind in anderen Konfigurationen anwendbar. Beispielsweise kann das AWI-Modell auch ERA-40-Daten mit einer horizontalen Auflösung von 2,0°x2,0° auf ECMWF-Modellflächen als meteorologische Eingangsdaten verwenden. <sup>2)</sup> Ein Großkreis ist der größte Kreis auf einer Kugelfläche. Bei der Erde sind dies z.B. der Äquator und die Längengrade, aber auch jeder andere Kreis, der seinen Mittelpunkt im Erdmittelpunkt hat und dessen Umfang dem Erdumfang entspricht. Durch die Trajektorienberechnung auf Großkreisen können Integrationsprobleme durch Diskontinuitäten in Polnähe vermieden werden. <sup>3)</sup> Beim AWI-Modell werden die auf Druck- oder Modellflächen vorliegenden meteorologischen Eingangsdaten nicht – wie beim FUB-Modell und bei CLaMS – auf explizite $\Theta$ -Flächen transformiert. Erst bei der Berechnung der Trajektorien werden die horizontalen Windkomponenten auf die durch die Trajektorienposition gegebene potentielle Temperatur interpoliert. Dementsprechend dient die potentielle Temperatur $\Theta$ auch beim AWI-Modell als Vertikalkoordinate, explizite $\Theta$ -Flächen lassen sich jedoch nicht angeben.			

der Starthöhe, zusammenfassen. Entsprechend wurde zur Berechnung des vertikalen Abstandes vorgegangen, der für die potentielle Temperatur, die Höhe und den Druck bestimmt wurde. Desweiteren wurden Perzentile (auch als Quantile bezeichnet) für die Abstandswerte bestimmt. Ein  $p$ %-Perzentil gibt an, dass  $p$ % der Daten kleiner oder gleich dem Perzentilwert und  $(100 - p)$ %

Tab. 5.3.: Trajektorienstartpunkte für den Vergleich mit CLaMS-Trajektorien

Datum	Geografische Lage/ Koordinaten: Breite, Länge	Jahreszeit/ met. Bedingungen in der Stratosphäre	n <sup>1)</sup>	Höhenbereich		
				h [km]	$\Theta$ [K]	p [hPa]
<i>Mittlere Breiten</i>						
08.10.2002	42,6–44,2°N 7,9–12,7°E	Herbst/ Windumstellung auf Westwind	210	13–20	350–491	173–57
14.10.2002	42,1–48,4°N 10,2–12,7°E	Herbst/ Windumstellung auf Westwind	385	13–19	350–481	173–59
28.10.2002	38,8–45,7°N 5,6–12,4°E	Herbst/ Windumstellung auf Westwind	437	13–20	350–491	160–54
<i>Hohe Breiten</i>						
16.12.2002	63,5–66,7°N 30,2–32,4°E	Winter/ ungestörter Polarwirbel	18	14–31	361–813	139–7
15.01.2003	60,0–67,2°N 7,8–19,6°E	Winter/ gestörter Polarwirbel (Major Warming am 18.01.)	512	13–19	350–445	158–58
30.01.2003	64,5–71,9°N 14,8–25,7°E	Winter/ gestörter Polarwirbel	548	12–19	350–474	170–55
11.02.2003	68,4–70,1°N 11,8–27,9°E	Winter/ gestörter Polarwirbel (Minor Warming)	205	13–18	350–440	170–71
28.02.2003	67,9–76,1°N 21,7–24,1°E	Winter/ gestörter Polarwirbel	418	13–19	350–444	149–57
04.03.2003	66,2–66,8°N 15,9–23,1°E	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel (Minor Warming)	13	19–31	449–877	56–7
06.03.2003	66,8–67,3°N 24,7–27,0°E	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel (Minor Warming)	12	14–31	373–896	124–7
16.03.2003	63,8–70,7°N 8,5–24,1°E	Frühjahr/ gestörter Polarwirbel	493	13–19	350–445	151–57
<i>Gesamt</i>						
$\Sigma$			3251	12–31	350–896	173–7
<sup>1)</sup> n = Anzahl der Messpunkte, an denen jeweils Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien initialisiert wurden. Es wurden pro Modellvariante 2*n Trajektorien berechnet. Einige Trajektorien erreichten innerhalb von 4,5 Tagen den unteren Rand des CLaMS-Modelles (350 K). Die Trajektorienzahl in den folgenden Vergleichen ist deswegen z.T. kleiner als hier angegeben.						

größer als der angegebene Wert sind [z.B. Sachs, 1999]. Die jeweiligen Abstandswerte für die einzelnen Trajektorienpaare wurden dementsprechend der Größe nach sortiert, um verschiedene Perzentile zu ermitteln.

Die Auswertungen wurden meist in Bezug auf die potentielle Temperatur zum Initialisierungszeitpunkt  $\Theta_{t=0}$  unterteilt und separat durchgeführt für Trajektorien, die ober- bzw. unterhalb einer potentiellen Temperatur von 380 K (je nach meteorologischen Bedingungen ca. 12,5–17 km, siehe auch Abb. 5.1) gestartet wurden. Die aktuellen Erwärmungsraten liegen erst ab 380 K vor, so dass die so berechneten Trajektorien mit den auf der Basis der klimatologischen Erwärmungsraten bestimmten Trajektorien übereinstimmen (siehe Abschnitt 4.3.2). Eine Mittelwertbildung über alle Trajektorien würde für den Vergleich zwischen aktuellen und klimatologischen Erwärmungsraten zu einer Unterschätzung der Abweichungen führen und die Gegenüberstellung mit den anderen Ergebnissen erschweren. Darüberhinaus stellt der Wert von 380 K eine gute Annäherung zur Unterteilung zwischen troposphärischen und stratosphärischen Trajektorien dar (siehe Abb. 2.6), für die aufgrund der kleinskaligen Prozesse in der Troposphäre mit unterschiedlichen Ergebnissen bei den Vergleichsstudien zu rechnen ist. Für die hohen und mittleren Breiten liegen die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien ausschließlich in der Stratosphäre. In den Tropen und Subtropen liegt die Tropopause oberhalb von 380 K (vgl. auch Temperaturprofile in Abb. 5.1), so dass hier im Bereich oberhalb von 380 K auch einige troposphärische Trajektorien erfasst sind.

Soweit der entsprechende Parameter nicht untersucht wird, werden im Folgenden die Ergebnisse der Trajektorienrechnungen gezeigt, die auf einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , auf einer vertikalen Auflösung von 25 Flächen und auf der Annahme eines isentropen Vertikaltransportes basieren. Für die Vergleiche mit anderen Modellen werden die Trajektorien herangezogen, die auf der jeweils besseren Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , 59 Flächen) und der Annahme quasi-isentropen Transportes (basierend auf aktuellen Erwärmungsraten von SLIMCAT) beruhen. Im Anhang B.2 sind alle Ergebnisse der entsprechenden Studien, die auf eine horizontale Auflösung von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  bzw. auf quasi-isentropen Transport zurückgehen, grafisch dargestellt bzw. tabellarisch zusammengefasst.

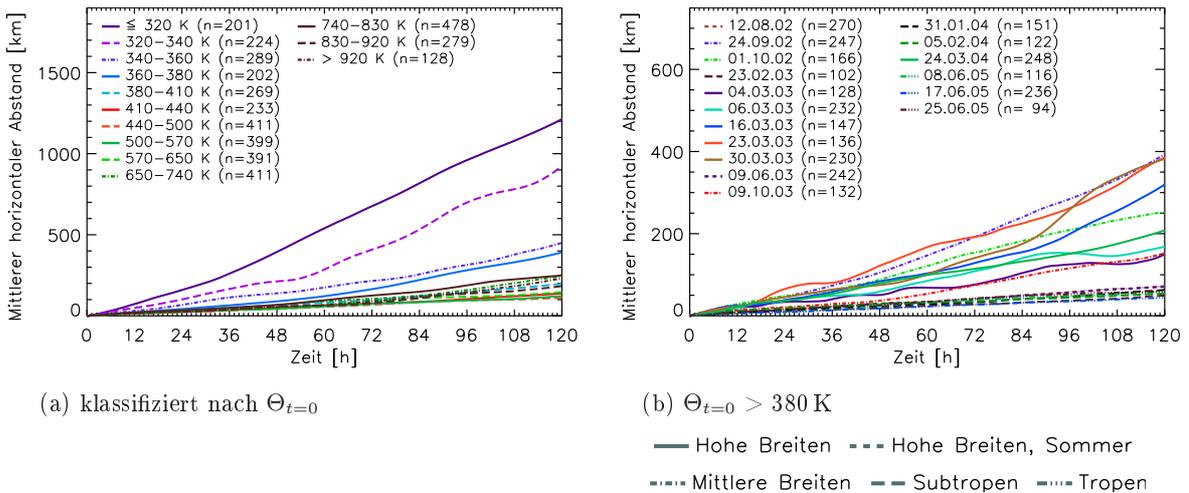
## 5.2. Sensitivitätsstudien

### 5.2.1. Horizontale Auflösung

Das Modell der FU Berlin kann Trajektorien basierend auf Eingangsdaten mit einer horizontalen Auflösung von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  und basierend auf Daten mit einer Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  berechnen. Bei der Implementation der Modellversion zur Verarbeitung der höher aufgelösten Eingangsdaten von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  wurde auch die Anzahl der Gitterpunkte auf den Theta-Flächen erhöht (von  $97 \times 97$  auf  $193 \times 193$ , siehe Abschnitt 4.3.1), so dass die folgenden Vergleiche nur Aussagen über den gleichzeitigen Einfluss der horizontalen Auflösung der Eingangsdaten *und* des Modelles zulassen.

Um den Einfluss der horizontalen Auflösung auf die berechneten Trajektorien zu untersuchen, wurden die Ergebnisse der Trajektorienrechnungen basierend auf Eingangsdaten von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  mit den Ergebnissen, die ausgehend von Eingangsdaten mit einem Gitterpunktabstand von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  berechnet wurden, verglichen. Die Trajektorienrechnungen wurden mit den 25-Flächen-Versionen unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport (isentrop, klimatologische und aktuelle Erwärmungsraten) durchgeführt. Prinzipiell können sich bei der Berechnung quasi-isentroper Trajektorien größere Abweichungen ergeben als bei isentropen Trajektorien. Unterschiede in der Trajektorienposition können zusätzlich zu differierenden horizontalen Transportwegen auch abweichende Vertikaltransporte bewirken, die weitere Abweichungen in den horizontalen Feldern an der aktuellen Trajektorienposition zur Folge haben können. Die sich daraus ergebenden Unterschiede zwischen der isentropen und der quasi-isentropen Berechnung sind aber für die hier untersuchten Fälle i. Allg. gering und führen im Mittel bei der quasi-isentropen Betrachtungsweise zu nur minimal erhöhten horizontalen Abständen von wenigen Kilometern (siehe Tab. B.1). Die Ergebnisse für die Rechnungen mit aktuellen Erwärmungsraten sind im Anhang B.2 dargestellt. Es gibt keine wesentlichen Unterschiede zwischen den horizontalen Abständen aus der Vorwärts- und der Rückwärtsrechnung, die Ergebnisse werden daher zusammengefasst für alle Trajektorien gezeigt.

In Abbildung 5.2a sind die horizontalen Abstände zwischen den Rechnungen mit einem Gitterpunktabstand der Eingangsdaten von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  und den Rechnungen mit einer horizontalen Auflösung von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  klassifiziert nach der potentiellen Temperatur zum Initialisierungszeitpunkt  $\Theta_{t=0}$  dargestellt. Abbildung 5.2b zeigt zusammengefasst für die einzelnen Starttage die



$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f

Abb. 5.2.: Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener horizontaler Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, isentrop): (a) klassifiziert nach  $\Theta_{t=0}$ , (b) für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K [unterschiedliche y-Skalen!]

mittleren horizontalen Abstände für Trajektorien, die oberhalb einer potentiellen Temperatur von 380 K initialisiert wurden. In Tabelle 5.4 sind statistische Größen (Mittelwert, Maxima, Minima sowie verschiedene Perzentilwerte) für die horizontalen Abweichungen in einem Abstand von jeweils einem Tag aufgeführt. So ist aus Tabelle 5.4 beispielsweise zu erkennen, dass nach einer Transportzeit von einem Tag der horizontale Abstand zwischen den beiden horizontalen Auflösungen für 50 % der oberhalb von 380 K berechneten Trajektorien kleiner oder gleich 18 Kilometer und für 95 % kleiner oder gleich 86 Kilometer ist.

Die horizontalen Abweichungen sind für die mit  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K – also hauptsächlich in der Troposphäre – initialisierten Trajektorien größer als bei den in größeren Höhen gestarteten Trajektorien. Die kleinräumigeren Strukturen in der Troposphäre werden durch die höher aufgelösten Eingangsdaten besser erfasst. In der Stratosphäre sind die horizontalen Gradienten in den meteorologischen Feldern i. Allg. wesentlich stabiler und großräumiger als in der Troposphäre, so dass die Verbesserung in der Beschreibung der Trajektorien geringer ausfällt. Dementsprechend ist der mittlere Abstand zwischen den beiden horizontalen Auflösungen für die unterhalb von 380 K berechneten Trajektorien ca. 4-mal so groß wie für die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien (nach 2 Tagen ca. 200 km bzw. ca. 50 km, nach 5 Tagen ca. 700 km bzw. ca. 180 km, vgl. auch Abb. B.6a und B.7a). Bei den oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien sind die Unterschiede zwischen den beiden horizontalen Auflösungen für die im März 2003 in hohen Breiten und die im Herbst 2002 in mittleren Breiten berechneten Trajektorien am größten (siehe auch Tab. B.1). Für diese Fälle sind die horizontalen Änderungen in den meteorologischen Feldern oberhalb von 380 K am größten, was z.B. in den Differenzen zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien deutlich wird (siehe Abb. B.3).

Stohl et al. [1995] untersuchten anhand troposphärischer Trajektorien (Start über Wien in 1000, 2000 und 5000 müNN) u.a. den Einfluss der horizontalen Auflösung der Eingangsdaten

Tab. 5.4.: Horizontaler Abstand [km] für Trajektorienrechnungen mit verschiedener horizontaler Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, isentrop)

Transportzeit (Tage)	Mittelwert <sup>1)</sup>	Minimum	25%-	50%-	75%-	90%-	95%-	99%-	Maximum
<i>Trajektorienstart bei <math>\Theta_{t=0} \leq 380 K</math>, <math>n^2=916</math></i>									
1	90 (8%)	0	26	57	109	228	283	448	703
2	202 (9%)	2	48	103	214	402	661	1721	3944
3	352 (10%)	2	70	161	358	732	1318	3408	6053
4	542 (11%)	2	110	235	551	1355	2459	4481	7188
5	720 (11%)	6	144	316	773	1915	3267	5155	7829
<i>Trajektorienstart bei <math>\Theta_{t=0} &gt; 380 K</math>, <math>n^2=2999</math></i>									
1	28 (3%)	0	8	18	35	65	86	189	307
2	55 (3%)	0	17	32	70	129	182	285	449
3	90 (3%)	1	24	49	114	225	309	509	961
4	132 (4%)	1	32	64	164	323	458	891	1790
5	179 (4%)	0	39	78	201	444	700	1429	2520

<sup>1)</sup> In Klammern ist der relative mittlere Fehler entsprechend Gleichung 4.9 (S. 61) angegeben.

<sup>2)</sup>  $n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f.

auf die berechneten Trajektorien. Nach 4 Tagen betragen die horizontalen Abstände bei einer zeitlichen Auflösung der Eingangsdaten von 3 Stunden und einer Halbierung der horizontalen Auflösung von  $0,5^\circ$  auf  $1^\circ$  für 2D-isoeta-Trajektorien 111 km (relativer Fehler: 4%) und für 3D-kinematische Trajektorien 411 km (14%). Auch in anderen Studien [z.B. Rolph und Draxler, 1990] sind die mittleren horizontalen Abstände bei einer Halbierung der horizontalen Auflösung kleiner als die hier gefundenen Unterschiede in der Troposphäre. Dies hat verschiedene Ursachen. Die horizontale Auflösung der am höchsten aufgelösten Eingangsdaten ist in diesen Studien besser ( $0,5^\circ$  bzw. 90 km) als beim Modell der FU Berlin ( $1,25^\circ$ ). Auch die zeitliche Auflösung der dabei verwendeten Eingangsdaten (3 bzw. 2 Stunden) ist höher als bei den hier durchgeführten Untersuchungen (6 Stunden), so dass Änderungen z.B. in den Windfeldern insgesamt besser erfasst werden. Außerdem wurden die Trajektorien in den genannten Studien z.T. in der planetarischen Grenzschicht berechnet, in der die Windgeschwindigkeiten geringer sind als in der mittleren und oberen Troposphäre. Bei größeren Windgeschwindigkeiten können jedoch kleine Abweichungen in der Trajektorienposition in den folgenden Zeitschritten schneller zu größeren absoluten Abweichungen führen.

Die hier vorgestellten Ergebnisse für das Trajektorienmodell der FU Berlin zeigen, dass in der Stratosphäre eine horizontale Auflösung von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  i. Allg. ausreichend ist, um den Luftmassentransport richtig wiederzugeben. Lediglich in Situationen mit großen, sich ändernden horizontalen Gradienten, wie sie bei Stratosphärenwärmungen und bei der Umstellung des Windregimes von der Sommer- zur Winterzirkulation (oder umgekehrt) auftreten können, kommt es zu größeren Abweichungen zwischen den beiden horizontalen Auflösungen, so dass hier

die höher aufgelöste Modellversion angewendet werden sollte. In der Troposphäre treten unterhalb von 340 K relativ große Differenzen zwischen den beiden horizontalen Auflösungen auf. Die geringer aufgelöste Modellversion von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  ist demzufolge nicht geeignet, um den Luftmassenweg in diesem Bereich korrekt wiederzugeben. Auch im Bereich zwischen 340 K und 380 K (obere Troposphäre/untere Stratosphäre) ist mit der höheren horizontalen Modellversion eine Verbesserung bei der Beschreibung des Luftmassenweges zu verzeichnen.

### 5.2.2. Vertikale Auflösung

Für die Untersuchung des Einflusses der vertikalen Auflösung wurden die bisherigen 25 isentropen Flächen des Trajektorienmodells (L25, siehe Abb. 4.5) im Rahmen dieser Arbeit auf 59 Flächen (L59) erweitert. Die ursprünglichen Theta-Flächen waren ausgehend von einer Tropopausenhöhe um ca. 340 K festgelegt. In den Tropen und Subtropen liegt die Tropopause höher, in hohen Breiten z.T. niedriger als 340 K (vgl. Abb. 2.6). Daher wurde der Bereich mit dem minimalen Abstand zwischen den isentropen Flächen erweitert auf 285 K–405 K, der Abstand beträgt in diesem Bereich jetzt 7,5 K (alter minimaler Abstand: 10 K). Die neuen isentropen Flächen wurden wieder so ausgewählt, dass die gesamte Stratosphäre annähernd äquidistant abgebildet wird (vgl. auch Kap. 4.3.1 und Abb. 4.5). Die oberste Theta-Fläche liegt bei 1635 K, so dass nur unter extrem kalten stratosphärischen Bedingungen eine Extrapolation der Daten für diese Fläche erfolgen muss. Die neu eingestellten Flächen sind in Abbildung 5.3 in einem Druck-Temperatur-Diagramm dargestellt. Die Abbildung zeigt außerdem die durch die operationellen ECMWF-Daten gegebenen Druckflächen sowie exemplarisch Temperaturprofile für die hier untersuchten meteorologischen Bedingungen (vgl. Abb. 5.1).

Die Sensitivität der Trajektorien bezüglich der vertikalen Auflösung des Modells wurde über Vergleiche der L59- mit der L25-Version jeweils für meteorologische Eingangsdaten mit einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  und von  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  untersucht. Die Vergleichsrechnungen wurden unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport (isentrop, klimatologische oder aktuelle Erwärmungsraten) durchgeführt. Dabei ergaben sich nur geringe Unterschiede in den mittleren horizontalen Abständen (siehe Tab. B.1). Die Ergebnisse werden daher hier wieder exemplarisch für die isentropen Trajektorien, die auf Eingangsdaten mit einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  basieren, dargestellt. Abbildungen zum Vergleich der Trajektorien, die ausgehend von aktuellen Erwärmungsraten berechnet wurden, finden sich im Anhang B.2.

In Abbildung 5.4a (links) ist zu erkennen, dass die größten horizontalen Unterschiede zwischen den beiden vertikalen Auflösungen zum einen bei den in den unteren Schichten berechneten Trajektorien und zum anderen bei den oberhalb von 920 K gestarteten Trajektorien auftreten. Die mittleren horizontalen Abstände für die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien sind für die einzelnen Starttage in Abbildung 5.4b (rechts) dargestellt. Hier zeigen sich die größten Unterschiede für die in den Tropen berechneten Trajektorien.

Zwischen 285 K und 320 K wurde die vertikale Auflösung des Modells wesentlich erhöht (von  $\Delta\Theta=20$  K auf  $\Delta\Theta=7,5$  K) und die Trajektorien bewegen sich ausschließlich in der von

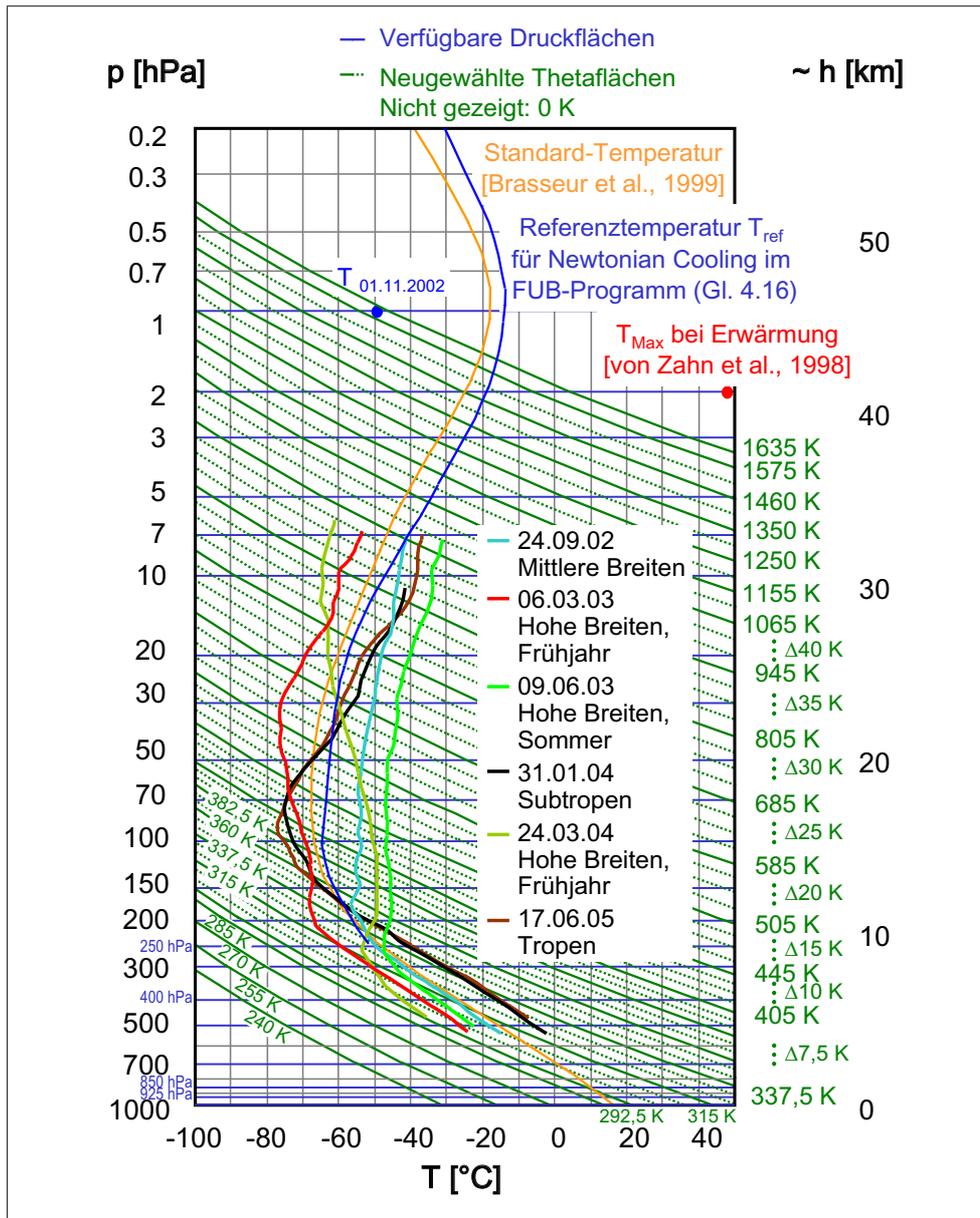
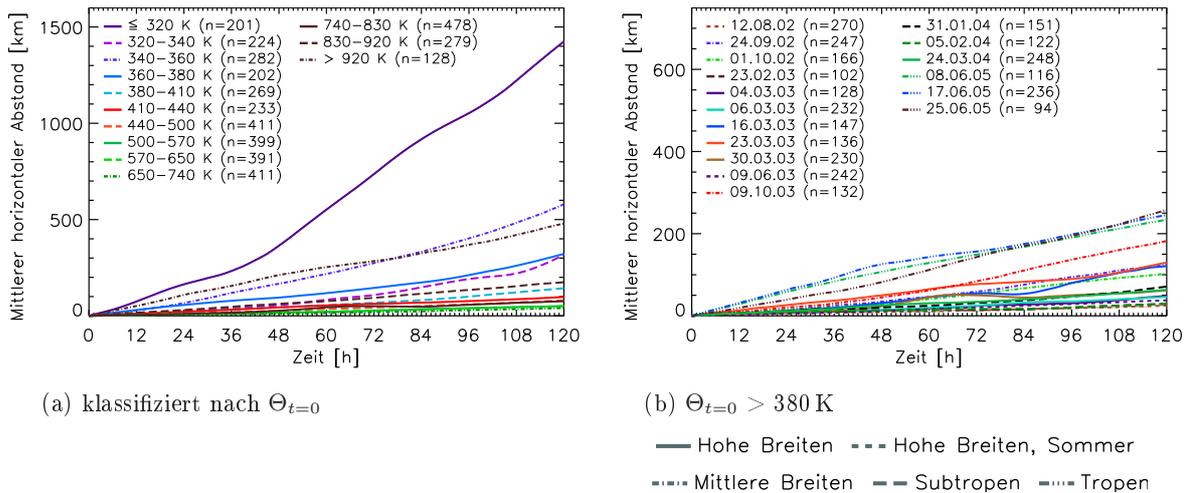


Abb. 5.3.: Verwendete  $\Theta$ -Flächen in der 59-Flächen-Version (L59) des Trajektorienprogrammes der FU Berlin (weiteres siehe Text)

kleinskaligen Prozessen geprägten Troposphäre. Dies führt im Mittel nach 5 Tagen zu einem horizontalen Abstand zwischen den mit verschiedener vertikaler Auflösung berechneten Trajektorien von ca. 1400 km (Abb. 5.4a).

Im Bereich zwischen 320 K und 360 K wurde die vertikale Auflösung lediglich um 2,5 K erhöht, so dass hier der horizontale Abstand insgesamt geringer ist. Der im Mittel mit ca. 600 km nach 5 Tagen größere Abstand für die zwischen 340 K und 360 K initialisierten Trajektorien ist in erster Linie auf die tropischen und subtropischen Fälle zurückzuführen, die in diesen Höhen ausschließlich in der Troposphäre liegen. Abbildung 5.5 zeigt beispielhaft die Unterschiede zwischen den beiden vertikalen Auflösungen in der zonalen Windkomponente für die subtropischen Fälle im Bereich zwischen 310 und 420 K (ca. 4–18,5 km). Die größten Differenzen im zonalen Wind



$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f

Abb. 5.4.: Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener vertikaler Auflösung (L59 vs. L25,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , isentrop): (a) klassifiziert nach  $\Theta_{t=0}$ , (b) für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K [unterschiedliche y-Skalen!]

treten am 31.01.2004 um 345 K im Bereich des Westwindmaximums<sup>4</sup> auf. Mit der vertikal höher aufgelösten Version des Trajektorienmodelles wird dieses Windmaximum besser erfasst als mit der 25-Flächen-Version, so dass sich die Windgeschwindigkeiten um bis zu 2,5 m/s unterscheiden. Für die meridionale Windkomponente ergeben sich ähnliche Differenzen (siehe auch Abb. B.4). Zwischen 320 K und 340 K treten zwischen den beiden vertikalen Auflösungen kaum Unterschiede in den Windkomponenten auf, da die gleichmäßige Änderung der vertikalen Windgradienten von beiden Modellversionen annähernd identisch wiedergegeben wird. Daher unterscheiden sich die berechneten Trajektorien in diesem Höhenbereich nur wenig und der horizontale Abstand ist entsprechend geringer (im Mittel über alle Fälle ca. 300 km).

Wie in Abbildung 5.5 zu erkennen ist, ergeben sich für die subtropischen Fälle auch im Bereich zwischen 360 K und 380 K, in dem die vertikale Auflösung mit der neuen 59-Flächen-Version wesentlich verbessert wurde, relativ große Differenzen im zonalen Wind von bis zu 2 m/s. Für die tropischen Fälle betragen die Differenzen in den Windkomponenten in diesem Bereich sogar bis zu 5 m/s. In den hohen und mittleren Breiten sind die Unterschiede fast immer kleiner (bis zu 0,5 m/s), da dieser Bereich hier in der unteren Stratosphäre liegt. In der Stratosphäre ändern sich die vertikalen Gradienten i. Allg. relativ gleichmäßig, so dass die wesentlichen Strukturen bereits durch die geringere vertikale Modellauflösung mit 25 Flächen gut erfasst werden. Lediglich im Oktober 2002 (mittlere Breiten) treten für die meridionale Windkomponente Differenzen von bis zu 2 m/s auf. Da in den Tropen und Subtropen zwischen 360 K und 380 K nur relativ wenige Trajektorien berechnet wurden (jeweils ca. 15), ist der in Abbildung 5.4a dargestellte Mittelwert des

<sup>4</sup> Die Trajektorienstartpunkte sind aus den Daten von Ballonauf- und -abstieg abgeleitet. Je nach Flugdauer und Windgeschwindigkeiten in der Stratosphäre ist der Ballonabstieg mehrere hundert Kilometer vom Startort entfernt. Das Westwindmaximum mit bis zu 11 m/s gilt für den Ballonaufstieg. Die zonalen Windgeschwindigkeiten um 0 m/s zwischen 330 und 350 K am 31.01.2004 sind aus den Daten des Ballonabstieges abgeleitet, der ca. 600 Kilometer südwestlich vom Ballonaufstieg unter anderen troposphärischen Bedingungen erfolgte.

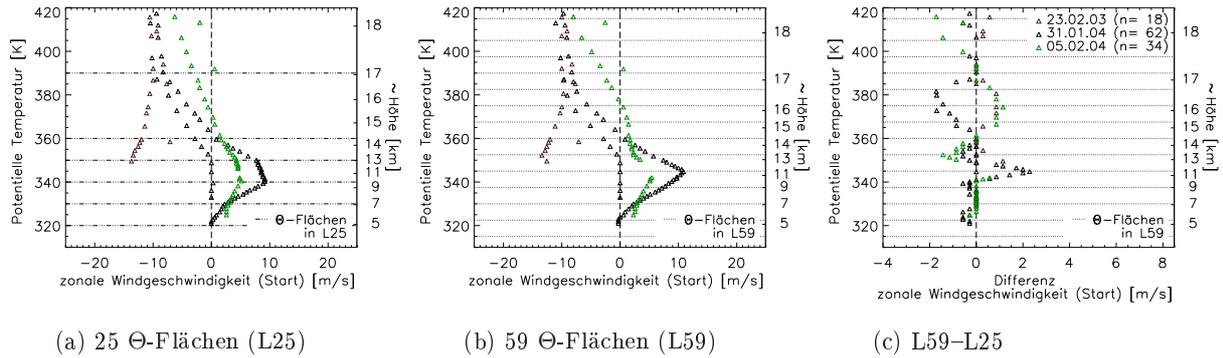


Abb. 5.5.: Vergleich des zonalen Windes zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener vertikaler Auflösung (L59 und L25,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , isentrop) für die subtropischen Fälle

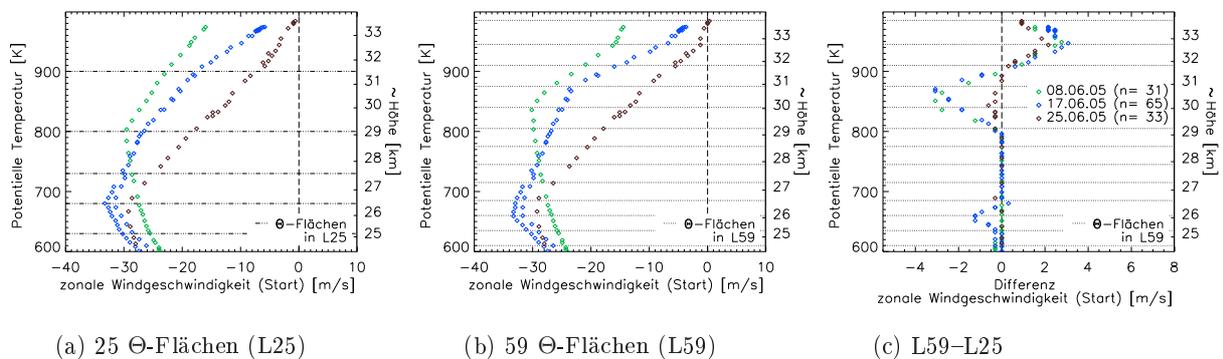


Abb. 5.6.: Vergleich des zonalen Windes zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener vertikaler Auflösung (L59 und L25,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , isentrop) für die tropischen Fälle

horizontalen Abstandes in diesem Bereich von den in höheren Breiten berechneten Trajektorien dominiert und relativ klein. Er beträgt nach 5 Tagen ca. 300 km.

Im Bereich oberhalb von 360 K wurde die vertikale Auflösung teilweise extrem erhöht (z.B. zwischen 800 K und 900 K von  $\Delta\Theta=100$  K auf  $\Delta\Theta=30$  K). Da dieser Bereich überwiegend in der Stratosphäre liegt, werden – wie bereits erläutert – die vertikalen Gradienten auch durch die geringere vertikale Auflösung gut erfasst (vgl. Abb. 5.1 und Abb. B.4). Eine Ausnahme bilden die in den Tropen initialisierten Trajektorien. In Abbildung 5.6 sind die Unterschiede im zonalen Wind zwischen den beiden vertikalen Auflösungen für die tropischen Fälle im Bereich von 600 bis 1000 K (ca. 24 bis 34 km) dargestellt. Deutliche Unterschiede sind für das (Ost-)Windmaximum am 08.06.05 (grün, um 840 K) und am 17.06.05 (blau, um 660 K) zu erkennen. Das Windmaximum wird an diesen beiden Tagen in der vertikal geringer aufgelösten Modellversion im Vergleich zur 59-Flächen-Version in seinem absoluten Wert unterschätzt und einer anderen Höhe zugeordnet. Am 17.06. zeigt die L59-Version um 875 K (ca. 10 hPa bzw. 31 km) eine Änderung des Vertikalgradienten, die in der 25-Flächen-Version nicht zu erkennen ist. Außerdem treten relativ große Differenzen im zonalen Wind oberhalb von ca. 910 K auf. Im Bereich zwischen 680 und 800 K (ca. 19–12 hPa bzw. 26,5–29 km) sind keine Unterschiede zwischen den beiden Vertikalauflösun-

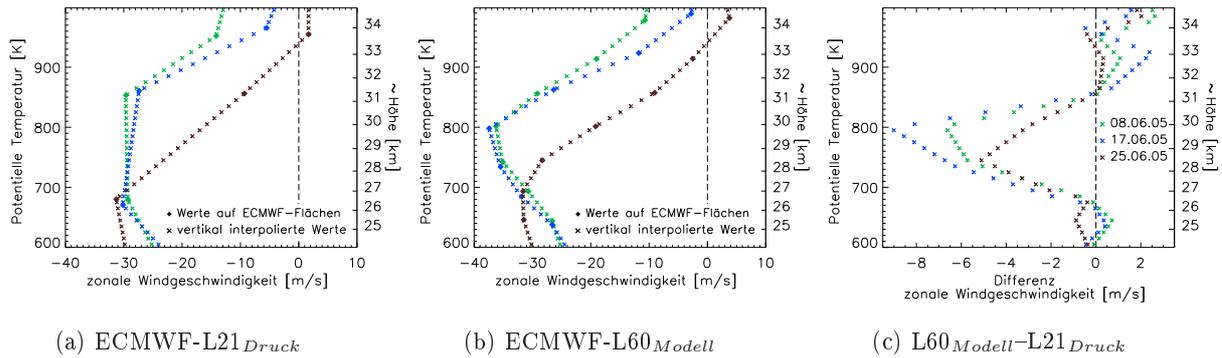


Abb. 5.7.: Vergleich des zonalen Windes für verschiedene vertikale Auflösungen der operationellen ECMWF-Daten (ECMWF auf 21 Druckflächen und ECMWF auf 60 Modellflächen, 12 UT) in  $5^{\circ}\text{S}/42^{\circ}\text{W}$

gen feststellbar. Die Eingangsdaten des ECMWF liegen um diesen Höhenbereich lediglich auf 20 und 10 hPa vor. Da sich die  $\Theta$ -Flächen von 680 bis 800 K an den hier betrachteten tropischen Orten vollständig innerhalb des gegebenen Druckbereiches zwischen 20 und 10 hPa befinden (siehe auch Abb. 5.3), muss in diesem Bereich bei beiden Vertikalaufösungen gleichermaßen interpoliert werden. Vor allem die am 17.6. in der höher aufgelösten Version auftretende Änderung des Gradienten lässt vermuten, dass das reale Windmaximum bereits in den auf Druckflächen vorliegenden ECMWF-Daten nicht richtig erfasst ist. Wahrscheinlich liegt für alle drei untersuchten Tage das wirkliche Windmaximum zwischen 20 und 10 hPa (ca. 680–880 K) und ist höher als die in den meteorologischen Eingangsdaten auf Druckflächen wiedergegebenen Werte.

Tatsächlich zeigt ein Vergleich des zonalen Windes aus den operationellen ECMWF-Daten zwischen den hier verwendeten Daten auf Druckflächen und den auf – vertikal höher aufgelösten – ECMWF-Modellflächen vorliegenden Daten große Unterschiede im entsprechenden Höhenbereich. In Abbildung 5.7 ist der zonale Wind aus beiden ECMWF-Datensätzen für die betrachteten Tage im Juni 2005 jeweils in  $5^{\circ}\text{S}/42^{\circ}\text{W}$  gegenübergestellt. Zwischen beiden Datensätzen sind Unterschiede von bis zu 9 m/s (für den 17.06.2005 um 800 K) feststellbar. In den vertikal höher aufgelösten ECMWF-Daten ( $L60_{Modell}$ ) ist für den 08.06. und den 17.06.05 ein deutlich ausgeprägtes Windmaximum um 800 K (ca. 12 hPa) zu erkennen, am 25.06. zeigen die  $L60_{Modell}$ -Daten das Windmaximum um 700 K (ca. 18 hPa). Vor allem die Maxima um 800 K sind durch die geringere vertikale Auflösung nicht in den  $L21_{Druck}$ -ECMWF-Daten wiedergegeben. Die Anwendung der höher aufgelösten Trajektorienmodellversion ( $L59$ ) führt demzufolge zwar zu einer Verbesserung bei der Wiedergabe der Trajektorien. Aufgrund der verwendeten meteorologischen Eingangsdaten ( $L21_{Druck}$ -ECMWF) ist jedoch im beschriebenen Höhenbereich in den Tropen mit z.T. erheblichen Diskrepanzen zwischen den berechneten Trajektorien und den realen Luftmassenwegen zu rechnen.

Die Differenzen im zonalen Wind zwischen den unterschiedlichen Vertikalaufösungen des Trajektorienmodelles führen, wie in Abbildung 5.4b gezeigt, für die tropischen Trajektorien mit einer Initialisierung oberhalb von 380 K zu relativ großen horizontalen Abständen von im Mittel ca. 250 km nach 5 Tagen. Relativ starke Änderungen im Windgradienten lassen sich in der Stratosphäre auch in den mittleren Breiten (v.a. am 09.10.03) für den zonalen Wind und am

23.03.2003 für die meridionale Windkomponente feststellen (vgl. Abb. 5.1). Diese Änderungen treten aber nicht wie in den Tropen in der mittleren Stratosphäre auf, sondern in der unteren Stratosphäre, wo die Vertikalaufösung der Eingangsdaten höher ist als oberhalb von 20 hPa. Sie werden bereits von der geringer aufgelösten Modellversion relativ gut wiedergegeben und die Unterschiede in den Windgeschwindigkeiten sind kleiner als in den Tropen (vgl. Abb. B.4). Dementsprechend sind die mittleren horizontalen Abstände für diese Fälle zwar größer als bei den Fällen mit gleichmäßigem vertikalen Windgradienten, aber um mindestens 20% kleiner als bei den Trajektorien in den Tropen.

Ursache für den mit ca. 500 km nach 5 Tagen relativ großen mittleren Abstand für die oberhalb von 920 K initialisierten Trajektorien in Abbildung 5.4a sind die beschriebenen Unterschiede zwischen den beiden Vertikalaufösungen bei den tropischen Fällen. In diesem Höhenbereich wurden überwiegend tropische Trajektorien berechnet (vgl. Tab. 5.1), so dass der in Abbildung 5.4a dargestellte Mittelwert von den relativ starken Unterschieden in den Tropen dominiert wird. Auch für den Höhenbereich zwischen 830 K und 920 K sind die horizontalen Abstände für die tropischen Fälle relativ groß. Hier geht aber in den Mittelwert der horizontalen Abweichung eine höhere Anzahl von nicht-tropischen Trajektorien ein, so dass der Mittelwert im Vergleich zu den anderen ausschließlich stratosphärischen Trajektorien ( $> 410$  K) nur gering erhöht ist und nach 5 Tagen ca. 90 km beträgt.

Tabelle 5.5 zeigt einige statistische Parameter (Mittelwert, Perzentilwerte sowie Minimum und Maximum) für den horizontalen Abstand zwischen den Rechnungen mit verschiedener vertikaler Auflösung getrennt für Trajektorien mit einer Initialisierung unter- bzw. oberhalb von 380 K. Die horizontalen Abweichungen sind für die unterhalb von 380 K überwiegend in der Troposphäre gestarteten Trajektorien, wie bereits erläutert, größer als bei den vorwiegend stratosphärischen Trajektorien mit einer Initialisierung oberhalb von 380 K. So ist der mittlere relative Fehler für die unterhalb von 380 K berechneten Trajektorien während der gesamten Transportzeit mit 10–12% ca. 5-mal so groß wie bei den oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien (2%). Nach 4 Tagen beträgt der mittlere absolute Fehler bei den überwiegend troposphärischen Trajektorien ca. 450 km, für 75% dieser Trajektorien ist der horizontale Abstand kleiner als 440 km. Bei mehr als 10 Prozent der Trajektorien beträgt die horizontale Abweichung zwischen den beiden vertikalen Auflösungen nach 4 Tagen mehr als 1000 km, in Extremfällen kann der horizontale Abstand fast 8000 km erreichen. Für die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien beträgt der mittlere Abstand nach 4 Tagen ca. 75 km, nur einige wenige Fälle weisen eine horizontale Abweichung von mehr als 1000 km auf.

Die geänderte vertikale Auflösung des Trajektorienmodelles führt prinzipiell zu einer i. Allg. geringfügig veränderten Ableitung der meteorologischen Größen. Die meteorologischen Daten werden ausgehend von der untersten isentropen Fläche von unten nach oben berechnet. D.h. die Ableitung für eine gegebene isentrope Fläche erfolgt aus der bereits bekannten darunterliegenden Fläche und der Differenz zwischen den beiden Flächen. Bei einer höheren vertikalen Auflösung ergeben sich damit mehr Stützstellen und eine bessere Wiedergabe der vertikalen Strukturen, was zu Abweichungen zwischen Modellversionen mit unterschiedlicher vertikaler Auflösung führt. So beträgt die mittlere Differenz in der Höhe bei den hier untersuchten Fällen für Trajektorien

Tab. 5.5.: Horizontaler Abstand [km] für Trajektorienrechnungen mit verschiedener vertikaler Auflösung (L59 vs. L25,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , isentrop)

Transportzeit (Tage)	Mittelwert <sup>1)</sup>	Minimum	25%-	50%-	75%-	90%-	95%-	99%-	Maximum
<i>Trajektorienstart bei <math>\Theta_{t=0} \leq 380\text{ K}</math>, <math>n^2=909</math></i>									
1	75 (10%)	0	3	21	88	210	348	632	915
2	167 (10%)	0	9	46	158	481	802	1551	3198
3	306 (11%)	0	16	81	267	925	1520	2861	4562
4	451 (11%)	0	24	114	425	1367	2066	4077	7839
5	644 (12%)	0	37	167	651	1873	3042	5868	8658
<i>Trajektorienstart bei <math>\Theta_{t=0} &gt; 380\text{ K}</math>, <math>n^2=2999</math></i>									
1	17 (2%)	0	1	6	16	38	75	215	310
2	36 (2%)	0	3	11	33	83	159	429	628
3	55 (2%)	0	5	19	51	136	264	605	818
4	74 (2%)	0	7	25	70	185	339	736	1225
5	99 (2%)	0	9	33	94	231	469	962	2416

<sup>1)</sup> In Klammern ist der relative mittlere Fehler entsprechend Gleichung 4.9 (S. 61) angegeben.

<sup>2)</sup>  $n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f.

mit einer Initialisierung oberhalb von 380 K zum Initialisierungszeitpunkt ca. 40 Meter. In einigen wenigen Fällen unterscheiden sich die Höhen um fast 500 Meter. Bei den unterhalb von 380 K initialisierten Trajektorien sind die Unterschiede größer. Sie betragen hier zum Initialisierungszeitpunkt im Mittel ca. 180 Meter. Im Verlauf der 5 Tage, für die die Trajektorien jeweils berechnet wurden, ändert sich die mittlere Höhenabweichung zwischen den mit der L59- und der L25-Version berechneten Trajektorien für  $\Theta_{t=0} > 380\text{ K}$  nicht, die maximale Höhendifferenz beträgt nach 5 Tagen ca. 800 Meter.

Bei der Validierung von Satellitendaten (siehe Kap. 6) erfolgt die Höhenzuordnung nicht über die potentielle Temperatur, sondern über die Höhe bzw. über den Druck (für einige MIPAS-E-Validierungen). Daher sollte bei dieser Anwendung des Trajektorienmodelles auf die höher aufgelöste L59-Version zurückgegriffen werden. Wird – wie beispielsweise beim Ozonsondenmatch [z.B. Rex, 1997] – nur die potentielle Temperatur aus der Trajektorienberechnung benötigt, so ist die vertikal geringer aufgelöste L25-Version in der Stratosphäre für die meisten meteorologischen Situationen ausreichend, um den Luftmassenweg zu beschreiben. Treten allerdings oberhalb von 20 hPa (ca. 26 km) sich stark ändernde Wind-Gradienten auf, dann kann der reale Luftmassenweg in diesem Höhenbereich mit den hier als Eingangsdaten verwendeten ECMWF-Daten auf 21 Druckflächen sowohl mit der L25- als auch mit der L59-Flächen-Version nur über eine kurze Zeit von ein paar Stunden annähernd richtig wiedergegeben werden. Bereits nach einem Tag kann der Unterschied zwischen dem realen Luftmassenweg und den berechneten Trajektorien aufgrund des Fehlers im zonalen Wind von bis zu 9 m/s mehr als 700 Kilometer betragen. Dies trifft aufgrund der QBO fast immer auf die obere tropische Stratosphäre zu. Solche Situationen

sind aber kurzfristig auch in hohen Breiten im Winter bedingt durch große Stratosphärenenerwärmungen oder bei der Umstellung der Zirkulation im entsprechenden Höhenbereich möglich. In diesen Fällen kann der Luftmassentransport nur bei der Verwendung höher aufgelöster meteorologischer Eingangsdaten annähernd richtig beschrieben werden. In der oberen Troposphäre sollte die höher aufgelöste L59-Version des Trajektorienmodelles benutzt werden, da so kleinskalige Prozesse besser erfasst werden können.

### 5.2.3. Berücksichtigung diabatischer Prozesse

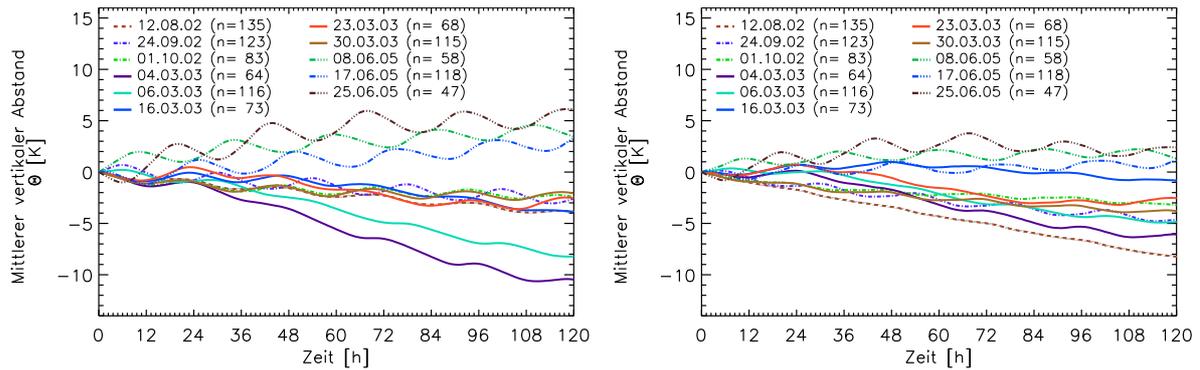
Diabatische Prozesse führen zu quasi-isentropem Transport, der im FUB-Modell durch intern berechnete klimatologische oder durch extern bereitgestellte aktuelle Erwärmungsraten (Modellberechnungen von SLIMCAT) beschrieben werden kann (siehe Abschnitt 4.3.2). Im Folgenden werden den Trajektorienrechnungen mit aktuellen Erwärmungsraten die Berechnungen gegenübergestellt, die unter ausschließlicher Berücksichtigung adiabatischer Prozesse (isentrop) bzw. unter Annahme klimatologischer Erwärmungsraten erfolgten. Die aktuellen Erwärmungsraten von SLIMCAT liegen erst ab einer potentiellen Temperatur von 380 K vor, so dass sich der Vergleich auf oberhalb von 380 K initialisierte Trajektorien beschränkt. Die Trajektorien wurden mit einer vertikalen Auflösung von 25 Flächen mit beiden verfügbaren horizontalen Auflösungen der meteorologischen Eingangsdaten ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  und  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ ) berechnet. Die Ergebnisse werden hier anhand der Berechnungen mit einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  diskutiert. Die Vergleiche basierend auf den  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ -Rechnungen sind im Wesentlichen identisch und im Anhang B.2 grafisch dargestellt.

Abbildung 5.8 zeigt die mittlere Differenz zwischen der potentiellen Temperatur der mit aktuellen Erwärmungsraten berechneten Vorwärtstrajektorien und der potentiellen Temperatur der isentropen (links) bzw. der basierend auf klimatologischen Erwärmungsraten berechneten Vorwärtstrajektorien (rechts). Aus dem Vergleich mit den isentropen Trajektorien ist das mittlere Auf- bzw. Absteigen der Trajektorien für die einzelnen Starttage ablesbar. Entsprechend der Brewer-Dobson-Zirkulation (siehe Abschnitt 2.3.4) steigen die Luftmassen in den Tropen auf – im Verlauf der 5 Tage im Mittel um ca. 5 K. In hohen und mittleren Breiten tritt Absinken auf, das für die beiden Fälle Anfang März 2003 aufgrund des Minor Warmings mit im Mittel bis zu -10 K am stärksten ausgeprägt ist.<sup>5</sup> Bedingt durch die größeren Unterschiede im Strahlungsbudget ist insbesondere bei den tropischen Fällen ein ausgeprägter Tagesgang zu erkennen. Tagsüber führt die einfallende Sonneneinstrahlung zu diabatischem Aufsteigen, in der Nacht kommt es zu einer Abkühlung der Luftmassen, die mit diabatischen Absinken verbunden ist.

Unter Berücksichtigung der klimatologischen Erwärmungsraten (Abb. 5.8b) wird das Auf- und Absteigen der Luftmassen in den Tropen und in hohen Breiten im Winter qualitativ richtig beschrieben. Die mittleren Differenzen der potentiellen Temperatur zwischen den aktuellen und den klimatologischen Trajektorien sind in diesen Fällen kleiner als beim Vergleich der aktuellen mit den isentropen Trajektorien. Allerdings wird der Vertikaltransport bei Berücksichtigung der

---

<sup>5</sup> Für die subtropischen Fälle sind die aktuellen Erwärmungsraten nicht verfügbar (vgl. Tab. 5.1).



(a) aktuell – isentrop

(b) aktuell – klimatologisch

— Hohe Breiten    - - - Hohe Breiten, Sommer    - · - · - Mittlere Breiten    - - - Subtropen    - · - · - Tropen

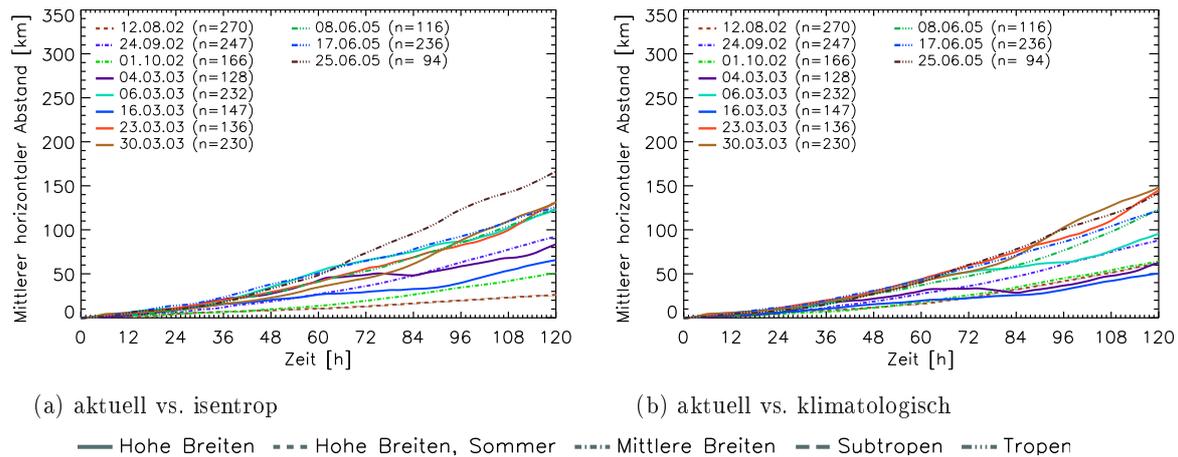
$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f

Abb. 5.8.: Mittlerer vertikaler Abstand ( $\Theta$ ) für Vorwärtstrajektorien ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25) unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport ( $\Theta_{t=0} > 380$  K)

klimatologischen Erwärmungsraten unterschätzt. Dies zeigt sich vor allem Anfang März 2003, wo die mittleren Differenzen zwischen den aktuellen und den klimatologischen Trajektorien nach 5 Tagen bis zu ca. -6 K betragen. Für einzelne Trajektorien lassen sich hier nach 5 Tagen Unterschiede in der potentiellen Temperatur von über 30 K feststellen. Auch der Tagesgang wird mit Hilfe der klimatologischen Trajektorien qualitativ erfasst, er ist in den Differenzen zwischen den aktuellen und den klimatologischen Berechnungen weniger deutlich ausgeprägt als beim Vergleich zwischen den aktuellen und den isentropen Trajektorien. In hohen Breiten im Sommer (12.08.02) ergibt sich aus den klimatologischen Erwärmungsraten ein kontinuierliches Aufsteigen der Luftmassen<sup>6</sup>, obwohl die aktuellen Erwärmungsraten ein langsames Absinken zeigen. Daraus resultiert nach 5 Tagen im Mittel eine Abweichung der klimatologischen von den aktuellen Erwärmungsraten um -8 K. Einzelne Trajektorien weisen in hohen Breiten im Sommer Unterschiede von bis zu -12 K auf.

Die klimatologischen Erwärmungsraten sind, wie in Kapitel 4.3.2 beschrieben, von verschiedenen vorgegebenen Parametern abhängig (Newtonian-Cooling-Koeffizient nach Gl. 4.16, Referenztemperatur für Newtonian Cooling sowie Erwärmungs- bzw. Abkühlungsraten nach Kähler [1988]). Eine Aktualisierung dieser Parameter dürfte zu einer Verbesserung der klimatologischen Erwärmungsraten, also einer besseren Übereinstimmung mit den aktuellen Erwärmungsraten, führen. Dazu müssten z.B. die Vertikalprofile der vorgegebenen Erwärmungs- bzw. Abkühlungsraten ( $Q_{H,Solar,SZA=0^\circ}$  und  $Q_{H,Solar,global}$  bzw.  $Q_{C,IR,global}$ ) analog zu Kähler [1988] mit aktualisierten Klimatologien der Spurengasverteilungen neu berechnet werden. Für die im Rahmen der ENVISAT-Validierung untersuchten Fälle, für die keine aktuellen Erwärmungsraten vorliegen, sind entweder nur Transportzeiten von maximal ein bis zwei Tagen relevant (siehe Kap. 6.3) oder es ist aufgrund der geographischen Lage und der Jahreszeit (Mittlere Breiten, Herbst)

<sup>6</sup> Sowohl die permanente Sonneneinstrahlung als auch die positive Abweichung der aktuellen Temperatur von der Referenztemperatur führen zu einer Erwärmung und damit zu einem Aufsteigen der Trajektorien (vgl. auch Abb. 4.6).



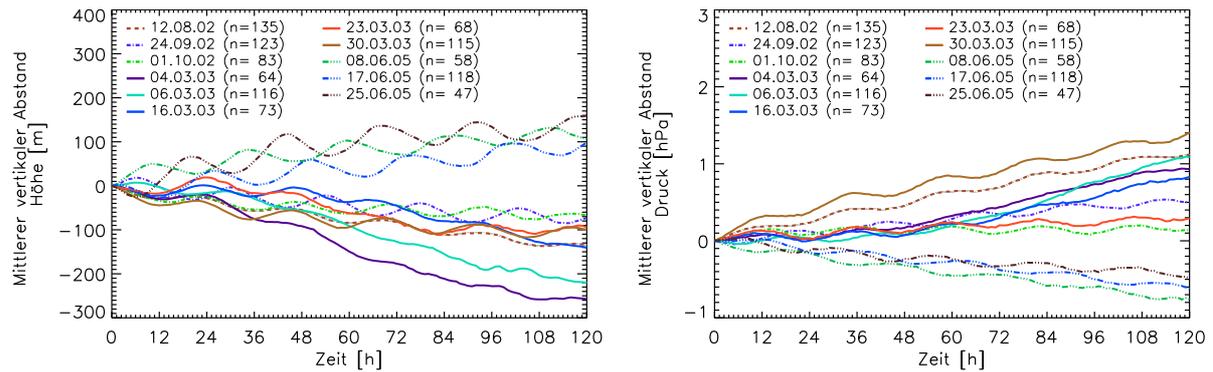
n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f

Abb. 5.9.: Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25) unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport ( $\Theta_{t=0} > 380 \text{ K}$ )

insgesamt mit nur geringen Unterschieden zwischen den klimatologischen und den aktuellen Erwärmungsraten zu rechnen (siehe Kap. 6.4). Da eine genaue Übereinstimmung zwischen den klimatologischen und den aktuellen Erwärmungsraten nicht zu erreichen ist, wurde im Rahmen dieser Arbeit auf die Aktualisierung der Parameter zur Berechnung der klimatologischen Erwärmungsraten verzichtet.

Durch die unterschiedlichen Annahmen zum Vertikaltransport ergeben sich nur geringe Unterschiede in der horizontalen Position der Trajektorien. Dies ist in Abbildung 5.9 erkennbar. Die horizontalen Abstände betragen gemittelt über die einzelnen Starttage nach 5 Tagen weniger als 200 km. Der Abstand zwischen den mit aktuellen Erwärmungsraten berechneten und den isentropen Trajektorien beträgt im Mittel über alle Trajektorien nach 5 Tagen ca. 100 km (relativer Fehler: 2%). Bei 75 % der hier untersuchten Trajektorien ist der horizontale Abstand kleiner als 125 km (2%). 95 % der Trajektorien weisen nach 5 Tagen einen horizontalen Abstand von weniger als 350 km (8 %) auf. Nur in wenigen Extremfällen (Anfang März 2003 in hohen Breiten) ist nach 5 Tagen der horizontale Abstand zwischen aktuellen und isentropen Trajektorien größer als 1 000 Kilometer (20 %). Diese Ergebnisse bestätigen, dass in der Stratosphäre bei Berechnungen über wenige Tage auch die ausschließliche Berücksichtigung adiabatischer Prozesse zu realistischen horizontalen Transportwegen führt (vgl. Abschnitt 4.1.3).

In Abbildung 5.10 ist der mittlere vertikale Abstand für die Höhe und den Druck zwischen den aktuellen und den isentropen Vorwärtstrajektorien dargestellt. Die Entwicklung der Höhe und des Druckes folgt dem aus der potentiellen Temperatur ersichtlichen Auf- bzw. Absteigen der Luftmassen. Eine Erhöhung der potentiellen Temperatur, wie sie für die in den Tropen berechneten aktuellen Vorwärtstrajektorien auftritt, ist mit sinkenden Druckwerten und steigenden Höhen verbunden. Nach 5 Tagen weisen die aktuellen Vorwärtstrajektorien im Vergleich zu den isentropen Trajektorien im Mittel einen Höhenunterschied von bis zu +120 Metern (Tropen) bzw. -170 Metern (hohe Breiten, Anfang März 2003) auf. Einige wenige Trajektorien haben im Ver-



(a) aktuell – isentrop: Höhe

(b) aktuell – isentrop: Druck

— Hohe Breiten    - - - Hohe Breiten, Sommer    ···· Mittlere Breiten    - · - Subtropen    - - - - Tropen

$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f

Abb. 5.10.: Mittlerer vertikaler Abstand (links: Höhe, rechts: Druck) für Trajektorienrechnungen ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25) unter verschiedenen Annahmen zum Vertikaltransport (aktuell vs. isentrop,  $\Theta_{t=0} > 380$  K)

lauf der 5 Tage einen Höhenunterschied von +500 Metern (Tropen) bzw. von -700 Metern (hohe Breiten, Anfang März 2003) überwunden. Die für den Druck gezeigten mittleren Abweichungen werden aufgrund der logarithmischen Abnahme des Druckes mit der Höhe von den Differenzen der in den unteren Höhen initialisierten Trajektorien dominiert<sup>7</sup>. Detaillierte Angaben zu den Druckdifferenzen sind daher wenig aussagekräftig, sie lassen sich aber aus den beschriebenen Höhendifferenzen ableiten. Wie bereits im vorigen Kapitel erläutert, werden bei der Anwendung der Trajektorien zur Validierung von Satellitendaten (siehe Kap. 6) die Satellitenmessungen über die Höhe bzw. über den Druck identifiziert. Die z.T. großen Unterschiede in der Höhenkoordinate machen deutlich, dass bei dieser Anwendung v.a. bei Betrachtungen über mehrere Tage (Kap. 6.4) diabatische Prozesse berücksichtigt werden müssen, um eine richtige Höhenzuordnung zu ermöglichen.

### 5.3. Verfahren und Parameter zur Überprüfung der Trajektorienqualität

In Kapitel 4.2 wurden verschiedene Verfahren und Parameter vorgestellt, die eine Überprüfung der Genauigkeit von Trajektorien erlauben. Mit Hilfe des Vorwärts-/Rückwärts-Testes lassen sich bei hybriden Modellen – wie dem Trajektorienmodell der FU Berlin – Trajektorien identifizieren, für die der Luftmassenweg nicht eindeutig bestimmbar ist (siehe Abschnitt 4.2.3). Auch die Überprüfung der PV-Erhaltung entlang von Trajektorien kann Aufschluss über mögliche Unsicherheiten bei der Bestimmung des Luftmassenweges geben (siehe Abschnitt 4.2.3). Da die PV

<sup>7</sup> Eine Höhendifferenz von 200 Metern führt bei einer Temperatur von  $-50^\circ\text{C}$  entsprechend der barometrischen Höhenformel (siehe Gl. 2.3) in 100 hPa zu einer Änderung des Druckes um ca. 3 hPa. In 10 hPa bewirkt dieselbe Höhendifferenz nur noch eine Druckänderung von 0,3 hPa.

unter reibungsfreien, adiabatischen Bedingungen eine materielle Erhaltungsgröße ist (siehe Abschnitt 2.2.5), können horizontale PV-Gradienten oder die zeitliche Änderung der PV entlang von Trajektorien außerdem Hinweise auf dynamisch bedingte Spurengasänderungen geben.

### 5.3.1. Vorwärts-/Rückwärts-Test

Für den Vorwärts-/Rückwärts-Test wurden die in Tabelle 5.1 angegebenen Trajektorien über einen Zeitraum von 5 Tagen vorwärts berechnet. An den nach 5 Tagen erreichten Endpunkten der Trajektorien wurden dann Rückwärtstrajektorien initialisiert und zeitlich in die andere Richtung gerechnet. Der Vorwärts-/Rückwärts-Test wurde mit einer horizontalen Auflösung der meteorologischen Eingangsdaten von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  mit beiden Vertikalaufösungen (L25 und L59) und unter verschiedenen Annahmen zur Vertikalbewegung durchgeführt<sup>8</sup>. Wie bereits in Abschnitt 5.2.1 erläutert, sind die mittleren horizontalen Abstände für die quasi-isentropen Trajektorien etwas größer als für die isentropen Trajektorien. Die Unterschiede sind aber für die hier untersuchten Fälle i. Allg. gering und führen im Mittel bei der quasi-isentropen Betrachtungsweise zu nur minimal erhöhten horizontalen Abständen von wenigen Kilometern (siehe Tab. B.1). Auch für die unterschiedlichen vertikalen Modellaufösungen ergeben sich annähernd gleiche horizontale Abstände für den Vorwärts-/Rückwärtstest. Daher werden die Ergebnisse im Folgenden wieder exemplarisch für isentrope Trajektorien basierend auf einer vertikalen Auflösung von 25 Flächen und einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  gezeigt. Die Ergebnisse für den Test mit aktuellen Erwärmungsraten sind im Anhang B.2 dargestellt.

Die Abbildungen 5.11a-c zeigen den mittleren horizontalen Abstand zwischen den Vorwärtstrajektorien und den an ihren Endpunkten nach 5 Tagen gestarteten Rückwärtstrajektorien als Funktion der Zeit. Die x-Achse beginnt mit dem Zeitpunkt zur Initialisierung der Rückwärtstrajektorien, an dem der horizontale Abstand zwischen der jeweiligen Vorwärts- und Rückwärtstrajektorie definitionsgemäß Null ist. Für die weiteren Zeitpunkte, die zeitlich vor der Initialisierung der Rückwärtstrajektorien liegen, wurde für jede Stunde der mittlere horizontale Abstand zwischen den Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien nach Gleichung 4.8 (S. 61) bestimmt.

In Abbildung 5.11a sind die Trajektorien in Abhängigkeit von der potentiellen Temperatur zum Initialisierungszeitpunkt  $\Theta_{t=0}$  klassifiziert. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Abweichung bei den überwiegend troposphärischen Trajektorien mit einer Initialisierung unterhalb von 340 K im Mittel wesentlich größer ist als bei den in höheren Flächen gestarteten Trajektorien. Dies verdeutlicht auch ein Vergleich zwischen den Abbildungen 5.11b und 5.11c, in denen jeweils Trajektorien mit einer Initialisierung unter- bzw. oberhalb von 380 K für die einzelnen Starttage zusammengefasst sind. Bei annähernd stationären – also sich zeitlich wenig ändernden – Bedingungen, wie sie vor allem in der Stratosphäre auftreten können, ergibt sich aus dem dynamischen und dem kinematischen Ansatz zur Beschreibung des Trajektorienweges (siehe Abschnitt 4.2.3 und Abschnitt 4.3.3) eine nahezu identische Lösung, so dass die Abweichungen hier

---

<sup>8</sup> Für Trajektorien, die unter Berücksichtigung quasi-isentropen Transportes (klimatologisch oder aktuell) berechnet werden, ändert sich bei der Integration in die zeitlich andere Richtung das Vorzeichen der Erwärmungsraten, so dass gilt:  $\dot{Q}_{Vorwärts} = -\dot{Q}_{Rückwärts}$

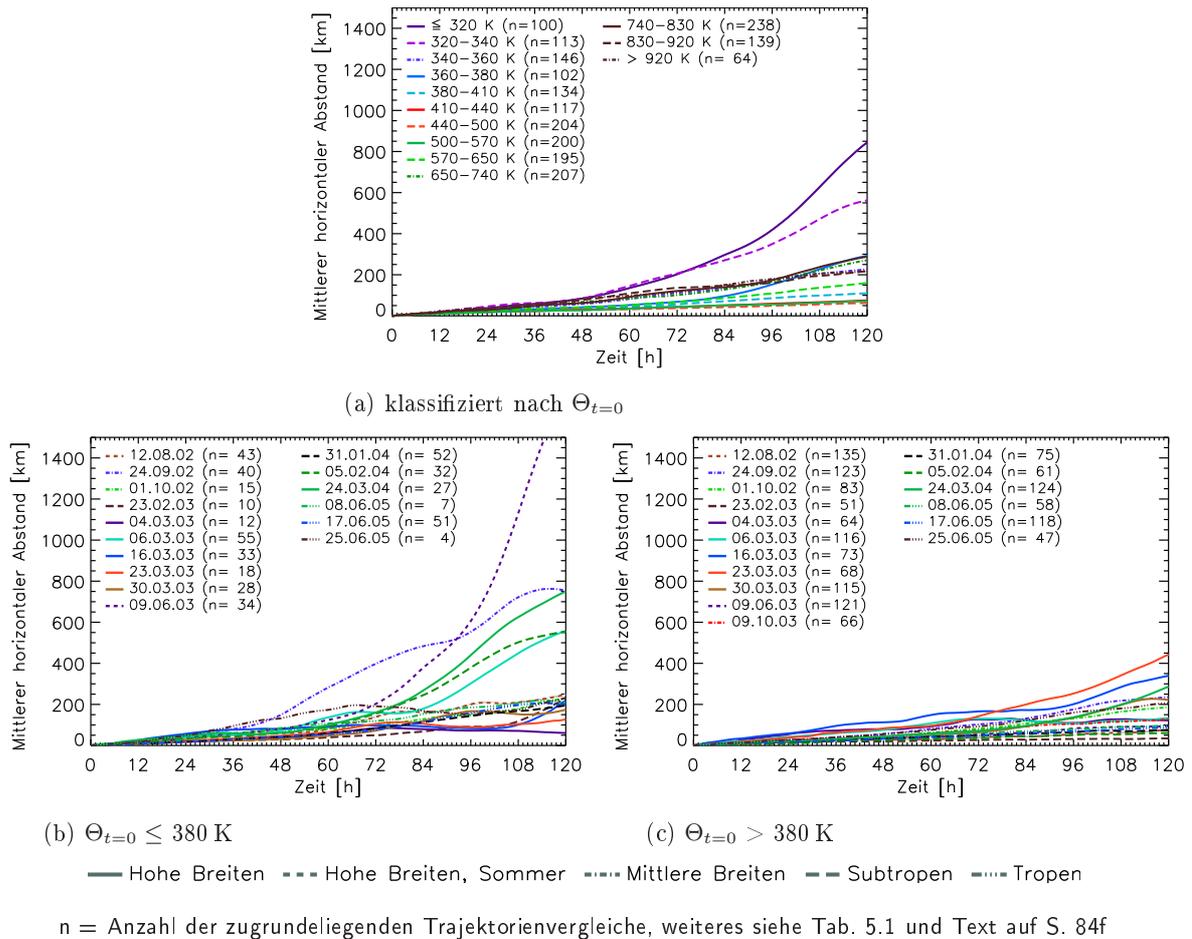


Abb. 5.11.: Mittlerer horizontaler Abstand  $\overline{d_{VR}}$  [km] für den Vorwärts-/Rückwärts-Test ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25, isentrop): (a) klassifiziert nach  $\Theta_{t=0}$ , (b) für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} \leq 380 \text{ K}$ , (c) für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380 \text{ K}$

gering sind. Einmal aufgetretene kleine Unterschiede zwischen der dynamischen und der kinematischen Lösung oder bei der numerischen Integration wirken sich darüberhinaus vor allem bei großen (räumlichen oder zeitlichen) Änderungen in den zugrundeliegenden meteorologischen Feldern aus. Sie können in den nächsten Integrationschritten schnell zu größeren Abweichungen in den berechneten Trajektorien führen. Dementsprechend sind die Fehler bei der Bestimmung der aktuellen Trajektorienposition in der Troposphäre, die durch kleinräumige, turbulente Prozesse gekennzeichnet ist, größer als in der Stratosphäre. Bei den Trajektorien, die oberhalb von 380 K initialisiert wurden (Abb. 5.11b), ist der horizontale Abstand zwischen den Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien für den 23.03.2003 (rot) und den 16.03.2003 (blau) am größten. In beiden Fällen traten innerhalb des Berechnungszeitraumes von 5 Tagen wechselnde Windverhältnisse auf (siehe Abb. B.2a), die – wie beschrieben – ausgehend von kleinen Unterschieden bei der Integration schnell anwachsende Abweichungen in den folgenden Berechnungsschritten verursachen können. Entsprechend sind die horizontalen Abstände für den Vorwärts-/Rückwärtstest dann am kleinsten, wenn sich die meteorologischen Verhältnisse innerhalb der 5 Tage nur wenig ändern und damit kaum Unterschiede zwischen der kinematischen und der dynamischen Bestimmung

Tab. 5.6.: Horizontaler Abstand  $d_{VR}$  [km] für den Vorwärts-/Rückwärts-Test ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25, isentrop)

Transportzeit (Tage)	Mittelwert <sup>1)</sup>	Minimum	25%-	50%-	75%-	90%-	95%-	99%-	Maximum
<i>Trajektorienstart bei <math>\Theta_{t=0} \leq 380\text{ K}</math>, <math>n^2=461</math></i>									
1	32 (2%)	0	11	20	41	70	93	182	508
2	66 (2%)	0	19	38	79	133	197	492	1206
3	145 (3%)	2	34	66	148	319	430	1096	4839
4	265 (5%)	1	48	102	261	631	1072	2611	5070
5	457 (6%)	2	70	144	369	1193	2665	4008	5619
<i>Trajektorienstart bei <math>\Theta_{t=0} &gt; 380\text{ K}</math>, <math>n^2=1498</math></i>									
1	25 (3%)	0	9	18	32	56	77	127	184
2	48 (3%)	0	16	30	60	110	163	264	379
3	79 (3%)	1	25	46	90	191	280	419	740
4	113 (3%)	1	33	66	134	270	425	628	1524
5	167 (3%)	0	41	85	172	386	692	1237	2630

<sup>1)</sup> In Klammern ist der relative mittlere Fehler entsprechend Gleichung 4.9 (S. 61) angegeben.

<sup>2)</sup>  $n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Vorwärts-/Rückwärts-Trajektorienpaare, weiteres s. Tab. 5.1 und Text auf S. 84.

mung der Trajektorienposition auftreten. Dies trifft bei den oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien für die subtropischen und tropischen Fälle sowie für die in hohen Breiten im Sommer gestarteten Trajektorien zu (siehe auch Tab. B.1).

In Tabelle 5.6 sind verschiedene Perzentilwerte, der Mittelwert sowie die Maxima und Minima der horizontalen Abweichung in einem Abstand von je einem Tag aufgelistet – wiederum unterteilt nach der potentiellen Temperatur zum Initialisierungszeitpunkt. Nach einem Tag beträgt der maximale Abstand zwischen der Vorwärtstrajektorie und der an ihrem Endpunkt gestarteten Rückwärtstrajektorie für die untersuchten Fälle ca. 400 Kilometer, der mittlere Abstand beträgt ca. 30 km. Dieser Mittelwert ist erwartungsgemäß größer als die von anderen Autoren für den Vorwärts-/Rückwärts-Test gefundenen horizontalen Abweichungen für nicht-hybride, kinematische Trajektorienmodelle (siehe Abschnitt 4.2.3). So stellten Schoeberl und Sparling [1995] je nach verwendetem Integrationsverfahren bei einem Zeitschritt von ca. 7 bis 30 Minuten (Zeitschritt beim Trajektorienmodell der FU Berlin: 10 Minuten) nach einem Tag eine horizontale Abweichung von  $10^{-6}$  bis  $10^{-2}$  Grad (1 Grad  $\approx$  110 km) fest. Sutton et al. [1994] führten einen Vorwärts-/Rückwärts-Test über 5 Tage mit stratosphärischen Trajektorien durch. 95% der von ihnen untersuchten Vorwärts-/Rückwärts-Trajektorien wiesen nach 5 Tagen einen Abstand von weniger als 400 km auf, bei 78% war der Abstand kleiner als 100 km. Auch im Vergleich mit dieser Studie für ein nicht-hybrides Trajektorienmodell sind die hier gefundenen Abstände größer: bei 95% der untersuchten Vorwärts-/Rückwärts-Paare mit einer Initialisierung oberhalb von 380 K war der horizontale Abstand kleiner als 670 km und bei 75% kleiner als ca. 170 km. Wie bereits in Abschnitt 4.2.3 erklärt, erfasst der Vorwärts-/Rückwärtstest für das hybride Trajektorien-

modell der FU Berlin nicht nur numerische Instabilitäten wie bei einem nicht-hybriden Modell, sondern auch methodische Unsicherheiten bei der Berechnung der Trajektorien. Daher sind die hier berechneten größeren horizontalen Abstände plausibel. Die numerische Güte des Trajektorienmodelles der FU Berlin könnte durch eine getrennte Betrachtung des kinematischen und des dynamischen Ansatzes zur Beschreibung des horizontalen Luftmassenweges untersucht werden. Dafür müsste der Vorwärts-/Rückwärtstest für verschiedene Zeitschritte separat für beide Berechnungsverfahren unter Ausschluss der jeweils anderen Methode durchgeführt werden. Die gefundenen Ergebnisse lassen jedoch darauf schließen, dass die numerische Stabilität und der gewählte Zeitschritt (10 Minuten) des FUB-Modelles ausreichend gut ist, weil anderenfalls die Abstände zwischen den Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien größer wären als die hier ermittelten Unterschiede.

Das im Trajektorienmodell der FU Berlin benutzte hybride Verfahren erlaubt es über den Vorwärts-/Rückwärtstest, Trajektorien von den weiteren Untersuchungen auszuschließen, die den Genauigkeits-Anforderungen bei der gewünschten Anwendung nicht genügen. Für stratosphärische Anwendungen von bis zu 2 Tagen kann auf den Test verzichtet werden, da die über den Vorwärts-/Rückwärtstest ermittelten Unsicherheiten nicht sehr groß sind. Bei der überwiegenden Anzahl (knapp 90 Prozent) der Trajektorien, die oberhalb von 380 K initialisiert wurden, beträgt die Unsicherheit in der Positionsbestimmung nach 2 Tagen nur bis zu ca. 100 Kilometer. Für wenige Extremfälle ergibt sich bei diesen Trajektorien ein horizontaler Abstand für den Vorwärts-/Rückwärtstest von bis zu 500 Kilometern (siehe Tab. 5.6). Die Abweichungen liegen damit in einem Bereich, der die prinzipiellen Unsicherheiten bei der Berechnung von Trajektorien widerspiegelt, wie sie beispielsweise aus der Berücksichtigung unterschiedlicher meteorologischer Eingangsdaten erwachsen. Auch die von verschiedenen Autoren über Vergleiche mit stratosphärischen Ballonen (siehe auch Abschnitt 4.2.2) ermittelten Fehler liegen bei neueren Untersuchungen in einer ähnlichen Größenordnung. Basierend auf ECMWF-Daten (T511, 60 Flächen) stellten Hertzog et al. [2004] nach zwei Tagen eine mittlere Abweichung zwischen der Ballonposition und der Trajektorienposition von ca. 130 Kilometern und Knudsen et al. [2006] einen mittleren Abstand von 200 bis 250 Kilometern fest. In beiden Studien war der Trajektorienfehler basierend auf NCEP/NCAR-Daten größer und betrug im Mittel nach 2 Tagen 500 bzw. 800 Kilometer. Bei der Anwendung des Trajektorienmodelles der FU Berlin – oder eines anderen hybriden Modelles – über einen längeren Zeitraum als 2-3 Tage oder in der Troposphäre sollte für jede Trajektorie ein Vorwärts-/Rückwärtstest (bzw. Rückwärts-/Vorwärtstest) durchgeführt werden. In diesen Fällen kann der Trajektorienfehler mehr als 1000 Kilometer betragen. Der maximal zulässige Abstand zwischen Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien ist in Abhängigkeit von der untersuchten Fragestellung festzulegen.

### 5.3.2. Änderung der PV entlang der Trajektorien

In Abbildung 5.12a wird die potentielle Vorticity, die vom Trajektorienprogramm für den Initialisierungspunkt der jeweiligen Trajektorie ermittelt wurde, in Abhängigkeit von der potentiellen Temperatur gezeigt. Ihr gegenübergestellt ist in Abbildung 5.12b die modifizierte potentielle Vorticity (siehe Abschnitt 2.2.5). Im Anhang in Abbildung B.1 sind beide Größen mit der Höhe als

Vertikalachse dargestellt. Der exponentielle Anstieg der PV mit der Höhe ist deutlich zu erkennen. Die MPV zeigt aufgrund der Skalierung (siehe Gl. 2.28, S. 15) über den gesamten Höhenbereich Werte in einer einheitlichen Größenordnung – auch hier sind aber i. Allg. in der Stratosphäre höhere Werte als in der Troposphäre anzutreffen. Für die tropischen Fälle unterscheiden sich die Werte sowohl der PV als auch der MPV in allen Höhen kaum von Null (vgl. auch Abb. 2.6). Da der Coriolisparameter zum Äquator hin gegen Null konvergiert, induzieren hier kleine Änderungen der geografischen Breite relativ große Änderungen der PV, die keine Rückschlüsse auf die Güte der Trajektorien erlauben. Die tropischen Fälle werden daher von den folgenden Betrachtungen ausgenommen.

Abbildung 5.13a zeigt beispielhaft die zeitliche Entwicklung der PV innerhalb von 5 Tagen für Vorwärtstrajektorien, die innerhalb des Polarwirbels in verschiedenen Höhen initialisiert wurden. Die PV verläuft in allen Höhen relativ gleichmässig. Sprunghafte PV-Änderungen wie bei Knudsen [1993] sind nicht feststellbar. Dies deutet darauf hin, dass Inkonsistenzen und Fehler in den meteorologischen Eingangsdaten durch Verbesserungen in der Datenassimilation reduziert wurden [siehe auch Morris et al., 2005]. Die PV-Änderungen  $\Delta PV_0$ , die relativ zum PV-Wert  $PV_{t_0}$  zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bestimmt wurden, schwanken für die hier gezeigten Trajektorien um ca.  $\pm 10\%$  (Abbildung 5.13b). In Abbildung 5.13c ist die maximale PV-Änderung  $\Delta PV$  dargestellt, die auch bei der Bestimmung des Ozonabbaus mit Hilfe des Matchverfahrens als Kriterium für die Güte der Matches angewendet wird [z.B. Rex et al., 1998]. Morris et al. [2005] untersuchen den Einfluss der PV auf die Ergebnisse des Ozonsondenmatches anhand der entsprechenden MPV-Änderung.  $\Delta PV$  [%] wird als maximale Änderung der PV innerhalb des betrachteten Zeitraumes aus der auf den Mittelwert  $\overline{PV}$  bezogenen Differenz zwischen dem Maximalwert  $PV_{Max}$  und dem Minimalwert  $PV_{Min}$  berechnet:

$$\Delta PV(t_n) = \frac{PV_{Max}(t_0 \dots t_n) - PV_{Min}(t_0 \dots t_n)}{\overline{PV}(t_0 \dots t_{max})} \quad (5.1)$$

Beim Ozonsondenmatch wird die PV-Änderung anhand eines laufenden 5- bzw. 24-Stunden-Mittelwertes der PV bestimmt [z.B. Rex et al., 1998, 1999]. Da die PV-Werte der untersuchten Trajektorien keine sprunghaften Änderungen aufweisen, wurde auf die Bildung eines laufenden Mittelwertes verzichtet. Die maximale PV-Änderung nimmt innerhalb der ersten 24 Stunden in allen Höhenbereichen relativ gleichmässig zu und wächst im Anschluss nur noch sporadisch (Abb. 5.13c). Nach 5 Tagen liegt sie für die im Beispiel gezeigten Trajektorien zwischen 9 und 19%.

Die anhand von Gleichung 5.1 ermittelten PV-Änderungen innerhalb eines Zeitraumes von 5 Tagen sind in Abbildung 5.14 getrennt für die Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien (1,25°x1,25, L25, isentrop) dargestellt. Die entsprechenden MPV-Änderungen ergeben ein identisches Bild – die Differenzen zwischen der PV- und der MPV-Änderung betragen maximal 0,2%. Auch für die PV-Änderung entlang der Trajektorien zeigt sich wieder ein deutlicher Unterschied zwischen den in der Troposphäre und den in der Stratosphäre berechneten Trajektorien. In der Troposphäre ist die relative Änderung der PV entlang der Trajektorien sehr viel größer als in der Stratosphäre. Hier sind die Bedingungen für die PV-Erhaltung häufig nicht erfüllt. Beispielsweise können im Trajektorienverlauf Wasser-Phasenübergänge auftreten, die zu einem Wärmeaustausch mit der Umgebung führen. Darüberhinaus bedingen die insgesamt kleinen PV-Werte

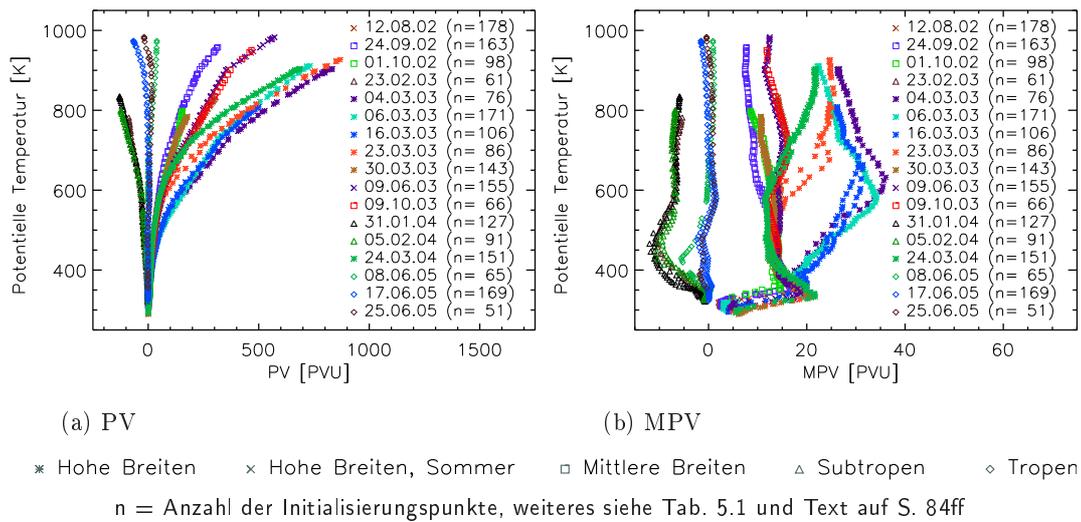


Abb. 5.12.: PV (links) und MPV (rechts) zum Zeitpunkt der Initialisierung der Trajektorien ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25) dargestellt über die potentielle Temperatur

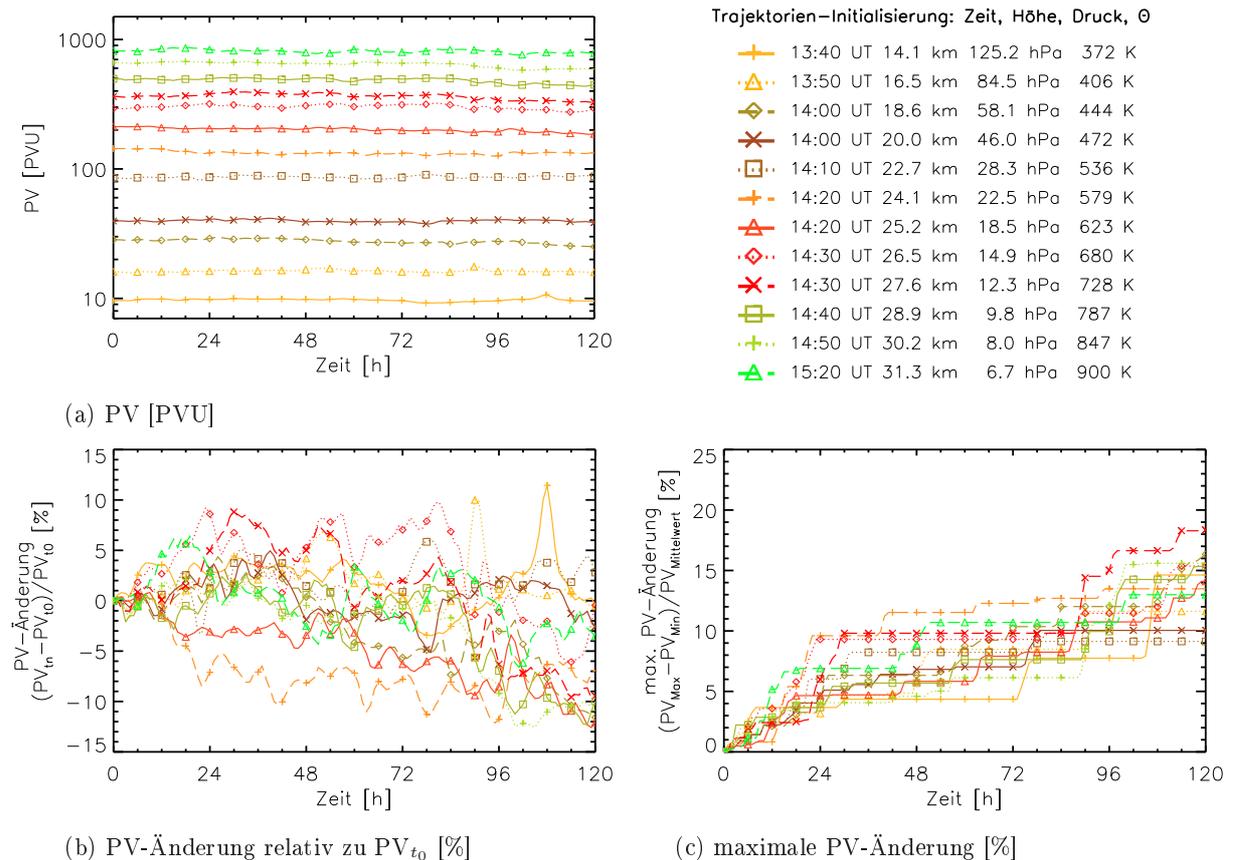
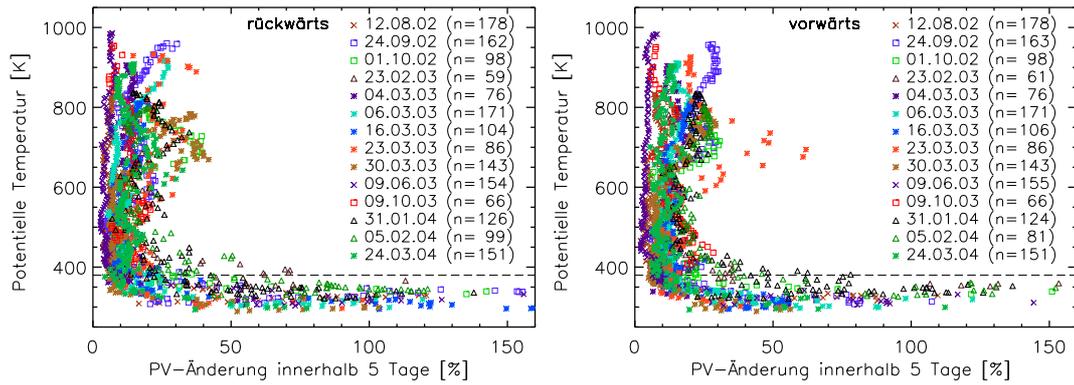


Abb. 5.13.: Zeitlicher Verlauf (a) der PV, (b) der PV-Änderung  $\Delta PV_0$  relativ zum PV-Wert zum Initialisierungszeitpunkt und (c) der maximalen PV-Änderung  $\Delta PV$  relativ zum PV-Mittelwert für am 04.03.2003 um Kiruna ( $\sim 68^\circ N$ ,  $21^\circ E$ ) initialisierte 5-Tages-Vorwärtstrajektorien ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25, isentrop)

in der Troposphäre größere relative Änderungen als in der Stratosphäre – die absoluten PV-Änderungen sind in der Troposphäre kleiner als in der Stratosphäre. Oberhalb von 380 K treten innerhalb der betrachteten 5 Tage nur in wenigen Fällen PV-Änderungen von mehr als 40 % auf. Die relativ großen PV-Änderungen für die subtropischen Fälle in Höhen bis zu ca. 420 K sind darauf zurückzuführen, dass die Trajektorien hier noch in der Troposphäre liegen. Außerdem lassen sich entlang der Vorwärtstrajektorien für den 23.03.2003 um ca. 700 K PV-Änderungen von bis zu fast 70 % feststellen, die auf das Brechen einer planetaren Welle zurückzuführen sind. Die kleinsten PV-Änderungen treten in hohen Breiten im Sommer bei vorherrschenden Ostwinden auf. Im Mittel betragen die PV-Änderungen oberhalb von 380 K hier 5–6 %. Für alle anderen untersuchten Situationen liegen die mittleren PV-Änderungen oberhalb von 380 K zwischen 12 und 22 %. Diese PV-Änderungen sind wahrscheinlich teilweise durch Inkonsistenzen in den zugrundeliegenden meteorologischen Feldern begründet. So zeigen Stohl et al. [2004] für die obere Troposphäre (150 hPa), dass die PV-Erhaltung entlang von Trajektorien, die basierend auf Analysedaten berechnet wurden, schlechter ist als bei der Verwendung von – dynamisch konsistenten – Vorhersagedaten als Basis für die Trajektorienrechnung. Da auch in der Stratosphäre die Bedingungen zur PV-Erhaltung nur näherungsweise erfüllt sind (siehe Abschnitt 4.1.3), sind die ermittelten PV-Änderungen zum Teil aber auch reale Änderungen.

Für die anhand anderer räumlicher Auflösungen berechnete PV bzw. MPV zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien ergeben sich z.T. etwas andere Werte als in Abbildung 5.12. Die MPV-Differenzen zwischen den beiden horizontalen Auflösungen ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ ) betragen oberhalb von 380 K i. Allg.  $\pm 1$  PVU. Lediglich für die in hohen Breiten im Winter/Frühjahr berechneten Trajektorien treten MPV-Unterschiede von bis zu  $\pm 2$  PVU auf. Ein Vergleich zwischen den vertikalen Auflösungen (L59 vs. L25) zeigt für den Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien stark höhenabhängige Differenzen mit oszillierenden Strukturen, die für die MPV oberhalb von 380 K bis zu  $\pm 5$  PVU betragen. Diese oszillierenden Strukturen sind durch die jeweils im Trajektorienprogramm festgelegten  $\Theta$ -Flächen bedingt und zeigen die starke Abhängigkeit der berechneten PV von der vertikalen Auflösung [vgl. auch Ziv und Alpert, 1994]. Die PV-Änderung entlang der Trajektorien innerhalb von 5 Tagen stimmt für alle räumlichen Auflösungen qualitativ mit den in Abbildung 5.14 gezeigten Änderungen überein. In Einzelfällen differieren die anhand der unterschiedlichen räumlichen Auflösungen berechneten PV-Änderungen um bis zu ca.  $\pm 10$  %, was vor allem auf Unterschiede im Trajektorienverlauf zurückzuführen ist. Beim Vergleich zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen wird im Folgenden die PV-Änderung jeweils anhand der höher aufgelösten Modellversion bestimmt. Auch unterschiedliche Annahmen zum Vertikaltransport führen zu Ergebnissen, die qualitativ mit den in Abbildung 5.14 für isentrope Trajektorien dargestellten PV-Änderungen übereinstimmen. Entlang der anhand aktueller Erwärmungsraten bestimmten Trajektorien ist die mittlere PV-Änderung oberhalb von 380 K um 1-3 % größer als entlang der entsprechenden isentropen Trajektorien.

Abbildung 5.15 zeigt beispielhaft den nach der PV-Änderung innerhalb von 5 Tagen klassifizierten horizontalen Abstand zwischen Trajektorien, die mit einer unterschiedlichen horizontalen Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, isentrop) berechnet wurden. Die Klassen für die PV-Änderung wurden entsprechend der in Abbildung 5.14 gezeigten Ergebnisse getrennt

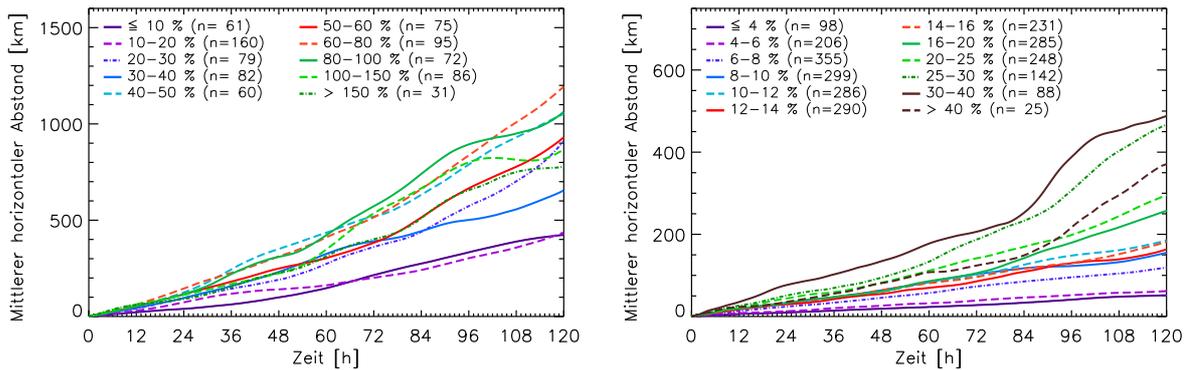


(a) Rückwärtstrajektorien

(b) Vorwärtstrajektorien

\* Hohe Breiten    × Hohe Breiten, Sommer    □ Mittlere Breiten    △ Subtropen  
 n = Anzahl der Initialisierungspunkte, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84ff  
 Einige in der Troposphäre berechnete Trajektorien weisen PV-Änderungen von bis zu 350 % auf. Sie werden hier nicht dargestellt.  
 - - -  $\Theta = 380 \text{ K}$

Abb. 5.14.: PV-Änderung [%] entlang der Trajektorien ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25, isentrop) innerhalb eines Zeitraumes von 5 Tagen



(a)  $\Theta_{t=0} \leq 380 \text{ K}$

(b)  $\Theta_{t=0} > 380 \text{ K}$

n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1 und Text auf S. 84f

Abb. 5.15.: Mittlerer horizontaler Abstand für Trajektorienrechnungen mit verschiedener horizontaler Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, isentrop) klassifiziert nach der PV-Änderung innerhalb von 5 Tagen (ohne tropische Fälle) (a) für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} \leq 380 \text{ K}$ , (b) für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380 \text{ K}$  [unterschiedliche y-Skalen!]

für die unterhalb (Abb. 5.15a) bzw. oberhalb von 380 K (Abb. 5.15b) initialisierten Trajektorien festgelegt. In beiden Höhenbereichen ist der mittlere horizontale Abstand zwischen den mit einer unterschiedlichen horizontalen Auflösung berechneten Trajektorien für die Klassen mit der geringsten PV-Änderung entlang der Trajektorien am kleinsten. Oberhalb von 380 K steigt der mittlere horizontale Abstand nach 5 Tagen von ca. 50 km für Trajektorien mit einer PV-Änderung von bis zu 6 % annähernd kontinuierlich auf Werte größer als 350 km für Trajektorien mit einer PV-Änderung von mehr als 25 %. Für die weiteren Trajektorienvergleiche bzw. den Vorwärts-/Rückwärtstest ergibt sich – wie in Abbildung B.8 im Anhang gezeigt – eine ähnliche Abhängigkeit des horizontalen Abstandes von der PV-Änderung.

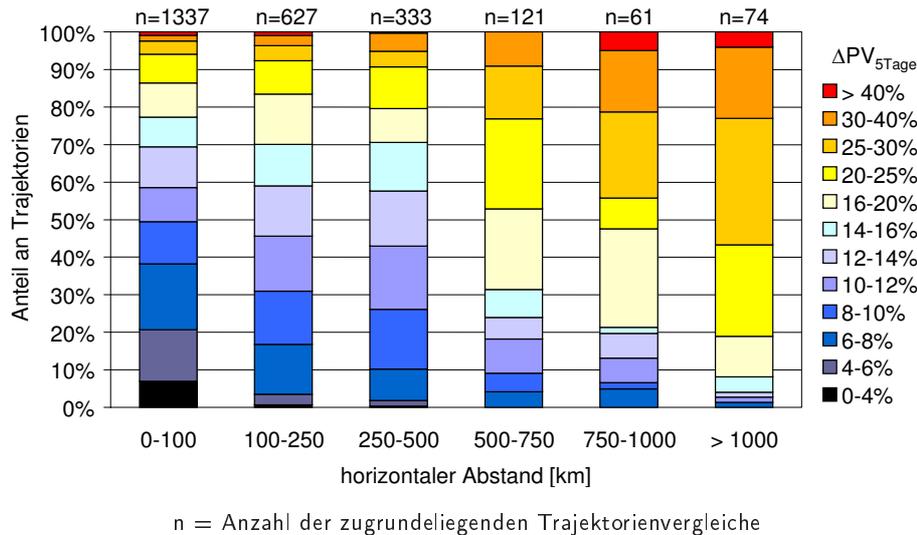


Abb. 5.16.: Verteilung der PV-Änderung innerhalb verschiedener Klassen des horizontalen Abstandes zwischen Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K, die mit verschiedener horizontaler Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, isentrop) berechnet wurden (ohne tropische Fälle)

Obwohl im Mittel der horizontale Abstand zwischen den basierend auf unterschiedlichen Modellversionen berechneten Trajektorien mit zunehmender PV-Änderung ansteigt, führen große PV-Änderungen nicht immer zu einem großen horizontalen Abstand. Dies wird in Abbildung 5.16 deutlich. Horizontale Abstände zwischen den anhand verschiedener horizontaler Auflösungen berechneten Trajektorien von weniger als 100 km treten auch bei einer PV-Änderung von über 40 % auf. Ab einer PV-Änderung von 10 % lassen sich horizontale Abstände von mehr als 1000 km feststellen. Bei PV-Änderungen von bis zu 6 % beträgt der horizontale Abstand maximal 500 km.

Die Festlegung eines konkreten Grenzwertes für die PV-Änderung, ab dem Trajektorien von weiteren Untersuchungen ausgeschlossen werden sollten, ist anhand der hier gefundenen Ergebnisse relativ schwierig. Sie hängt von der untersuchten Fragestellung und der Anzahl der zur Verfügung stehenden Trajektorien ab. Beim Ozonsondenmatch wird der Grenzwert für die PV-Änderung anhand der Streuung des berechneten Ozonabbaus bestimmt. Für die mit Hilfe des hier verwendeten Trajektorienprogrammes koordinierten arktischen Ozonsondenkampagnen wurde dieser Grenzwert auf 25 % festgelegt [z.B. Rex, 1997]. Die Anwendung dieses Grenzwertes auf den Vergleich zwischen den Trajektorienrechnungen mit verschiedener Auflösung reduziert die Anzahl der Fälle mit einem horizontalen Abstand von mehr als 1000 km um über 50 % (Abb. 5.16). Dabei werden nur relativ wenig Fälle (<10 %) ausgeschlossen, die einen horizontalen Abstand von weniger als 500 km aufweisen. Mit dem von Morris et al. [2005] für den Ozonsondenmatch ermittelten Grenzwert von 40 % werden bei dem gezeigten Trajektorienvergleich nur sehr wenige Trajektorien ausgeschlossen (< 0,1 % der Gesamtzahl). Ein Grenzwert für die PV-Änderung von 25 % für Trajektorienrechnungen über 5 Tage scheint daher realistisch.

## 5.4. Vergleich mit anderen Trajektorienmodellen

Die Ergebnisse der Trajektorienrechnungen mit dem Modell der FU Berlin wurden, wie in Kapitel 5.1 (siehe S. 89ff) erläutert, mit den Ergebnissen zweier anderer Modelle verglichen. Beide Modelle – AWI ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ ) und CLaMS ( $1,125^\circ \times 1,125^\circ$ ) – wurden für die hier durchgeführten Vergleiche wie das FUB-Modell mit den operationellen ECMWF-Daten als Eingangsdaten betrieben (siehe auch Tab. 5.2). Für die Vergleiche wurden die FUB-Trajektorien mit verschiedenen horizontalen bzw. vertikalen Auflösungen ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ,  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, L59) berechnet. Alle Berechnungen mit dem FUB-Modell erfolgten auf der Basis aktueller Erwärmungsraten. Die Initialisierungspunkte der Trajektorien sind in Kapitel 5.1 (siehe Tab. 5.1 und Tab. 5.3) beschrieben. Im Folgenden werden die Vergleiche anhand der FUB-Ergebnisse mit der höchsten Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59) diskutiert. In Anhang B.2 sind die Ergebnisse der Vergleiche für die niedrigste Auflösung des FUB-Modelles ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25) dargestellt.

Abbildung 5.17 zeigt die mittleren horizontalen Abstände zwischen den FUB-Trajektorien und den mit dem AWI-Modell bzw. mit CLaMS berechneten Trajektorien im zeitlichen Verlauf. Die mittleren horizontalen Abstände sind dabei nach der potentiellen Temperatur zum Initialisierungszeitpunkt  $\Theta_{t=0}$  klassifiziert (links) bzw. für Trajektorien gezeigt, die oberhalb von 380 K gestartet wurden (rechts). In Tabelle 5.7 sind statistische Größen nach einer Transportzeit von 2 bzw. 4 Tagen aufgeführt.

Der Vergleich zwischen den FUB- und den AWI-Trajektorien weist – wie schon die Sensitivitätsstudien zur horizontalen und vertikalen Auflösung (vgl. auch Abb. B.5) – die größten mittleren Abstände unterhalb von 340 K im Bereich der durch kleinskalige Prozesse gekennzeichneten Troposphäre auf. Nach 5 Tagen beträgt der mittlere horizontale Abstand zwischen den mit den beiden Modellen berechneten Trajektorien in dieser Region ca. 1000 bzw. 1300 Kilometer. Für die FUB-Trajektorien, die mit den geringer aufgelösten Modellversionen unterhalb von 320 K berechnet wurden, sind die mittleren Abweichungen zu den AWI-Trajektorien sehr viel größer als die hier gezeigten Abstände für die am höchsten aufgelöste FUB-Modellversion (für FUB  $2,5^\circ/L25$  vs. AWI vgl. auch Abb. B.5g). Sie betragen nach 5 Tagen ca. 2000 Kilometer. Offensichtlich wirkt sich hier sowohl die andere Beschreibung des horizontalen Transportes (FUB: hybrid; AWI: kinematisch) als auch die unterschiedliche Vertikalkoordinate (FUB: explizite  $\Theta$ -Flächen; AWI: direkte Interpolation zur aktuellen Trajektorienposition aus den Druckflächen) aus. Auch in anderen Höhenbereichen (320-380 K sowie  $> 920$  K) zeigen die auf den geringer aufgelösten FUB-Modellen basierenden Trajektorien z.T. größere Abstände zu den AWI-Trajektorien als die mit dem am höchsten aufgelösten FUB-Modell berechneten Trajektorien. Zwischen 380 und 920 K betragen die mittleren horizontalen Abstände zu den AWI-Trajektorien für alle FUB-Versionen weniger als 500 Kilometer. Für die nach den Starttagen zusammengefassten Trajektorien mit einer Initialisierung oberhalb von 380 K beträgt der mittlere horizontale Abstand zwischen der am höchsten aufgelösten FUB-Modellversion und dem AWI-Modell nach 5 Tagen weniger als 400 Kilometer (siehe Abb. 5.17b). Für Trajektorien, die mit den geringer aufgelösten FUB-Modellversionen berechnet wurden, ist die mittlere horizontale Abweichung um bis zu 150 Kilometer größer (siehe Abb. B.7g).

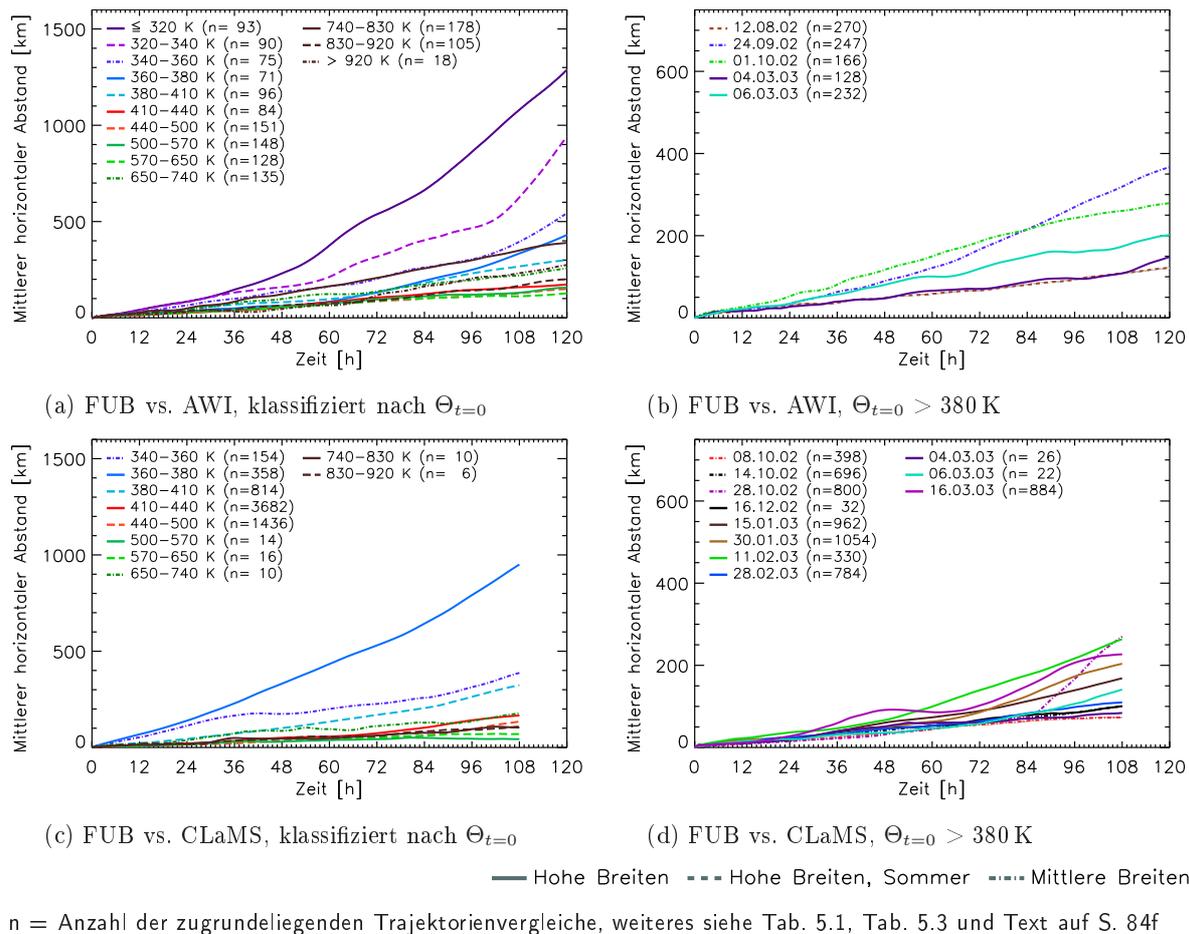


Abb. 5.17.: Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienmodellen oben: FUB (L59,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ) vs. AWI, unten: FUB (L59,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ) vs. CLaMS, links: klassifiziert nach  $\Theta_{t=0}$ , rechts: für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K **[unterschiedliche y-Skalen!]**

Beim Vergleich zwischen den FUB- und den CLaMS-Trajektorien (siehe Abb. 5.17 unten) ist der mittlere Abstand im Bereich zwischen 360 und 380 K am größten. Er beträgt für die verschiedenen Auflösungen des FUB-Modelles nach 4,5 Tagen zwischen ca. 800 und 1100 Kilometern. In der darunterliegenden Region zwischen  $350^9$  und 360 K ist die mittlere horizontale Abweichung zwischen den FUB- und den CLaMS-Trajektorien für alle Versionen des FUB-Modelles nur ca. halb so groß wie im Bereich zwischen 360 und 380 K. Hauptsächlich Ursache dafür ist die geringe vertikale Auflösung des CLaMS-Modelles in der oberen Troposphäre bzw. unteren Stratosphäre. In diesem Bereich werden im CLaMS-Modell nur die isentropen Flächen mit 300 K, 350 K und 400 K verwendet (im FUB-Modell, L25  $\Delta\Theta$  in diesem Bereich 10 bzw. 30 K; weitere Flächen bei CLaMS: 400–600 K:  $\Delta\Theta=25$  K; 600–800 K:  $\Delta\Theta=100$  K; 800–2000 K:  $\Delta\Theta=1000$  K). Für die zwischen 360 und 380 K berechneten Trajektorien muss im CLaMS-Modell über einen Höhenbereich interpoliert werden, in dem relativ große vertikale Gradienten auftreten. In der Region zwischen 350 und 360 K sind die horizontalen Abstände zu den FUB-Trajektorien kleiner als

<sup>9</sup> Es wurden keine CLaMS-Trajektorien unterhalb von 350 K berechnet (siehe Tab. 5.3).

Tab. 5.7.: Horizontaler Abstand [km] zwischen Trajektorienrechnungen verschiedener Modelle: FUB (1,25°x1,25°, L59, aktuell) vs. AWI und vs. CLaMS

Transportzeit (Tage)	Mittelwert <sup>1)</sup>	Minimum	25%-	50%-	75%-	90%-	95%-	99%-	Maximum
<i>FUB vs. AWI, <math>\Theta_{t=0} \leq 380\text{ K}</math>, <math>n^2=328</math></i>									
2	153 (4%)	4	48	93	187	322	420	1038	3009
4	494 (8%)	9	106	286	521	1166	1817	3646	5743
<i>FUB vs. AWI, <math>\Theta_{t=0} &gt; 380\text{ K}</math>, <math>n^2=1042</math></i>									
2	76 (7%)	1	30	53	93	152	219	442	502
4	173 (8%)	2	58	117	205	374	540	1007	1146
<i>FUB vs. CLaMS, <math>\Theta_{t=0} \leq 380\text{ K}</math>, <math>n^2=511</math></i>									
2	284 (6%)	9	81	143	251	780	1065	2027	2220
4	647 (9%)	10	124	253	626	1226	3659	5685	6305
<i>FUB vs. CLaMS, <math>\Theta_{t=0} &gt; 380\text{ K}</math>, <math>n^2=5987</math></i>									
2	53 (1%)	0	19	35	67	118	158	246	727
4	146 (3%)	0	41	75	159	293	564	1197	3710

<sup>1)</sup> In Klammern ist der relative mittlere Fehler entsprechend Gleichung 4.9 (S. 61) angegeben.

<sup>2)</sup> n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f.

im Bereich zwischen 360 und 380 K. Sie liegen in derselben Größenordnung wie beim Vergleich zwischen dem FUB- und dem AWI-Modell, da hier auf der Basis der meteorologischen Daten, die auf der 350 K-Fläche vorliegen, interpoliert werden kann. Oberhalb von 380 K beträgt der mittlere Abstand für die nach  $\Theta_{t=0}$  klassifizierten Trajektorien für alle räumlichen Auflösungen des FUB-Modelles im Vergleich zum CLaMS-Modell nach 4,5 Tagen maximal 500 Kilometer. Mit den horizontal geringer aufgelösten FUB-Modellversionen sind die horizontalen Abstände zu den CLaMS-Trajektorien um bis zu ca. 100 Kilometer größer als in Abbildung 5.17c. Bei den nach den Starttagen zusammengefassten Trajektorien mit einer Initialisierung oberhalb von 380 K lässt sich zwischen der am höchsten aufgelösten FUB-Modellversion und dem CLaMS-Modell nach 4,5 Tagen ein maximaler mittlerer Abstand von 300 Kilometern feststellen (siehe Abb. 5.17d). Die mit den horizontal geringer aufgelösten FUB-Modellversionen (2,5°x2,5°) berechneten Trajektorien zeigen insgesamt höhere mittlere Abstände zu den CLaMS-Trajektorien als die basierend auf einer horizontalen Auflösung von 1,25°x1,25° ermittelten FUB-Trajektorien, der maximale mittlere Abstand zu den CLaMS-Trajektorien beträgt nach 4,5 Tagen ca. 650 Kilometer (siehe Abb. B.7h). Die geringere horizontale Auflösung des FUB-Modelles führt also in einigen Fällen im Vergleich zu den horizontal höher aufgelösten FUB-Versionen zu einem im Mittel bis zu mehr als doppelt so großen Abstand zu den CLaMS-Trajektorien.

In Tabelle 5.7 ist zu erkennen, dass für die unterhalb von 380 K mit der am höchsten aufgelösten FUB-Version berechneten Trajektorien die horizontalen Abstände zu den AWI-Trajektorien kleiner sind als zu den CLaMS-Trajektorien. Dies ist – wie bereits erläutert – auf die geringere vertikale Auflösung des CLaMS-Modelles in diesem Bereich zurückzuführen. Oberhalb von 380 K

zeigt der Vergleich mit den CLaMS-Trajektorien im Mittel etwas geringere Abstände als der Vergleich mit den AWI-Trajektorien. Eine Ursache dafür ist die annähernd gleiche horizontale Auflösung des FUB- und des CLaMS-Modelles ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  bzw.  $1,125^\circ \times 1,125^\circ$ ) im Verhältnis zum geringer aufgelösten AWI-Modell ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , siehe Tab. 5.2). Die Unterschiede sind aber möglicherweise auch darauf zurückzuführen, dass den Vergleichen unterschiedliche Startorte und -termine mit entsprechend anderen meteorologischen Bedingungen zugrundeliegen (vgl. Tab. 5.1 und Tab. 5.3). Darüberhinaus wurden die Trajektorien für den Vergleich mit CLaMS überwiegend unterhalb von ca. 500 K (ca. 20 km) initialisiert. Im darüberliegenden Bereich standen nur sehr wenige CLaMS-Trajektorien für die Vergleiche zur Verfügung. Im Gegensatz dazu decken die für den Vergleich mit dem AWI-Modell verwendeten Trajektorien den Höhenbereich zwischen ca. 300 und 900 K (ca. 5 bis 32 km) annähernd gleichmäßig ab.

Die etwas größeren horizontalen Abweichungen zwischen den FUB- und den AWI-Trajektorien können z.T. auch in den unterschiedlichen Erwärmungsraten begründet sein, die auf verschiedenen Strahlungstransport-Modellen (siehe Tab. 5.2) beruhen. Bei einem Vergleich zwischen den FUB-Trajektorien und den CLaMS-Trajektorien lassen sich keine systematischen Unterschiede in der Vertikalbewegung feststellen. Die Unterschiede in der potentiellen Temperatur betragen hier nach 4,5 Tagen im Mittel ca.  $\pm 2$  K (siehe Abb. B.9 und Abb. B.10). Im Gegensatz dazu zeigen die AWI-Trajektorien im Vergleich zu den FUB-Trajektorien in fast allen Höhenbereichen ein stärkeres Absinken, das im Mittel nach 5 Tagen 2 K bis 5 K beträgt<sup>10</sup>. Tegtmeier [2006] verglich das mit dem AWI-Modell berechnete Absinken im arktischen Winter mit den aus Spurengasmessungen gewonnen Absinkraten [Greenblatt et al., 2002]. Auch sie stellte dabei im Vergleich zu den von Greenblatt et al. [2002] ermittelten Daten ein größeres diabatisches Absinken für die mit dem AWI-Modell berechneten Trajektorien fest.

Wie in Kapitel 5.2.3 gezeigt wurde, sind die aus solchen Unterschieden im Vertikaltransport resultierenden horizontalen Abweichungen relativ klein. Sie betragen im Mittel nach 5 Tagen für die nicht-tropischen Fälle bei mittleren Differenzen in der potentiellen Temperatur von 2 K bis 10 K ca. 25 bis 120 Kilometer (für den Vergleich aktuell vs. isentrop). Ein Teil der horizontalen Abstände zwischen den FUB-Trajektorien und den mit den anderen beiden Modellen berechneten Trajektorien lässt sich also durch den unterschiedlich starken Vertikaltransport erklären. Für die Anwendung der Trajektorienmodelle sind die aus den verschiedenen Erwärmungsraten resultierenden Unterschiede in der horizontalen Position vernachlässigbar. Die sich daraus ergebenden Differenzen bei der Bestimmung der vertikalen Position können – wie schon in Kapitel 5.2.2 und 5.2.3 diskutiert – aber die Ergebnisse z.B. bei der Validierung von Satellitendaten beeinflussen. Die weiteren Unterschiede zwischen den drei Modellen beispielsweise bei der Integrationsmethode und dem Zeitschritt (siehe Tab. 5.2) scheinen in Anbetracht der – zumindest für die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien – insgesamt relativ geringen horizontalen Abstände nur eine untergeordnete Rolle zu spielen.

---

<sup>10</sup> Die für den Vergleich mit den AWI-Trajektorien untersuchten Fälle liegen alle in hohen und mittleren Breiten. Die Vorwärtstrajektorien zeigen dementsprechend im Verlauf der 5 Tage eine annähernd gleichbleibende bzw. abnehmende potentielle Temperatur. Die Differenzen der potentiellen Temperatur zwischen den FUB-Trajektorien und den AWI-Trajektorien sind im Mittel positiv (siehe Abb. B.9g und Abb. B.10g). D.h. die mit dem AWI-Modell berechneten Vorwärtstrajektorien erreichen im Verlauf der 5 Tage eine kleinere potentielle Temperatur als die FUB-Trajektorien, sie sinken also schneller ab.

Die hier gefundenen Unterschiede zwischen den drei Modellen liegen in einem ähnlichen Bereich wie die von Stohl et al. [2001] bei einem Modellvergleich ermittelten horizontalen Abstände. Stohl et al. [2001] verglichen u.a. Trajektorien, die in der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre entlang des Flugpfades kommerzieller Flugzeuge gestartet wurden. Nach 2 Tagen betragen die mittleren horizontalen Abstände zwischen den mit verschiedenen Modellen berechneten Trajektorien zwischen ca. 80 und 140 Kilometern (relativer Fehler: 3-4%). In einigen wenigen Fällen betrug der Abstand nach 2 Tagen fast 10 000 Kilometer. Im von Stohl et al. [2001] untersuchten Höhenbereich unterhalb von 380 K ist der mittlere horizontale Abstand zwischen dem FUB- und dem AWI-Modell mit ca. 150 Kilometer (4%) nur wenig größer als die von Stohl et al. [2001] ermittelten Unterschiede. Die im Vergleich zum CLaMS-Modell gefundenen Differenzen sind, wie bereits erläutert, aufgrund der geringeren vertikalen Auflösung des CLaMS-Modelles mit im Mittel ca. 300 Kilometer (6%) ca. doppelt so groß. Eine weitere Ursache für die hier gefundenen insgesamt etwas höheren horizontalen Abstände ist die bessere horizontale Auflösung ( $1^\circ \times 1^\circ$ ) bei den von Stohl et al. [2001] untersuchten Trajektorienmodellen.

## 5.5. Diskussion und Zusammenfassung

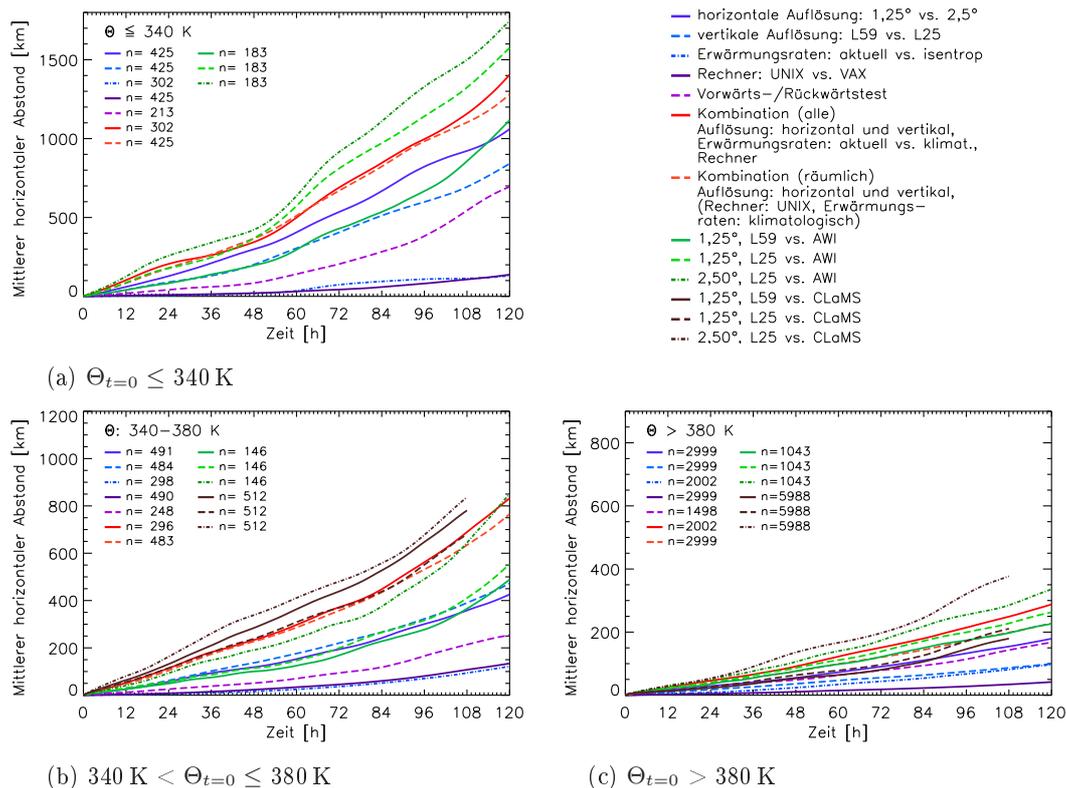
Die Ergebnisse der einzelnen Vergleichsstudien werden im Folgenden zusammenfassend dargestellt und diskutiert. In Ergänzung zu den in den vorangegangenen Abschnitten bereits im Detail erläuterten Vergleichen, werden hier auch die Ergebnisse der Vergleiche

- einer Kombination aller für das FUB-Modell untersuchten Parameter ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59, aktuelle Erwärmungsraten, UNIX vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, klimatologische Erwärmungsraten, VAX),
- einer Kombination der räumlichen Auflösung des FUB-Modelles ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59 vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25; klimatologische Erwärmungsraten, Rechner: UNIX) und
- der beiden Rechnersysteme (UNIX vs. VAX für  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, klimatologische Erwärmungsraten)

vorgestellt. In den meisten bisher diskutierten Untersuchungen wurden extreme Unterschiede zwischen den unterhalb von 340 K und den in größeren Höhen initialisierten Trajektorien ermittelt (siehe auch Abb. B.5). Daher werden die Ergebnisse hier auch separat für die unterhalb von 340 K gestarteten Trajektorien dargestellt.

### 5.5.1. Horizontaler Abstand

Abbildung 5.18 zeigt die mittleren horizontalen Abweichungen zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen im zeitlichen Verlauf für unterschiedliche Höhenbereiche. In Abbildung 5.19 ist die Fehlerwahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen dargestellt. Wie bei Kahl und Samson [1986] wurde diese aus der kumulierten Häufigkeitsverteilung, also aus den berechneten Perzentilwerten (siehe S. 90), abgeleitet. So entspricht z.B. der 90%-Perzentilwert dem Fehler, der mit einer Wahrscheinlichkeit von 10% eintritt. Aus Abbildung

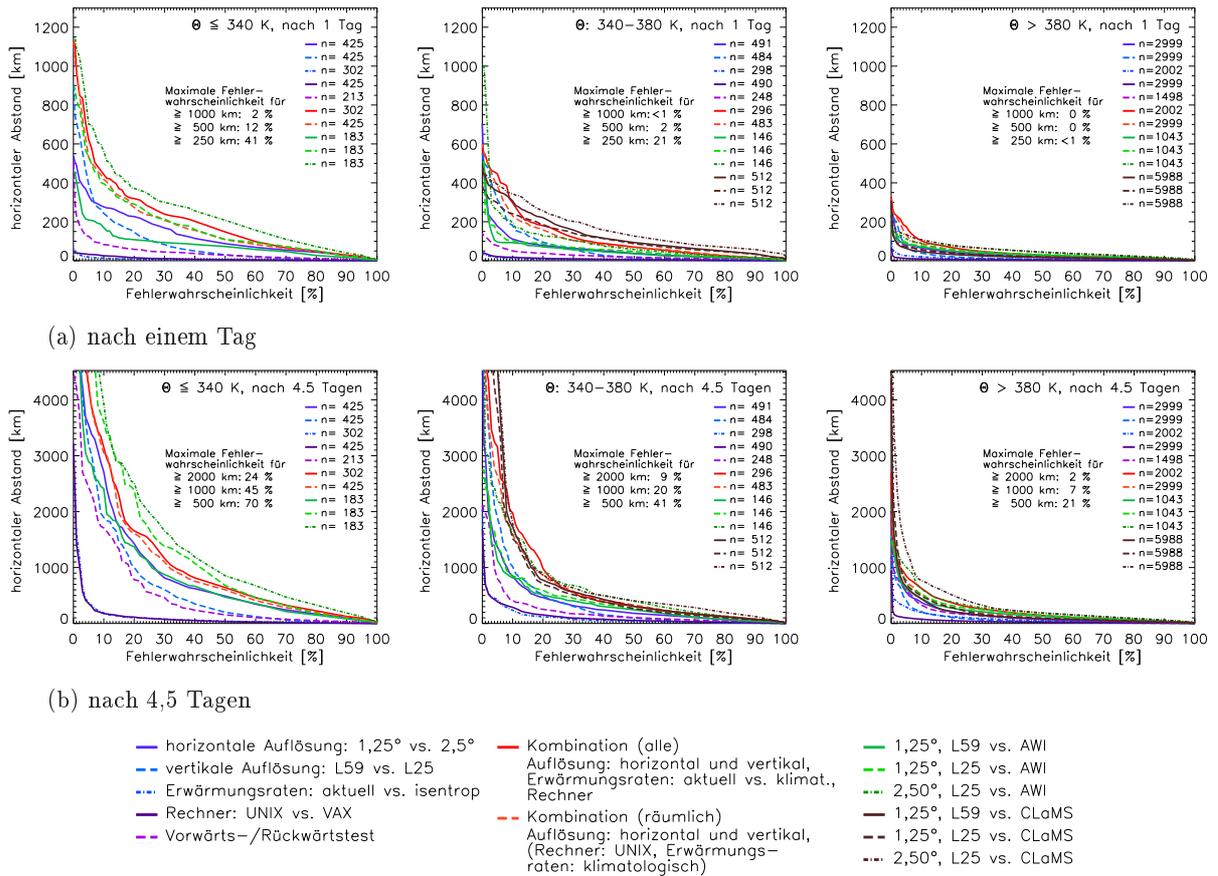


$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. 5.18.: Mittlerer horizontaler Abstand [km] zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen in unterschiedlichen Höhenbereichen [unterschiedliche y-Skalen!]

5.19c lässt sich dementsprechend ablesen, dass für die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen die Eintrittswahrscheinlichkeit für einen Fehler von 800 Kilometern bei maximal 10 Prozent (für den Vergleich FUB, 2,5°x2,5°, L25 vs. CLaMS) liegt.

In beiden Abbildungen werden große Unterschiede für die verschiedenen Höhenbereiche deutlich. Während der mittlere horizontale Abstand für die unterhalb von 340 K initialisierten Trajektorien nach 5 Tagen bis zu 1700 Kilometer beträgt (Abb. 5.18a), liegt er für die oberhalb von 380 K berechneten Trajektorien bei maximal ca. 400 Kilometern (Abb. 5.18c). Ein horizontaler Abstand von 1000 Kilometern oder mehr tritt für die unterhalb von 340 K initialisierten Trajektorien nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen mit einer Wahrscheinlichkeit von bis zu 45% auf (Abb. 5.19b). Mit einer Wahrscheinlichkeit von 10% beträgt der horizontale Abstand bis zu 4500 Kilometer. Oberhalb von 380 K treten nur in Einzelfällen beim Vergleich der geringaufgelösten FUB-Version mit dem CLaMS-Modell horizontale Unterschiede in dieser Größenordnung auf (siehe auch Fehlerwahrscheinlichkeit nach 2 bzw. 4,5 Tagen in Abb. B.11 und Abb. B.12 für unterschiedliche geografische Breiten). Wie bereits mehrfach erläutert, sind die großen Unterschiede im Bereich unterhalb von 340 K auf die kleinskaligen Prozesse in der Troposphäre zurückzuführen. Nach einem Tag ist die Fehlerwahrscheinlichkeit für horizontale Abstände von 1000 Kilometern oder mehr mit 2% noch relativ gering (Abb. 5.19a), so dass Berechnungen un-



$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

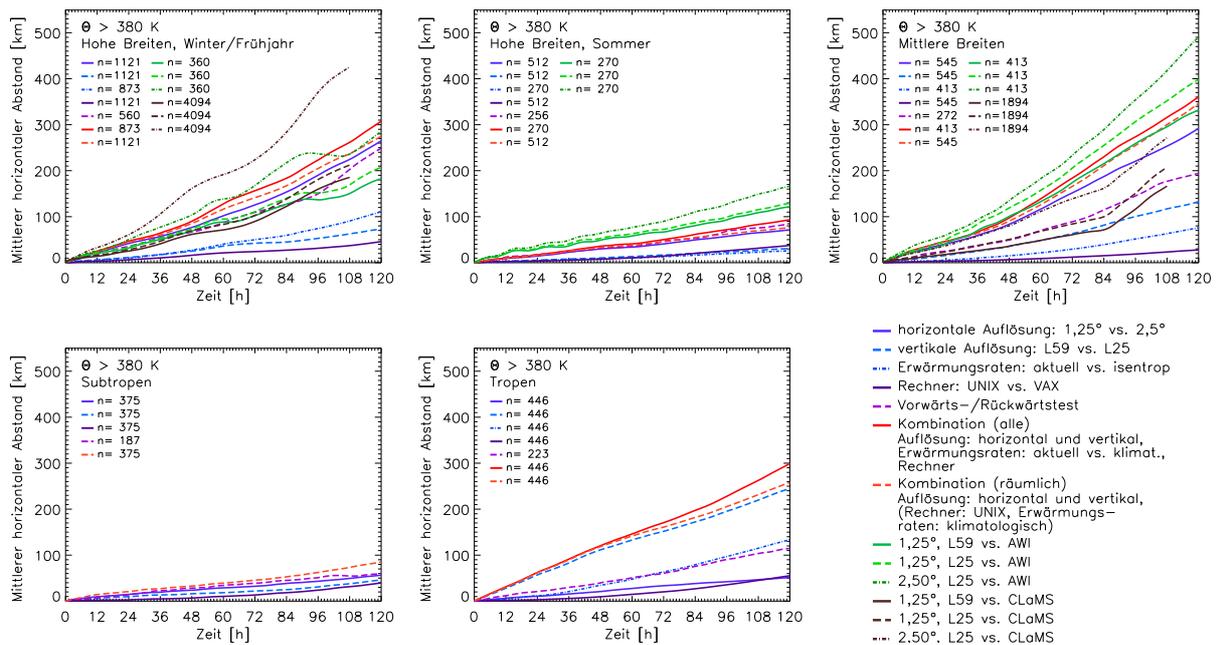
Abb. 5.19.: Fehlerwahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand nach einer Transportzeit von (a) einem Tag und (b) 4,5 Tagen für

links:  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K, Mitte:  $340$  K  $< \Theta_{t=0} \leq 380$  K, rechts:  $\Theta_{t=0} > 380$  K

terhalb von 340 K für bis zu ein bis zwei Tage eine annähernd realistische Beschreibung des realen Luftmassenweges liefern können.

Abbildung 5.18 zeigt, dass eine Änderung der horizontalen Auflösung (1,25°x1,25° vs. 2,5°x2,5°, blaue Linie) im Mittel zu etwas größeren (für  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K und  $\Theta_{t=0} > 380$  K) bzw. annähernd gleichgroßen ( $340$  K  $< \Theta_{t=0} \leq 380$  K) horizontalen Differenzen führt, wie eine Änderung der vertikalen Auflösung des FUB-Modelles (L59 vs. L25, blau gestrichelte Linie). Unterschiedliche Annahmen zum Vertikaltransport (Erwärmungsraten, blaue Strich-Punkt-Linie) beeinflussen die berechneten horizontalen Trajektorienpositionen sehr wenig, so dass sich hier nur geringe horizontale Abstände ergeben. Sie sind nach 5 Tagen im Mittel kleiner als ca. 150 Kilometer. Dementsprechend ist auch der Unterschied zwischen einer Änderung aller Parameter des FUB-Modelles (Kombination alle, rote Linie) und der Änderung der räumlichen Auflösung bei Beibehaltung der Annahme zum Vertikaltransport (Kombination räumlich, rot gestrichelte Linie) sehr gering.

Die Unterschiede zwischen dem FUB-Modell und den anderen beiden Trajektorienmodellen sind vergleichbar mit den mittleren horizontalen Abweichungen, die sich aus der Variation aller



n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. 5.20.: Mittlerer horizontaler Abstand [km] zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K für unterschiedliche geografische Breiten

Parameter des FUB-Modelles ergeben. Beim Vergleich zwischen den verschiedenen Trajektorienmodellen sind die horizontalen Unterschiede i. Allg. für die räumlich am besten aufgelöste FUB-Version (1,25°x1,25°, L59) am kleinsten. Eine Ausnahme stellt der Vergleich zum CLaMS-Modell im Bereich zwischen 340 und 380 K dar. Hier zeigt das FUB-Modell mit der geringeren vertikalen Auflösung (L25, 1,25°x1,25°) die geringsten horizontalen Abstände zum CLaMS-Modell. Ursache dafür ist die geringe vertikale Auflösung des CLaMS-Modelles in diesem Höhenbereich. Für die oberhalb von 380 K initialisierten Trajektorien und den Vergleich mit dem AWI-Modell im Bereich zwischen 340 und 380 K zeigen die FUB-Versionen mit einer horizontalen Auflösung von 1,25°x1,25° und unterschiedlichen vertikalen Auflösungen (L59 bzw. L25) annähernd gleiche horizontale Abstände zu den anderen beiden Modellen. Für die horizontal geringer aufgelöste FUB-Version ergeben sich z.T. erheblich größere mittlere Abweichungen zum CLaMS- bzw. AWI-Modell. Beim Vergleich zwischen den verschiedenen Trajektorienmodellen ist der Einfluss der horizontalen Auflösung für die hier untersuchten Fälle offensichtlich größer als der Einfluss der vertikalen Auflösung.

In Abbildung 5.20 ist der zeitliche Verlauf der mittleren horizontalen Abstände zwischen den verschiedenen Trajektorienrechnungen oberhalb von 380 K getrennt für die verschiedenen geografischen Breiten dargestellt. Hier wird deutlich, dass die meteorologische Situation bzw. die Art der untersuchten Fälle die Ergebnisse der Vergleichsstudien wesentlich mitbestimmt (vgl. auch Abb. 5.1 und Abb. B.2). Während in den Subtropen (Bauru, 22°S) und in hohen Breiten (Kiruna, 68°N) im Sommer der mittlere horizontale Abstand für die Sensitivitätsstudien zum FUB-Modell oberhalb von 380 K nach 5 Tagen maximal ca. 100 Kilometer beträgt, sind für die Untersuchungen in hohen Breiten im Winter/Frühjahr und in mittleren Breiten (Aire sur

l'Adour, 48°N) im Mittel etwa dreimal so große horizontale Abweichungen feststellbar. In hohen und mittleren Breiten dominiert für die hier untersuchten Fälle der Einfluss der horizontalen Auflösung die für eine Kombination der verschiedenen Parameter des FUB-Modelles ermittelten Unterschiede in der horizontalen Position der Trajektorien. Demgegenüber ist die vertikale Auflösung in den Tropen (Teresina, 5°S) die dominierende Komponente für die berechneten horizontalen Abweichungen. Das Windregime in der tropischen Stratosphäre wird von der QBO bestimmt, die zu einem horizontal gleichmäßigem, sich zeitlich nur wenig änderndem Windfeld führt. Daher hat die horizontale Auflösung des verwendeten Trajektorienmodelles kaum einen Einfluss auf die Güte der berechneten Trajektorien. Vertikal treten aufgrund der QBO starke, sich ändernde Windgradienten auf, so dass die vertikale Auflösung entscheidend für die richtige Wiedergabe des realen Luftmassenweges in der tropischen Stratosphäre ist. Ein Vergleich zwischen verschiedenen Trajektorienmodellen in dieser Region würde dementsprechend nur eine geringe Sensitivität bezüglich der horizontalen Auflösung und einen großen Einfluss der vertikalen Auflösung zeigen. In hohen und mittleren Breiten treten i. Allg. vertikal gleichmäßigere Windgradienten als in den Tropen auf (siehe auch Abb. 5.1). Die horizontalen Gradienten sind größer als in den Tropen und können sich – beispielsweise bei einer Verlagerung des Polarwirbel im arktischen Winter – innerhalb relativ kurzer Zeit ändern (siehe auch Abb. B.2). Damit spielt hier bei der Bestimmung der Trajektorienposition die horizontale Auflösung eine wichtigere Rolle als die vertikale Auflösung. In den anderen Höhenbereichen unterhalb von 380 K lassen sich qualitativ ähnliche Unterschiede zwischen den in verschiedenen Breiten berechneten Trajektorien feststellen (nicht gezeigt).

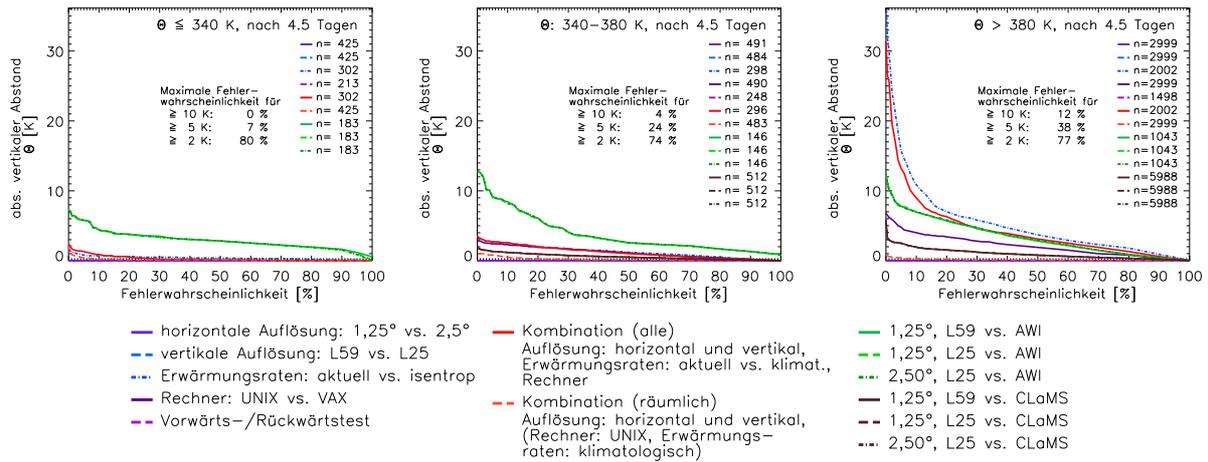
### 5.5.2. Vertikaler Abstand

Unterschiede bei der Bestimmung der vertikalen Position der Trajektorien können sich

1. aus unterschiedlichen Annahmen zum Vertikaltransport (→ Unterschiede in der potentiellen Temperatur, die zu Differenzen in Druck und Höhe führen),
2. aus einem geänderten Vertikaltransport aufgrund einer anderen horizontalen Position, (→ Unterschiede in der potentiellen Temperatur, die zu Differenzen in Druck und Höhe führen),
3. aus einer anderen Lage der isentropen Fläche aufgrund einer anderer horizontalen Position (→ Unterschiede in Druck und Höhe bei gleicher potentieller Temperatur, siehe Abschnitt 2.2.3) und
4. aufgrund einer anderen Zuordnung derselben potentiellen Temperatur zu Höhe/Druck (→ Unterschiede in Druck und Höhe bei gleicher potentieller Temperatur) ergeben.

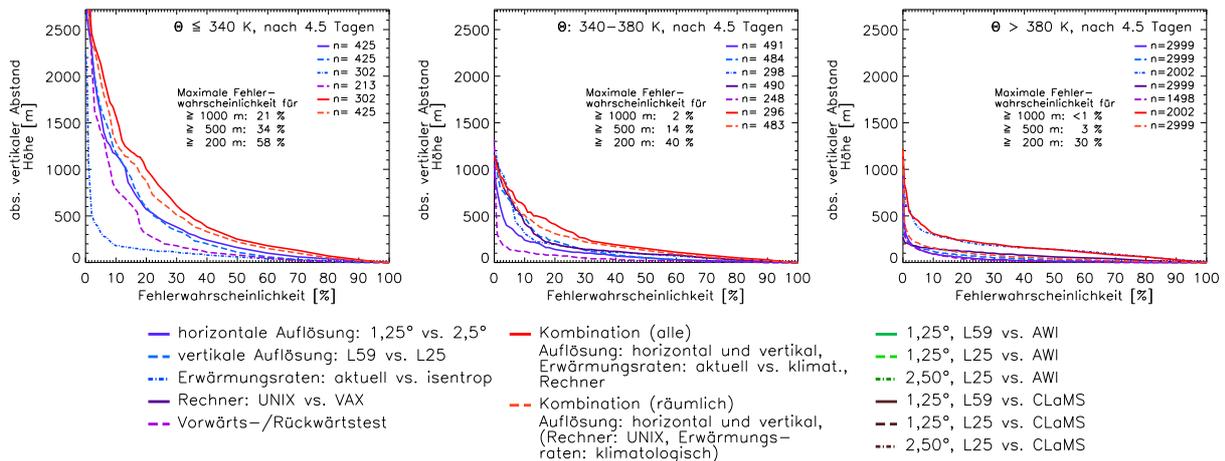
Die Differenzen in der potentiellen Temperatur zwischen den verschiedenen Trajektorienrechnungen werden durch die unterschiedlichen Annahmen zum Vertikaltransport dominiert (siehe Punkt 1. der Aufzählung und Abb. 5.21). Unterschiede in der horizontalen Position haben kaum einen Einfluss auf den ermittelten Vertikaltransport (siehe Punkt 2. und z.B. Abb. B.9a).

In den unteren Höhenbereichen ( $\Theta_{t=0} \leq 380$  K) liegen für das FUB-Modell keine aktuellen Erwärmungsraten vor. Mit dem FUB-Modell werden hier auf klimatologischen Erwärmungsraten



$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. 5.21.: Fehlerwahrscheinlichkeit für die potentielle Temperatur [K] nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen für links:  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K, Mitte:  $340 \text{ K} < \Theta_{t=0} \leq 380$  K, rechts:  $\Theta_{t=0} > 380$  K



$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. 5.22.: Fehlerwahrscheinlichkeit für die Höhe [m] nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen für links:  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K, Mitte:  $340 \text{ K} < \Theta_{t=0} \leq 380$  K, rechts:  $\Theta_{t=0} > 380$  K

basierende Trajektorien berechnet, die im Vergleich zu den isentropen Trajektorien nur geringe Unterschiede aufweisen. Nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen betragen die Unterschiede in der potentiellen Temperatur für die Sensitivitätsstudien zum FUB-Modell und für den Vergleich zwischen dem FUB- und dem CLaMS-Modell maximal 4K (siehe Abb. 5.21 links und Mitte). Lediglich im Vergleich zwischen dem FUB- und dem AWI-Modell können aufgrund der unterschiedlichen Erwärmungsraten Differenzen von bis zu ca. 13 K auftreten.

Im Bereich oberhalb von 380 K sind für die FUB-internen Vergleiche größere Unterschiede von in Einzelfällen bis zu ca. 35 K feststellbar (siehe Abb. 5.21 rechts). Mit den aktuellen, annähernd realistischen, Erwärmungsraten werden v.a. in den Tropen und während der Stratosphärenenerwärmung im März 2003 (siehe Abschnitt 5.2.3) sehr viel stärkere Vertikalbewegungen beschrieben als

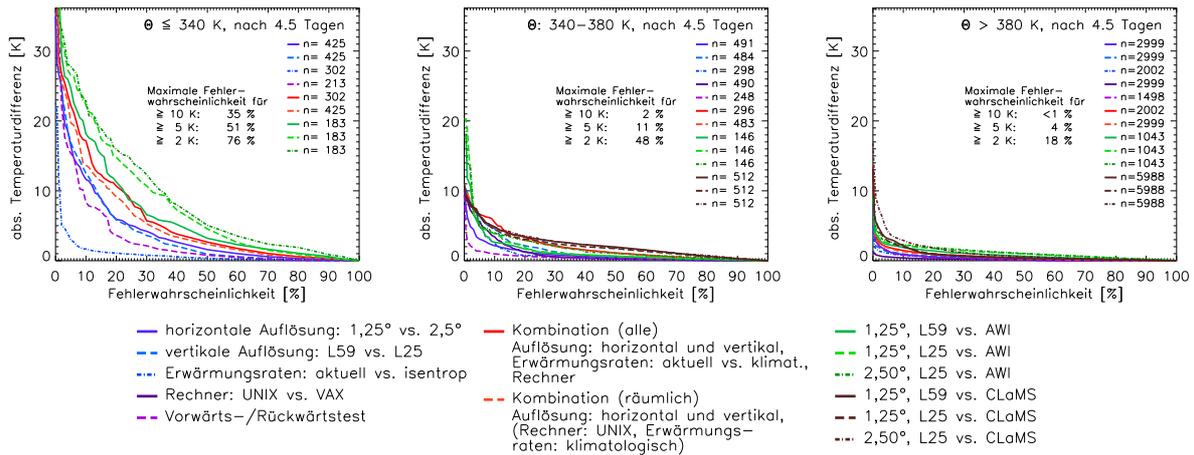
mit den klimatologischen Erwärmungsraten oder unter der Annahme einer ausschließlich isentropen Bewegung. In Abbildung 5.21 (rechts) ist außerdem zu erkennen, dass die klimatologischen Erwärmungsraten (rote Linie: Kombination) nur zu einer geringfügig besseren Beschreibung der Vertikalbewegungen führen als die isentrope Annahme (blaue Strich-Punkt-Linie). Im Vergleich zu den anderen beiden Trajektorienmodellen zeigt sich, dass mit dem vom CLaMs-Modell verwendeten Strahlungsschema annähernd identische Vertikalbewegungen ermittelt werden wie mit SLIMCAT (maximale Abweichung nach 4,5 Tagen ca. 4 K). Zum AWI-Modell ergeben sich auch im Höhenbereich oberhalb von 380 K größere Unterschiede von bis zu 13 K.

Für den Höhen-Abstand zwischen den verschiedenen Trajektorienrechnungen ergibt sich ein anderes Bild als für die Differenzen in der potentiellen Temperatur (siehe Abb. 5.22). Die größten Unterschiede sind für die unterhalb von 340 K berechneten Trajektorien feststellbar. Sie werden in diesem Höhenbereich zu etwa gleichen Teilen von der horizontalen Auflösung (siehe Punkt 3.) und von der vertikalen Auflösung (siehe Punkt 4.) bestimmt. Unterschiedliche Annahmen zum Vertikaltransport spielen demgegenüber eine untergeordnete Rolle. Der vertikale Abstand zwischen den verschiedenen Trajektorienrechnungen kann nach 4,5 Tagen bis zu ca. 3000 Meter betragen. Im Bereich zwischen 340 und 380 K sind die Differenzen in der ermittelten Höhe insgesamt kleiner (Abb. 5.22 Mitte). Sie werden sowohl durch Unterschiede in der räumlichen Auflösung als auch durch unterschiedliche Annahmen zum Vertikaltransport verursacht. Für die oberhalb von 380 K berechneten Trajektorien dominiert die Annahme zum Vertikaltransport den ermittelten Fehler, der nach 4,5 Tagen maximal ca. 1200 Meter beträgt. Unterschiede in der räumlichen Auflösung führen zu kleineren vertikalen Abständen von maximal ca. 400 Metern nach 4,5 Tagen.

### 5.5.3. Temperaturdifferenzen

Bei der Validierung von Satellitendaten muss für reaktive Spurengase (z.B.  $\text{NO}_2$ , siehe auch Abschnitt 6.3.1) bei Vergleichsmessungen, die nicht zur selben Zeit wie die Satellitenmessungen stattfanden, eine photochemische Modellierung erfolgen, um der zeitlichen Entwicklung der Spurengaskonzentration Rechnung zu tragen [z.B. Pierce et al., 1997]. Die modellierte Spurengaskonzentration wird wesentlich vom Sonnenzenitwinkel, der durch die jeweilige Trajektorienposition gegeben ist, und von der Temperatur, die die Reaktionskinetik bestimmt, beeinflusst. Der Temperaturverlauf entlang von Trajektorien wird auch untersucht, um das Bildungspotential für polare stratosphärische Wolken (PSC) zu bestimmen [z.B. Rizi et al., 1999; Manney et al., 2003] oder den Eintrag von Wasserdampf in die tropische Stratosphäre und damit den Troposphären-Stratosphären-Austausch zu quantifizieren [z.B. Fueglistaler et al., 2004; Bonazzola und Haynes, 2004]. Die bisher beschriebenen Unterschiede in der von verschiedenen Modellen bzw. Modellversionen berechneten Trajektorienposition führen natürlich auch zu Differenzen in der Temperatur, die im Folgenden kurz beschrieben werden sollen.

Entsprechend der festgestellten Unterschiede in der räumlichen Position der Trajektorien (sowohl horizontal als auch vertikal) sind die Diskrepanzen zwischen der von den verschiedenen Trajektorienmodellen ermittelten Temperatur im Höhenbereich unterhalb von 340 K am größten.



$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. 5.23.: Fehlerwahrscheinlichkeit für die Temperatur [K] nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen für links:  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K, Mitte:  $340 \text{ K} < \Theta_{t=0} \leq 380$  K, rechts:  $\Theta_{t=0} > 380$  K

Die mittleren Differenzen zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen betragen im Verlauf von 5 Tagen zwischen +3 K und -4 K, nach 4,5 Tagen lassen sich in Einzelfällen Unterschiede von über 35 K feststellen (siehe Abb. 5.23 links). In den darüberliegenden Höhen sind die Temperaturdifferenzen wesentlich geringer. Sie liegen im Mittel nach 5 Tagen im Bereich von  $\pm 1,5$  K. In Extremfällen sind Unterschiede von bis zu ca. 20 K ( $340 \text{ K} < \Theta_{t=0} \leq 380$  K) bzw. ca. 15 K ( $\Theta_{t=0} > 380$  K) zu verzeichnen (siehe Abb. 5.23 Mitte und rechts). Die mittleren Temperaturdifferenzen zwischen den verschiedenen Trajektorienrechnungen sind im Verlauf der 5 Tage i. Allg. annähernd konstant. Das heißt, dass bereits zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien an einer identischen Trajektorienposition aufgrund einer unterschiedlichen vertikalen Auflösung der Modelle und unterschiedlicher Interpolationsverfahren abweichende Temperaturen ermittelt werden. Die Extremwerte der Differenzen bzw. die Standardabweichungen wachsen mit der Transportzeit; sie sind durch abweichende Trajektorienpositionen begründet. Die mittleren Temperaturdifferenzen zwischen dem hochaufgelösten FUB-Modell (1,25°x1,25°, L59) und dem AWI- bzw. CLaMS-Modell betragen nach 4,5 Tagen für die oberhalb von 380 K berechneten Trajektorien  $+0,7 \pm 0,9$  K bzw.  $-0,4 \pm 1,4$  K.

Die entlang von Trajektorien ermittelte Temperatur wird nicht nur von den meteorologischen Eingangsdaten, die ja bei allen hier verwendeten Modellen identisch sind (operationelle ECMWF-Daten auf Standarddruckflächen), sondern auch von der Art des verwendeten Trajektorien-Modelles bestimmt. Die festgestellten Temperaturunterschiede sind etwas kleiner als die von verschiedenen Autoren ermittelten Differenzen zwischen unterschiedlichen meteorologischen Eingangsdaten (siehe Abschnitt 4.1.2). Für die Ergebnisse der Untersuchungen zum Wasserdampfeintrag in die tropische Stratosphäre sind bei Anwendung unterschiedlicher Trajektorienmodelle keine qualitativen Differenzen zu erwarten. Der Einfluss einzelner Trajektorien, die divergierende Wege nehmen, auf das Ergebnis solcher Untersuchungen ist vernachlässigbar, da eine Vielzahl von Trajektorien statistisch ausgewertet werden. Möglicherweise ändert sich aber der Betrag des Wasserdampf-mischungsverhältnisses, der aus der Minimumtemperatur entlang

der Trajektorie abgeleitet wird. Bei Untersuchungen zum PSC-Bildungspotential und bei der photochemischen Modellierung entlang von Trajektorien können sich die Ergebnisse bei der Anwendung unterschiedlicher Trajektorienmodelle auch qualitativ ändern. So kann z.B. eine kleine negative Temperaturabweichung dazu führen, dass der Temperaturschwellenwert zur Bildung polarer stratosphärischer Wolken erreicht wird. Damit würde ein chemischer Ozonabbau modelliert, der bei höheren Temperaturen nicht auftritt. Auf die Temperatursensitivität photochemischer Modelle wird in Kapitel 6.3 im Rahmen der Validierung von NO<sub>2</sub>-Messungen eingegangen.

#### 5.5.4. Zusammenfassung

Da es keine "wahre" Referenztrajektorie gibt (siehe Kap. 4.2.4), ist mit den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Studien keine Aussage darüber möglich, welches der untersuchten Trajektorienmodelle den tatsächlichen Luftmassenweg am besten wiedergibt. Es können nur Unsicherheiten und mögliche Fehlerquellen aufgezeigt werden. Diese lassen sich abschließend wie folgt zusammenfassen:

- Die Unterschiede zwischen verschiedenen Modellen bzw. Modellversionen bei der Bestimmung der *horizontalen Position* sind abhängig vom betrachteten Höhenbereich.
  - Unterhalb von 340 K – in der Troposphäre – treten aufgrund kleinskaliger Prozesse große Differenzen bei der berechneten Trajektorienposition auf. Die räumlichen Auflösungen der hier untersuchten Modelle und der meteorologischen Eingangsdaten sind i. Allg. zu gering, um den Luftmassenweg über einen längeren Zeitraum (größer als 1 bis 2 Tage) ausreichend genau zu beschreiben.
  - Zwischen 340 und 380 K ist die räumliche Auflösung des Modelles entscheidend für die realistische Wiedergabe des Luftmassenweges. Bei Betrachtungen über einen längeren Zeitraum (größer als 1 bis 2 Tage) sollten daher entsprechend hochaufgelöste Trajektorienmodelle verwendet werden (FUB-Modell: 1,25°x1,25°, L59).
  - Im Bereich oberhalb von 380 K sind die Unsicherheiten bei der Bestimmung der Trajektorienposition i. Allg. klein. In den meisten Fällen kann der Luftmassenweg auch mit den geringer aufgelösten Modellversionen (2,5°x2,5°, L25) richtig beschrieben werden.
- Die ermittelten Unterschiede werden wesentlich von der *meteorologischen Situation* – v.a. von den zeitlichen und räumlichen Gradienten des Windfeldes – beeinflusst. Von der meteorologischen Situation hängt auch ab, ob die horizontale oder die vertikale Auflösung den Fehler der Trajektorienposition bestimmt.
- Bei sich *stark ändernden vertikalen Windgradienten* in der mittleren Stratosphäre (20–10 hPa), die aufgrund der QBO fast immer in den Tropen auftreten, muss die vertikale Auflösung sowohl der meteorologischen Eingangsdaten als auch des verwendeten Trajektorienmodelles adäquat sein, um diese Gradienten erfassen zu können. Die operationellen ECMWF-Daten auf Standard-Druckflächen sind bei solchen Situationen nicht geeignet, um den Luftmassenweg über einen längeren Zeitraum (größer als  $\frac{1}{2}$  bis 1 Tag) richtig zu erfassen.

- Unterschiedliche *Annahmen zum Vertikaltransport*
  - führen i. Allg. nur zu kleinen Fehlern bei der Bestimmung der horizontalen Position der Trajektorien (vgl. auch Abschnitt 4.1.3).
  - Sie können aber zu wesentlichen Differenzen bei der vertikalen Position der Trajektorien führen.
  - Die im FUB-Modell verwendeten klimatologischen Erwärmungsraten verbessern die Beschreibung der Vertikalbewegung im Vergleich zur isentropen Annahme in den meisten Fällen zwar qualitativ, im Vergleich zu den aus SLIMCAT abgeleiteten, aktuellen Erwärmungsraten bestehen aber z.T. erhebliche Differenzen.
- Die aus der potentiellen Temperatur abgeleitete *vertikale Position* als Höhe oder Druck wird auch durch die räumliche Auflösung – in der Stratosphäre v.a. durch die vertikale Auflösung – beeinflusst.
- Die Differenzen zwischen den mit *verschiedenen Modellen* berechneten Trajektorien
  - liegen in der gleichen Größenordnung wie die aus der Kombination verschiedener Modellparameter (räumliche Auflösung und Annahme zum Vertikaltransport) ermittelten Unterschiede.
  - Die Diskrepanzen werden hauptsächlich durch Unterschiede in der räumlichen Auflösung der Modelle und unterschiedliche Erwärmungsraten (Vertikaltransport) bestimmt. Variationen weiterer Modellparameter (z.B. Interpolationsverfahren, Zeitschritt) scheinen demgegenüber nur eine untergeordnete Rolle zu spielen.
- Der *Temperaturverlauf* entlang von Trajektorien wird nicht nur – wie in verschiedenen Studien gezeigt (siehe Abschnitt 4.1.2) – von der Art der meteorologischen Eingangsdaten sondern auch vom verwendeten Trajektorienmodell und seiner räumlichen Auflösung bestimmt.
- Bei hybriden Modellen ist der Vorwärts-/Rückwärtstest (bzw. Rückwärts-/Vorwärtstest) geeignet, um die Qualität der Trajektorien zu überprüfen. Er ermöglicht hier den Ausschluss von Trajektorien, bei denen der Luftmassenweg nicht eindeutig bestimmbar ist. Auch die Untersuchung der PV-Änderung entlang der Trajektorien lässt Rückschlüsse auf die Güte der berechneten Trajektorien zu. Allerdings treten innerhalb von 5 Tagen PV-Änderungen von ca. 5% schon unter dynamisch ungestörten Bedingungen (hohe Breiten, Sommer) auf. Damit sind nur relativ große PV-Änderungen ein Hinweis auf fehlerhafte Trajektorien [vgl. auch Knudsen, 1993].

Die Sensitivitätsstudien zum FUB-Modell wurden für die verschiedensten meteorologischen Situationen in unterschiedlichen geografischen Breiten durchgeführt. Für die Vergleiche mit den anderen Modellen (AWI, CLaMS) standen nur in hohen und mittleren Breiten berechnete Trajektorien zur Verfügung. Hier ist eine Erweiterung der Untersuchungen auf andere Fälle wünschenswert. Auch die Einbeziehung weiterer Trajektorienmodelle kann dazu beitragen, die gefundenen Ergebnisse zu verifizieren. Als meteorologische Eingangsdaten wurden für alle Untersuchungen die operationellen ECMWF-Daten verwendet. Es ist zu erwarten, dass ein Vergleich mit anderen meteorologischen Eingangsdaten (z.B. UKMO, NCEP) z.T. zu größeren Unsicherheiten in den berechneten Trajektorien führt [z.B. Harris et al., 2005]. Eine höhere zeitliche Datenauflösung,

die jedoch als Analyse nicht zur Verfügung steht, sollte insbesondere unterhalb von 380 K zu einer besseren Beschreibung des Luftmassenweges führen [vgl. z.B. Stohl et al., 1995]. Zur Verbesserung der klimatologischen Erwärmungsraten sollten die globale Referenztemperatur  $T_{Ref}$  sowie die mittleren Erwärmungsraten  $Q_{H,Solar,global}$  und  $Q_{H,Solar,SZA=0^\circ}$  (siehe Abschnitt 4.3.2) anhand aktualisierter Spurengaskonzentrationen neu berechnet werden.

Im Hinblick auf die Anwendung von Trajektorien zur Validierung von Satellitendaten und beim Ozonsonden-Match zur Bestimmung des chemischen Ozonabbaus im polaren Winter lassen sich folgende Schlussfolgerungen und weitere Untersuchungen ableiten:

- Unterhalb von 340 K berechnete Trajektorien werden nur berücksichtigt, wenn individuelle Satellitenprofile validiert werden sollen (siehe Kap. 6.3) oder Trajektorien-Berechnungen bis maximal 2 Tage erfolgen. Für die statistische Auswertung vieler Matches in unterschiedlichen Höhenbereichen (siehe Kap. 6.4) sollten Matches unterhalb von 340 K nicht ausgewertet werden.
- Die Trajektorienrechnungen für den Ozonsonden-Match erfolgen bisher mit der vertikal gering aufgelösten FUB-Modellversion (L25). Dabei werden Trajektorien im Höhenbereich zwischen 340–660 K berechnet [z.B. Rex et al., 1999; Streibel, 2005]. Es sollte – ähnlich wie bei Streibel [2005] für die horizontale Auflösung – untersucht werden, ob eine Erhöhung der vertikalen Auflösung die Ergebnisse zum chemischen Ozonabbau beeinflusst.
- Die Unterschiede zu anderen Modellen (AWI, CLaMS) liegen in derselben Größenordnung wie die Differenzen, die sich aus der Variation aller internen Modellparameter ergeben. Für die in Kapitel 6 für die Validierung von ENVISAT-Messungen untersuchten Ballonflüge liegen nur sehr wenige mit dem AWI-Modell oder mit CLaMS berechnete Trajektorien vor. Die Variation aller Modellparameter (“Kombination alle“) wird daher in Kapitel 6 benutzt, um die Sensitivität der Validierungsergebnisse bezüglich des verwendeten Trajektorienmodelles abzuschätzen.
- Für Trajektorien, die über eine Transportzeit von mehr als 2 Tagen ausgewertet werden, wird ein Vorwärts-/Rückwärtstest bzw. Rückwärts-/Vorwärtstest durchgeführt (siehe auch Ergebnisse in Tab. 5.6).
- Eine Trajektorie wird bei der Satellitenvalidierung (Kapitel 6) nur berücksichtigt, wenn die PV-Änderung entlang der Trajektorie weniger als 25 % beträgt. Die PV-Änderung innerhalb eines Tages für die hier untersuchten Fälle ist immer kleiner als dieser Grenzwert. Daher ist auch dieser Grenzwert erst bei Betrachtungen über einen längeren Zeitraum (Kap. 6.4) relevant.
- Da einzelne Trajektorien große Unsicherheiten aufweisen können, werden Matches nur ausgewertet, wenn sie über einen bestimmten Höhenbereich mit mehreren Trajektorien gültig sind [vgl. auch Merrill et al., 1985; Rex et al., 1999].
- Die Sensitivität photochemischer Modelle bezüglich der beschriebenen Differenzen bei der Positionsbestimmung und der Temperatur wird in Kapitel 6.3 anhand eines Validierungsbeispiels diskutiert.



## 6. Fallstudien zur ENVISAT-Validierung mit Hilfe von Ballonmessungen

Für die Validierung der Instrumente an Bord des europäischen Umweltsatelliten ENVISAT zur Erfassung atmosphärischer Spurengase (GOMOS, MIPAS-E, SCIAMACHY) stehen Messgeräte auf verschiedenen Plattformen zur Verfügung (siehe Kap. 3.2 und 3.4). Neben bodengebundenen Instrumenten und Messgeräten auf Schiffen und Flugzeugen werden auch stratosphärische Ballonmessgeräte zur ENVISAT-Validierung eingesetzt (siehe Kap. 3.3 und z.B. Piters et al., 2006). Der Vergleich einer Satellitenmessung mit einer Referenzmessung ist nur sinnvoll, wenn in beiden Fällen dieselben Luftmassen erfasst wurden. Dies lässt sich für Ballonmessungen nur in wenigen Fällen direkt realisieren, da die Startzeit der Ballone nicht frei wählbar ist und z.B. von den meteorologischen Bedingungen und der jeweiligen Messgeometrie des Ballongerätes abhängt. Mit Hilfe von Trajektorien können aber Luftmassen identifiziert werden, die sowohl vom Ballonmessgerät als auch vom Satelliteninstrument gemessen wurden [Danilin et al., 2002a,b; Lumpe et al., 2002]. Solche Messungen, bei denen dieselbe Luftmasse zweimal beprobt wird, werden als *Matches* und das Verfahren wird auch als *Trajectory Hunting Technique (THT)* bezeichnet (siehe Kap. 3.4). Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde erstmals eine Methode entwickelt, die es bereits während der Flugplanung erlaubt, anhand von Luftmassen-Trajektorien die mögliche Koinzidenz der Satellitenmessungen mit den durchzuführenden Ballonmessungen zu überprüfen und die so erhaltenen Matches in die Ballon-Flugplanung einfließen zu lassen.

Im folgenden Kapitel werden zunächst diese Methode und die weiteren bei der Flugplanung zu berücksichtigenden Kriterien vorgestellt und diskutiert (Kap. 6.1). Es wird ein Überblick über die im Rahmen dieser Arbeit betreuten ESABC-Messungen (ENVISAT Stratospheric Aircraft and Balloon Campaign) gegeben, bei denen sowohl für SCIAMACHY als auch für MIPAS-E Matches mit den Ballonmessungen berechnet wurden (Kap. 6.2). Beispielhaft werden im Anschluss für ausgewählte Ballonflüge Ergebnisse der SCIAMACHY-Validierung für Ozon bzw.  $\text{NO}_2$  und Ergebnisse der MIPAS-E-Validierung für die langlebigen Spurengase  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  vorgestellt (siehe auch Kap. 2.4). Die Validierung erfolgt dabei entweder anhand einzelner Messprofile (Kap. 6.3) oder – für die langlebigen Spurengase – basierend auf einer statistischen Auswertung mehrerer Matches in einzelnen Höhenbereichen (Kap. 6.4). Während sich die Validierung einzelner Messprofile auf zeitlich nah beieinander liegende Ballon- und Satellitenmessungen beschränkt<sup>1</sup>,

---

<sup>1</sup> Bedingt durch die Methode ist der zeitliche Abstand zwischen der Ballon- und der zu validierenden Satellitenmessung i. Allg. kleiner als ein Tag.

werden für die statistische Auswertung Matches berücksichtigt, bei denen die zu vergleichenden Messungen um bis zu 5 Tage auseinander liegen. Entsprechend der in Kapitel 5.3 gefundenen Ergebnisse wird für diese Matches ein Vorwärts-/Rückwärtstest bzw. Rückwärts-/Vorwärtstest durchgeführt und die PV-Erhaltung entlang der Trajektorien überprüft. Damit können Fehler, die sich möglicherweise aus der angewendeten Methode ergeben, reduziert werden. Außerdem wird im Rahmen der Validierungsuntersuchungen der Einfluss der zugrundeliegenden Trajektorien auf die Validierungsergebnisse diskutiert. Dabei wird auf die Ergebnisse der in Kapitel 5 dargestellten Sensitivitätsstudien (siehe Kap. 5.2) und der Vergleiche zwischen verschiedenen Trajektorienmodellen (siehe Kap. 5.4) zurückgegriffen. Wesentliches Ziel der Fallstudien ist es, die aus der Anwendung der trajektorienbasierten Methode zur Matchermittlung resultierenden Unsicherheiten der Validierungsergebnisse zu quantifizieren.

## **6.1. Planung stratosphärischer Ballonflüge mit Hilfe von Luftmassen-Trajektorien**

### **6.1.1. Kriterien für die Ballonflugplanung**

Stratosphärische Ballonflüge unterliegen den verschiedensten Einschränkungen. Sie sind weltweit nur von einigen wenigen Startplätzen aus realisierbar. Die meteorologischen Bedingungen sowohl in der Troposphäre als auch in der Stratosphäre bestimmen entscheidend, ob ein Ballonstart überhaupt stattfinden kann. Die Ballongeräte sind zusammen mit der Gondel, auf der sie für den Flug befestigt werden, bis zu ca. 600 Kilogramm schwer. Sie erreichen je nach meteorologischen Bedingungen eine Höhe von ca. 30 bis 39 Kilometern. Der eigentliche Ballon, der die Gondel trägt, wird mit Helium gefüllt und fasst unter stratosphärischen Druckbedingungen am höchsten Punkt des Ballonfluges 100 000 bis 400 000 Kubikmeter<sup>2</sup>. Vor dem Start wird die Ballongondel von ein oder zwei kleinen Hilfsballonen, die ebenfalls mit Helium gefüllt sind, so angehoben, dass die Gondel ca. 1 bis 2 Meter über dem Erdboden schwebt (siehe Abb. 6.1). Damit soll verhindert werden, dass die Gondel während des Ballonstarts beschädigt wird. Der Bodenwind darf vor und während des Starts nur wenige Meter pro Sekunde betragen. Ansonsten ist einerseits das Befüllen des Hauptballons nicht möglich und andererseits kann ein sicherer Start nicht gewährleistet werden. Um eine Beschädigung der Messgeräte bzw. ein Verfälschen der Messwerte zu vermeiden, sind bei den meisten Ballonstarts außerdem niederschlagsfreie Bedingungen nötig. Die stratosphärischen Winde bestimmen, wie weit und in welche Richtung der Ballon während des Fluges abgetrieben wird und damit auch die mögliche Dauer des Ballonfluges. Die Messgeräte werden nach dem Flug per LKW oder Hubschrauber geborgen, damit sie für weitere Messflüge zur Verfügung stehen. Daher spielt bei der Flugplanung auch die Lage und die Erreichbarkeit des Landeplatzes eine Rolle. Teilweise kommen größere Gebiete in der Nähe des Kampagnenortes als Landeplatz nicht in Frage (z.B. um Kiruna in Nordschweden große Seen, unzugängliche

---

<sup>2</sup> Die Angaben beziehen sich auf die während der ESABC-Messungen eingesetzten Geräte. Die größten bisher gebauten Ballone fassen 1,2 Millionen Kubikmeter und können ein Gewicht von bis zu 3 Tonnen tragen [CNES, 2008].



Abb. 6.1.: Ballonstart in Teresina/Brasilien am 25.06.2005, © Bertrand Gaubicher

Fjorde; um Teresina in Brasilien Reservate für die Ureinwohner). Die Landung der Gondel, die ferngesteuert vom Ballon getrennt wird und dann an einem Fallschirm absinkt, soll möglichst ruhig erfolgen, um Schäden an den Geräten zu verhindern. Daher müssen auch im Landegebiet relativ ruhige meteorologische Bedingungen herrschen.

Weitere Einschränkungen für einen Ballonstart können sich aus dem Messprinzip des Ballongerätes und den Zielsetzungen der Messkampagne ergeben. Während die Startzeit für in-situ-Messgeräte (siehe Kap. 3.1 und Abschnitt 3.3.2) und MIPAS-B2 (vgl. Tab. 3.1) unter Berücksichtigung der oben genannten Bedingungen zur Realisierung des Ballonfluges frei wählbar ist, muss der Ballonstart z.B. bei LPMA/DOAS (siehe Tab. 3.1 und Abschnitt 3.3.1) aufgrund der Messgeometrie so erfolgen, dass eine Sonnenauf- oder -untergangsmessung realisiert werden kann. Dadurch wird die mögliche Startzeit für den Ballonflug erheblich eingeschränkt. Mit einigen Validierungsflügen sollen Spurengase gemessen werden, die nur unter bestimmten meteorologischen Bedingungen existieren. So treten einige ozonabbauende Spurengase nur innerhalb des Polarwirbels beim Vorhandensein von polaren stratosphärischen Wolken auf, die sich erst bei sehr tiefen Temperaturen bilden (siehe Abschnitt 2.4.1). Auch dies kann die Ballonflugplanung wesentlich beeinflussen und im Extremfall zur Absage des Ballonfluges führen, wenn die entsprechenden meteorologischen Bedingungen nicht vorliegen. Im Rahmen der ENVISAT-Validierung sind außerdem die geplanten Messpunkte des zu validierenden Satelliteninstrumentes für die Ballonflugplanung zu berücksichtigen. Aufgrund des polarnahen, sonnensynchronen Orbits überfliegt ENVISAT zweimal pro Tag jeweils um ca. 10 Uhr bzw. 22 Uhr lokaler Zeit den Kampagnenort in einem relativ geringen Abstand (siehe Kap. 3.2). Bedingt durch das Messprinzip, das auf der Absorption von Sonnenlicht beruht, können in der Nacht keine SCIAMACHY-Messungen durchgeführt werden. Daher gibt es für SCIAMACHY keine Messungen während der Polarnacht und abhängig von Jahreszeit und vom Messort z.T. nur eine Messung am Vormittag. Die MIPAS-Messungen

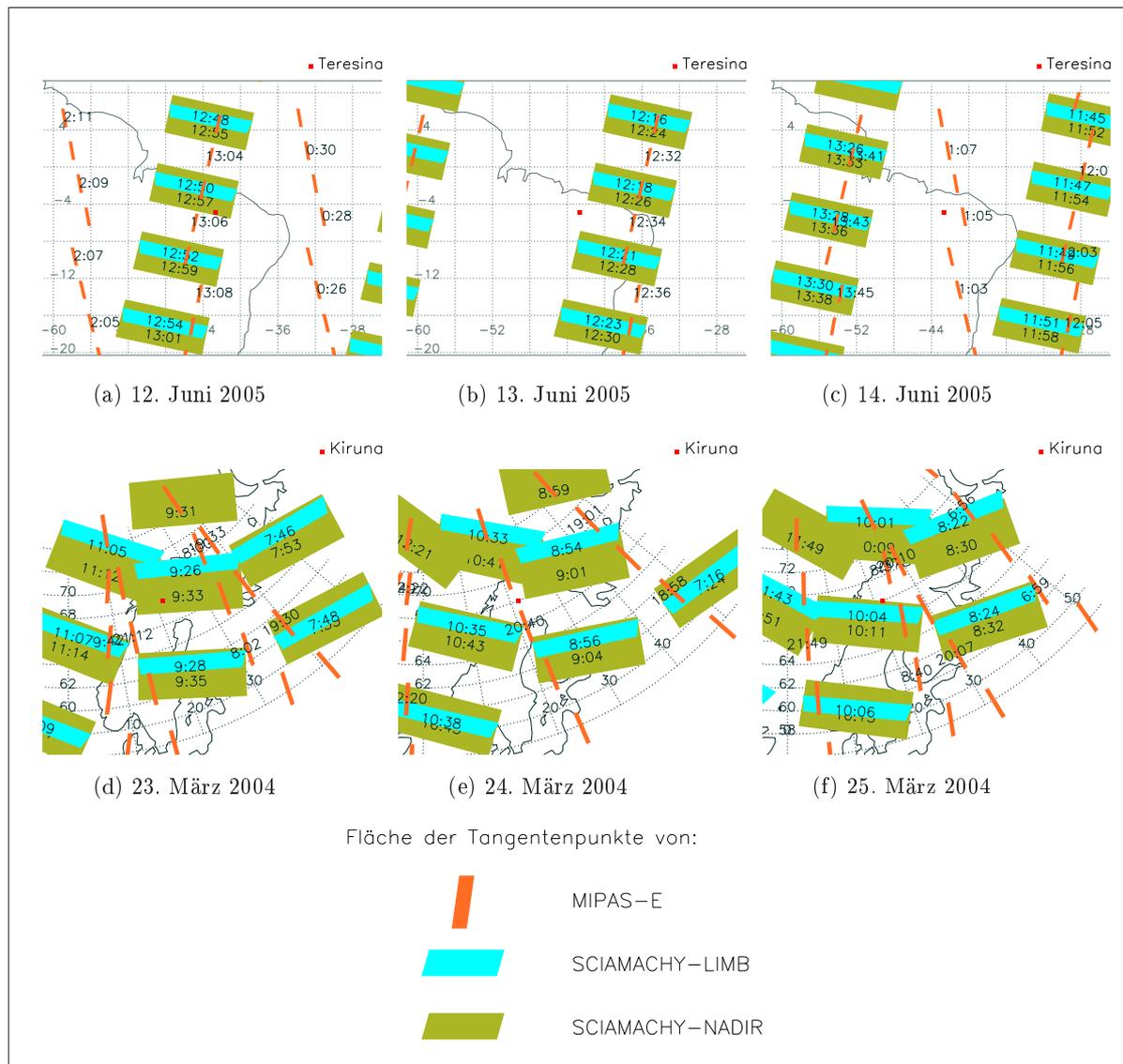


Abb. 6.2.: Messpunkte für die ENVISAT-Geräte SCIAMACHY und MIPAS-E, Messzeit in UT: (a)–(c) um Teresina/Brasilien, (d)–(f) um Kiruna/Schweden

unterliegen nicht dieser Einschränkung, so dass auch während eines ENVISAT-Überfluges in der Nacht MIPAS-E-Messungen ausgeführt werden können. In den Tropen gibt es ca. alle 3 Tage einen direkten Überflug, d.h. der Kampagnenort liegt dann mehr oder weniger direkt unter der ENVISAT-Flugbahn. An Tagen ohne direkten Überflug kann der maximale horizontale Abstand der ENVISAT-Messungen zum Kampagnenort bis zu 1000 Kilometer betragen. Aufgrund der näher zusammenliegenden Umlaufbahnen des Satelliten ist in hohen Breiten der maximale Abstand des Überfluges auf einige 100 km begrenzt. Abbildung 6.2 zeigt die SCIAMACHY- und MIPAS-E-Messpunkte für jeweils drei Tage um einen tropischen Ort (Teresina) und einen Ort in den hohen Breiten (Kiruna). Die bessere Verfügbarkeit von ENVISAT-Messungen in den hohen Breiten ist deutlich zu erkennen.

Durch die bisher genannten Einschränkungen ist ein Ballonstart nicht immer realisierbar, wenn die Satellitenmessung in unmittelbarer Nähe des Kampagnenortes erfolgt. Die Berechnung von Luftmassen-Trajektorien unter Berücksichtigung von ECMWF-Vorhersagedaten ermöglicht

bereits während der Flugplanung das Auffinden von Luftmassen, die sowohl vom Satelliteninstrument als auch vom Ballonmessgerät beprobt werden können (Matches). Somit kann der Ballonflug mit Hilfe der Trajektorienrechnung im Hinblick auf mögliche Matches für die Validierung der ENVISAT-Geräte optimiert werden. Im folgenden Abschnitt wird der Ablauf zum Berechnen der Matches vorgestellt, der im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und erfolgreich angewendet wurde.

### 6.1.2. Methode zur Ermittlung der Matches

Während der Ballonmesskampagnen werden Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien mit dem in Kapitel 4.3 beschriebenen Modell in der  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ -Version bei einer vertikalen Auflösung von 25 Theta-Flächen mit klimatologischen Erwärmungsraten berechnet. Wie bereits dargestellt, stehen sowohl ECMWF-Analysen als auch Vorhersagen basierend auf der 12-Uhr-Analyse des Vortages als meteorologische Eingangsdaten zur Verfügung. Im 6-Stunden-Abstand sind die Vorhersagedaten bis zur 96-Stunden-Vorhersage des Vortages verfügbar. Mögliche Matches können also für bis zu 3 Tage im Voraus berechnet werden.

Die Luftmassen-Trajektorien werden an den voraussichtlichen Messpunkten des Ballongerätes gestartet. Für in-situ-Messgeräte stimmt der Messort mit dem Aufenthaltsort des Ballones überein, so dass sich die Messpunkte direkt aus dem vorhergesagten Weg des Ballones ergeben. Diese Ballonflugbahn wird während der Kampagne täglich basierend auf aktuellen Radiosondendaten vom Meteorologen der CNES (Centre national d'études spatiales) unter Berücksichtigung des gewünschten Flugprofils<sup>3</sup> vorhergesagt und als Datei zur Verfügung gestellt. Für die Fernerkundungs-Messgeräte werden die voraussichtlichen Messpunkte von der jeweiligen Ballongruppe bereitgestellt. Je nach Ballonmessgerät stehen damit die Messorte und -zeiten für ein bis vier Profilsondierungen zur Verfügung, für die jeweils separat Trajektorien berechnet und mögliche Matches mit den ENVISAT-Geräten bestimmt werden.

Die geplanten Messorte der ENVISAT-Geräte werden von der Europäischen Raumfahrtagentur (ESA) per E-Mail bzw. via ftp-Server bereitgestellt. Für MIPAS-E ist eine EXCEL-Datei verfügbar, aus der sich mit Hilfe eines mitgelieferten Makros die Messorte global extrahieren lassen. Für SCIAMACHY stellt die ESA lediglich Text-Dateien zur Verfügung, die die Messorte in einem Umkreis von 1000 Kilometern um ausgewählte Kampagnenorte enthalten. Eine Unterscheidung zwischen den verschiedenen Messmodi von SCIAMACHY (Limb, Nadir, siehe Kap. 3.2) ist anhand dieser Dateien nicht möglich. Daher wird für SCIAMACHY auf die Daten von SOST (SCIAMACHY Operational Support Team) zurückgegriffen, die über eine Web-Seite [SOST, 2006] abgerufen werden können. Aus den dort verfügbaren Daten sind für jeden einzelnen ENVISAT-Orbit getrennt nach Nadir- und Limb-Messungen die Messorte und -zeiten, sowie detaillierte Informationen zur geplanten Durchführung der Messung (Messdauer, Breite des Scans usw.) ablesbar. Dabei werden auch Messungen aufgeführt, die unter sich ändernden Lichtbedingungen stattfinden. Aus solchen Messungen lassen sich Spurengas-Profile nicht oder

---

<sup>3</sup> Das Flugprofil beschreibt den Höhenverlauf des Ballonfluges. Es ist durch Öffnen eines Ventils zum Ablassen von Gas aus der Ballonhülle und durch Abwerfen von Ballast beeinflussbar.

nur sehr schwer ableiten. Sie sind deswegen für die Validierung ungeeignet und werden von den weiteren Berechnungen (Suche nach möglichen Matches) ausgeschlossen. Für MIPAS-E sind in den ESA-Daten sämtliche Mess- und Kalibrierungsoperationen enthalten, so dass auch hier für die Validierung ungeeignete Messungen bzw. Kalibrierungen von der Suche nach möglichen Koinzidenzen zwischen den Satelliten- und Ballonmessungen ausgeschlossen werden. Beispiele zu den verfügbaren Dateien und Angaben zu den ausgeschlossenen Messungen bzw. Operationen finden sich in Anhang C.1. Die in Abbildung 6.2 gezeigten Messpunkte basieren auf den eben vorgestellten Daten; es sind nur Messungen abgebildet, die für die Validierung geeignet sind.

Zum Auffinden möglicher Matches wird entlang jeder einzelnen Luftmassen-Trajektorie<sup>4</sup> geprüft, ob es ENVISAT-Messungen gibt, die bestimmte räumliche und zeitliche Kriterien (Match- bzw. Koinzidenz-Kriterien) erfüllen. Basierend auf den in der Literatur angewendeten Koinzidenz-Kriterien (siehe Kap. 3.4) und den Untersuchungen zur Trajektoriengüte (siehe Kap. 5) werden diese Kriterien wie folgt festgelegt. Eine ENVISAT-Messung darf von einer Luftmassen-Trajektorie, die am voraussichtlichen Ballonmesspunkt initialisiert wurde,

- (a) *zeitlich* maximal eine Stunde und
- (b) *räumlich* maximal 500 Kilometer

entfernt sein. Der räumliche Abstand wird dabei jeweils in Bezug auf den Mittelpunkt der SCIAMACHY- bzw. MIPAS-E-Messung berechnet (vgl. Anhang C.1). Sind beide Bedingungen für eine Luftmassen-Trajektorie erfüllt, so liegt für die entsprechende Trajektorienhöhe ein Match vor. Die Matchbedingungen werden über den gesamten Höhenbereich des Ballonprofils für jede einzelne Trajektorie überprüft. Die gefundenen Matches werden in einer Textdatei abgespeichert (siehe Beispiel in Anhang C.3) und grafisch dargestellt. In der grafischen Abbildung werden Matches hervorgehoben, die für mehr als 50 Prozent der berechneten Trajektorien gültig sind, so dass Koinzidenzen über einen größeren Höhenbereich leichter erkennbar sind. Abbildung 6.3 zeigt als Beispiel die während der Flugplanung am 24.03.2004 für eine LPMA/DOAS-Messung während des Sonnenunterganges berechneten Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien und die gefundenen Matches mit SCIAMACHY-Limb-Messungen für zwei aufeinanderfolgende Tage. In rot ist ergänzend jeweils der Höhenbereich angegeben, für den der Match mit der SCIAMACHY-Limb-Messung gültig ist. Für einen Ballonflug am 24.03.2004 ergibt sich ein Rückwärts-Match mit der SCIAMACHY-Limb-Messung um 10:35 UT (siehe blaues Viereck in Abb. 6.3a), der fast den gesamten Höhenbereich der Ballonmessung abdeckt. Lediglich für Höhen oberhalb von 32 Kilometern kann laut der Vorhersage vom 24.03.2004 kein Match zwischen der LPMA/DOAS-Messung und der SCIAMACHY-Limb-Messung um 10:35 UT gefunden werden. Am darauffolgenden Tag (25.03.2004) erfolgte die SCIAMACHY-Limb-Messung in unmittelbarer Nähe zu Kiruna (siehe Abb. 6.2f). Trotzdem hätte eine Ballonmessung am 25.03.2004 für die Rückwärtstrajektorien lediglich zu Matches geführt, die nur einen Ausschnitt des Höhenbereiches erfassen. Auch für die Vorwärtstrajektorien erstrecken sich die gefundenen Matches für einen Ballonflug am 24.03.2004 über einen größeren Höhenbereich als für den 25.03.2004. Allerdings sind die Matches für beide Tage auf Höhen unterhalb von ca. 24 Kilometern begrenzt. Ein LPMA/DOAS-Profil sollte

---

<sup>4</sup> Die Ermittlung möglicher Matches erfolgt für jeden abgespeicherten Trajektorienpunkt (vgl. Anhang A, Abb. A.4).

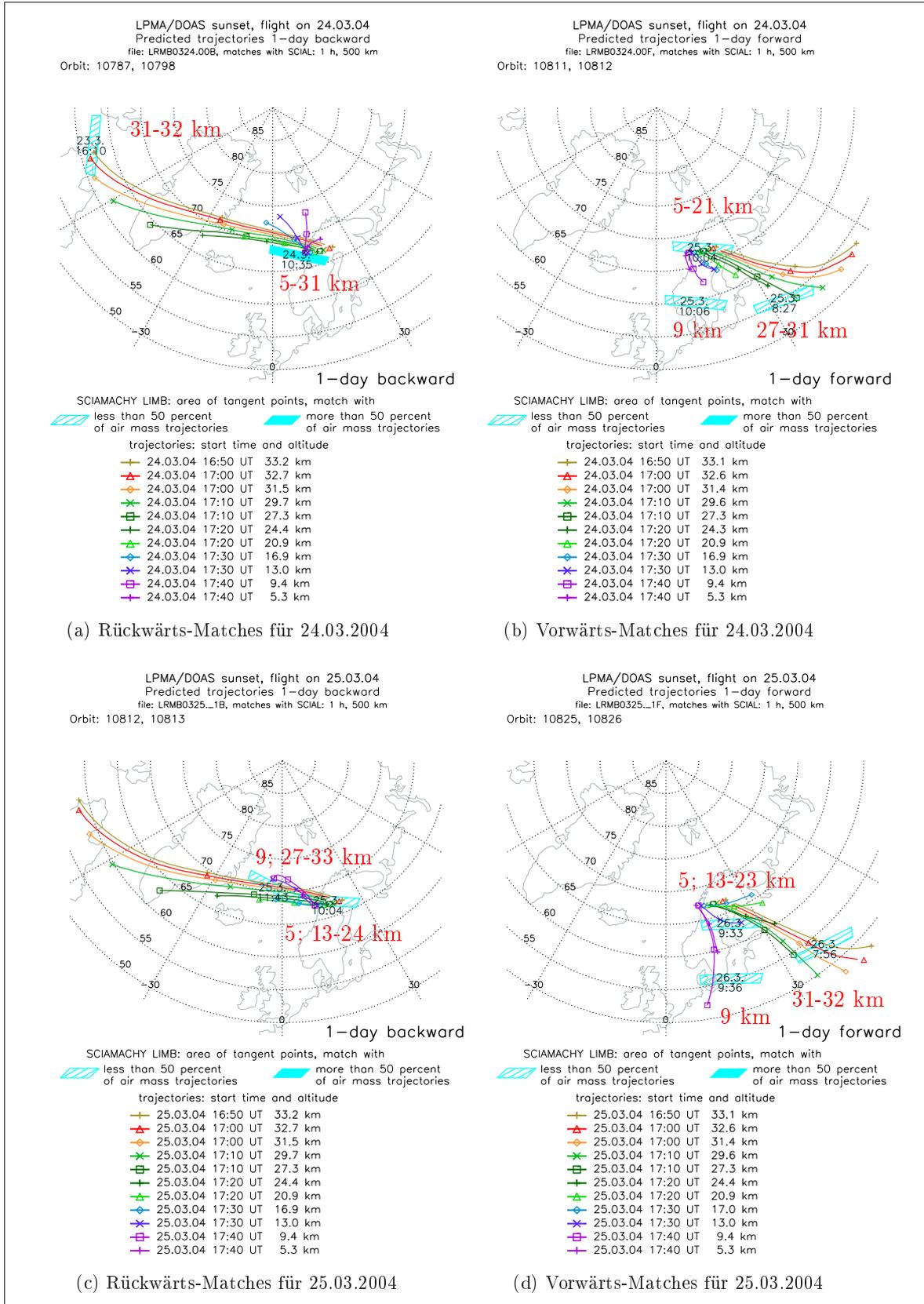


Abb. 6.3.: Vorhersage vom 24.03.2004 für Matches der Sonnenuntergangs-Messung von LPMA/DOAS mit SCIAMACHY-Limb-Messungen: (a)–(b) für einen Ballonstart am 24.03., (c)–(d) für einen Ballonstart am 25.03. (Zeit in UT, rot: Höhenbereich für den der Match gültig ist, weiteres siehe Text)

außerdem während des Ballonaufstieges gemessen werden. Für diese Messung zeigten die Vorhersagen für beide mögliche Flugtage Matches mit den SCIAMACHY-Limb-Messungen in ähnlichen Höhenbereichen. Die meteorologischen Bedingungen ließen einen Ballonflug an beiden Tagen zu. Der LPMA/DOAS-Flug wurde wegen der besseren Koinzidenzen mit den SCIAMACHY-Limb-Messungen, die basierend auf den Rückwärtstrajektorien ermittelt wurden, am 24.03.2004 durchgeführt. Die ausgehend von den tatsächlichen Ballonmesspunkten gefundenen Matches und die Ergebnisse des Vergleiches für Ozon und  $\text{NO}_2$  sind in Kapitel 6.3 dargestellt. Insbesondere für die LPMA/DOAS-Messungen sind die hier vorgestellten Trajektorienrechnungen ein wichtiges Hilfsmittel für die Flugplanung. Diese Messungen sind an die Zeiten des Sonnenauf- bzw. -unterganges gebunden (siehe Abschnitt 3.3.1). Damit ist eine Messung, die zeitgleich zum ENVISAT-Überflug gegen 10 bzw. 22 Uhr lokaler Zeit stattfindet, ausgeschlossen. Eine Vorhersage günstiger Matches allein aus der Kenntnis der Satelliten-Messpunkte ist daher nicht möglich (zum Vergleich für das vorgestellte Beispiel siehe Abb. 6.2 (d)–(f)).

## 6.2. Anwendung der Methode zur Match-Ermittlung bei Ballon-Messkampagnen

Für die Validierung der Messgeräte zur Erfassung atmosphärischer Spurengase auf ENVISAT wurden verschiedene Messkampagnen durchgeführt. Während dieser Messkampagnen fand vor einem geplanten Ballonstart täglich eine Wetterbesprechung statt. Vom Meteorologen der CNES (Pierre Dedieu) wurden dabei folgende Daten präsentiert (vgl. Abschnitt 6.1.1):

- Analyse und Vorhersage des Bodenwetters,
- Vorhersage des Bodenwindes beim Ballonstart,
- geplantes Flugprofil und voraussichtliche Ballonflugbahn,
- Drift des Ballones beim Abstieg und voraussichtliches Landegebiet, sowie
- meteorologische Bedingungen beim Landen.

Von der FU Berlin (Katja Grunow, Barbara Naujokat) wurden im Rahmen dieser täglichen Wetterbesprechung Informationen bereitgestellt zu (vgl. Kap. 6.1):

- den stratosphärischen Bedingungen (basierend auf ECMWF-Vorhersagen und -Analysen),
- den Messpunkten der ENVISAT-Geräte (siehe Abb. 6.2) und
- den voraussichtlichen Matches mit den ENVISAT-Geräten anhand von Luftmassen-Trajektorien (siehe Abb. 6.3).

Teilweise konnte die Kampagnenberatung durch die FU Berlin nicht direkt vor Ort erfolgen. Die entsprechenden Daten wurden dann via ftp-Server bzw. per E-Mail zur Verfügung gestellt. Tabelle 6.1 gibt einen Überblick über die im Rahmen von ESABC betreuten Ballonflüge sowie die nach den Flügen durchgeführten Validierungsvergleiche. Für weitere – in Tabelle 6.1 nicht aufgeführte – SAOZ-Messungen wurden lediglich nach den Flügen Koinzidenzen mit SCIAMACHY-Limb-Messungen anhand von Trajektorien bestimmt [siehe Dorf et al., 2006]. Wie aus Tabelle 6.1 ersichtlich ist, erfolgten die Validierungsflüge zu verschiedenen Jahreszeiten in unterschiedlichen Breiten. Damit stehen für die Validierung der ENVISAT-Geräte Datensätze zur Verfügung, die

Tab. 6.1.: Im Rahmen der ESABC-Kampagnen betreute Ballonflüge

Flugdatum	Gerät/Gondel <sup>1)</sup> (interne Flugnr.)	Ort <sup>2)</sup>	Beratung	Matches für <sup>3)</sup>	Spurengasmessungen, die basierend auf Trajektorien validiert wurden <sup>4)</sup>
24.09.2002	TRIPLE (B39)	Aire sur l'Adour	per ftp	SCIAL MIPAS-E	BrO CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, FCKW
24.09.2002	MIPAS-B2 (Flug 11)	Aire sur l'Adour	per ftp	SCIAL MIPAS-E	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> H <sub>2</sub> O, O <sub>3</sub> , HNO <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, NO <sub>2</sub>
04.03.2003	LPMA/DOAS (LPMA 19)	Kiruna	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O
06.03.2003	TRIPLE (B40)	Kiruna	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	BrO CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, FCKW
16.03.2003	SAOZ	Kiruna	vor Ort	SCIAL	BrO
20./21.03.2003	MIPAS-B2 (Flug 13)	Kiruna	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> H <sub>2</sub> O, O <sub>3</sub> , HNO <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, NO <sub>2</sub>
23.03.2003	LPMA/DOAS (LPMA 20)	Kiruna	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	BrO, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O
09.06.2003	TRIPLE (B41)	Kiruna	per ftp	SCIAL MIPAS-E	BrO CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, FCKW
02./03.07.2003	MIPAS-B2 (Flug 14)	Kiruna	per ftp	SCIAL MIPAS-E	O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> H <sub>2</sub> O, O <sub>3</sub> , HNO <sub>3</sub> , CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, NO <sub>2</sub>
09.10.2003	LPMA/DOAS (LPMA 21)	Aire sur l'Adour	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	BrO, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O
24.03.2004	LPMA/DOAS (LPMA 22)	Kiruna	per ftp	SCIAL MIPAS-E	BrO, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O
Nov. 2004	- <sup>5)</sup>	Teresina	vor Ort	-	-
08.06.2005	TWIN (B42)	Teresina	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	in Vorbereitung in Vorbereitung <sup>6)</sup>
13./14.06.2005	MIPAS-B2 (Flug 15)	Teresina	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	in Vorbereitung in Vorbereitung <sup>6)</sup>
17.06.2005	LPMA/DOAS (LPMA 23)	Teresina	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	NO <sub>2</sub> , in Vorbereitung: O <sub>3</sub> , BrO in Vorbereitung <sup>6)</sup>
22.06.2005	SPIRALE	Teresina	vor Ort	MIPAS-E	nur Flugplanung <sup>6)7)</sup>
25.06.2005	TRIPLE (B43)	Teresina	vor Ort	SCIAL MIPAS-E	in Vorbereitung in Vorbereitung <sup>6)</sup>
30.06.2005	LPMA-IASI (IASI 3)	Teresina	per ftp	SCIAL MIPAS-E	in Vorbereitung in Vorbereitung <sup>6)</sup>
Okt. 2005	- <sup>8)</sup>	Aire sur l'Adour	per ftp	-	-
01.03.2006	LPMA-IASI (IASI 4)	Kiruna	per ftp	SCIAL MIPAS-E	in Vorbereitung in Vorbereitung <sup>6)</sup>

<sup>1)</sup> Siehe auch Tabelle 3.1 auf S. 43

<sup>2)</sup> Geografische Lage der Messorte: Aire sur l'Adour/Frankreich: 43,7°N; 0,3°W; Kiruna/Schweden: 67,9°N; 21,1°E; Teresina/Brasilien: 5,1°S; 42,9°W

<sup>3)</sup> SCIAL = SCIAMACHY-Limb-Messungen, MIPAS-E = Messungen von MIPAS-ENVISAT

<sup>4)</sup> Die Auswertung der Spurengase und der Vergleich mit den ENVISAT-Geräten wurde i. Allg. von den einzelnen Ballongruppen durchgeführt. Auf der Grundlage der anhand der Trajektorien berechneten Matches wurden folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Validierung der SCIAMACHY-Limb-Messungen für

BrO: Dorf [2005] bzw. Dorf et al. [2006],

O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>: Olinger [2005] und Zhang [2006] für die MIPAS-B2-Flüge,

O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>: Butz [2006] bzw. Butz et al. [2006] und siehe Kapitel 6.3 für die LPMA/DOAS-Flüge,

- Validierung der MIPAS-E-Messungen für

langlebige Spurengase (CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, FCKW): Baehr et al. [2004] und siehe Kapitel 6.4 für die TRIPLE-Flüge,

langlebige Spurengase (CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O): Payan et al. [2007] für die LPMA-Messungen sowie für

H<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, NO<sub>2</sub>: Zhang [2006] bzw. Wetzel et al. [2007] für die MIPAS-B2-Flüge.

LPMA/DOAS-Messungen wurden außerdem zur Level-1-Validierung von SCIAMACHY verwendet [Gurlit et al., 2005]. Weitere Spurengasmessungen (z.B. O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>) wurden mit dem Mini-DOAS durchgeführt, das bei verschiedenen Ballonflügen eingesetzt wurde [Kritten et al., 2007].

<sup>5)</sup> Während der Kampagne konnten zunächst aus organisatorischen Gründen und später aufgrund zu starker Bodenwinde keine Flüge durchgeführt werden.

<sup>6)</sup> Offizielle MIPAS-E-Daten zu den Messungen ab Juni 2005 liegen bisher nicht vor, so dass die Validierungsuntersuchungen für MIPAS-E anhand dieser Flüge noch nicht begonnen werden konnten.

<sup>7)</sup> Im Rahmen dieser Arbeit wurden für die SPIRALE-Messung mögliche Koinzidenzen mit MIPAS-E während der Flugplanung ermittelt. Die MIPAS-E-Validierung erfolgt unabhängig von dem hier verwendeten Modell mit Trajektorien, die basierend auf MIMOSA (Modélisation Isentrope du transport Méso-échelle de l'Ozone Stratospherique par Advection) [Hauchecorne et al., 2002] berechnet werden [siehe auch Payan et al., 2007].

<sup>8)</sup> Der geplante MIPAS-B2-Flug konnte wegen ungünstiger Bodenbedingungen nicht stattfinden.

unter variierenden atmosphärischen Bedingungen aufgenommen wurden. Im Rahmen des EU-Projektes SCOUT-O3 (Stratospheric-Climate Links with Emphasis on the Upper Troposphere and Lower Stratosphere) fand im Mai/Juni 2008 eine weitere tropische Ballonmesskampagne statt, bei der insgesamt 7 Ballonflüge durchgeführt wurden. Auch bei dieser Kampagne wurde die Flugplanung durch die trajektorienbasierte Ermittlung von Koinzidenzen zwischen den Ballonmessgeräten und den Instrumenten auf ENVISAT optimiert.

Für die MIPAS-B2-Flüge wurden während der Flugplanung neben den schon beschriebenen Matches z.T. auch Trajektorien berechnet, die an den MIPAS-ENVISAT-Messpunkten gestartet wurden. Durch die flexible Messgeometrie von MIPAS-B2 (siehe Kap. 3.3) ist es möglich, während eines Ballonfluges mehrere Messprofile an verschiedenen Orten aufzunehmen. In den meisten Fällen ließ sich so eine annähernd zeit- und ortsgleiche Ballonmessung zu einer MIPAS-E-Messung im direkten Umfeld des Kampagnenortes realisieren. Anhand der an den Satelliten-Messpunkten gestarteten Luftmassen-Trajektorien konnten für weiter entfernte MIPAS-E-Messungen Zeit und Ort der MIPAS-B2-Messung optimiert werden.

Im Anschluss an die durchgeführten Ballonmessungen wurden die Luftmassen-Trajektorien und die Matches mit den ENVISAT-Geräten neu berechnet (siehe Tab. 6.1). Das prinzipielle Vorgehen entspricht der in Abschnitt 6.1.2 beschriebenen Methode zur Vorhersage der Matches. Als Startpunkte für die Luftmassen-Trajektorien dienten die reale Ballontrajektorie (bei in-situ-Messgeräten) bzw. die Messpunkte, die von den jeweiligen Ballongruppen bereitgestellt wurden. Die Trajektorien wurden vorwärts- bzw. rückwärts für maximal 10 Tage berechnet. In einigen Fällen gab es während der Messkampagnen Ausfälle bei den ENVISAT-Geräten. Diese Ausfallzeiten werden von der ESA bekanntgegeben [ESA, 2006] und bei der Neu-Berechnung der Matches entsprechend berücksichtigt. Eine Übersicht über solche Zeiten ohne verfügbare Messungen von SCIAMACHY bzw. MIPAS-E findet sich in Anhang C.2. Mögliche Matches wurden entweder innerhalb eines Zeitraumes von 2 Tagen vor bzw. nach der Ballonmessung gesucht, oder – bei der Validierung von langlebigen Spurengasen – innerhalb von 5 Tagen. Die Matchkriterien wurden i. Allg. wie für die Vorhersage beschrieben angewendet (siehe Kap. 6.1.2: zeitlich eine Stunde, räumlich 500 Kilometer). Informationen zu den gefundenen ENVISAT-Messungen, die die Matchkriterien erfüllen, wurden als Text-Dateien gespeichert (siehe Beispiel in Abb. C.3) und an die jeweilige Ballongruppe weitergeleitet.

Der Vergleich zwischen dem Ballonprofil und den aus den ENVISAT-Messungen abgeleiteten Profilen wurde i. Allg. von der entsprechenden Ballongruppe durchgeführt. Für einige Spurengase (z.B.  $\text{NO}_2$ ,  $\text{BrO}$ ) ist aufgrund des stark ausgeprägten Tagesganges eine photochemische Korrektur entlang der Luftmassen-Trajektorie notwendig, die von den Ballongruppen realisiert wurde. Auf die photochemische Modellierung und den Einfluss der zugrundeliegenden Trajektorien auf die entsprechende Korrektur wird in Kapitel 6.3 anhand der  $\text{NO}_2$ -Validierung für SCIAMACHY-Limb-Messungen eingegangen. Die MIPAS-E-Validierung für die langlebigen Spurengase  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_4$  erfolgte abweichend von den anderen Validierungsvergleichen im Rahmen dieser Arbeit (vgl. Tab. 6.1). Die Ergebnisse werden im Kapitel 6.4 vorgestellt. Darüberhinaus wird im Fol-

genden der Einfluss der räumlichen Auflösung des Trajektorienmodelles und der Annahmen zum Vertikaltransport auf die Validierungsergebnisse diskutiert.

Die berechneten Trajektorien wurden nicht nur als Grundlage für die hier vorgestellte ENVISAT-Validierung genutzt. Sie dienten auch zur Untersuchung der Luftmassenherkunft [Laube et al., 2008] und als Ausgangspunkt für ein photochemisches Boxmodell, mit dem räumliche und zeitliche Variationen der NO<sub>y</sub>-Spurengasfamilie analysiert wurden [Wiegele et al., 2008; vgl. auch Abschnitt 2.4.2].

### 6.3. SCIAMACHY-Validierung für Ozon und NO<sub>2</sub> anhand von LPMA/DOAS-Messungen

In diesem Kapitel wird beispielhaft die Validierung der ENVISAT-Messungen anhand einzelner Profile vorgestellt. Mit Hilfe der Luftmassen-Trajektorien werden dazu Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den Satellitenmessungen gesucht, die sich über einen möglichst großen Höhenbereich – im Idealfall das gesamte Profil – erstrecken. Die anhand der Luftmassen-Trajektorien im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Matches bilden die Grundlage für die SCIAMACHY-Validierung für Ozon und NO<sub>2</sub> mit Hilfe von LPMA/DOAS-Messungen. Die Methode und die Ergebnisse dieser Validierung sind in Butz et al. [2006] bzw. Butz [2006] ausführlich beschrieben. Sie werden hier zusammenfassend wiedergegeben. Die gleiche Methode – ebenfalls basierend auf im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Matches – wurde von Dorf et al. [2006] für die SCIAMACHY-Validierung für Bromoxid (BrO) anhand von Ballon-Messungen angewendet (vgl. auch Tab. 6.1).

Den genannten Untersuchungen liegen Matches zugrunde, die basierend auf der räumlich geringer aufgelösten Version des Trajektorienmodelles der FU Berlin (2,5°x2,5°, L25) und anhand klimatologischer Erwärmungsraten ermittelt wurden (siehe Kap. 5). Zum Zeitpunkt der Untersuchungen lagen die aktuellen Erwärmungsraten aus SLIMCAT noch nicht vor und die räumlich höher aufgelöste Version des Trajektorienmodelles (1,25°x1,25°, L59) befand sich noch in der Testphase. Zum Abschluss des Kapitels wird die Sensitivität der Validierungsergebnisse bezüglich der zugrundeliegenden Trajektorien untersucht.

#### 6.3.1. Datenbasis und Methode

##### Spurengasprofile aus SCIAMACHY-Limb- und LPMA/DOAS-Spektren

Zur Ableitung von Spurengasprofilen aus den SCIAMACHY-Limb-Spektren werden unterschiedliche Algorithmen verwendet, die von verschiedenen Forschungsgruppen entwickelt und betrieben werden. Für die Ozon- und NO<sub>2</sub>-Validierung standen Daten des IUP Bremen (Christian von Savigny, Alexei Rozanov; O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>), des Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics (Christopher Sioris; NO<sub>2</sub>) und des IUP Heidelberg (Sven Kühl, Janis Pukite; NO<sub>2</sub>) zur Verfügung. Details zu den verwendeten Algorithmen sind in Butz et al. [2006] und in den dort genannten Referenzen zu

finden (siehe auch Abschnitt 3.2.1). Auch die Ableitung der Profile aus den LPMA- und DOAS-Ballonmessungen ist in Butz et al. [2006] bzw. den dort genannten Referenzen beschrieben (siehe auch Abschnitt 3.3.1 und Tab. 3.1). Die vertikale Auflösung von Satellitendaten ist abhängig vom zu ermittelnden Spurengas und i. Allg. geringer als die vertikale Auflösung von Ballonmessungen (vgl. Tab. 3.2). Um die Vergleichbarkeit der Messungen zu gewährleisten, wurden die DOAS-Profile entsprechend der vertikalen Auflösung von SCIAMACHY abgeleitet und geglättet [Details siehe Butz, 2006; Butz et al., 2006].

### **Ausgewertete LPMA/DOAS-Flüge und ermittelte SCIAMACHY-Limb-Koinzidenzen**

Für die hier vorgestellte Validierungsstudie wurden die Daten von fünf LPMA/DOAS-Flügen ausgewertet (siehe Tab. 6.2). Die der Validierung zugrundeliegenden Matches wurden mit der in Abschnitt 6.1.2 beschriebenen Methode anhand von Luftmassen-Trajektorien ermittelt. Die LPMA/DOAS-Flüge wurden so durchgeführt, dass nach der Ballonaufstiegsmessung eine Sonnenuntergangsmessung erfolgen konnte. Somit konnte je ein Match mit einer SCIAMACHY-Messung am Morgen vor dem Flug (anhand der Rückwärtstrajektorien) und ein Match mit einer SCIAMACHY-Messung am Morgen des folgenden Tages (anhand der Vorwärtstrajektorien) identifiziert werden. Diese Matches werden im Folgenden als Rückwärts- bzw. Vorwärts-Matches bezeichnet (in den Abbildungen englisch: backward/forward). Zum Teil erfüllen mehrere SCIAMACHY-Limb-Messungen die gewählten Matchkriterien (1 h, 500 km) in unterschiedlichen Höhenbereichen. In diesen Fällen wurde die SCIAMACHY-Messung für die Validierungsstudie ausgewählt, die im Höhenbereich zwischen 20 und 30 km die Matchkriterien am besten erfüllt und die der Ballonmessung zeitlich am nächsten ist. Konnte mit den angegebenen Matchkriterien keine für die Validierung geeignete SCIAMACHY-Messung identifiziert werden, dann wurde das räumliche Matchkriterium auf 1000 Kilometer erweitert (für den Flug am 09.10.2003 und die Sonnenuntergangsmessung am 17.06.2005). In Anhang C.4 sind die für die einzelnen LPMA/DOAS-Profile berechneten SCIAMACHY-Limb-Matches grafisch dargestellt.

Tabelle 6.2 gibt einen Überblick über die für die ENVISAT-Validierung durchgeführten LPMA/DOAS-Flüge und die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den SCIAMACHY-Limb-Messungen. Sie zeigt für jeden Ballonflug Ort und Zeit der Messungen, die geophysikalischen Bedingungen (vgl. auch Tab. 5.1), den Bereich des Sonnenzenitwinkels und die verfügbaren Datensätze für die Ballonmessungen. Für die SCIAMACHY-Limb-Messungen sind die Orbitnummer sowie Datum und Zeit der Messung aufgeführt. Außerdem ist der maximale zeitliche Abstand zwischen der Ballonmessung und der Satellitenmessung angegeben. Schließlich sind für zwei räumliche Matchkriterien (500 und 1000 km) der Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt sind, und der horizontale Abstand zwischen der Satellitenmessung und den Luftmassen-Trajektorien zum Zeitpunkt des Matches aufgeführt. Die ermittelten Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den Satellitenmessungen erstrecken sich – auch unter Berücksichtigung des räumlich erweiterten Kriteriums – nicht in jedem Fall über den Kernbereich der Validierung zwischen 20 und 30 km Höhe. Beispielsweise sind die Vorwärtsmatches für den 24.03.2004 auf Höhen von maximal 24 km beschränkt. Dies liegt zum einen an den im Abschnitt 6.1.1 erläuterten Restriktionen, denen die Durchführung eines Ballonfluges unterliegt. Zum ande-

Tab. 6.2.: LPMA/DOAS-Messungen und Koinzidenzen mit SCIAMACHY-Limb (SCIAL) basierend auf Luftmassen-Trajektorien (2,5°, L25)

Flugdatum/ Zeit [UT]	Ort	Geophysikalische Bedingungen <sup>1)</sup>	Verfügbare Daten <sup>2)</sup>	Koinzidenz mit SCIAL Orbit, Datum/Zeit [UT]	Max. zeitl. Abstand <sup>3)</sup> [h]	Höhen- bereich [km]	horizontaler Abstand [km]	Höhen- bereich [km]	horizontaler Abstand [km]
				<i>Kriterium: 500 km</i>					
04.03.2003 13:20–16:17	Kiruna 67,9°N; 21,1°E	HB, Frühjahr SZA: 71,1°–94,1°	SO: LPMA	5273, 04.03.2003 11:05 5285, 05.03.2003 07:17	-5,2 +15,6	20–30 23–24	369–496 498–499	14–31 18–30	369–694 498–981
23.03.2003 14:47–17:28	Kiruna 67,9°N; 21,1°E	HB, Frühjahr SZA: 78,9°–94,7°	BA: LPMA DOAS	5545, 23.03.2003 11:07 5558, 24.03.2003 09:01	-5,5 +17,5	18–28 19–29	268–496 10–495	6–32 15–31	268–800 10–976
09.10.2003 15:39–17:09	Air sur l'Adour 43,7°N; 0,3°W	MB, Herbst SZA: 72,0°–87,8°	SO: LPMA, DOAS BA: DOAS	5545, 23.03.2003 11:07 5558, 24.03.2003 09:01 8407, 09.10.2003 09:51 8421, 10.10.2003 09:20	-6,2 +16,2 -6,5 +17,2	20–30 17–22; 28–30 – –	63–458 256–453 – –	16–32 17–32 17–31 25–33	63–811 256–977 738–988 547–977
24.03.2004 14:04–17:31	Kiruna 67,9°N; 21,1°E	HB, Frühjahr SZA: 74,5°–95,3°	BA: DOAS SO: DOAS	10798, 24.03.2004 10:35 10812, 25.03.2004 10:04 10798, 24.03.2004 10:35 10812, 25.03.2004 10:04	-5,4 +19,9 -6,9 +16,9	12–33 6–16 10–33 10–20	371–499 32–485 191–436 301–475	6–33 6–22 10–33 10–24	371–553 32–984 191–436 301–967
17.05.2005 18:32–21:13	Teresina 5,1°S; 42,9°W	Tropen SZA: 60,6°–95,8°	BA: DOAS SO: DOAS	17240, 17.06.2005 11:53 17255, 18.06.2005 13:02 17240, 17.06.2005 11:53 17255, 18.06.2005 13:02	-8,3 +18,4 -9,1 +16,2	25–30 5–11; 20–23; 31–33 – 8–15; 19–22; 32–33	313–489 6–492 – 9–485	22–32 5–14; 18–24; 29–33 23–32 8–23; 32–33	313–949 6–989 519–971 9–982

<sup>1)</sup> HB: Hohe Breiten, MB: Mittlere Breiten

<sup>2)</sup> SO: Sonnenokultationsmessung, BA: Messungen während des Ballonaufstieges

<sup>3)</sup> Angegeben ist der maximale zeitliche Abstand zwischen der Ballonmessung und der SCIAMACHY-Limb-Messung für den Höhenbereich, in dem die Matchkriterien von 1000 km und 1 h erfüllt sind. Die Zeiten weichen um maximal 0,3 h von den bei Butz [2006] angegebenen Zeiten ab, da dort i. Allg. der maximale zeitliche Abstand für ein räumliches Matchkriterium von 500 km aufgeführt ist.

ren ist es schwierig, alle vier möglichen Koinzidenzen (jeweils für Ballonaufstiegs- und Sonnenuntergangsmessung Vorwärts- und Rückwärtsmatch) zu optimieren. Wie aus Tabelle 6.2 ersichtlich ist, wurden die LPMA/DOAS-Ballonflüge unter unterschiedlichen Bedingungen zu verschiedenen Jahreszeiten durchgeführt. Die Validierung umfasst damit einen großen Bereich variierender meteorologischer Bedingungen, die einen Einfluss auf die Ableitung der Spurengasprofile aus den vom Satelliteninstrument gemessenen Spektren haben (vgl. auch Kap. 3.4).

### Photochemische Modellierung

Für reaktive Spurengase, wie z.B.  $\text{NO}_2$  (siehe Abschnitt 2.4.2), muss bei nicht zeitgleichen Messungen der Tagesgang des Gases bei der Validierung berücksichtigt werden. Auf die dafür notwendige photochemische Modellierung, die basierend auf den im Rahmen dieser Arbeit berechneten Trajektorien erfolgt, wird im Folgenden eingegangen. Die Sensitivität der photochemischen Modellierung bezüglich der zugrundeliegenden Trajektorien wird in Abschnitt 6.3.4 diskutiert.

Bedingt durch die Sichtgeometrie der LPMA/DOAS-Messungen ist es nicht möglich, eine zum ENVISAT-Überflug zeitgleiche Messung zu realisieren. Damit erfolgen die Ballonmessungen in jedem Fall unter einer anderen Sonneneinstrahlung als die SCIAMACHY-Messungen, so dass zwischen der Ballonmessung und der Satellitenmessung photochemische Reaktionen auftreten können. Bei Spurengasen mit Tagesgang wie  $\text{NO}_2$  oder  $\text{BrO}$  ergeben sich daraus signifikante Änderungen der Konzentration, die bei der Validierung berücksichtigt werden müssen. Für Spurengase, die auf der hier betrachteten Zeitskala von einem Tag inert sind, können photochemische Reaktionen vernachlässigt werden. Dies ist z.B. für Ozon der Fall, das im untersuchten Höhenbereich im Tagesverlauf kaum Variationen unterliegt. In Abbildung 6.4a ist die Ozonkonzentration in Abhängigkeit von der Höhe und vom Sonnenzenitwinkel während der LPMA/DOAS-Sonnenuntergangsmessung am 23.03.2003 in Kiruna (hohe Breiten) dargestellt. Für die Ozonkonzentration im Verlauf des Tages ergibt sich ein äquivalentes Bild [siehe Butz, 2006]. Die Abbildung zeigt außerdem die Sichtlinien (schwarz bzw. rot gestrichelt, englisch: line-of-sight, LOS) der LPMA/DOAS-Messung. Eine Sichtlinie ist in Abbildung 6.4b schematisch dargestellt, um die variierenden Bedingungen entlang der Sichtlinie zu verdeutlichen (vgl. auch Abb. 3.6). Jeder Punkt entlang der Sichtlinie entspricht einem spezifischen lokalen Sonnenstand und damit anderen photochemischen Bedingungen. Das vom Balloninstrument aufgenommene Spektrum setzt sich daher aus Spurengasdichten zusammen, die unter unterschiedlichen photochemischen Bedingungen entstehen. Am Tangentenpunkt (im Beispiel für die rot gestrichelte Sichtlinie in ca. 20 km Höhe), an dem der Abstand zwischen der Sichtlinie und der Erdoberfläche minimal ist, beträgt der lokale Sonnenzenitwinkel bei Okkultationsmessungen definitionsgemäß  $90^\circ$ . An Sichtlinienpunkten, die im Vergleich zum Tangentenpunkt näher am Ballongerät liegen, ist der lokale Sonnenzenitwinkel größer als  $90^\circ$ ; an Sichtlinienpunkten, die näher zur Sonne liegen, ist er entsprechend kleiner als  $90^\circ$  (siehe Abb. 6.4). Luftschichten unterhalb der Ballonflughöhe werden dementsprechend von der Sichtlinie zweimal unter differierenden Sonnenzenitwinkeln erfasst. Die Ballonflughöhe ist während der Sonnenuntergangsmessung annähernd konstant. Die

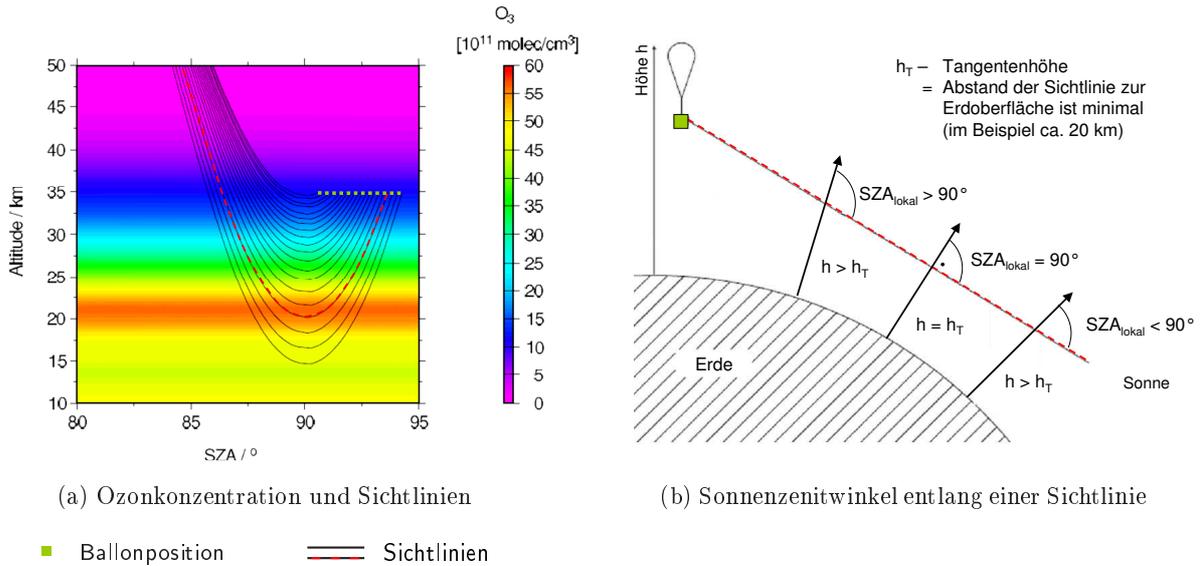


Abb. 6.4.: (a) Ozonkonzentration (modelliert mit SLIMCAT) und Sichtlinien während der LPMA/DOAS-Sonnenuntergangsmessung am 23.03.2003 als Funktion des Sonnenzenitwinkels (SZA) [modifiziert nach Butz, 2006] und (b) schematische Darstellung des Sonnenzenitwinkels entlang einer Sichtlinie

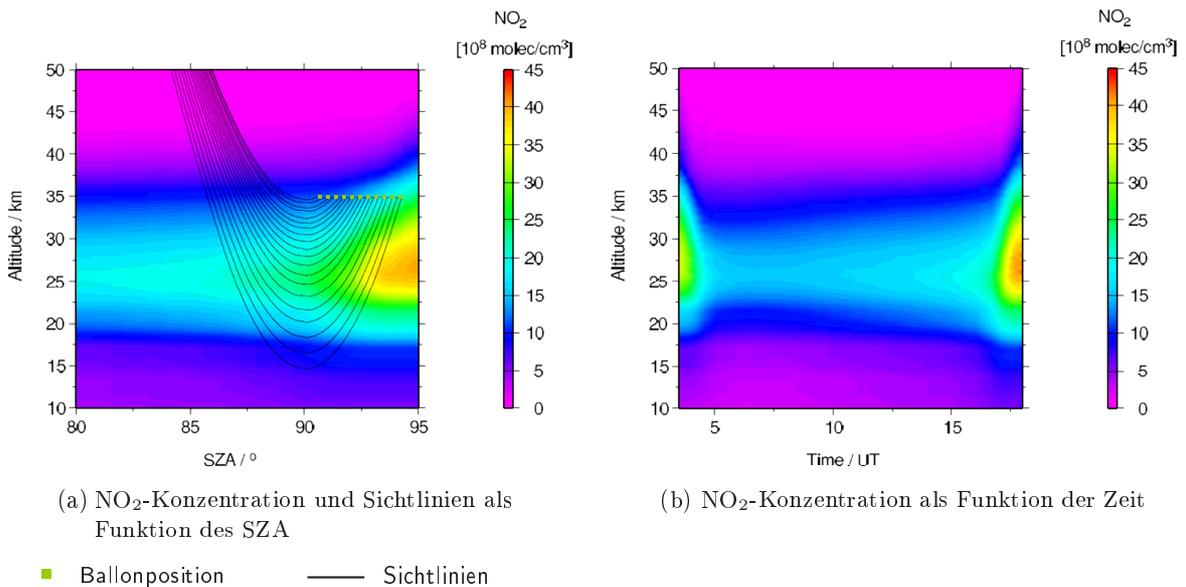


Abb. 6.5.: NO<sub>2</sub>-Konzentration (modelliert mit SLIMCAT) während der LPMA/DOAS-Sonnenuntergangsmessung am 23.03.2003 [Butz, 2006]: (a) als Funktion des Sonnenzenitwinkels (SZA) inklusive der LPMA/DOAS-Sichtlinien und (b) als Funktion der Zeit

Ballonposition erscheint in Abbildung 6.4a auf einer Gerade liegend, die den aufgrund des Sonnenunterganges zunehmenden Sonnenzenitwinkel am Ballonmessgerät beschreibt.

Die unterschiedlichen Sonnenzenitwinkel entlang einer Sichtlinie haben für auf der betrachteten Zeitskala inerte Spurengase wie Ozon keine Auswirkungen bei der Ableitung der Spurengasprofile, da die Konzentrationen in den einzelnen Höhenschichten unabhängig vom lokalen Sonnenzenitwinkel sind. Für reaktive Spurengase wie NO<sub>2</sub> wird die korrekte Ableitung der Profil-

information aus den gemessenen Spektren erschwert, da sich in diesem Fall das Spurengasprofil im Verlauf der Ballonmessung und in Abhängigkeit vom lokalen Sonnenzenitwinkel verändert. Dies ist in Abbildung 6.5a für  $\text{NO}_2$  wiederum für den 23.03.2003 dargestellt. Abbildung 6.5b zeigt die mit SLIMCAT modellierte  $\text{NO}_2$ -Konzentration im Höhenbereich zwischen 10 und 50 km im Verlauf desselben Tages.

Um der Variabilität von  $\text{NO}_2$  Rechnung zu tragen, wird ein eindimensionales Chemie-Modell verwendet, das mit den Ergebnissen eines Modellaufes des dreidimensionalen Chemie-Transport-Modelles SLIMCAT initialisiert wird. Das Chemie-Modell LABMOS ist z.B. in Dorf [2005] beschrieben. Informationen zum verwendeten SLIMCAT-Lauf und zu den Spezifikationen für die  $\text{NO}_2$ -Modellierung finden sich bei Butz [2006] bzw. Butz et al. [2006]. Das 1D-Modell wird für einzelne  $\Theta$ -Flächen mit festen Druck- und Temperaturwerten betrieben. Die zeitliche Entwicklung des Sonnenzenitwinkels wird aus einer für den Höhenbereich des Matches repräsentativen Luftmassen-Trajektorie vorgegeben. Die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Trajektorien beeinflussen somit die vom 1D-Modell berechneten Spurengaskonzentrationen (siehe Abschnitt 6.3.3). Die so modellierten Spurengaskonzentrationen dienen dazu, die Ballonmessungen auf die während der SCIAMACHY-Messungen herrschenden photochemischen Bedingungen umzurechnen. Dabei werden jeweils für eine bestimmte Höhe und unterschiedliche Sonnenzenitwinkel Wichtungsfaktoren ermittelt, die die für die Ballon- und Satellitenmessung differierenden Sonnenzenitwinkel berücksichtigen. Die SCIAMACHY-Limb-Messungen dauern nur wenige Minuten und finden nicht während eines Sonnenauf- oder -unterganges statt, so dass für die SCIAMACHY-Profile ein konstanter Sonnenzenitwinkel angenommen werden kann. Die anhand des photochemischen Modelles berechneten Wichtungsfaktoren fließen in die Ableitung der Spurengasprofile aus den Ballonspektren ein. Näheres dazu ist z.B. in Butz [2006] beschrieben.

Die Sensitivität der photochemischen  $\text{NO}_2$ -Modellierung bezüglich verschiedener Parameter wurde von Butz et al. [2006] bzw. Butz [2006] für den Flug am 24.03.2004 (Kiruna) untersucht. Dabei wurde u.a. das Ozonprofil (-33 %, +50 %), das Ozon oberhalb der betrachteten Höhe ( $\pm 74$  %), die Temperatur für jede einzelne  $\Theta$ -Fläche ( $\pm 7$  K) sowie die Geschwindigkeitskonstanten ( $\pm 20$  %) der Reaktionen R 2.21 und R 2.23, die das Verhältnis zwischen NO und  $\text{NO}_2$  bestimmen, in verschiedenen Modellläufen variiert. Der aus diesen Sensitivitätsstudien abgeleitete Gesamtfehler des ermittelten  $\text{NO}_2$ -Profils steigt von weniger als 10 % in der Ballonflughöhe auf ca. 20 % in 20 km Höhe an. In diesem Bereich wird der Fehler durch Faktoren bestimmt, die die Photolysereaktion von  $\text{NO}_2$  (R 2.23) beeinflussen. Der Fehler steigt mit sinkender Höhe weiter an. Er beträgt in 15 km Höhe bis zu 30 % und unterhalb von 15 km bis zu 50 % und wird hier durch die Sensitivität der  $\text{NO}_x$ -Chemie zum vorgegebenen Ozonprofil dominiert. Ein möglicher Einfluss der zugrundeliegenden Trajektorien wurde im Rahmen der Sensitivitätsstudien nur indirekt über die Änderung der Temperatur abgeschätzt. In Abschnitt 6.3.3 wird anhand eines Beispiels der direkte Einfluss der Trajektorien auf die photochemische Modellierung untersucht. Außerdem werden die Annahmen zur Temperaturänderung hinsichtlich der zugrundeliegenden Trajektorien anhand der Ergebnisse aus Kapitel 5 überprüft.

### 6.3.2. Validierungsergebnisse für O<sub>3</sub> und NO<sub>2</sub>

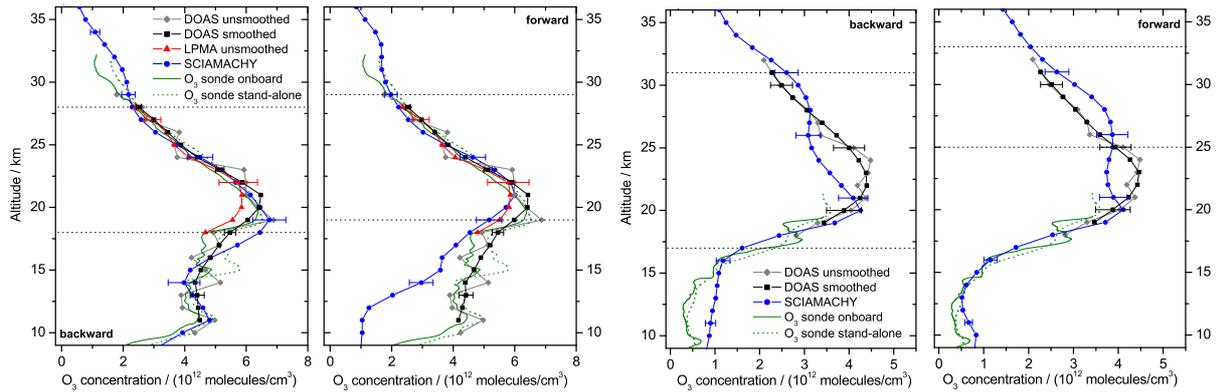
Im folgenden Abschnitt werden einzelne Beispiele sowie zusammenfassende Abbildungen für die O<sub>3</sub>- und NO<sub>2</sub>-Validierung gezeigt, die auf den im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Matches beruhen. Butz [2006] bzw. Butz et al. [2006] führen die vollständigen Vergleiche zwischen den LPMA/DOAS-Profilen und den SCIAMACHY-Limb-Messungen für die genannten Spurengase auf. In den Abbildungen für die Ozon-Validierung sind für die Ballonmessungen Profile in der vollen vertikalen Auflösung (in den folgenden Abbildungen englisch: *unsmoothed*) und Profile, die durch Glättung an die vertikale Auflösung der SCIAMACHY-Messungen angepasst wurden (englisch: *smoothed*), dargestellt. Soweit vorhanden, sind außerdem die Messwerte einer elektrochemischen Ozonsonde, die sich während des Ballonfluges auf der LPMA/DOAS-Gondel befand (englisch: *O<sub>3</sub> sonde onboard*) bzw. die während des Ballonfluges am Kampagnenort gestartet wurde (englisch: *O<sub>3</sub> sonde stand-alone*), aufgeführt. Entsprechend werden für NO<sub>2</sub> ungeglättete, unkorrigierte (englisch: *uncorrected*) sowie anhand der photochemischen Modellierung korrigierte (englisch: *corrected*) Ballonprofile gezeigt. Die Fehlerbalken geben die aus der Fehlerfortpflanzung nach Gauss ermittelten Gesamtfehler an. Die Fehler für die einzelnen Messungen setzen sich aus den Messfehlern, Fehlern im Algorithmus zur Profilableitung und gegebenenfalls Fehlern aus der photochemischen Modellierung zusammen und umfassen somit sowohl zufällige als auch systematische Fehler. Entsprechend beschreibt der kombinierte Fehler  $\sigma_{komb}$  den aus den Fehlern der zu vergleichenden Messgeräte bestimmten Gesamtfehler:

$$\sigma_{komb} = \sqrt{\sigma_{Validierung}^2 + \sigma_{Referenz}^2}, \quad (6.1)$$

wobei  $\sigma_{Validierung}$  für das zu validierende Messinstrument – hier SCIAMACHY – und  $\sigma_{Referenz}$  für das Referenzmessgerät – hier DOAS – steht. Der kombinierte Fehler kann als absoluter oder relativer Fehler angegeben werden. Differenzen zwischen den beiden Messgeräten, die größer als der kombinierte Fehler sind, implizieren eine systematische Messabweichung des zu validierenden Messgerätes. In den Abbildungen, die den Vergleich einzelner Profile zeigen, ist zusätzlich jeweils der Höhenbereich dargestellt, in dem die Matchkriterien erfüllt sind. Dabei wird i. Allg. der Höhenbereich für das räumliche Kriterium von 500 km gezeigt. In den Fällen, die erst mit dem räumlichen Kriterium von 1000 km eine Koinkidenz ergeben, ist der Höhenbereich für dieses Kriterium dargestellt (vgl. Tab. 6.2).

#### O<sub>3</sub>-Validierung

Die interne Übereinstimmung zwischen den LPMA- und den DOAS-Messungen beträgt für Ozon  $\pm 10\%$  [Butz et al., 2006]. Zwischen 20 und 30 km Höhe liegen die Abweichungen der vom IUP Bremen ermittelten SCIAMACHY-Profilen von den Ballonprofilen in den meisten Fällen im Bereich von  $\pm 20\%$ . Wie in Abbildung 6.6 zu erkennen ist, treten sowohl Fälle mit einer annähernd perfekten Übereinstimmung als auch Fälle mit großen Abweichungen von bis zu 30% auf. Während die SCIAMACHY-Profilen für den 23.03.2003 zwischen ca. 23 und 28 km sowohl für den Rückwärts- als auch für den Vorwärtsmatch sehr gut mit den Ballonmessungen übereinstim-

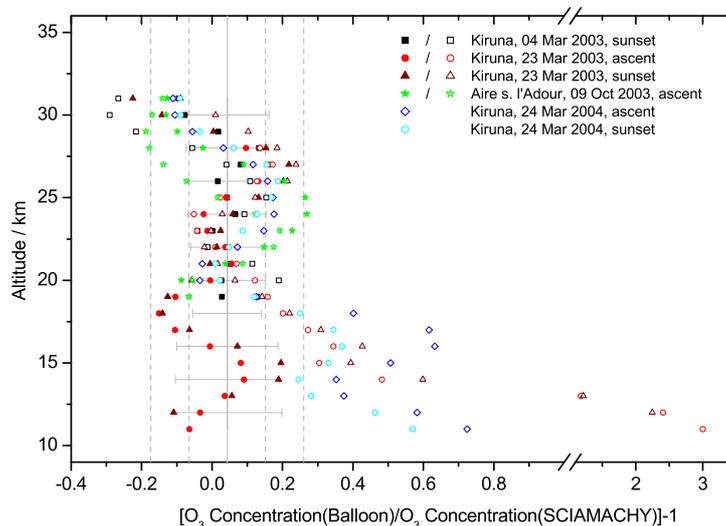


(a) Kiruna, 23.03.2003, Ballonaufstieg

(b) Air sur l'Adour, 09.10.2003, Ballonaufstieg

----- Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt sind (siehe Tab. 6.2 und Text S. 147)

Abb. 6.6.: Beispiele für den Vergleich der Ozonprofile aus LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen [Butz, 2006]



für 20–31 km: — Mittelwert    - - - Standardabweichung ( $\sigma$  bzw.  $2\sigma$ )

— kombinierter Fehler; ausgefüllte Symbole: Rückwärtsmatches, offene Symbole: Vorwärtsmatches

Abb. 6.7.: Relative Abweichungen zwischen LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen für Ozon [Butz, 2006]

men (Abb. 6.6a), zeigen sich für den 09.10.2003 (Abb. 6.6b) schon im Profilverlauf deutliche Unterschiede.

In Abbildung 6.7 sind die relativen Abweichungen zwischen den LPMA/DOAS- und den SCIAMACHY-Limb-Messungen für Ozon dargestellt. Hier ist erkennbar, dass die Satellitenwerte zwischen 24 und 28 km systematisch kleiner sind als die Ballondaten. Oberhalb und unterhalb des genannten Höhenbereiches nehmen die Differenzen ab; z.T. lassen sich hier negative relative Abweichungen feststellen, die eine Überschätzung der Ozonkonzentration durch die SCIAMACHY-Profile im Vergleich zu den Ballonmessungen bedeuten. Solche oszillierenden Abweichungen der vom IUP Bremen abgeleiteten Ozonprofile von Referenzdatensätzen wurden auch in anderen Validierungsvergleichen festgestellt [Brinksmas et al., 2006]. Der kombinierte Fehler aus den Satelliten-

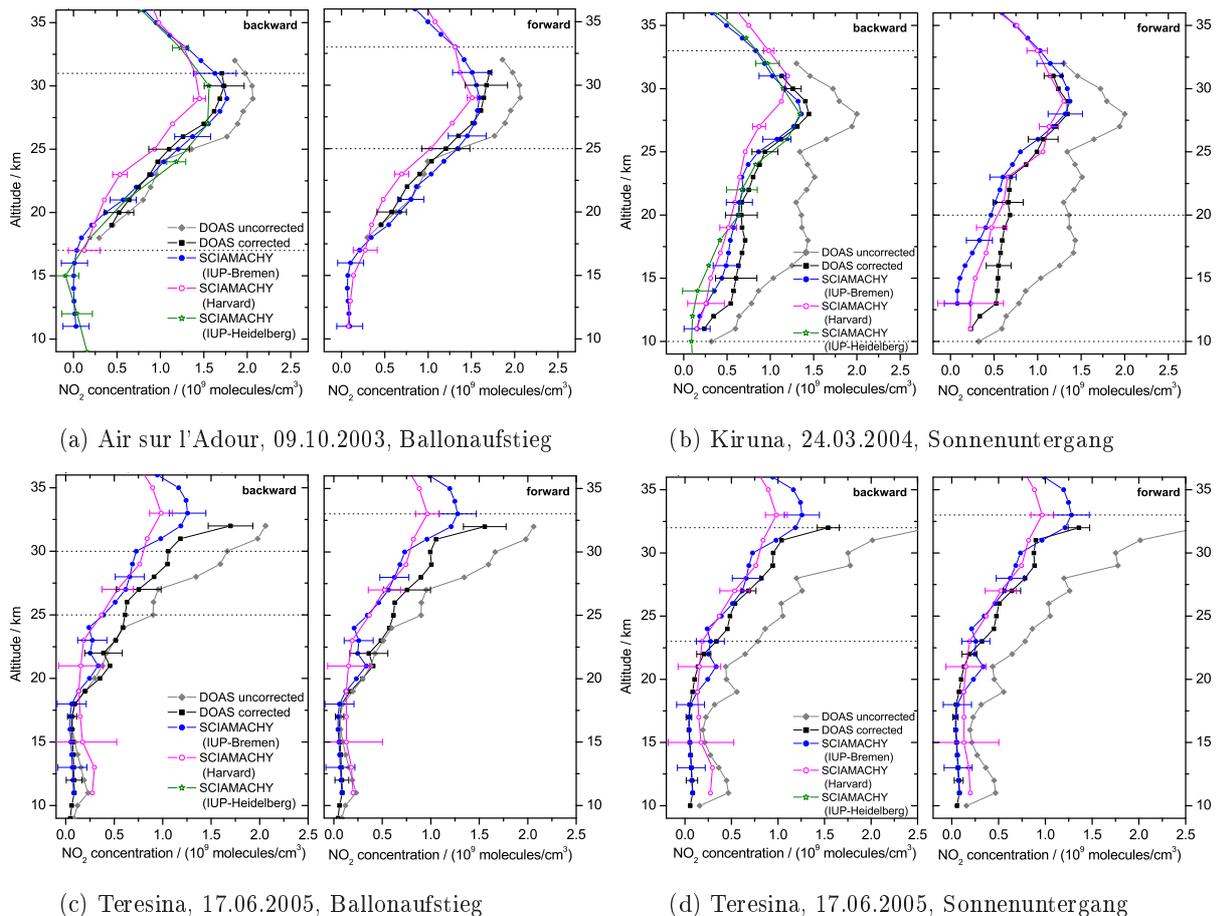
und Ballonmessungen (Fehlerbalken in Abb. 6.7) liegt zwischen 20 und 30 km im Bereich der einfachen Standardabweichung. Einige Datenpunkte, bei denen die Differenzen größer sind als der kombinierte Fehler, deuten jedoch auf eine systematische Abweichung der Satellitendaten von den Ballondaten hin.

Unterhalb von 20 km sind die SCIAMACHY-Profile fast immer systematisch kleiner als die Ballon-Profile. In einigen Fällen lassen sich erhebliche Abweichungen feststellen (bei den Messungen am 23.03.2003 und am 24.03.2004, siehe Abb. 6.7). Zum Teil sind die großen relativen Abweichungen durch die geringen absoluten Ozonkonzentrationen in diesem Höhenbereich begründet. Darüberhinaus wird die Ableitung der Konzentration unterhalb des Spurengasmaximums prinzipiell erschwert, da das vom Sensor empfangene Signal aus den unteren Höhen durch das vom Spurengasmaximum induzierte Signal überlagert wird. Daher steigen die Fehler unterhalb des Ozonmaximums an. Wahrscheinlich sind für die Differenzen zwischen den Ballon- und den SCIAMACHY-Profilen unterhalb von 20 km aber auch Inhomogenitäten oder kleinskalige Strukturen im Ozonfeld verantwortlich. Die Ballonflüge am 23.03.2003 und am 24.03.2004 fanden nah am Rand des Polarwirbels statt, wo große Gradienten in der Ozonkonzentration auftreten. Dabei kann die Ozonkonzentration auch innerhalb der festgelegten räumlichen Matchkriterien von 500 bzw. 1000 km variieren und zu Unterschieden zwischen den Ballon- und den SCIAMACHY-Profilen führen. Kleinskalige Strukturen können außerdem von SCIAMACHY nicht erfasst werden, da die SCIAMACHY-Messungen einen Mittelwert über einen relativ großen horizontalen Bereich (ca. 960 x 400 km, siehe Tab. 3.2) darstellen. Räumliche Inhomogenitäten der Spurengasverteilung entlang der Sichtlinie bilden darüberhinaus eine Fehlerquelle bei der Ableitung von Säulendichten bzw. von Spurengasprofilen [vgl. Swartz et al., 2006].

### NO<sub>2</sub>-Validierung

Die Differenzen zwischen den LPMA- und den DOAS-Messungen für NO<sub>2</sub> liegen in einem Bereich von  $\pm 20\%$  [Butz et al., 2006]. Die interne Übereinstimmung zwischen den verschiedenen SCIAMACHY-Profilen ist variabel (siehe Abb. 6.8). Die vom IUP Bremen und vom IUP Heidelberg abgeleiteten SCIAMACHY-Werte zeigen i. Allg. eine gute Übereinstimmung. Größere Abweichungen zwischen beiden treten bei der Messung am 09.10.2003 um 30 km (siehe Abb. 6.8a) und am 24.03.2004 unterhalb von 20 km auf (siehe Abb. 6.8b). Das Harvard-Profil weist um das NO<sub>2</sub>-Maximum häufig kleinere Werte auf als die vom IUP Bremen ermittelten Daten (siehe Abb. 6.8a,c-d). Bei den Rückwärtsmatches für den 24.03.2004 ist das Harvard-Profil im Vergleich zu den beiden anderen Satelliten-Profilen um ca. +2 bis +3 km verschoben (siehe Abb. 6.8b für die Sonnenuntergangsmessung).

Die Unterschiede zwischen den Ballon- und den Satellitendaten werden im Folgenden anhand der vom IUP Bremen abgeleiteten Profile diskutiert. Die Ergebnisse für die IUP-Heidelberg- und die Harvard-Profile können analog abgeleitet werden. In hohen und mittleren Breiten zwischen 20 und 30 km liegt die Übereinstimmung von Ballon- und Satellitenwerten bei  $\pm 20\%$  und damit im Bereich des kombinierten Fehlers (siehe Abb. 6.9). Für die Messungen in den Tropen am 17.06.2005 sind die SCIAMACHY-Werte – abgesehen von einem kleinen Bereich um 20 km



(a) Air sur l'Adour, 09.10.2003, Ballonaufstieg

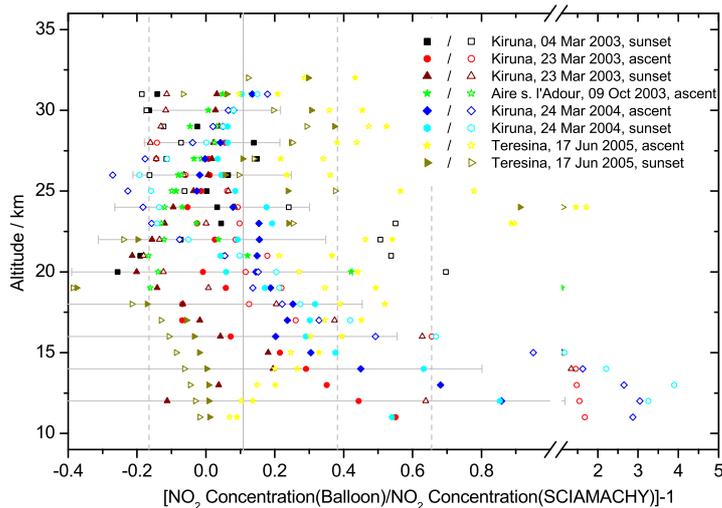
(b) Kiruna, 24.03.2004, Sonnenuntergang

(c) Teresina, 17.06.2005, Ballonaufstieg

(d) Teresina, 17.06.2005, Sonnenuntergang

----- Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt sind (siehe Tab. 6.2 und Text S. 147)

Abb. 6.8.: Beispiele für den Vergleich der NO<sub>2</sub>-Profile aus LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen [Butz, 2006]



für 20–31 km: — Mittelwert    - - - Standardabweichung ( $\sigma$  bzw.  $2\sigma$ )

— kombinierter Fehler; ausgefüllte Symbole: Rückwärtsmatches, offene Symbole: Vorwärtsmatches

Abb. 6.9.: Relative Abweichungen zwischen LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen für NO<sub>2</sub> [Butz, 2006]

bei der Sonnenuntergangsmessung (Abb. 6.8d) – systematisch kleiner als die Ballonwerte. Die Differenzen für die tropische Validierung zwischen 20 und 30 km übertreffen die für die anderen Validierungsfälle festgestellten Abweichungen z.T. erheblich. Dies wird besonders in Abbildung 6.9 deutlich.

Butz [2006] diskutiert mögliche Ursachen für diese im Vergleich zu den anderen Validierungsfällen ungewöhnlich hohen Differenzen und mögliche Fehler in den DOAS-Profilen. Er vergleicht die aus den Ballonaufstiegen und den Sonnenuntergangsmessungen abgeleiteten DOAS-Profile für die Fälle, in denen für beide Messungen die gleiche SCIAMACHY-Limb-Messung als Koinzidenz zur Ballonmessung ermittelt wurde (23.03.2003 und 24.03.2004, Kiruna sowie 17.06.2005, Teresina). Die berechneten Trajektorien implizieren hier also, dass während des Ballonaufstieges und des Sonnenunterganges vom Ballongerät identische Luftmassen beprobt wurden und dieselben Luftmassen am Morgen vor dem Flug (für die Rückwärtsmatches) bzw. am Morgen des nächsten Tages (für die Vorwärtsmatches) auch von einer SCIAMACHY-Limb-Messung erfasst wurden. Die beiden DOAS-Messungen zum Ballonaufstieg und zum Sonnenuntergang müssten also – bei NO<sub>2</sub> nach der Anwendung der photochemischen Korrektur – übereinstimmen. Gibt es Abweichungen zwischen beiden Ballonprofilen, dann deutet dies auf horizontale Inhomogenitäten, Fehler bei der photochemischen Korrektur oder Fehler bei der Messung und Ableitung der Spurengaskonzentrationen hin.

Die Ozonprofile stimmen in allen drei Fällen oberhalb von 20 km sehr gut überein. Damit können horizontale Inhomogenitäten – beim Transport bzw. in den Spurengasfeldern – als Fehlerquelle mit hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden. In hohen Breiten zeigen auch die photochemisch korrigierten NO<sub>2</sub>-Profile oberhalb von 20 km kaum Differenzen zwischen der Ballonaufstiegs- und der Sonnenuntergangsmessung. Für die Untersuchung in den Tropen sind die aus dem Sonnenuntergang ermittelten, photochemisch korrigierten Profile zwischen ca. 18 und 31 km erheblich kleiner als die entsprechenden Ballonaufstiegswerte. Die Ursache für diese Diskrepanzen ist unklar. Auch die weiteren von Butz [2006] diskutierten möglichen Fehlerquellen (größerer Messfehler aufgrund der geringen optischen Dicke in den Tropen, Unsicherheiten bei der Bestimmung des Sonnenspektrums sowie fehlerhafte Einstellung des Chemie-Modelles) können entweder die Unterschiede nicht erklären oder sie konnten nach Überprüfung (Einstellung des Chemie-Modelles auf tropische Breiten) ausgeschlossen werden.

Die SCIAMACHY-Profile sind in den Tropen oberhalb von ca. 22 km für alle Vergleiche (für die Ballonaufstiegs- und Sonnenuntergangsmessung sowohl für die Vorwärts- als auch für die Rückwärtsmatches) kleiner als die Ballonprofile. Trotz der beschriebenen Unsicherheiten der ermittelten NO<sub>2</sub>-DOAS-Profile deutet dies auf eine systematische Unterschätzung der tatsächlichen Werte durch die aus den SCIAMACHY-Limb-Messungen abgeleiteten NO<sub>2</sub>-Konzentrationen hin.

Unter 20 km Höhe steigt der kombinierte relative Fehler (Fehlerbalken in Abb. 6.9) schnell mit abnehmender Höhe an, da hier die absoluten NO<sub>2</sub>-Konzentrationen sehr klein sind (vgl. Abb. 6.8). Wie schon bei Ozon sind die Differenzen zwischen den SCIAMACHY- und den LPMA/DOAS-Profilen für die Messungen in hohen Breiten im März wahrscheinlich z.T. auf horizontale Inhomogenitäten zurückzuführen. So zeigen Pukite et al. [2008], dass sich insbesondere bei Messungen in der Nähe des Polarwirbelrandes realistischere SCIAMACHY-Profile ergeben,

wenn mögliche horizontale Gradienten bei der Ableitung der Limb-Profile anhand eines neuen 2-dimensionalen Algorithmus berücksichtigt werden. Im Vergleich zum üblicherweise angewendeten eindimensionalen Algorithmus stellen sie bei horizontal inhomogenen  $\text{NO}_2$ -Konzentrationen typische Unterschiede von 20 % im Bereich des  $\text{NO}_2$ -Maximums fest, die mit abnehmender Höhe ansteigen. Die relativen Abweichungen der SCIAMACHY-Werte von den Ballonwerten betragen unterhalb von 15 km häufig mehr als 50 %. Obwohl der kombinierte Fehler oft in derselben Größenordnung wie die ermittelten Differenzen liegt, ist eine systematische Unterschätzung der Ballonmessungen durch die SCIAMACHY-Daten offensichtlich (siehe Abb. 6.9).

### 6.3.3. Sensitivität der SCIAMACHY-Limb-Koinzidenzen bezüglich der zugrundeliegenden Trajektorien

Um den Einfluss der verwendeten Trajektorien auf die Validierungsergebnisse zu untersuchen, wurden alle Trajektorien mit der räumlich höher aufgelösten Version des FUB-Modelles erneut berechnet. Diese Version des Trajektorienmodelles verwendet operationelle ECMWF-Daten mit einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  als meteorologische Eingangswerte und verfügt über 59 vertikale Flächen (L59, siehe Abb. 5.3). Soweit vorhanden wurden die aktuellen Erwärmungsraten aus SLIMCAT zur Beschreibung des Vertikaltransportes verwendet (siehe Tab. 5.1 auf S. 85). Andernfalls wurden klimatologische Erwärmungsraten benutzt. Mit den neu berechneten Trajektorien wurden die Koinzidenzen der SCIAMACHY-Limb-Messungen mit den Ballonmessungen für alle hier vorgestellten Fälle berechnet. Die horizontalen Unterschiede in der Trajektorienposition, die sich aus dem Vergleich der räumlich höher aufgelösten FUB-Modellversion ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59) mit der geringer aufgelösten FUB-Modellversion ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25) ergeben, liegen in derselben Größenordnung wie die Differenzen zwischen dem FUB-Modell und den anderen Trajektorienmodellen (AWI, CLaMS, siehe Abschnitt 5.5.1). Damit ist hier auch eine Einschätzung möglich, inwieweit sich die ermittelten Matches bei der Verwendung anderer Trajektorienmodelle von den hier berechneten Koinzidenzen unterscheiden können.

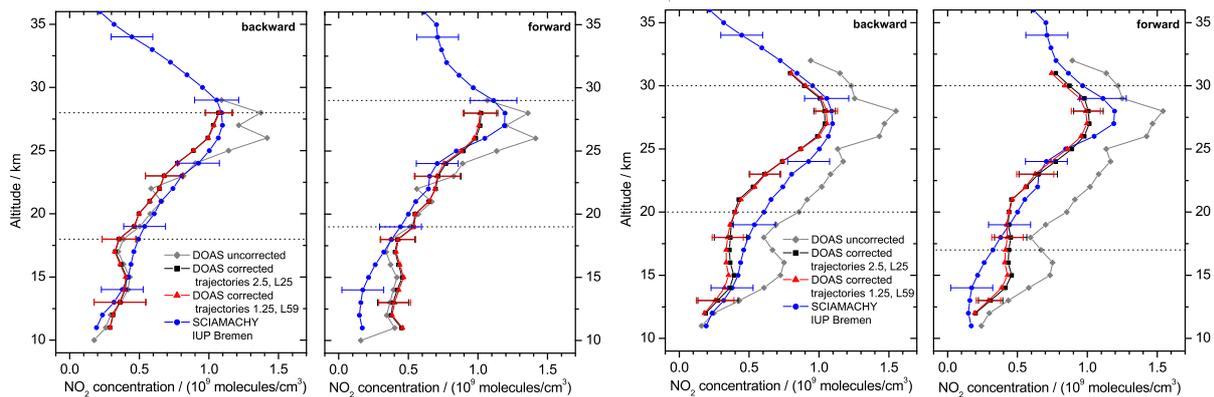
Auf der Basis der neu berechneten Trajektorien ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59) wurden in allen Fällen dieselben SCIAMACHY-Limb-Messungen als Matches ermittelt wie mit den geringer aufgelösten Trajektorien ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25). Nur in Ausnahmefällen verändert sich der Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt sind (für den Ballonaufstieg am 24.03.2004 von 12–33 km auf 16–33 km, bei weiteren 5 Matches um 1 km). Aufgrund der Sensitivitätsstudien zum Trajektorienmodell der FU Berlin (siehe Kap. 5.2 und Kap. 5.5) konnte dieses Ergebnis erwartet werden. Der maximale zeitliche Abstand zwischen den Ballon- und den Satellitenmessungen ist kleiner als 1 Tag (siehe Tab. 6.2). Oberhalb von 380 K (je nach geografischer Breite und meteorologischen Bedingungen zwischen 12,5 und 17 km, vgl. Abb. 5.1) beträgt der maximale mittlere Abstand zwischen den in Kapitel 5 untersuchten Trajektorien nach einem Tag weniger als 100 km (siehe Abb. 5.20). Die maximale Fehlerwahrscheinlichkeit für Abweichungen zwischen diesen Trajektorien, die mehr als 250 km betragen, ist oberhalb von 380 K kleiner als 1 % (siehe Abb. 5.19). Für die Validierungsstudien wurden Satelliten-Messungen ausgewählt, die die Matchkriterien über einen relativ großen Höhenbereich erfüllen. Hauptaugenmerk lag dabei auf einer Koinzidenz zwischen 20 und

30 km Höhe (vgl. Tab. 6.2), so dass in erster Linie mögliche horizontale Differenzen zwischen den oberhalb von 380 K berechneten Trajektorien einen Einfluss auf die ermittelten Matches haben. Dementsprechend werden basierend auf den unterschiedlichen Trajektorien dieselben Matches ermittelt und die Differenzen im Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt werden, sind i. Allg. gering. Den Untersuchungen zur Trajektoriengüte im Kapitel 5 liegen jeweils operationelle ECMWF-Daten auf Standard-Druckflächen zugrunde. Auch die Art der meteorologischen Eingangsdaten hat einen Einfluss auf die berechneten Trajektorien (siehe z.B. Abschnitt 4.2.2). Es ist zu erwarten, dass daraus resultierende Unterschiede aufgrund der kurzen Zeitskala (kleiner ein Tag) i. Allg. ebenfalls gering sind.

Eine Ausnahme stellen die in den Tropen berechneten Trajektorien um 30 km Höhe dar. Zwischen ca. 27 und 31 km zeigt ein Vergleich zwischen den auf Druckflächen vorliegenden ECMWF-Daten und den auf Modellflächen – in einer höheren vertikalen Auflösung – bereitgestellten ECMWF-Daten Unterschiede in der zonalen Windgeschwindigkeit von bis zu 10 m/s (vgl. Abb. 5.7). Im Extremfall können daraus innerhalb des hier maximal betrachteten Zeitraumes von knapp 20 Stunden Differenzen in der Trajektorienposition von ca. 700 km resultieren. Die in den Tropen im Höhenbereich um 30 km ermittelten Matches (vgl. Tab. 6.2) könnten daher ihre Gültigkeit verlieren, wenn sie anhand von Trajektorien bestimmt werden, die ausgehend von den ECMWF-Daten auf Modellflächen – oder einem anderen Datensatz mit hoher vertikaler Auflösung – berechnet werden. Unterschiede zwischen den DOAS- und den SCIAMACHY-NO<sub>2</sub>-Profilen im Höhenbereich um 30 km für die Messung in den Tropen könnten daher teilweise auf eine unzureichende Koinzidenz zwischen beiden Messungen zurückzuführen sein. Allerdings ist in den Tropen kaum mit zonalen Gradienten der Spurengaskonzentrationen zu rechnen, wenn den unterschiedlichen Sonnenständen – wie hier über die photochemische Korrektur – Rechnung getragen wird. Darüberhinaus ist die prinzipielle Unterschätzung der Ballonmessungen durch die SCIAMACHY-Limb-Daten über annähernd den gesamten Höhenbereich zwischen 18 und 31 km aus den Unsicherheiten der Matches um 30 km nicht erklärbar (vgl. voriger Abschnitt).

#### **6.3.4. Sensitivität der photochemischen Modellierung hinsichtlich der zugrundeliegenden Trajektorien**

Wie eben diskutiert, haben die Luftmassen-Trajektorien nur einen geringen Einfluss auf die zur Validierung ausgewählten Satellitenmessungen. Bei reaktiven Spurengasen wie NO<sub>2</sub> können die Trajektorien aber auch die photochemische Modellierung und damit die Validierungsergebnisse modifizieren. Über den anhand der Trajektorien vorgegeben Sonnenzenitwinkel werden die Ergebnisse des 1D-Chemie-Modelles direkt beeinflusst. Auch Temperaturänderungen, wie sie entlang der Trajektorien und der realen Luftmassen auftreten, können zu Variationen der Spurengaskonzentration führen. Ihr Einfluss auf die photochemische Modellierung kann indirekt über Sensitivitätsstudien abgeschätzt werden (siehe Abschnitt 6.3.1). Beide Faktoren – der direkte Einfluss über den Sonnenzenitwinkel und der indirekte Einfluss über Temperaturänderungen – werden im Folgenden diskutiert.



(a) Kiruna, 23.03.2003, Ballonaufstieg

(b) Kiruna, 23.03.2003, Sonnenuntergang

----- Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt sind (siehe Tab. 6.2 und Text S. 147)

Abb. 6.10.: Einfluss der photochemischen Korrektur anhand unterschiedlicher Trajektorien auf die DOAS-NO<sub>2</sub>-Profile für die Messungen am 23.03.2003 [Butz, 2006, persönliche Mitteilung]

### Direkter Einfluss der Trajektorien

Der direkte Einfluss der Trajektorien auf die photochemische Modellierung wurde anhand eines Fallbeispiels untersucht. Dem 1D-Chemie-Modell wird der Sonnenzenitwinkel entlang einer – für den Höhenbereich des Matches repräsentativen – Trajektorie vorgegeben. Entscheidende Änderungen der modellierten NO<sub>2</sub>-Konzentration sind für Sonnenzenitwinkel um 90°, also während des Sonnenauf- oder unterganges zu erwarten (vgl. Abb. 2.12). Für die Fallstudie wurde eine Messung in hohen Breiten im Frühjahr ausgewählt, weil hier der Sonnenstand besonders stark von der genauen Position der Trajektorie abhängt. Die Wichtungsfaktoren für die photochemische Korrektur (siehe Abschnitt 6.3.1) wurden von André Butz für die DOAS-Messungen am 23.03.2003 basierend auf den neu berechneten Trajektorien (1,25°x1,25°, L59, aktuelle Erwärmungsraten) erneut bestimmt. In Abbildung 6.10 sind die ausgehend von den unterschiedlichen Trajektorien ermittelten DOAS-NO<sub>2</sub>-Profile gegenübergestellt. Zur besseren Übersichtlichkeit werden außerdem lediglich die vom IUP Heidelberg ermittelten SCIAMACHY-Limb-Profile gezeigt.

Die neu bestimmten Wichtungsfaktoren für die photochemische Korrektur unterscheiden sich nur wenig von den basierend auf den geringer aufgelösten Trajektorien (2,5°x2,5°, L25, klimatologische Erwärmungsraten) ermittelten Wichtungsfaktoren. Entsprechend sind die Differenzen zwischen den DOAS-Profilen relativ gering (kleiner als  $5 \cdot 10^7$  Moleküle pro cm<sup>3</sup>). Die größten relativen Abweichungen von maximal 11 % (beim Rückwärtsmatch) zwischen den ausgehend von den unterschiedlichen Trajektorien korrigierten DOAS-Profilen ergeben sich für die Sonnenuntergangsmessung um 15 km (siehe Abb. 6.11b) bei insgesamt geringen absoluten NO<sub>2</sub>-Konzentrationen (siehe Abb. 6.10b). Für die Messung während des Ballonaufstieges liegen die Unterschiede oberhalb von 17 km immer im Bereich von  $\pm 2$  % (oft  $\pm 1$  %, siehe Abb. 6.11a). Die maximale Abweichung für die Ballonaufstiegsmessung tritt mit -3 % um 13 km auf. Die Differenzen zwischen den basierend auf den unterschiedlichen Trajektorien korrigierten DOAS-Profilen sind für die Sonnenuntergangsmessung etwas größer als für die Ballonaufstiegsmessung, da die

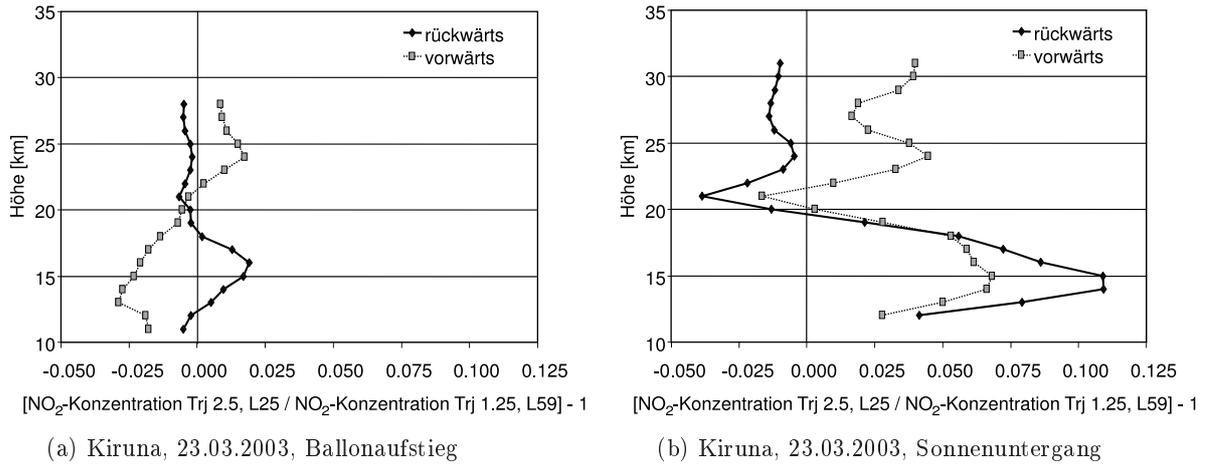


Abb. 6.11.: Relative Abweichungen zwischen den basierend auf verschiedenen Trajektorien ermittelten DOAS-NO<sub>2</sub>-Profilen

Sensitivität der NO<sub>2</sub>-Konzentrationen im Hinblick auf Änderungen des Sonnenzenitwinkels während des Sonnenunterganges besonders hoch ist [z.B. Roscoe und Pyle, 1987]. Oberhalb von 20 km sind hier relative Abweichungen von bis zu  $\pm 4\%$  um 21 km für den Rückwärtsmatch sowie um 24 km und oberhalb von ca. 28 km für den Vorwärtsmatch feststellbar. In den anderen Höhen oberhalb von 20 km betragen die Abweichungen weniger als  $\pm 2\%$ . Die hier gefundenen Fehler hinsichtlich der photochemischen Korrektur sind in allen Höhenbereichen wesentlich kleiner als der bisher für die DOAS-Messung bestimmte Gesamtfehler (siehe Fehlerbalken in Abb. 6.10) bzw. als der kombinierte Fehler aus Ballon- und Satellitenmessung (siehe Fehlerbalken in Abb. 6.9) im entsprechenden Höhenbereich. Die in Abschnitt 6.3.2 getroffenen Aussagen zur Güte der SCIAMACHY-Limb-Profile für NO<sub>2</sub> bleiben unverändert. In zukünftigen Untersuchungen sollte jedoch der Gesamtfehler für die NO<sub>2</sub>-Profile auch die hier gezeigte Sensitivität hinsichtlich der zugrundeliegenden Trajektorien beinhalten. Für BrO [vgl. Dorf et al., 2006] sind Abweichungen in ähnlicher Größenordnung zu erwarten. Zur Verifizierung dieser Aussage ist jedoch die Wiederholung der Sensitivitätsstudie empfehlenswert.

Die Abweichungen zwischen den Trajektorien, die mit den verschiedenen Versionen des FUB-Modelles berechnet wurden, liegen in der gleichen Größenordnung, wie die Unterschiede die sich aus der Anwendung eines anderen Trajektorienmodelles bei gleichen meteorologischen Eingangsdaten ergeben (siehe Kap. 5.4 und Kap. 5.5). Die hier durchgeführten Vergleiche lassen sich damit auf die Sensitivität der photochemischen Korrektur hinsichtlich des verwendeten Trajektorienmodelles übertragen. Auch eine photochemische Korrektur entlang von Trajektorien, die basierend auf anderen meteorologischen Daten berechnet wurden, dürfte diese Ergebnisse nur geringfügig ändern, solange anhand dieser Trajektorien identische Matches gefunden werden. Da die Trajektorien an den Ballonmesspunkten initialisiert werden, ist hier der Sonnenzenitwinkel unabhängig von den berechneten Trajekturen identisch. Am Satellitenmesspunkt können Trajektorien höchstens innerhalb des räumlichen Matchkriteriums voneinander abweichen, um dieselbe Satellitenmessung als Match zu identifizieren. Demzufolge sind auch die maximal möglichen Unterschiede zwischen dem anhand unterschiedlicher Trajektorien bestimmten Sonnenzenitwinkel

am Satellitenmesspunkt begrenzt. Es ist daher zu erwarten, dass die Sensitivität der photochemischen Korrektur hinsichtlich der für die Trajektorienrechnung verwendeten meteorologischen Eingangsdaten in derselben Größenordnung liegt, wie die hier vorgestellten Ergebnisse.

Mit der hier durchgeführten Sensitivitätsstudie konnten Unterschiede quantifiziert werden, die sich aus dem Verlauf der für den Höhenbereich des Matches repräsentativen Trajektorie ergeben. Dabei blieben mögliche Differenzen zwischen den Sonnenzenitwinkeln entlang des Trajektorienweges in unterschiedlichen Höhenbereichen unberücksichtigt. Die in verschiedenen Höhen berechneten Trajektorien können aber je nach meteorologischer Situation stark voneinander abweichende Wege zurücklegen und daher in ihrem Verlauf unterschiedlicher Sonneneinstrahlung unterliegen. Dies kann beispielsweise in hohen Breiten im Winter/Frühjahr bei einem gestörtem Polarwirbel der Fall sein, wenn sich die Polarwirbelachse stark mit der Höhe neigt, oder in den Tropen, wenn die QBO-Phase zu unterschiedlichen zonalen Strömungsrichtungen im betrachteten Höhenbereich führt. Daher sollte in einem weiteren Schritt untersucht werden, inwieweit sich die modellierten Wichtungsfaktoren ändern, wenn für die einzelnen Höhen die basierend auf den berechneten Trajektorien differierenden Sonnenzenitwinkel vorgegeben werden. Wie bereits diskutiert, sind die möglichen Unterschiede in der Trajektorienposition bzw. im Sonnenzenitwinkel in zeitlicher Nähe zum ermittelten Match begrenzt. Die  $\text{NO}_2$ -Konzentration hängt in erster Linie vom aktuellen Sonnenstand ab und wird kaum vom Sonnenzenitwinkel beeinflusst, dem die Luftmassen vor dem betrachteten Zeitschritt ausgesetzt waren. Demzufolge ist für  $\text{NO}_2$  mit einer nur geringen Sensitivität der ermittelten Wichtungsfaktoren und Profile zu rechnen, die maximal in derselben Größenordnung liegen dürfte, wie bei der hier durchgeführten Sensitivitätsstudie. Die Konzentration anderer Spurengase – wie beispielsweise  $\text{OCIO}$  – ist z.T. stark von der Luftmassenhistorie abhängig. So zeigen Canty et al. [2005], dass die  $\text{OCIO}$ -Konzentration erheblich vom Minimum des Sonnenzenitwinkels innerhalb der letzten 12 Stunden vor dem betrachteten Zeitpunkt abhängt. Für solche Spurengase muss die photochemische Korrektur anhand der basierend auf den Trajektorien für die einzelnen Höhen ermittelten Sonnenzenitwinkel erfolgen.

### **Einfluss der Temperatur**

Bei der photochemischen Modellierung werden für die einzelnen Höhen konstante Temperaturwerte vorgegeben, die aus den berechneten Trajektorien abgeleitet werden. Damit bleiben verschiedene Faktoren unberücksichtigt:

- Die Temperatur entlang der Trajektorien bzw. entlang der realen Luftmassen ist nicht konstant, sondern variiert in Abhängigkeit von den meteorologischen Bedingungen.
- Die anhand verschiedener Trajektorienmodelle basierend auf den gleichen meteorologischen Eingangsdaten ermittelten Temperaturen können voneinander abweichen (siehe Abschnitt 5.5.3). Ursache dafür sind sowohl unterschiedliche Trajektorienpositionen als auch differierende räumliche Auflösungen und Methoden bei der Interpolation der meteorologischen Variablen auf die aktuelle Trajektorienposition.
- Die meteorologischen Daten, die von den Trajektorienmodellen als Eingangsdaten benutzt werden, können sich in Abhängigkeit vom numerischen Modell (z.B. ECMWF, NCEP, UKMO) unterscheiden (siehe Abschnitt 4.1.2).



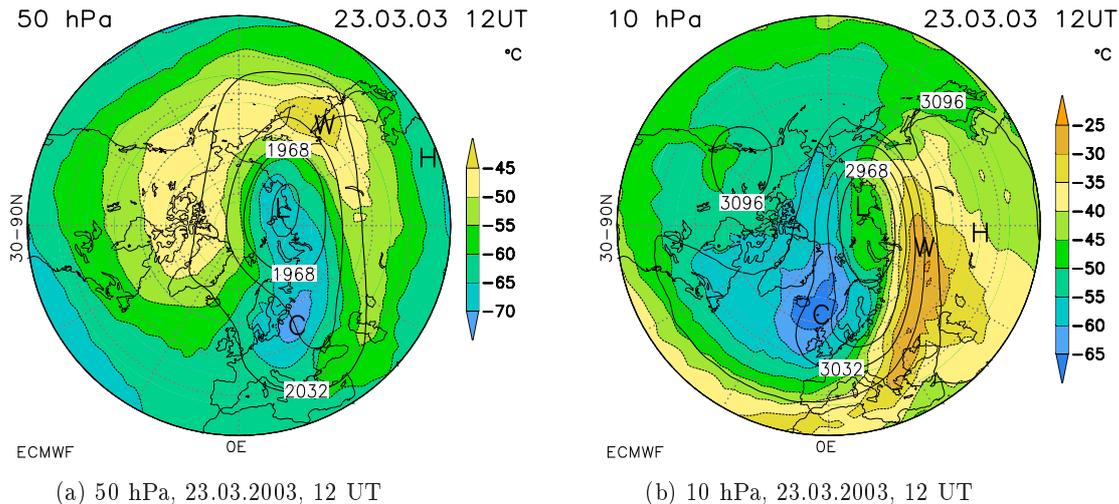


Abb. 6.14.: Geopotentielle Höhe [gdam] (Linien) und Temperatur [ $^{\circ}$ C] (Schattierungen) am 23.03.2003, 12 UT (a) in 50 hPa und (b) in 10 hPa [Daten: ECMWF]

in 20 hPa für die genannten Beispiele. In den Tropen beträgt die Temperaturänderung entlang einer Trajektorie im betrachteten Höhenbereich innerhalb eines Tages maximal 3 K (vgl. Abb. 6.12b und 6.13b). Ähnliche Änderungen der Temperatur in der Stratosphäre lassen sich auch in den Subtropen und in hohen Breiten im Sommer feststellen. In der winterlichen Stratosphäre in hohen Breiten können erheblich größere Temperaturschwankungen entlang einer Luftmasse auftreten. Dabei ist entscheidend, inwieweit die stratosphärischen Bedingungen durch planetare Wellen gestört sind (siehe Kap. 2.3). Unter ungestörten Bedingungen liegt das Kältegebiet direkt im Zentrum des Polarwirbels, so dass die Luftmassen das Wirbelzentrum annähernd parallel zu den Isolinien der Temperatur umkreisen und die Temperatur entlang einer Trajektorie maximal um wenige K variiert. Liegen Polarwirbel und Kältegebiet zueinander verschoben oder treten sogar Stratosphärenenerwärmungen auf, dann kann sich die Temperatur innerhalb einer Transportzeit von einem Tag sehr stark – um 10 K und mehr – ändern (vgl. auch Abschnitt 2.3.2). Am 23.03.2003 liegt das Zentrum des Kältegebietes in der mittleren Stratosphäre um 20 hPa über Skandinavien (siehe Abb. 6.13a). In der unteren Stratosphäre ist es in Richtung Osten und in der mittleren Stratosphäre um 10 hPa nach Westen in Richtung Island verschoben (siehe Abb. 6.14). Der Polarwirbel ist infolge einer Erwärmung in allen stratosphärischen Schichten von seiner klimatologischen Position über der europäischen Arktis nach Osten verschoben und stark elongiert (siehe Abb. 6.14). Die Luftmassen, die am 23.03.2003 vom LPMA/DOAS-Gerät erfasst werden, strömen entsprechend in der unteren Stratosphäre aus Westen bzw. Nordwesten und in der mittleren Stratosphäre aus Norden ein. Dabei verläuft die Luftmassenströmung über einen großen Höhenbereich annähernd senkrecht zu den Temperaturgradienten, so dass die Temperatur entlang der Trajektorien innerhalb der letzten 24 Stunden vor der Messung in Höhen um 20 hPa um ca. 12 K und in den anderen Höhen unterhalb von 10 hPa um ca. 5–7 K abnimmt. Lediglich oberhalb von 10 hPa strömen die Luftmassen annähernd parallel zu den Isolinien der Temperatur und die Temperatur entlang der Trajektorien variiert in diesem Höhenbereich nur um wenige K (siehe Abb. 6.12a). Die von Butz [2006] zur Untersuchung der Sensitivität der pho-

tochemischen Modellierung festgelegte Temperaturänderung von  $\pm 7\text{ K}$  ist für den betrachteten Fall vom 23.03.2003 im Höhenbereich zwischen 20 und 30 km hinsichtlich der Temperaturänderungen entlang der Trajektorien eine realistische Annahme. Unter anderen meteorologischen Bedingungen sind in hohen Breiten im Winter/Frühjahr größere Temperaturänderungen als am 23.03.2003 möglich, die dann entsprechend berücksichtigt werden müssen.

Wie in Abschnitt 5.5.3 gezeigt wurde, können sich die Temperaturen unterscheiden, die basierend auf unterschiedlichen *Trajektorienmodellen* anhand derselben meteorologischen Eingangsdaten entlang der Trajektorien ermittelt werden. Wie groß diese Unterschiede sind, hängt vom betrachteten Höhenbereich ab. Innerhalb eines Tages sind die mittleren Differenzen der Temperatur oberhalb von 380 K (für hohe Breiten ca. oberhalb von 12 bis 15 km je nach meteorologischen Bedingungen), die sich auf der Grundlage verschiedener Trajektorienmodelle ergeben, kleiner als 1 K. Temperaturunterschiede von mehr als 2 K treten innerhalb dieses Zeitraumes mit einer maximalen Wahrscheinlichkeit von 15 % auf (vgl. Abb. B.13 und Abschnitt 5.5.3). Unterhalb von 380 K sind die Temperaturunterschiede, die sich aus der Trajektorienberechnung anhand unterschiedlicher Modelle ergeben, größer als im Höhenbereich oberhalb von 380 K (vgl. Abb. B.13). Im Bereich unterhalb von 340 K (unterhalb von 10 bis 12 km), der allerdings für die Validierungsuntersuchungen nur eine untergeordnete Rolle spielt, können sich in Einzelfällen nach einem Tag Transportzeit Temperaturdifferenzen von über 10 K ergeben. Temperaturunterschiede zwischen den basierend auf verschiedenen Modellen berechneten Trajektorien von mehr als 5 K treten hier mit einer Wahrscheinlichkeit von knapp 30 % auf (vgl. Abb. B.13). Bei der Verwendung unterschiedlicher *meteorologischer Eingangsdaten* als Grundlage für die Trajektorienberechnung ist mit weiteren Unsicherheiten bei der Temperaturbestimmung zu rechnen. Wie in Abschnitt 4.1.2 erläutert wurde, können die von den verschiedenen numerischen Modellen berechneten Temperaturwerte um mehrere K differieren. Die daraus resultierenden Unsicherheiten der Temperatur sollten zusätzlich zu den entlang der Trajektorien auftretenden Temperaturvariationen bei Studien zur Sensitivität der photochemischen Modellierung berücksichtigt werden.

Vor allem für die unteren Höhenbereiche ( $< 380\text{ K}$ ) erscheint daher die Festlegung von Butz [2006] auf  $\pm 7\text{ K}$  als Untersuchungsbasis für Temperatursensitivität der photochemischen Modellierung im Sinne einer konservativen Abschätzung zu gering. Die Studien zur Temperatursensitivität der photochemischen Modellierung sollten in Zukunft für den oberen Höhenbereich wie bei Bracher et al. [2005b] mit  $\pm 10\text{ K}$  und für den unteren Höhenbereich mit  $\pm 15\text{ K}$  gerechnet werden. Die von Butz [2006] ermittelten Modellfehler (vgl. auch Abschnitt 6.3.1) würden sich dadurch wahrscheinlich um einige Prozente erhöhen. Da die Temperatursensitivität in allen Höhenbereichen maximal zu einem Drittel zum Gesamtfehler der photochemischen Modellierung beiträgt und in keinem Bereich die dominierende Fehlerquelle darstellt, ist eine Änderung der prinzipiellen Aussagen von Butz [2006] nicht zu erwarten. Für Untersuchungen außerhalb der hohen Breiten im Winter/Frühjahr für Höhen oberhalb von 380 K ist aufgrund der dann geringeren Temperaturvariabilität entlang der Trajektorien die Berücksichtigung der Temperatursensitivität anhand von  $\pm 7\text{ K}$  ausreichend.

### 6.3.5. Zusammenfassung der Sensitivitätsstudien

Bei der hier vorgestellten Methode zur Satellitenvalidierung – dem Vergleich von Ballonmessungen mit einzelnen möglichst zeitnahen Satellitenprofilen für die sich eine Koinzidenz über einen möglichst großen Höhenbereich ergibt – haben die zugrundeliegenden Trajektorien i. Allg. keinen Einfluss auf die ermittelten Matches. In Abhängigkeit von den Trajektorien variiert in einzelnen Fällen lediglich der Höhenbereich, in dem die Matchkriterien erfüllt sind. Für kurzlebige Spurengase beeinflussen die Trajektorien direkt die für die Validierung notwendige photochemische Korrektur. Die daraus resultierenden Fehler sind in allen Höhenbereichen wesentlich kleiner als die bisher ermittelten Gesamtfehler für die Methode, so dass sie die prinzipiellen Ergebnisse der Validierung nicht verändern. Die Sensitivität hinsichtlich der zugrundeliegenden Trajektorien sollte – unter Berücksichtigung möglicher Unterschiede in den einzelnen Höhen – aber in zukünftigen Validierungsstudien bei der Ermittlung des Gesamtfehlers einbezogen werden. Im Sinne einer konservativen Abschätzung sollte die Temperatursensitivität der photochemischen Modellierung für Untersuchungen in hohen Breiten im Winter/Frühjahr oberhalb von 380 K anhand von  $\pm 10$  K und unterhalb von 380 K anhand von  $\pm 15$  K ermittelt werden.

Die hier vorgestellten Ergebnisse zur Sensitivität der Validierungsergebnisse sind nicht ohne weiteres auf Untersuchungen übertragbar, die mögliche Koinzidenzen auch in einem zeitlichen Abstand von mehr als einem Tag berücksichtigen. Die auf Luftmassen-Trajektorien beruhende Validierung kurzlebiger Spurengase wird i. Allg. auf solche Satelliten-Messungen beschränkt, die innerhalb von 2 Tagen vor bzw. nach der Ballonmessung erfolgten [vgl. Olinger, 2005; Zhang, 2006]. Für diese Untersuchungen muss v.a. die Temperatursensitivität der photochemischen Modellierung anhand etwas höherer Werte als den eben genannten (vgl. Abb. B.14) ermittelt und in den Validierungsvergleichen berücksichtigt werden. Für langlebige Spurengase wird der Einfluss der Trajektorien auf die Validierung von Satellitenmessungen im folgenden Kapitel 6.4 diskutiert.

## 6.4. MIPAS-E-Validierung für langlebige Spurengase anhand von BONBON-Messungen

Eine Aussage zu systematischen Abweichungen der Satellitenmessungen von den Ballonmessungen ist mit dem Vergleich einzelner Spurengasprofile nur bedingt möglich. Differenzen zwischen beiden Messungen werden auch durch zufällige Fehler hervorgerufen, die je nach Art und Größe der Fehler systematische Differenzen zwischen den beiden Messgeräten überdecken können. Durch die statistische Auswertung vieler Messungen lassen sich systematische Fehler besser identifizieren. Einerseits muss dabei die angewendete Methode eine ausreichende Anzahl von Koinzidenzen zwischen den zu vergleichenden Messungen ergeben, um statistisch signifikante Ergebnisse zu erhalten. Andererseits muss die Methode so gewählt sein, dass sie die Ergebnisse der Validierung nicht durch zusätzliche Fehler verfälscht. Die Anzahl der Koinzidenzen zwischen Ballon- und Satellitenmessungen lässt sich sowohl durch die Anwendung von weniger strikten Matchkriterien als auch mit Hilfe von Luftmassen-Trajektorien erhöhen. Die räumliche und zeitliche Variati-

on der Spurengase bestimmt die methodischen Fehler, die durch unterschiedliche Matchkriterien hervorgerufen werden bzw. die maximal anwendbaren Matchkriterien. Bei der Anwendung von Trajektorien zur Bestimmung der Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den Satellitenmessungen wird die Güte der Validierung durch die meteorologischen Eingangsdaten und das Trajektorienmodell beeinflusst.

Die Validierung von Satellitendaten für die langlebigen Spurengase  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  mit Hilfe von Ballonmessungen erfolgte in bisherigen Untersuchungen häufig anhand einzelner Satellitenprofile [z.B. Kanzawa et al., 2003; Wetzels et al., 2006; Strong et al., 2008]. Dabei wurde meist ein direkter Match zwischen der Ballonmessung und der zeitlich und räumlich am nächsten liegenden Satellitenmessung betrachtet. Die auf diese Weise ermittelten Koinzidenzen reichen von nahezu perfekten Matches mit einem zeitlichen Abstand von kleiner als 2 h und einem räumlichen Abstand kleiner als 350 km [Kanzawa et al., 2003] bis zu einem zeitlichen Abstand von maximal 26 h [Strong et al., 2008] bzw. einem räumlichen Abstand von maximal 900 km [Kanzawa et al., 2003]. Ejiri et al. [2006] greifen für eine Ballonmessung auf 1-Tages-Vorwärtstrajektorien zurück, um eine für die Validierung geeignete Satellitenmessung zu identifizieren (vgl. Methode im vorherigem Kapitel 6.3). Einige Autoren [Kanzawa et al., 2003; Ejiri et al., 2006] betrachten außerdem die anhand meteorologischer Daten berechneten PV-Differenzen zwischen der Ballon- und der Satellitenmessung, um die Güte der ermittelten Matches einzuschätzen. In anderen Studien [Strong et al., 2008; De Mazière et al., 2008] wird dafür die mit dem Kontour-Advektion-Modell MIMOSA [Hauchecorne et al., 2002] ermittelte PV-Änderung verwendet. Urban et al. [2005] legen die Kriterien zum Auffinden direkter Matches für die  $\text{N}_2\text{O}$ -Validierung mit Hilfe von Ballonmessungen auf 24 h,  $15^\circ$  geografische Länge und  $7,5^\circ$  geografische Breite fest und konnten damit je nach Ballonmessung 3-10 Satelliten-Messungen zur Validierung bestimmen. Payan et al. [2007] verwenden zur Validierung von  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  sowohl direkte als auch anhand von Trajektorien ermittelte Koinzidenzen zwischen MIPAS-E und verschiedenen Balloninstrumenten. Der Vergleich zwischen den BONBON-Messungen und den anhand eines operationellen ESA-Algorithmus abgeleiteten MIPAS-E-Profilen in Payan et al. [2007] basiert auf den im Rahmen dieser Arbeit berechneten geringer aufgelösten Trajektorien ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, klimatologische Erwärmungsraten). Auch Zhang [2006] verwendet die basierend auf diesen Trajektorien berechneten Koinzidenzen für die Validierung von MIPAS-E anhand von MIPAS-B2-Daten.

Im Folgenden werden verschiedene Parameter diskutiert, die sich bei der Bestimmung von Koinzidenzen zwischen Ballon- und Satellitenmessungen anhand von Trajektorien auf die Güte der Validierungsergebnisse auswirken können. Anhand von Fallstudien wird der Einfluss des zugrundeliegenden Trajektorienmodelles auf die Validierungsergebnisse untersucht. Außerdem werden die anhand von Trajektorien ermittelten Ergebnisse mit den basierend auf direkten Matches berechneten Differenzen zwischen Ballon- und Satellitenmessungen verglichen.

### 6.4.1. Datenbasis und Methode

#### MIPAS-E- und BONBON-Daten

Für die folgenden Untersuchungen werden MIPAS-E-Daten verwendet (siehe auch Abschnitt 3.2.2), die vom Institut für Meteorologie und Klimaforschung Karlsruhe (IMK) berechnet wurden<sup>5</sup>. Das Vorgehen zur Profibleitung und wesentliche Kenngrößen sind in Glatthor et al. [2005] und den dort genannten Referenzen beschrieben. Die ermittelten Spurengasprofile liegen im hier relevanten Höhenbereich mit einer vertikalen Auflösung von 1 km vor. In Abhängigkeit von der Verfügbarkeit der Daten werden im Folgenden Profile verwendet, die mit der Version V3O\_8 bzw. V3O\_9 des IMK-Algorithmus bestimmt wurden (siehe Tab. 6.3). IMK-Daten, die aufgrund bestimmter Diagnosewerte als unsicher gelten, werden nicht berücksichtigt (siehe Anhang C.1.2). Zur Validierung der MIPAS-E-IMK-Daten werden BONBON-Messungen verwendet, auf die bereits in Abschnitt 3.3.2 eingegangen wurde. Die Messwerte wurden von Andreas Engel (Universität Frankfurt) zur Verfügung gestellt. Die Daten liegen mit einem unregelmässigen vertikalen Abstand von ca. 1 km vor. Zur Bestimmung der Differenzen zwischen den BONBON- und den MIPAS-E-Werten werden die in-situ-Messwerte auf ein gleichmässiges vertikales Gitter mit einem regelmässigen Abstand von 1 km interpoliert und vertikal mit einem laufenden 3-km-Mittel geglättet.

Tabelle 6.3 zeigt die im Rahmen der ENVISAT-Validierung durchgeführten TRIPLE- bzw. TWIN-Flüge, bei denen mit dem BONBON-Gerät Luftproben gesammelt wurden, und die den Validierungsvergleichen zugrunde liegen. Neben den drei aufgeführten Flügen in mittleren und hohen Breiten, fanden weitere Messungen im Juni 2005 (vgl. Tab. 6.1) und im Juni 2008 in den Tropen statt, für die noch keine MIPAS-E-Profilen verfügbar sind.

#### Ermittlung der Koinzidenzen

Die Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den MIPAS-E-Messungen wurden sowohl als direkte Matches als auch anhand der in Abschnitt 6.1.2 beschriebenen Methode auf der Grundlage von Trajektorien bestimmt. Tabelle 6.3 führt den räumlichen und zeitlichen Abstand für die der jeweiligen BONBON-Messung am nächsten liegenden MIPAS-E-Messungen auf, die anhand der ESA-Planung ermittelt wurden. Darüberhinaus ist die Anzahl der direkten Matches angegeben, die basierend auf den von Urban et al. [2005] verwendeten Koinzidenzkriterien (1 Tag, 7,5° geografische Breite, 15° geografische Länge) anhand der IMK-Daten bestimmt wurden. Die IMK-Daten liegen nicht für alle durchgeführten MIPAS-E-Messungen vor (siehe auch Anhang C.1.2), so dass nur für die Messung am 24.09.2002 die der BONBON-Messung am nächsten liegenden MIPAS-E-Profilen verfügbar sind. Für die Messung im März 2003 ist auch mit den sehr weit gefassten Koinzidenzkriterien von Urban et al. [2005] kein direkter Match verfügbar, so dass Validierungsvergleiche nur mittels einer anderen Methode durchführbar sind. Die anhand von Trajektorien identifizierten Koinzidenzen zwischen MIPAS-E und der in-situ-Messung sind in

---

<sup>5</sup> nach Anmeldung verfügbar via <http://www.fzk.de/imk/asf/ame/envisat-data/>

Tab. 6.3.: BONBON-Messungen und Koinzidenzen mit MIPAS-E-Messungen

Flugdatum Zeit [UT]	Ort, geophysikali- sche Bedingungen	Höhen- bereich [km]	direkt <sup>1)</sup> basierend auf ESA-Planung	IMK- Version	direkt <sup>2)</sup> 1 Tag, 7,5°, 15°	5-Tages- Trajektorien <sup>3)</sup> 500 km, 1 h  n: MIPAS-E / Gesamt <sup>4)</sup> (einzelne Höhen) <sup>4)</sup>
24.09.2002 07:40–11:19	Air sur l'Adour 43,7°N; 0,3°W MB, Herbst	12,2–32,4	2 Scans <sup>5)</sup> 250–350 km 12–13 h	V3O_9	15 / 237 (6–12)	49 / 147 (1–12)
06.03.2003 06:36–10:20	Kiruna 67,9°N; 21,1°E HB, Frühjahr	11,2–30,4	2 Scans < 400 km < 1 h	V3O_8	–	48 / 113 (1–17)
09.06.2003 07:30–09:36	Kiruna 67,9°N; 21,1°E HB, Sommer	13,3–32,4	2 Scans < 450 km < 2h	V3O_8	7 / 140 (3–7)	46 / 151 (2–11)

<sup>1)</sup> Angegeben ist jeweils die Anzahl der zur BONBON-Messung am nächsten liegenden MIPAS-E-Scans sowie ihr räumlicher und zeitlicher Abstand zur BONBON-Messung. Die MIPAS-E-Messungen wurden basierend auf den ESA-Planungsdaten ermittelt. IMK-Profile sind nicht für alle durchgeführten MIPAS-E-Messungen verfügbar (siehe Anhang C).

<sup>2)</sup> Die direkten Matches wurden für die IMK-CH<sub>4</sub>-Daten basierend auf den von Urban et al. [2005] verwendeten Koinzidenzkriterien innerhalb eines Tages mit einem räumlichen Abstand von kleiner als 7,5° geografischer Breite sowie 15° geografischer Länge ermittelt. Für die IMK-N<sub>2</sub>O-Daten ergeben sich identische Werte.

<sup>3)</sup> Den Matches liegen Trajektorienrechnungen mit der höher aufgelösten FUB-Modellversion (1,25°x1,25°, L59) und klimatologischen Erwärmungsraten zugrunde. Sie wurden basierend auf Koinzidenzkriterien von 500 km und 1 h entlang von 5-Tages-Trajektorien ermittelt, die die festgelegten Kriterien für die PV-Erhaltung und den Vorwärts-/Rückwärts-Test erfüllen (siehe Abschnitt 6.4.2). Die Anzahl der Matches ist hier für die IMK-CH<sub>4</sub>-Daten angegeben. Für die IMK-N<sub>2</sub>O-Daten ergeben sich dieselben, bei der Verwendung anderer Trajektorien (2,5°x2,5°, L25) geringfügig abweichende Werte.

<sup>4)</sup> Angegeben sind die Anzahl der MIPAS-E-Messungen, für die die Koinzidenzkriterien in einzelnen Höhen erfüllt sind, die Gesamtzahl der Koinzidenzen sowie – in Klammern – die Anzahl der Koinzidenzen in den einzelnen Höhen.

<sup>5)</sup> Weitere 2 MIPAS-E-Messungen, die annähernd zeitgleich ( $\pm 2h$ ) zur in-situ-Messung erfolgten, weisen einen räumlichen Abstand von 650–850 km zur BONBON-Messung auf.

Tabelle 6.3 beispielhaft für 5-Tages-Trajektorien (1,25°x1,25°, L59, klimatologisch) angegeben. Wie in Kapitel 6.1 wurden die Koinzidenzkriterien auf eine Stunde und 500 km festgelegt. Dabei wurden Matches für einzelne Höhenbereiche bestimmt und nicht wie bei der direkten Methode für den gesamten von beiden Mess-Systemen erfassten Höhenbereich. Die Trajektorien wurden ausgehend von Analyse-Daten des ECMWF jeweils mit der räumlich geringer (2,5°x2,5°, L25) und der räumlich höher (1,25°x1,25°, L59) aufgelösten Version des FUB-Modelles berechnet. In Anhang C.5 sind die ermittelten Koinzidenzen für die drei Ballonmessungen grafisch dargestellt. Aus möglichen Differenzen zwischen den basierend auf den unterschiedlichen Trajektorienversionen des FUB-Modelles abgeleiteten Matches kann die Sensitivität der Validierungsergebnisse bezüglich des verwendeten Trajektorienmodelles abgeschätzt werden (vgl. Kap. 5.5). Bei der Ermittlung der Koinzidenzen bestimmen verschiedene Parameter sowohl die Güte als auch die Anzahl der Koinzidenzen. Darauf wird im folgenden Abschnitt 6.4.2 eingegangen.

### Fehler der Messinstrumente und kombinierter Fehler

Für die MIPAS-E-IMK-Daten liegen vollständige Fehlerangaben nur für ausgewählte  $N_2O$ - bzw.  $CH_4$ -Messungen im September/Oktober 2002 vor. Daher werden im Folgenden als Gesamtfehler für die MIPAS-E-Messungen die Fehler von Messungen angegeben, die vergleichbare Spurengaskonzentrationen wie die hier zu validierenden Messungen ergaben. Die bei der Fehlerrechnung berücksichtigten Parameter sind in Glatthor et al. [2005] aufgeführt. Für die Messungen in Aire sur l'Adour im Herbst 2002 und in Kiruna im Sommer 2003 wird der Gesamtfehler einer Messung in mittleren Breiten ( $41^\circ N$ ) vom 26.09.2002 verwendet, für die Messung in Kiruna im März 2003 der Gesamtfehler einer Messung vom 20.09.2002 in hohen südlichen Breiten ( $72^\circ S$ ). Der MIPAS-E-Gesamtfehler ist stark höhenabhängig. Für  $N_2O$  sinkt er von Werten um 50 bis 60 ppb in 10 km Höhe auf Werte um 10 ppb (mittlere Breiten) bzw. kleiner 1 ppb (hohe Breiten) in 30 km. Auch für  $CH_4$  zeigt sich für die Messung in hohen Breiten ein starker Abfall des Gesamtfehlers von ca. 350 ppb in 10 km auf ca. 50 ppb in 30 km. Der Gesamtfehler der Messung in mittleren Breiten schwankt im genannten Höhenbereich zwischen ca. 150 und 230 ppb und fällt erst um 40 km auf Werte unter 100 ppb.

Für die BONBON-Messungen ist der Gesamtfehler höhenunabhängig. Er beträgt für  $CH_4$  2 ppb und für  $N_2O$  5 ppb<sup>6</sup> (vgl. auch Abschnitt 3.3.2). Der Fehler für  $CH_4$  liegt im Promille-Bereich der gemessenen Werte, so dass in den folgenden Abbildungen keine Fehlerbalken für die  $CH_4$ -BONBON-Messungen darstellbar sind.

Der kombinierte  $CH_4$ -Gesamtfehler (vgl. Gl. 6.1) entspricht in allen Höhen dem MIPAS-E-Gesamtfehler. Auch für  $N_2O$  wird der kombinierte Fehler über einen großen Höhenbereich vom Fehler des Satelliteninstrumentes bestimmt. Lediglich für die Messung in hohen Breiten hat der Fehler der BONBON-Messung ab ca. 22 km und darüber einen relevanten Einfluss auf den kombinierten Fehler, ab ca. 27 km ist der BONBON-Fehler hier sogar die dominierende Größe bei der Bestimmung des kombinierten Fehlers.

#### 6.4.2. Parameter für die Bestimmung der Koinzidenzen anhand von Trajektorien

Wie bereits erwähnt, muss die Methode zur Bestimmung der Koinzidenzen so gewählt sein, dass sie die Ergebnisse der Validierung nicht wesentlich verändert. Im Folgenden werden die Parameter, die zur Bestimmung der Matches Anwendung finden, festgelegt und gegebenenfalls hinsichtlich ihres Einflusses auf die Validierungsergebnisse diskutiert.

#### Betrachteter Höhenbereich

Gemäß den Schlussfolgerungen in Kapitel 5.5 werden unterhalb von 340 K (je nach geografischer Breite und meteorologischen Bedingungen zwischen 9 und 12 km, vgl. Abb. 5.1 auf S. 87) keine

---

<sup>6</sup> Engel et al. [2002] geben den Fehler für  $N_2O$  mit ca. 1% des aktuellen troposphärischen Wertes an. Als  $N_2O$ -Gesamtfehler für die BONBON-Messungen werden dementsprechend 1,5% des aktuellen troposphärischen  $N_2O$ -Wertes (319 ppb, siehe Kap. 2.4.3) berücksichtigt.

Tab. 6.4.: Anzahl der ermittelten Koinzidenzen entlang von 5-Tages-Trajektorien ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59, klimatologisch) für die Matchkriterien 1 h, 500 km bei Anwendung unterschiedlicher Qualitätskriterien

Datum	Gesamt	$d_{VR} < 500\text{km}$	$\Delta PV < 25\%$	$d_{VR} < 500\text{km}$ $\Delta PV < 25\%$	$\Delta PV < 20\%$	$d_{VR} < 500\text{km}$ $\Delta PV < 20\%$
24.09.2002	160	152	153	147	133	131
06.03.2003	131	131	113	113	100	100
09.06.2003	151	151	151	151	151	151

möglichen Matches bestimmt. Ziel der Untersuchungen ist die Validierung der stratosphärischen Messwerte des Satelliteninstrumentes, so dass dies keine wesentliche Einschränkung bedeutet.

### Vorwärts-/Rückwärts-Test und PV-Erhaltung

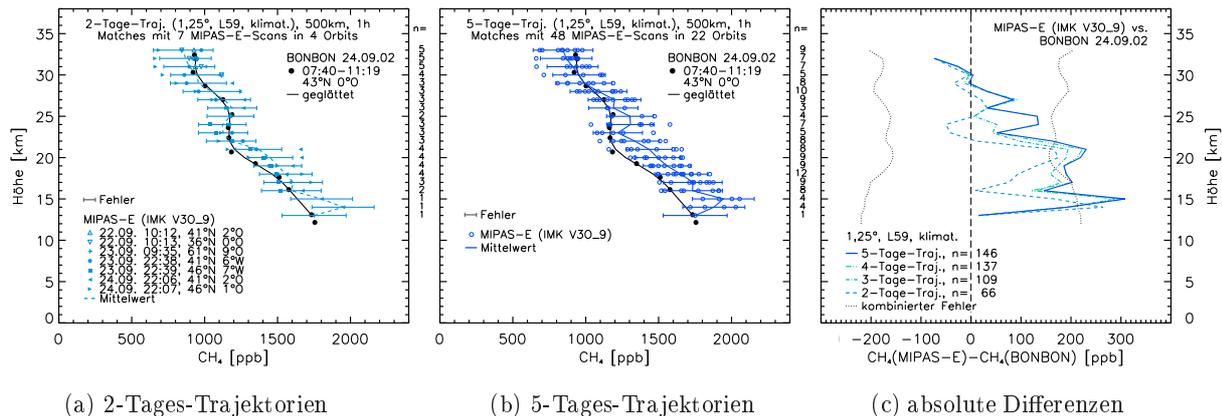
Für die berechneten Trajektorien wird ein Vorwärts-/Rückwärts-Test (bzw. Rückwärts-/Vorwärts-Test für die Rückwärtstrajektorien) durchgeführt (siehe Abschnitt 5.3.1). Trajektorien werden im weiteren Verlauf der Untersuchungen nicht berücksichtigt, wenn der aus dem Test abgeleitete Abstand  $d_{VR}$  größer als das gewählte räumliche Koinzidenzkriterium von 500 km ist. Ein äquivalentes Qualitätskriterium wenden erstmals Terao et al. [2002] an, um anhand der Messungen des Satelliteninstrumentes Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) den Ozonabbau im arktischen Winter 1996/97 mit Hilfe der Match-Technik zu bestimmen. Außerdem werden nur Trajektorien berücksichtigt, bei denen die PV-Änderung entlang der Trajektorie (die Differenz zwischen Maximum und Minimum der PV entlang der Trajektorie bezogen auf den mittleren PV-Wert; siehe Abschnitt 5.3.2) kleiner als 25 % ist.

Tabelle 6.4 zeigt die Gesamtzahl der Koinzidenzen über alle Höhen ohne die Berücksichtigung der beiden Parameter und die Anzahl der ermittelten Matches, die sich bei der Anwendung der beiden Kriterien einzeln sowie bei der Kombination der Kriterien ergibt. Zum Vergleich enthält die Tabelle auch dieselben Angaben für einen PV-Grenzwert von 20 %. Aufgrund der insgesamt geringen Anzahl der Koinzidenzen in den einzelnen Höhen ist eine detaillierte Untersuchung des Einflusses verschiedener PV-Grenzwerte auf die Validierungsergebnisse anhand der Streuung, wie sie z.B. von Rex [1997] für den Ozonabbau durchgeführt wurde (siehe Abschnitt 5.3.2), nicht möglich. Daher wird im Folgenden der PV-Grenzwert von 25 % verwendet.

### Höhenbereich für einzelne Koinzidenzen

Die Trajektorien zur Bestimmung der Koinzidenzen wurden jeweils an der durch die Ballonflugbahn gegebenen Position (siehe auch Kap. 6.2) mit einem vertikalen Abstand von 200 bis 400 Metern<sup>7</sup> initialisiert. Für jede einzelne durch die MIPAS-E-Daten gegebene Höhe wurde entlang der um diese Höhe berechneten Trajektorien nach möglichen Koinzidenzen zwischen den

<sup>7</sup> Je nach Höhe und meteorologischen Bedingungen entspricht dies einer Änderung der potentiellen Temperatur  $\Delta\Theta$  von ca. 2 bis 20 K.



$n$  = Gesamtzahl der Koinzidenzen für die jeweilige Höhe bzw. über alle Höhen

Abb. 6.15.: Einfluss der Trajektorienlänge auf die Validierungsergebnisse am Beispiel der  $\text{CH}_4$ -Messung vom 24.09.2002

BONBON- und den MIPAS-E-Daten gesucht. Dabei wurden nur solche Matches in die Validierungsstudien einbezogen, die für mindestens 3 Trajektorien in einem zusammenhängenden Höhenbereich von mindestens 0,5 km die Matchkriterien erfüllen (vgl. Kap. 5.5).

### Koinzidenzkriterien

Die Koinzidenzkriterien wurden auf 500 km und 1 Stunde festgelegt. Voruntersuchungen ergaben, dass bei einer Verringerung der Kriterien für die hier untersuchten Fälle zum Teil keine bzw. nur sehr wenige Satelliten-Koinzidenzen identifiziert werden können. Damit wäre eine Validierung nicht möglich. Auf eine Erhöhung des zeitlichen bzw. räumlichen Kriteriums wurde verzichtet, um eventuelle Fehler, die sich aus der zeitlichen oder räumlichen Variabilität der Spurengase ergeben können, minimal zu halten.

### Länge der Trajektorien

Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den Satellitenmessungen wurden entlang der Trajektorien für einen Zeitraum von bis zu 5 Tagen bestimmt. Abbildung 6.15 zeigt beispielhaft für Methan die BONBON-Messungen am 24.09.2002 im Vergleich zu den mittleren MIPAS-E-Profilen, die anhand von 2- bzw. 5-Tages-Trajektorien berechnet wurden. Außerdem sind die Differenzen zwischen den BONBON- und den MIPAS-E-Daten für Trajektorien unterschiedlicher Länge dargestellt.

Wesentliche Unterschiede zwischen den Satelliten- und den Ballonmessungen werden unabhängig von der betrachteten Trajektorienlänge erfasst. So zeigen alle Differenzen eine systematische Überschätzung der  $\text{CH}_4$ -Daten durch MIPAS-E in Höhen um 14 km und um 20 km. In einigen Höhen gibt es aber z.T. erhebliche Abweichungen zwischen den anhand der unterschiedlichen Trajektorienlänge ermittelten Differenzen zwischen beiden Messgeräten, die allerdings innerhalb

des kombinierten Gesamtfehlers liegen. Wahrscheinlich sind diese Abweichungen hauptsächlich durch statistische Unsicherheiten aufgrund der geringen Fallzahl, die für die 2-Tages-Trajektorien in vielen Höhen maximal 3 beträgt, begründet.

In den folgenden Validierungsvergleichen werden jeweils die anhand von 2-Tages- und die anhand von 5-Tages-Trajektorien ermittelten Ergebnisse dargestellt.

### Trajektorienmodell und Annahmen zum Vertikaltransport

Auch der Einfluss des verwendeten Trajektorienmodelles und der Annahmen zum Vertikaltransport wird in den nachfolgenden Validierungsstudien gezeigt. Dazu werden alle Parameter des Trajektorienmodelles (horizontale Auflösung, vertikale Auflösung und Erwärmungsraten) variiert. Die Ergebnisse für die 2-Tages-Trajektorien, die mit der geringer aufgelösten Modellversion anhand von klimatologischen Erwärmungsraten berechnet wurden, werden den Ergebnissen gegenübergestellt, die basierend auf der höher aufgelösten Modellversion anhand von aktuellen Erwärmungsraten über einen Zeitraum von 5 Tagen ermittelt wurden<sup>8</sup>.

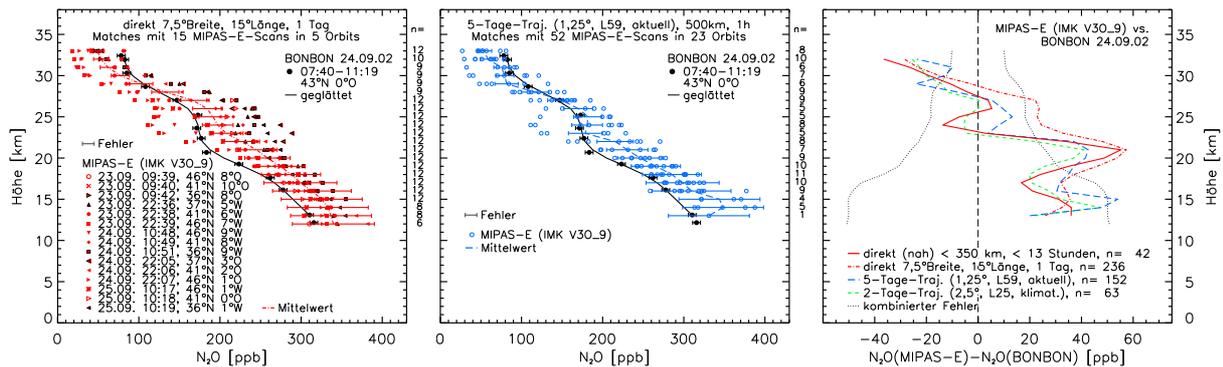
Mögliche Unterschiede in den basierend auf den unterschiedlichen Modellversionen ermittelten Koinzidenzen sind durch die in Kapitel 5.5 für die "Kombination alle" quantifizierten horizontalen (siehe z.B. Abb. 5.19) bzw. vertikalen Abstände (siehe Abb. 5.22) begründet. Ausgehend von diesen Ergebnissen kann erwartet werden, dass die Art des Trajektorienmodelles oberhalb von 380 K nur einen relativ geringen Einfluss auf die abgeleiteten Validierungsergebnisse hat. Für Untersuchungen in hohen Breiten im Sommer kann ein solcher Einfluss sogar nahezu ausgeschlossen werden. Hier treten nur selten ( $< 2\%$ ) horizontale Abstände von mehr als 500 km zwischen den basierend auf unterschiedlichen Modellen berechneten Trajektorien auf (siehe Abb. B.12). Außerdem sind unter sommerlichen Bedingungen horizontale Gradienten der langlebigen Spurengase kaum ausgeprägt. Beispielsweise ändert sich im Juni in hohen Breiten die zonal gemittelte Methankonzentration innerhalb von  $5^\circ$  geografischer Breite in der unteren und mittleren Stratosphäre um maximal 35 ppb. Die Standardabweichung liegt zwischen 50 und 80 ppb bzw. 4 und 9% [siehe Ergänzung zu Grooß und Russell, 2005] und damit im unteren Bereich des MIPAS-E-Fehlers. In hohen Breiten im Winter/Frühjahr und in mittleren Breiten sind eher Änderungen der Validierungsergebnisse möglich. Zwischen 20 und knapp 30% der anhand unterschiedlicher Modellversionen berechneten Trajektorien weisen einen horizontalen Abstand von mehr als 500 km auf (siehe Abb. B.12), so dass basierend auf den unterschiedlichen Trajektorien nicht immer identische Koinzidenzen zu erwarten sind. Inwieweit sich dies auf die Validierungsergebnisse auswirkt, hängt von den horizontalen Gradienten des zu validierenden Spurengases ab. Diese sind stark von der jeweiligen meteorologischen Situation abhängig. Die größten Spurengasgradienten sind dabei in hohen Breiten im Winter zu erwarten. Das zeigt sich beispielsweise in einer hohen Standardabweichung der Methankonzentration, die in  $67,5^\circ\text{N}$  im Februar/März bis zu ca. 300 ppb bzw. 40% beträgt [Ergänzung zu Grooß und Russell, 2005].

<sup>8</sup> Für den Juni 2003 sind keine aktuellen Erwärmungsraten verfügbar, so dass für die Messung am 09.06.2003 lediglich die Ergebnisse für die klimatologischen Erwärmungsraten angegeben werden können.

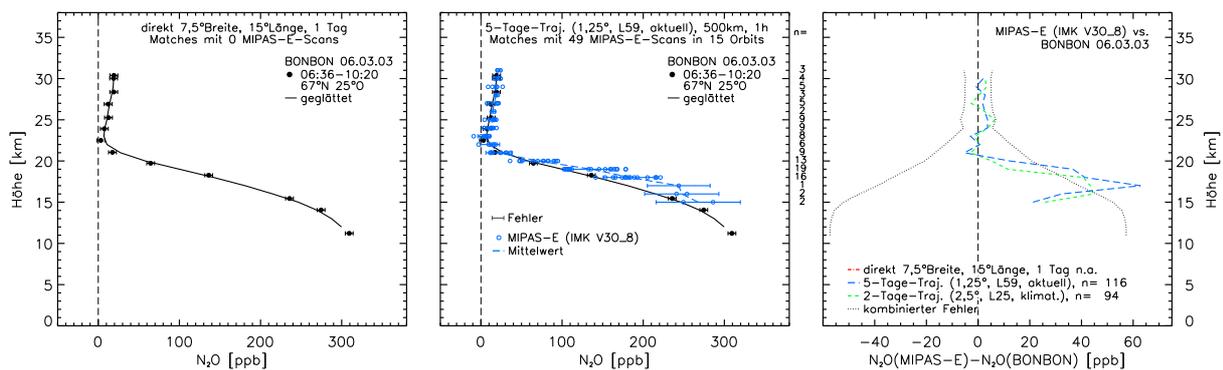
### 6.4.3. Validierungsergebnisse für N<sub>2</sub>O und CH<sub>4</sub>

#### N<sub>2</sub>O-Validierung

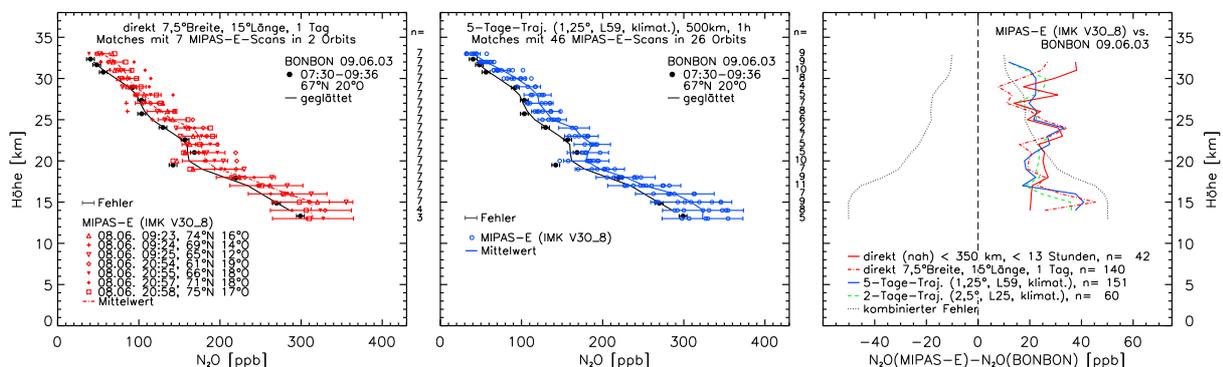
In Abbildung 6.16 sind die Ergebnisse der Validierungsstudien für N<sub>2</sub>O gezeigt. Beispielhaft sind die anhand der direkten Methode (1 Tag, 7,5° Breite, 15° Länge) ermittelten MIPAS-E-Koinzidenzen (links) bzw. die basierend auf 5-Tages-Trajektorien (1,25°, L59, aktuell bzw. klimatologisch, Matchkriterien: 500 km, 1 h) bestimmten MIPAS-E-Matches (Mitte) den jeweiligen



(a) Aire sur l'Adour, 24.09.2002



(b) Kiruna, 06.03.2003



(c) Kiruna, 09.06.2003

n = Gesamtzahl der Koinzidenzen für die jeweilige Höhe bzw. über alle Höhen

Abb. 6.16.: Vergleich zwischen MIPAS-E- und BONBON-Messungen für N<sub>2</sub>O

Tab. 6.5.: Mittlere absolute und relative N<sub>2</sub>O-Differenzen<sup>1)</sup> zwischen den MIPAS-E- und den BONBON-Messungen für Höhen  $\geq 20$  km

Datum	direkt [Urban et al., 2005] 1 Tag, 7,5°, 15°	direkt (nah) 350 km, 13 h	2-Tages-Trajekt. (2,5°, L25, klimat.) 500 km, 1 h	5-Tages-Trajekt. (1,25°, L59, aktuell) 500 km, 1 h
24.09.2002	20 ± 4 ppb 9 ± 3 % (142)	3 ± 9 ppb -3 ± 6 % (26)	2 ± 6 ppb -3 ± 4 % (43)	7 ± 4 ppb 0 ± 3 % (94)
06.03.2003	- -	- -	2 ± 2 ppb 7 ± 7 % (57)	3 ± 1 ppb 9 ± 6 % (73)
09.06.2003	20 ± 2 ppb 22 ± 2 % (91)	27 ± 2 ppb 30 ± 5 % (26)	21 ± 1 ppb 22 ± 2 % (37)	21 ± 1 ppb 22 ± 1 % (86)

<sup>1)</sup> Zur Bestimmung der absoluten Differenzen wurde der BONBON-Wert vom MIPAS-E-Wert abgezogen. Der relative Fehler wurde im Verhältnis zur Referenzmessung (BONBON) bestimmt. Zu den mittleren Differenzen ist der Standardfehler angegeben, der sich aus der Standardabweichung  $\sigma$  und der Anzahl der Wertepaare  $n$  berechnet zu:  $\sigma/\sqrt{n}$ . Die Anzahl der zugrundeliegenden Fälle  $n$  ist in Klammern angegeben.

BONBON-Messungen gegenübergestellt. Außerdem werden die berechneten mittleren Differenzen zwischen den Satelliten- und den Ballonmessungen dargestellt, die sich bei der Anwendung verschiedener Methoden zur Ermittlung der Koinzidenzen ergeben (Abb. 6.16 rechts). Für diese Methoden sind in Tabelle 6.5 die mittleren absoluten und relativen Differenzen für den Höhenbereich ab 20 km aufgeführt.

Die Differenzen zwischen den mittleren MIPAS-E- und den BONBON-Profilen verlaufen mit ansteigender Höhe i. Allg. unabhängig von der Methode zur Ermittlung der Koinzidenzen annähernd identisch. Die größten Abweichungen zwischen den mittleren Differenzen lassen sich für die Messung am 24.09.2002 um 24 km feststellen. Hier sind die anhand der direkten Methode (1 Tag, 7,5° Breite, 15° Länge) bestimmten Differenzen um bis zu 38 ppb größer als die basierend auf den der in-situ-Messung am nächsten liegenden MIPAS-E-Messungen berechneten Differenzen. Die im Vergleich zu den anderen Methoden systematisch höheren Differenzen der direkten Methode zwischen 22 und 28 km sind auf die MIPAS-E-Messungen bei 36 und 37°N zurückzuführen (siehe Abb. 6.16a links: schwarz-rote Symbole). Diese Messungen ergeben höhere N<sub>2</sub>O-Werte als die Messungen weiter nördlich und werden mit den anderen Koinzidenzkriterien ausgeschlossen werden. Mit den sehr weit gefassten Koinzidenzkriterien der direkten Methode werden hier räumlich zu weit entfernte MIPAS-E-Messungen erfasst, die zu einer Überschätzung der Differenzen zwischen den MIPAS-E- und den BONBON-Daten führen. Relativ hohe Abweichungen von bis zu 25 ppb zwischen den anhand der verschiedenen Methoden bestimmten Differenzen zwischen den Satelliten- und den Ballonmessungen treten auch am 09.06.2003 ab 28 km und darüber auf. Diese sind wahrscheinlich in erster Linie auf die geringe Anzahl der Koinzidenzen in den einzelnen Höhen und die daraus erwachsenden Unsicherheiten bei der Bestimmung der Differenzen zurückzuführen. Die Unterschiede zwischen den anhand der verschiedenen Trajektorien (2-Tages-Trajektorien, 2,5°, L25, klimatologisch vs. 5-Tages-Trajektorien, 1,25°, L59, aktuell) berechneten Differenzen sind fast immer kleiner als 5 ppb (siehe Abb. 6.16), so dass die mittleren

Differenzen für Höhen ab 20 km sehr gut übereinstimmen (siehe Tab. 6.5). Nur in Einzelfällen (z.B. am 24.09.2002 um 15 km und am 06.03.2003 um 17 km) treten hier Unterschiede von bis zu 20 ppb auf. Auch mit den anhand der nächsten MIPAS-E-Messungen berechneten Differenzen stimmen die basierend auf den Trajektorien ermittelten Differenzen i. Allg. gut überein. Insgesamt zeigen die basierend auf den verschiedenen Methoden ermittelten Differenzen zwischen den MIPAS-E- und den BONBON-Daten ein konsistentes Bild. Insbesondere werden Höhenbereiche mit Differenzen, die größer als der kombinierte Fehler sind, fast immer von allen Methoden gleichermaßen identifiziert. Die mittleren relativen Differenzen zwischen den Satelliten- und den Ballonmesswerten im Höhenbereich ab 20 km weisen für die basierend auf den Trajektorien ermittelten Koinzidenzen Unterschiede von 0 bis 8 % im Vergleich zu den Differenzen auf, die auf der Grundlage der zur Ballonmessung am nächsten liegenden MIPAS-E-Messungen ermittelt wurden (vgl. Tab. 6.5).

Die vom in-situ-Messgerät bestimmten  $N_2O$ -Profile zeigen im Wesentlichen den für die jeweilige meteorologische Situation typischen Verlauf mit der Höhe [vgl. Engel et al., 2002]. Am 24.09.2002 (mittlere Breiten während der Windumstellung) und am 09.06.2003 (hohe Breiten, Sommerzirkulation) nimmt die  $N_2O$ -Konzentration annähernd kontinuierlich mit der Höhe ab. Auffällig sind in beiden Profilen Regionen, in denen der Abfall der Konzentration mit der Höhe nicht streng monoton erfolgt (24.09.2002 oberhalb von ca. 19 km) oder sogar geringere Konzentrationen als in darüberliegenden Höhen feststellbar sind (09.06.2003 um 19 km und um 25 km). Diese zum Teil sprunghaften Änderungen der Spurengas-Konzentration werden durch Luftmassen unterschiedlichen Ursprungs hervorgerufen [z.B. Michelsen et al., 1998a]. Die am 06.03.2003 in hohen Breiten gemessene  $N_2O$ -Konzentrationen erreichen in zwischen 22 km und 23 km ihr Minimum mit Werten um 5 ppb und steigen dann wieder leicht an. Der stark ausgeprägte Gradient in den unteren Höhen und die geringen Werte ab ca. 22 km sind auf das Absinken  $N_2O$ -armer Luftmassen aus höheren Schichten innerhalb des Polarwirbels zurückzuführen [z.B. Engel et al., 2002, vgl. auch Abschnitt 2.3.4 und 2.4]. Ungewöhnlich ist das Minimum um ca. 23 km, das auf einen hohen Anteil vom mesosphärischen Luftmassen hinweist. Darauf wird in Kapitel 7 näher eingegangen.

Der prinzipielle Verlauf der  $N_2O$ -Ballonprofile wird von den mittleren MIPAS-E-Daten gut wiedergegeben. Auch das Minimum am 06.03.2003 und die Änderungen des vertikalen Gradienten für die anderen beiden Messungen werden – unter Berücksichtigung der vertikalen Auflösung von MIPAS-E – i. Allg. gut erfasst. Allerdings ergeben die MIPAS-E-Messungen insbesondere im unteren Höhenbereich höhere  $N_2O$ -Konzentrationen als die BONBON-Messungen (24.09.2002 unterhalb von 23 km, 06.03.2003 unter 20 km, 09.06.2003 gesamter Höhenbereich). Die mittleren absoluten Differenzen im Höhenbereich ab 20 km sind immer positiv (siehe Tab. 6.5). Abweichend zu den i. Allg. positiven Messabweichungen von MIPAS-E treten am 24.09.2002 um 30 km negative Differenzen zwischen den MIPAS-E- und den in-situ-Daten auf, die den kombinierten Fehler überschreiten. Da die absoluten  $N_2O$ -Konzentrationen in diesem Höhenbereich relativ gering sind, ergeben sich zum Teil negative mittlere relative Differenzen (siehe Tab. 6.5). Für den 06.03.2003 stimmen die von beiden Messgeräten ermittelten  $N_2O$ -Konzentrationen im Höhenbereich ab 20 km gut überein. Die mittlere Differenz zwischen den Satellitendaten und den

Ballonmessungen beträgt hier maximal  $3 \pm 1$  ppb (siehe Tab. 6.5). Um das  $\text{N}_2\text{O}$ -Minimum in ca. 23 km zeigen die MIPAS-E-IMK-Daten z.T. negative Werte.

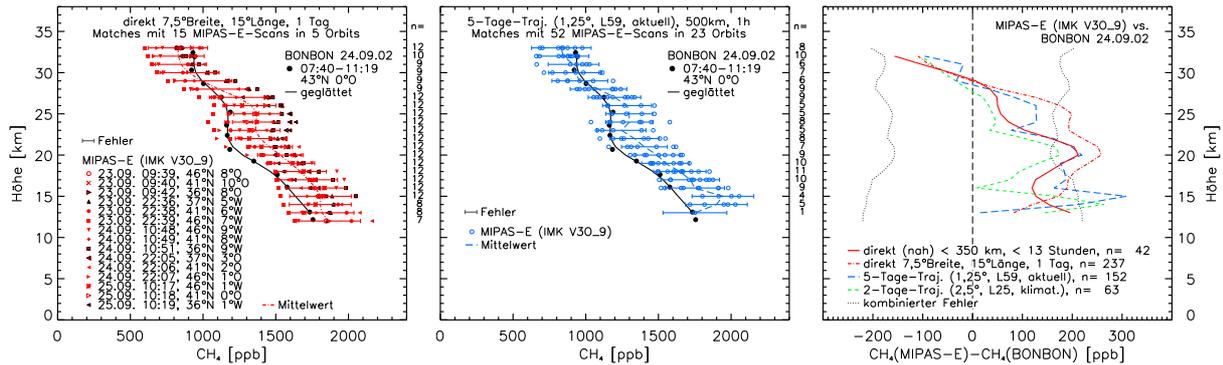
Für jeden der hier untersuchten Fälle gibt es Höhenbereiche, in denen die positive Abweichung von MIPAS-E gegenüber BONBON den kombinierten Fehler beider Messgeräte überschreitet. Zum Teil werden von MIPAS-E in den untersten Höhenbereichen  $\text{N}_2\text{O}$ -Werte von bis zu 400 ppb gemessen (24.09.2002). Auch unter Berücksichtigung des relativ großen Gesamtfehlers in diesem Höhenbereich liegen die Messwerte damit über den aktuellen troposphärischen Werten von ca. 320 ppb, die eine obere Grenze für die zu erwartenden Messwerte darstellen. Die positiven Abweichungen der MIPAS-E-Daten von den BONBON-Messungen könnte grundsätzlich auch durch eine falsche Höhenzuordnung der MIPAS-E-Daten zustandekommen. Eine Verschiebung der MIPAS-E-Profile um ca. 1-2 km nach unten, würde die positiven Abweichungen in vielen Höhenbereichen erheblich reduzieren und nur in wenigen Höhen zu (stärkeren) negativen Abweichungen führen. Allerdings deuten die erheblich zu hohen Werte in den unteren Höhenbereichen darauf hin, dass mögliche Probleme bei der Höhenzuordnung nicht die entscheidende Ursache für die positiven MIPAS-E-Abweichungen sind. Eine prinzipielle Überschätzung der  $\text{N}_2\text{O}$ -Konzentrationen durch die MIPAS-E-IMK-Daten wird z.B. auch von Glatthor et al. [2005] festgestellt. Zu hohe Werte treten sowohl bei den operationellen ESA-Daten als auch bei den IMK-Daten auf. Glatthor et al. [2005] geben als wahrscheinliche Ursache dafür Probleme bei der Kalibrierung von MIPAS-E an.

Für alle drei untersuchten Fälle sind – mit unterschiedlicher Ausprägung – höhenabhängige Oszillationen in den ermittelten Differenzen feststellbar, die im Zusammenhang mit der  $\text{CH}_4$ -Validierung noch diskutiert werden.

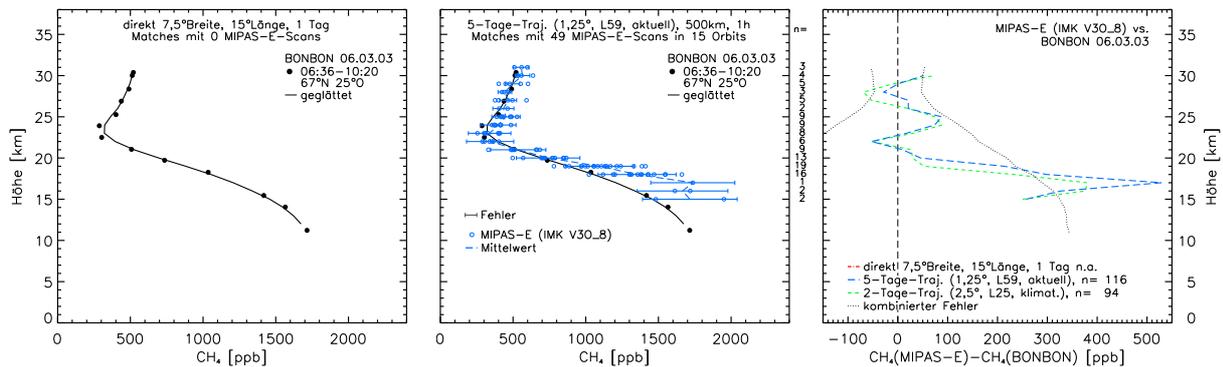
### **$\text{CH}_4$ -Validierung**

Für die  $\text{CH}_4$ -Vergleiche ergibt sich sowohl für die Unterschiede zwischen den Methoden zur Koinzidenzermittlung als auch für die Validierung selbst qualitativ dasselbe Bild wie für die  $\text{N}_2\text{O}$ -Validierung. Die Ergebnisse für  $\text{CH}_4$  sind wieder beispielhaft in Abbildung 6.17 dargestellt. Die mittleren absoluten und relativen Differenzen zwischen den MIPAS-E-IMK-Daten und den BONBON-Messungen, die basierend auf unterschiedlichen Methoden zur Koinzidenzermittlung bestimmt wurden, sind in Tabelle 6.6 aufgeführt.

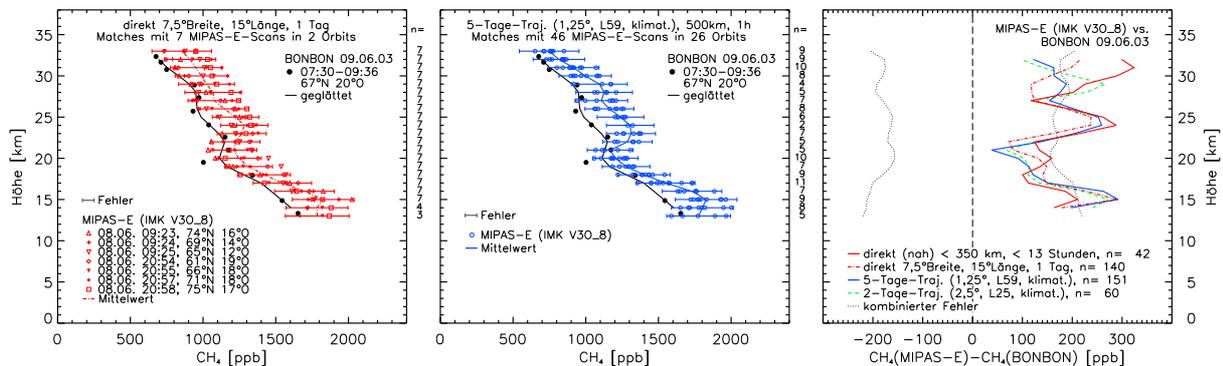
Die anhand der unterschiedlichen Methoden bestimmten Differenzen zwischen den MIPAS-E- und den Ballonprofilen zeigen überwiegend einen identischen Verlauf. Sehr große Abweichungen im Vergleich zu den anderen Methoden zeigt die direkte Methode (1 Tag,  $7,5^\circ$  Breite,  $15^\circ$  Länge) für den 24.09.2002. Die mittleren Differenzen ab 20 km Höhe sind für die direkte Methode ca. 50 ppb (4 %) höher, als das Maximum der mittleren Differenzen, die von den anderen Methoden bestimmt werden (siehe Tab. 6.6). Wie bereits erläutert, sind diese Abweichungen auf ein zu weit gefasstes räumliches Koinzidenzkriterium zurückzuführen. Auch für den 09.06.2003 zeigen sich erhebliche Unterschiede in den für den Höhenbereich ab 20 km bestimmten mittleren Differenzen. Hier sind die aus den am nächsten zur BONBON-Messung liegenden MIPAS-E-Messungen bestimmten mittleren Differenzen um ca. 60 ppb (6 %) höher (siehe Tab. 6.6), als



(a) Aire sur l'Adour, 24.09.2002



(b) Kiruna, 06.03.2003



(c) Kiruna, 09.06.2003

$n$  = Gesamtzahl der Koinzidenzen für die jeweilige Höhe bzw. über alle Höhen

Abb. 6.17.: Vergleich zwischen MIPAS-E- und BONBON-Messungen für CH<sub>4</sub>

die anhand der anderen Methoden ermittelten Differenzen. Ursache dafür sind die erheblichen Unterschiede ab ca. 30 km und darüber. Zwischen 20 und 30 km stimmen die anhand der unterschiedlichen Methoden ermittelten Differenzen sehr gut überein. Die mittleren relativen Differenzen zwischen den Satelliten- und den Ballonmesswerten im Höhenbereich ab 20 km weisen für die basierend auf den Trajektorien ermittelten Koinzidenzen Unterschiede von 0 bis 6 % im Vergleich zu den Differenzen auf, die auf der Grundlage der zur Ballonmessung am nächsten liegenden MIPAS-E-Messungen ermittelt wurden (vgl. Tab. 6.6).

Tab. 6.6.: Mittlere absolute und relative CH<sub>4</sub>-Differenzen<sup>1)</sup> zwischen den MIPAS-E- und den BONBON-Messungen für Höhen  $\geq 20$  km

Datum	direkt [Urban et al., 2005] 1 Tag, 7,5°, 15°	direkt (nah) 350 km, 13 h	2-Tages-Trajekt. (2,5°, L25, klimat.) 500 km, 1 h	5-Tages-Trajekt. (1,25°, L59, aktuell) 500 km, 1 h
24.09.2002	124 ± 17 ppb 10 ± 2 % (142)	50 ± 39 ppb 4 ± 4 % (26)	35 ± 25 ppb 2 ± 2 % (43)	74 ± 17 ppb 6 ± 2 % (94)
06.03.2003	– –	– –	20 ± 13 ppb 5 ± 3 % (57)	31 ± 10 ppb 7 ± 2 % (73)
09.06.2003	157 ± 12 ppb 17 ± 1 % (91)	218 ± 19 ppb 24 ± 3 % (26)	165 ± 15 ppb 18 ± 2 % (37)	158 ± 10 ppb 17 ± 1 % (86)

<sup>1)</sup> Zur Bestimmung der absoluten Differenzen wurde der BONBON-Wert vom MIPAS-E-Wert abgezogen. Der relative Fehler wurde im Verhältnis zur Referenzmessung (BONBON) bestimmt. Zu den mittleren Differenzen ist der Standardfehler angegeben, der sich aus der Standardabweichung  $\sigma$  und der Anzahl der Wertepaare  $n$  berechnet zu:  $\sigma/\sqrt{n}$ . Die Anzahl der zugrundeliegenden Fälle  $n$  ist in Klammern angegeben.

Der Verlauf der CH<sub>4</sub>-Profile, die vom in-situ-Gerät gemessen wurden, entspricht qualitativ den bereits diskutierten N<sub>2</sub>O-Profilen. Die CH<sub>4</sub>-Konzentrationen nehmen für den 24.09.2002 und für den 09.06.2003 mit der Höhe annähernd kontinuierlich ab. Abweichend davon gibt es am 24.09.2002 Höhenbereiche mit fast konstanten CH<sub>4</sub>-Konzentrationen und am 09.06.2003 treten um 19 und um 25 km CH<sub>4</sub>-Werte auf, die niedriger sind als in den darüberliegenden Höhen. Für den 06.03.2003 ist das CH<sub>4</sub>-Minimum etwas stärker ausgeprägt als für N<sub>2</sub>O.

Die MIPAS-E-Messungen geben den Verlauf der CH<sub>4</sub>-BONBON-Profile gut wieder. Aber auch für CH<sub>4</sub> überschätzen die MIPAS-E-Daten in vielen Höhen die vom BONBON-Messgerät ermittelten Werte. Die berechneten mittleren Differenzen zwischen den MIPAS-E-IMK- und den BONBON-Werten für den Höhenbereich ab 20 km sind für alle untersuchten Fälle unabhängig von der Methode zur Koinzidenzbestimmung positiv (siehe Tab. 6.6). In den unteren Höhenbereichen ergeben sich zum Teil unrealistisch hohe Werte von mehr als 2000 ppb, die über den aktuellen Werten in der Troposphäre (ca. 1800 ppb) liegen. Ursache für die prinzipiell zu hohen CH<sub>4</sub>-MIPAS-E-Werte, die sich auch für die ESA-Daten feststellen lassen, sind wie bei N<sub>2</sub>O Probleme bei der Kalibrierung des Satelliteninstrumentes [Glatthor et al., 2005]. Negative Abweichungen zwischen den MIPAS-E- und den BONBON-Profilen, die i. Allg. innerhalb des kombinierten Fehlers liegen, treten lediglich am 24.09.2002 in einem kleinen Höhenbereich um 30 km und am 06.03.2003 in Höhen oberhalb von 20 km auf.

Die bereits für N<sub>2</sub>O festgestellten Oszillationen in den mittleren Differenzen lassen sich ebenso für CH<sub>4</sub> identifizieren. Aufgrund der höheren absoluten CH<sub>4</sub>-Konzentrationen sind diese Oszillationen deutlicher ausgeprägt als für N<sub>2</sub>O (v.a. am 06.03.2003 im Höhenbereich ab 20 km). CH<sub>4</sub>- und N<sub>2</sub>O-Oszillationen zeigen sich auch für die anhand des ESA-Algorithmus abgeleiteten Werte [Payan et al., 2007]. Ridolfi und Sgheri [2008] untersuchen die Ursachen dieser Oszillationen anhand des operationellen ESA-Algorithmus. Zur Glättung der Spurengas-Profile führen

sie für den ESA-Algorithmus eine Tikhonov-Regularisierung ein. Über die Stärke der Regularisierung kann bestimmt werden, inwieweit die Profile geglättet werden. Damit wird letztlich die vertikale Auflösung der abgeleiteten Profile festgelegt. Ridolfi und Sgheri [2008] verwenden dazu eine automatisierte höhenabhängige Methode, die so angelegt ist, dass künstliche Oszillationen soweit wie möglich unterdrückt werden ohne tatsächlich vorhandene kleinskalige vertikale Strukturen zu zerstören. Sie können durch die Methode eine Reduzierung der Oszillationen in den ESA-Profilen erreichen. Im IMK-Algorithmus wird bereits eine Tikhonov-Regularisierung angewendet [Glatthor et al., 2005]. Möglicherweise lassen sich die hier gefundenen Oszillationen in den IMK-Daten aber durch geänderte Regularisierungs-Parameter vermindern. Auch Payan et al. [2007] diskutieren die möglichen Ursachen der Oszillationen in den ESA-Profilen. Nach ihren Angaben haben die Temperatur- und Wasserdampfprofile, die in die Profibleitung für  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  eingehen, keine Auswirkungen auf die Oszillationen. Sie stellen aber fest, dass die Oszillationen vermindert werden können, wenn die Anzahl der vom Algorithmus verwendeten Wellenlängenbereiche (*microwindows*) erhöht wird.

### $\text{CH}_4$ - $\text{N}_2\text{O}$ -Korrelationen

In Abbildung 6.18 sind  $\text{CH}_4$ - $\text{N}_2\text{O}$ -Korrelationen für die drei in-situ-Messungen und die anhand der 5-Tages-Trajektorien ( $1,25^\circ$ , L59, klimat.) ermittelten MIPAS-E-Koinzidenzen dargestellt. Die anhand der anderen Methoden ermittelten MIPAS-E-Messungen ergeben jeweils ein vergleichbares Bild. Die vom BONBON-Instrument gemessenen Spurengaskonzentrationen zeigen die für die jeweilige meteorologische Situation zu erwartenden  $\text{CH}_4$ - $\text{N}_2\text{O}$ -Korrelationen [vgl. Michelsen et al., 1998a]. Die für die Messung in hohen Breiten im Winter/Frühjahr ermittelte Korrelation ist dabei prinzipiell zu niedrigeren Werten hin verschoben, da durch das Absinken innerhalb des Polarwirbels  $\text{CH}_4$ - und  $\text{N}_2\text{O}$ -arme Luft in niedrige Höhen transportiert wird (vgl. auch Abschnitte 2.3.4 und 2.4.3).

Für alle drei Fälle zeigen die MIPAS-E-Daten im Wesentlichen denselben Verlauf wie die in-situ-Messungen und einen relativ kompakten Zusammenhang mit nur geringer Streuung. Im

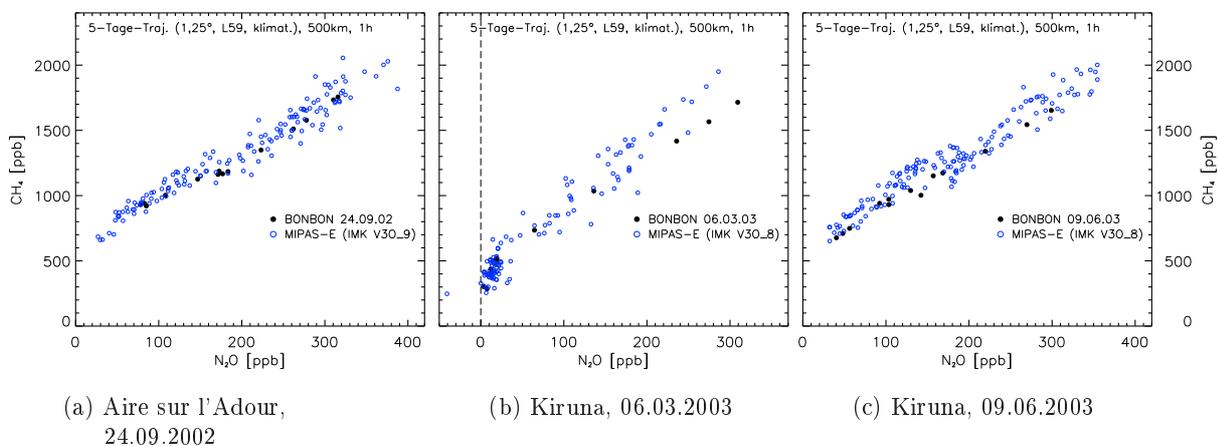


Abb. 6.18.:  $\text{CH}_4$ - $\text{N}_2\text{O}$ -Korrelationen für MIPAS-E und BONBON

Vergleich zu den BONBON-Messungen ist aber insbesondere bei der Messung am 06.03.2003 eine leichte Überschätzung der CH<sub>4</sub>-Daten durch MIPAS-E offensichtlich – der überwiegende Teil der MIPAS-E-Datenpunkte liegt bei gleichen N<sub>2</sub>O-Werten oberhalb der BONBON-Punkte. Eine solche Verschiebung der CH<sub>4</sub>-N<sub>2</sub>O-Korrelationen im Vergleich zu anderen Datensätzen wird für die MIPAS-E-IMK-Daten auch von Glatthor et al. [2005] festgestellt. Darüberhinaus lassen sich auch hier die zu hohen MIPAS-E-Werte identifizieren, die in den unteren Höhenbereichen gemessen wurden. Wie bereits beschrieben, sind CH<sub>4</sub>-Konzentrationen von mehr als 1800 ppb bzw. N<sub>2</sub>O-Konzentrationen von mehr als 320 ppb aufgrund der aktuellen troposphärischen Konzentrationen nicht zu erwarten.

## 6.5. Zusammenfassung

Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Methode zur Identifizierung von Koinzidenzen zwischen Satelliten- und Ballonmessungen anhand von Luftmassen-Trajektorien ist ein wichtiges Hilfsmittel zur Satellitenvalidierung. Sie erlaubt:

- eine hinsichtlich möglicher Koinzidenzen mit dem zu validierenden Satellitenmessgerät optimierte Planung der Ballonflüge (siehe Kap. 6.1),
- das Ermitteln einzelner für die Satellitenvalidierung am besten geeigneter Matches sowie des relevanten Höhenbereiches (siehe Kap. 6.2 und Kap. 6.3 sowie Butz et al. [2006]; Dorf et al. [2006]),
- die Bestimmung vieler Matches in unterschiedlichen Höhenbereichen, um eine statistische Auswertung zu ermöglichen (siehe Kap. 6.2 und Kap. 6.4 sowie Payan et al. [2007]; Wetzel et al. [2007]; Olinger [2005]; Zhang [2006]),
- eine photochemische Modellierung entlang der Trajektorien bei Spurengasen mit Tagesgang (z.B. NO<sub>2</sub> und BrO, siehe Kap. 6.3 und Butz et al. [2006]; Dorf et al. [2006]; Wetzel et al. [2007]; Olinger [2005]; Zhang [2006]) sowie
- die Bestimmung von Koinzidenzen für ein zweites Satelliteninstrument, das während der Flugplanung nur bedingt berücksichtigt werden konnte [Olinger, 2005; Zhang, 2006].

So wurden die MIPAS-B2-Flüge hinsichtlich der MIPAS-E-Validierung optimiert und i. Allg. nachts durchgeführt. Eine SCIAMACHY-Validierung anhand der MIPAS-B2-Messungen war dementsprechend nur basierend auf Trajektorienrechnungen möglich [vgl. Olinger, 2005; Zhang, 2006]. Die trajektorienbasierte Methode erlaubt es auch, für die Validierung geeignete Koinzidenzen zu bestimmen, wenn für die in unmittelbarer Nähe zur Ballonmessung durchgeführten Satellitenmessungen keine ausgewerteten Spurengasprofile zur Verfügung stehen (siehe Kap. 6.4). Während der Ballonflugplanung ist die Methode v.a. für Balloninstrumente mit stark eingeschränkter Startzeit wie dem LPMA/DOAS-Gerät eine entscheidende Planungshilfe.

Bei der Anwendung der Methode müssen verschiedene Parameter (Vorwärts-/Rückwärtstest, PV-Erhaltung, Koinzidenzen anhand mehrerer Trajektorien über einen bestimmten Höhenbereich) überprüft werden, um möglicherweise aus der Methode resultierende Fehler zu minimieren.

Beim Vergleich von Ballonmessungen mit einzelnen zeitnahen Satellitenprofilen hat die Art des zugrundeliegenden Trajektorienmodelles i. Allg. keinen Einfluss auf die ermittelten Satelliten-Koinzidenzen. Auch die photochemische Modellierung, die bei der Validierung kurzlebiger Spurengase notwendig ist, wird von den zugrundeliegenden Trajektorien nur wenig beeinflusst. Anhand einer Sensitivitätsstudie für  $\text{NO}_2$  (siehe Kap. 6.3) konnte gezeigt werden, dass sich die Validierungsergebnisse im Höhenbereich ab 20 km um maximal 4 % ändern.

Für langlebige Spurengase konnte mit den hier durchgeführten Fallstudien (siehe Kap. 6.4) gezeigt werden, dass die Methode für Trajektorien, die über einen Zeitraum von 5 Tagen berechnet wurden, anwendbar ist. Die aus der Methode resultierenden mittleren Fehler liegen für den Höhenbereich ab 20 km maximal bei 8 %. Der von Danilin et al. [2002b] anhand von trajektorienbasierten Koinzidenzen eines Satelliteninstrumentes mit sich selbst und anhand von Vergleichen zwischen verschiedenen Satelliteninstrumenten abgeschätzte Fehler von 3–5 % erscheint daher als zu gering. Der hier ermittelte Fehler für die Methode liegt für die untersuchten Fälle i. Allg. deutlich unterhalb des kombinierten Fehlers aus den beiden Messinstrumenten, so dass der Einfluss der Methode auf die Validierungsergebnisse als insgesamt gering eingeschätzt werden kann.

Aus den durchgeführten Fallstudien kann lediglich der Einfluss des zugrundeliegenden Trajektorienmodelles bestimmt werden. Zusätzliche Unsicherheiten erwachsen aus den im Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Unterschieden zwischen verschiedenen meteorologischen Eingangsdaten. Für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten operationellen Daten des ECMWF zeigen verschiedene Studien im Vergleich zu anderen meteorologischen Datensätzen eine gleiche bzw. bessere Qualität der Daten (siehe Abschnitt 4.2.2). Daher kann von einer relativ hohen Qualität der ECMWF-Daten ausgegangen werden.

Die hier gefundenen Ergebnisse sind nicht ohne weiteres auf andere Anwendungen übertragbar. So ist zu erwarten, dass die photochemische  $\text{NO}_2$ -Korrektur bei Koinzidenzen, die mehr als einen Tag von der Ballonmessung entfernt stattfanden, eine höhere Sensitivität zu den Trajektorien aufweist, als bei den in Kapitel 6.3 untersuchten Matches innerhalb eines Tages. Auch für andere kurzlebige Spurengase kann sich eine höhere Sensitivität hinsichtlich der zugrundeliegenden Trajektorien ergeben als für  $\text{NO}_2$ . Die in Kapitel 6.4 für die langlebigen Spurengase  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CH}_4$  gezeigte geringe Sensitivität der Validierungsergebnisse bezüglich der zugrundeliegenden Trajektorien ist ebenfalls nur bedingt auf andere Spurengase übertragbar.

## 7. Der Eintrag mesosphärischer Luft in die Stratosphäre im Winter 2002/03

Die in Kapitel 6.4 zur MIPAS-E-Validierung verwendeten BONBON-Messungen weisen jeweils Höhenbereiche auf, in denen die Spurengaskonzentrationen auf eine unterschiedliche Herkunft der Luftmassen schließen lassen. Bestimmte Spurengase lassen zwar Rückschlüsse auf die Herkunft der Luftmassen zu (siehe Abschnitte 2.4.3 und 2.4.4), allein auf der Grundlage der gemessenen Spurengaskonzentrationen ist eine Analyse der zugrundeliegenden Transportprozesse aber nur bedingt möglich. Anlass für die folgenden Untersuchungen waren Ballonmessungen in hohen Breiten im Januar und März 2003. Diese Messungen zeigen in der unteren bzw. mittleren Stratosphäre jeweils eine Schicht mit Spurengaskonzentrationen, wie sie nur durch den Eintrag von Luftmassen aus Schichten oberhalb der Stratosphäre – der Mesosphäre (vgl. Kap. 2.1) – zu erklären ist. Anhand von Trajektorienrechnungen wird im Folgenden der Zeitpunkt des Luftmassen-Eintrages in die Stratosphäre bestimmt und im Hinblick auf die meteorologische Situation im Winter 2002/03 analysiert. Die Ergebnisse der Trajektorienrechnungen sind z.T. bereits in Engel et al. [2006] veröffentlicht, sie werden hier durch umfassendere Analysen erweitert.

Ein hoher Anteil mesosphärischer Luft in der Stratosphäre konnte für einzelne Episoden bzw. Winter bereits in der Vergangenheit gemessen bzw. modelliert werden [z.B. Fisher, 1993; Kouker et al., 1995; Plumb et al., 2002; Ray et al., 2002]. Rosenfield und Schoeberl [2001] zeigen anhand von Trajektorien, dass der Eintrag mesosphärischer Luftmassen sowohl in der Antarktis als auch in der Arktis einer hohen zwischenjährlichen Variabilität unterliegt und regelmässig stattfindet. Weitere auf Trajektorien basierende Studien [z.B. Sutton, 1994; Manney et al., 1994, 1999] zeigen im polaren Winter einen Eintrag mesosphärischer Luftmassen in die Stratosphäre und ein starkes Absinken von Luftmassen in der oberen Stratosphäre. Aktuelle Satelliten-Beobachtungen lassen ebenfalls auf einen regelmässigen Eintrag mesosphärischer Luftmassen in die Stratosphäre schließen [Stiller et al., 2008; Manney et al., 2008a]. Eine detaillierte Analyse von vertikal hochaufgelösten Ballonmessungen in hohen Breiten im Winter basierend auf Trajektorienrechnungen – wie sie hier durchgeführt wird – erfolgte in anderen Untersuchungen nicht.

Im folgenden Kapitel werden zunächst die Spurengasmessungen vom Januar und März 2003 vorgestellt, die einen hohen Anteil mesosphärischer Luftmassen implizieren (Kapitel 7.1). Die Entwicklung des Winters 2002/03 in der Stratosphäre wird beschrieben (Kapitel 7.2). Basierend auf mit dem FUB-Modell berechneten Trajektorien wird die Luftmassenherkunft analysiert (Kapitel 7.3). Die Ergebnisse dieser Analysen werden mit den Beobachtungen und anderen Modellstudien verglichen (Kapitel 7.4) und abschließend zusammengefasst (Kapitel 7.5).

## 7.1. Ballon-Messungen in Kiruna im Winter 2002/03

Im Rahmen der ENVISAT-Validierung fanden im Januar und März 2003 in Kiruna ( $68^{\circ}\text{N}$ ,  $21^{\circ}\text{E}$ ) eine Reihe von Ballonflügen statt (vgl. Tab. 6.1), bei denen eine Vielzahl von Spurengasen gemessen werden konnte. Einige Messungen zeigten Höhenbereiche mit ungewöhnlichen Spurengaskonzentrationen, die auf eine mesosphärische Herkunft der Luftmassen hinweisen (siehe Abschnitt 2.4.4). Die Konzentrationen der einzelnen Spurengase werden durch unterschiedliche chemische und physikalische Prozesse bestimmt [Engel et al., 2006]. Daher lassen sich nicht für jedes Spurengas identische Höhen mit von den umliegenden Schichten abweichenden Konzentrationen identifizieren. Im Folgenden wird auf die BONBON-Messungen Anfang März 2003 näher eingegangen. Die Daten wurden von Andreas Engel (Universität Frankfurt) zur Verfügung gestellt und z.T. bereits in Kapitel 6.4 im Zusammenhang mit der MIPAS-E-Validierung diskutiert.

Abbildung 7.1 stellt die Vertikalprofile verschiedener Spurengase für die BONBON-Messung am 06.03.2003 dar. Die Messung fand innerhalb des Polarwirbels statt [Engel et al., 2006, siehe auch Abb. 7.6 in Kap. 7.3]. Entsprechend weisen  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  (Abb. 7.1a) unterhalb von ca. 22 km einen stark ausgeprägten vertikalen Gradienten auf (vgl. Abschnitt 2.3.4). Oberhalb dieser Höhe zeigen beide Spurengase ein Minimum mit darüber wieder ansteigenden Mischungsverhältnissen. Die Minima um ca. 22,5 km für  $\text{N}_2\text{O}$  bzw. um 24 km für  $\text{CH}_4$  deuten auf mesosphärische Luftmassen hin. Auch das  $\text{CO}_2$ -Minimum (Abb. 7.1a) liegt in etwa 22 km Höhe. Allerdings ist der vertikale  $\text{CO}_2$ -Gradient sehr gering – die Änderung der  $\text{CO}_2$ -Konzentration ist für den gesamten Höhenbereich kleiner als 6 % (vgl. Skala für  $\text{CO}_2$  in Abb. 7.1a). Darüberhinaus liegen die Unterschiede zwischen den in den verschiedenen Höhen ermittelten  $\text{CO}_2$ -Konzentrationen zum Teil im Bereich der Genauigkeit der BONBON-Messungen von 0,2 ppm [Strunk et al., 2000]. In Abbildung 7.1b ist für  $\text{CO}$  und  $\text{H}_2$  in ca. 25 km ein ausgeprägtes Maximum zu erkennen.  $\text{SF}_6$  zeigt ebenfalls in etwa 25 km eine Schicht mit sehr niedrigen Konzentrationen. Das aus den  $\text{SF}_6$ -Messungen abgeleitete Alter der Luft erreicht in der Schicht um 25 km einen Wert von fast 12 Jahren und unterscheidet sich damit stark von dem aus den  $\text{CO}_2$ -Messungen für diese Schicht berechneten Alter von knapp 6 Jahren [Engel et al., 2006]. Das  $\text{SF}_6$ -Alter wird aufgrund der mesosphärischen Senke überschätzt (siehe Abschnitt 2.4.4). Engel et al. [2006] bezeichnen es daher als scheinbares Alter der Luft. Sie schätzen den Anteil mesosphärischer Luftmassen über verschiedene Annahmen zur Differenz zwischen diesem scheinbaren Alter und dem tatsächlichen Alter der Luft ab. Für die Schicht um 25 km ermitteln sie einen mesosphärischen Anteil zwischen 36 % (bei einer Altersdifferenz von 15 Jahren), 54 % (10 Jahre) und 108 % (5 Jahre). Die Differenz zwischen dem scheinbaren Alter und dem tatsächlichen Alter ist offensichtlich größer als 5 Jahre. Die obere Grenze für den mesosphärischen Anteil kann unter Berücksichtigung der Unsicherheiten in den Annahmen als reine mesosphärische Luft interpretiert werden.

Hinweise auf einen hohen Anteil mesosphärischer Luftmassen ergaben sich auch anhand der SPIRALE-Messung vom 21.01.2003 und anhand der MIPAS-B2-Messungen vom 21./22.03.2003 (Details und Referenzen zu den Messgeräten siehe Kap. 3.3). Die SPIRALE-Messung im Januar 2003 fand kurz nach einem Major Warming in einer gestörten meteorologischen Situation statt (siehe Kap. 7.2). Im unteren Höhenbereich bis ca. 21 km wurden daher durch die Messung

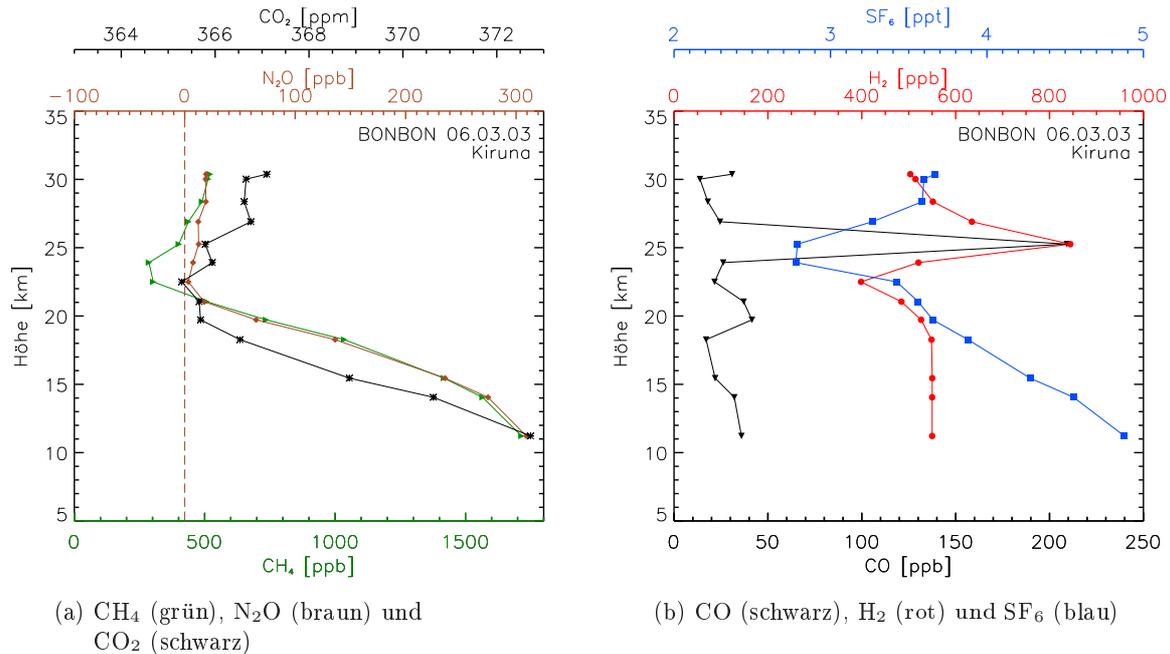


Abb. 7.1.: BONBON-Messungen am 06.03.2003 in Kiruna ( $68^{\circ}\text{N}$ ,  $21^{\circ}\text{E}$ )  
 [Daten: A. Engel, Universität Frankfurt; CO<sub>2</sub>: I. Levin, Universität Heidelberg]

Luftmassen außerhalb des Polarwirbels bzw. im Polarwirbelrand erfasst. Ab ca. 23 km ( $\sim 550$  K) wurde die Messung innerhalb des Polarwirbels durchgeführt [Huret et al., 2006]. Im Höhenbereich zwischen 29 und 31 km weist die SPIRALE-Messung sehr hohe CO-Werte auf, wie sie typischerweise in Höhen zwischen 60 und 70 km in mittleren Breiten auftreten [Huret et al., 2006]. Bei dem MIPAS-B2-Flug wurden ab ca. 18 km und darüber Luftmassen innerhalb des Polarwirbels gemessen [Wetzel et al., 2006]. Zwischen ca. 21 und 23 km lässt sich für diese Messungen ein Bereich mit einer relativ hohen NO<sub>y</sub>-Konzentration (als Summe von HNO<sub>3</sub>, ClONO<sub>2</sub>, NO und NO<sub>2</sub>) feststellen. Die gemessene NO<sub>y</sub>-Konzentration weicht nach Engel et al. [2006] erheblich von der NO<sub>y</sub>\*-Konzentration ab, die sich für ungestörte polare Winterbedingungen aus der gemessenen N<sub>2</sub>O-Konzentration ableiten lässt. Müller et al. [2007] zeigen jedoch, dass die NO<sub>y</sub>-N<sub>2</sub>O-Korrelation bereits im Frühwinter durch chemische Prozesse verändert wurde. Sie schließen daraus, dass die Schicht zwischen 21 und 23 km nicht wesentlich durch mesosphärische Luftmassen beeinflusst wurde. Anhand von neu ausgewerteten CO-Spektren der MIPAS-B2-Messungen können Müller et al. [2007] aber zwischen 24 und 27 km einen Höhenbereich mit erhöhten CO-Werten identifizieren, der auf einen mesosphärischen Einfluss schließen lässt.

## 7.2. Synoptische Entwicklung des Winters 2002/03

Im Folgenden wird kurz die synoptische Entwicklung des Winters 2002/03 vorgestellt, wobei der Schwerpunkt auf der Situation in der oberen Stratosphäre liegt. Eine ausführliche Beschreibung des Winters – v.a. für die mittlere und untere Stratosphäre – findet sich z.B. in Naujokat und Grunow [2003]. Der arktische Winter 2002/03 war in mehrfacher Hinsicht außergewöhnlich. Er

begann sehr kalt und wurde ab Ende Dezember durch mehrere Stratosphärenerwärmungen (siehe Abschnitt 2.3.2) geprägt. Einen Überblick zum Winterverlauf gibt Abbildung 7.2. Sie zeigt den zonalen Wind in 60°N sowie die Temperaturdifferenz zwischen dem Nordpol und mittleren Breiten (60°N) im Zeitverlauf für einen Höhenbereich von 100 hPa bis 0,3 hPa ( $\sim 57$  km). In Abbildung 7.3 ist das Geopotential und die Temperaturverteilung in 1 hPa für einzelne Tage im Winter 2002/03 dargestellt.

Sowohl im Oktober als auch im November lag die Monatsmittel-Temperatur über dem Nordpol in 10 hPa um mindestens 5 K unterhalb des langjährigen Mittels (Abb. 7.4). Vergleichbare Abweichungen zum langjährigen Mittel lassen sich auch in 30 hPa feststellen [vgl. Labitzke und Naujokat, 2000]<sup>1</sup>. Entsprechend hatte sich bereits zu Beginn des Winters über dem Polargebiet ein kalter, stabiler Wirbel etabliert (Abb. 7.3 oben links). Ab Mitte November führten kleine Wärmeimpulse in der oberen Stratosphäre zu einer Verschiebung des Kältegebietes nach Süden (Abb. 7.3 oben rechts). Der Temperaturgradient in der obersten Stratosphäre war aufgrund dieser Verlagerung des Kältegebietes über den gesamten Dezember positiv, die Zirkulation blieb davon aber weitgehend unbeeinflusst (Abb. 7.2).

Während des starken Minor Warmings Ende Dezember entwickelte sich in der oberen Stratosphäre ein kräftiges Wärmegebiet, das ein entsprechend starkes Hoch nach sich zog (Abb. 7.3 unten links). Die Erwärmung führte zu einem positiven Temperaturgradienten zwischen dem Pol und mittleren Breiten bis 20 hPa. Der zonale Wind in 60°N kehrte nur in den obersten Schichten auf Ostwind um (Abb. 7.2).

Mitte Januar trat eine neue Erwärmung auf. Sie war in der oberen Stratosphäre nicht so stark wie das Minor Warming im Dezember (Abb. 7.3 unten), setzte sich aber bis in die unteren stratosphärischen Schichten durch. In der mittleren und unteren Stratosphäre teilte sich der Polarwirbel in zwei Zentren. In der Folge waren am 18.01.2003 die Bedingungen für ein Major Warming erfüllt: in 10 hPa und darüber war der Temperaturgradient zwischen dem Pol und 60°N positiv und in 60°N herrschte im zonalen Mittel Ostwind (Abb. 7.2).

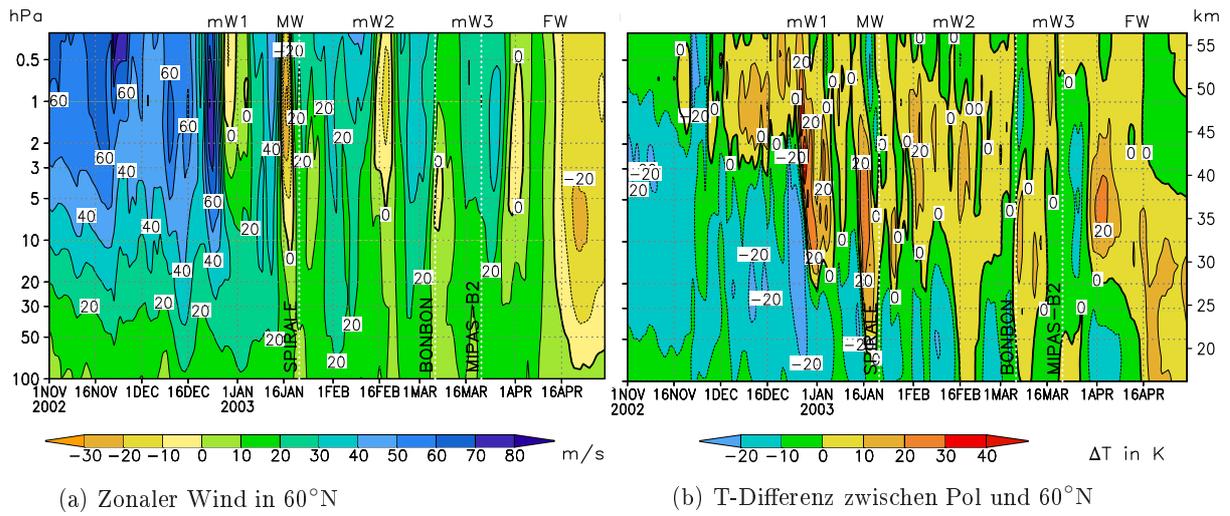
Im Februar und März wechselten sich kalte Perioden mit zwei weiteren Minor Warmings ab. Das Minor Warming Mitte Februar führte in der unteren und mittleren Stratosphäre zwischen 14. und 23. Februar zu einer erneuten Teilung des Wirbels in zwei Zentren. In der oberen Stratosphäre verschob sich der Polarwirbel nach Süden, so dass im zonalen Mittel in 60°N bis etwa 5 hPa und darüber Ostwind herrschte (Abb. 7.2). Nach dem Minor Warming bildete sich Anfang März wieder ein relativ kräftiger, kalter Polarwirbel, der in Folge des Minor Warmings Mitte März abgeschwächt wurde.

Das Final Warming begann Ende März mit einem erneuten Wärmeverstoß, der Mitte April zur Umstellung auf die sommerlichen Temperatur- und Zirkulationsverhältnisse führte (Abb. 7.2).

In Abbildung 7.5 ist die Temperaturentwicklung über Kiruna im Winter 2002/03 dargestellt. Auch hier sind die verschiedenen Phasen des Winters erkennbar. Während des kalten Winterbeginns bildete sich das Temperaturminimum zwischen ca. 20 hPa und 10 hPa aus. Ab Mitte November sind hier Temperaturen von unter  $-80^{\circ}\text{C}$  erkennbar. Dieses Temperaturminimum sank im Laufe des Winters weiter nach unten ab. Die Stratopause lag – abgesehen von einigen Tagen

---

<sup>1</sup> Aktuelle Daten für die Monatsmittel der Nordpol-Temperatur in 30 hPa sind via <http://www.geo.fu-berlin.de/en/met/ag/strat/products/northpole/index.html> abrufbar.



mW = Minor Warming, MW = Major Warming; FW = Final Warming  
 gepunktete Linien = Tag der angegebenen Ballonmessung (siehe Kap. 7.1)

Abb. 7.2.: Zeit-Höhen-Schnitte vom 01.11.2002 bis 30.04.2003 a) des zonalen Windes in 60°N und b) der Temperaturdifferenz zwischen dem Nordpol und 60°N [Daten: UKMO]

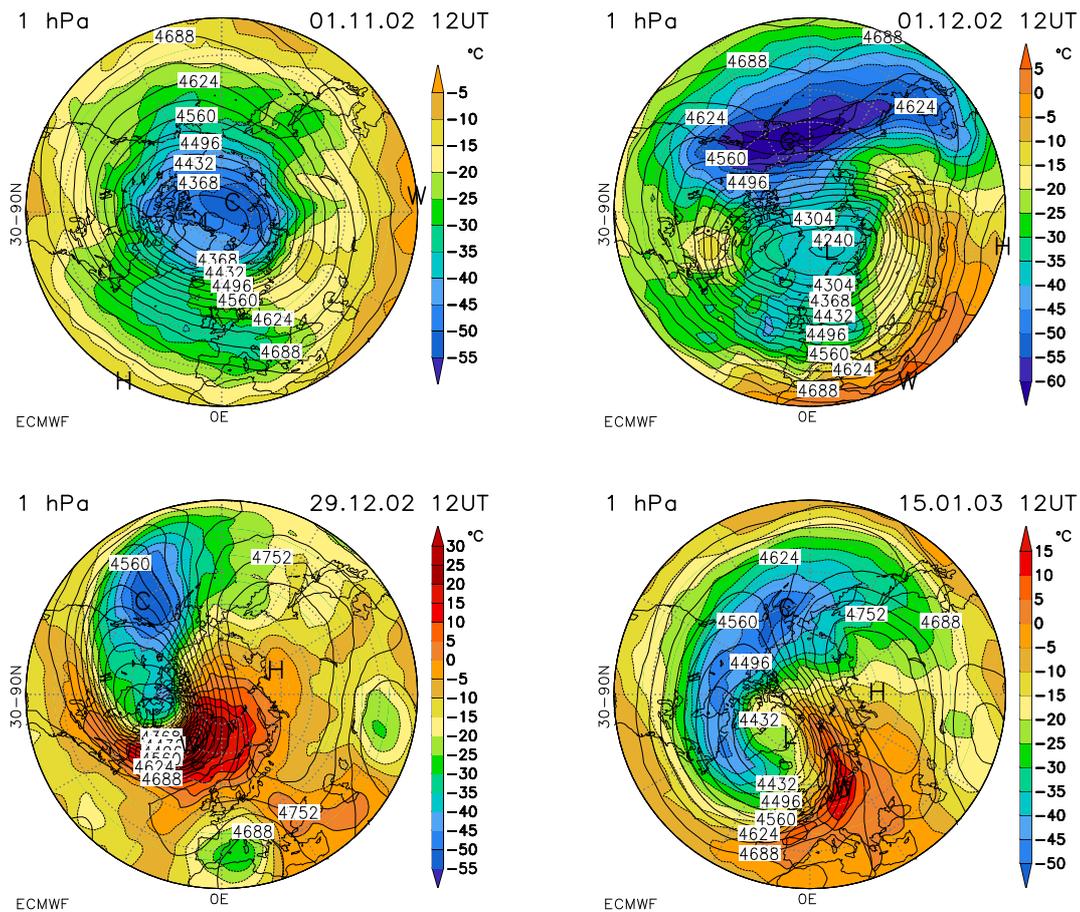


Abb. 7.3.: Geopotentielle Höhe [gdam] (Linien) und Temperatur [°C] (Schattierungen) an ausgewählten Tagen im Winter 2002/03 in 1 hPa [Daten: ECMWF]

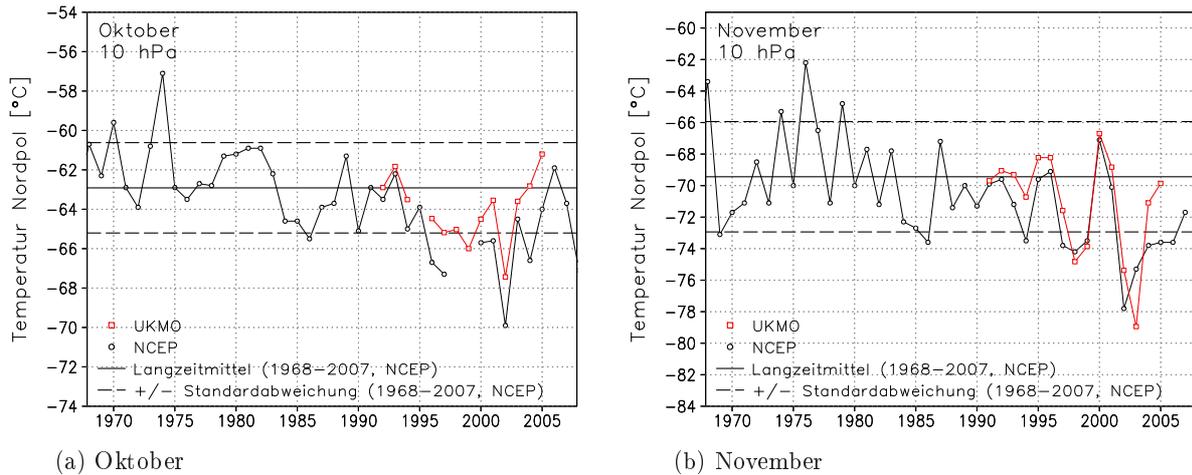


Abb. 7.4.: Monatsmittel-Temperatur über dem Nordpol in 10 hPa für a) Oktober und b) November [Daten: NCEP bzw. UKMO]

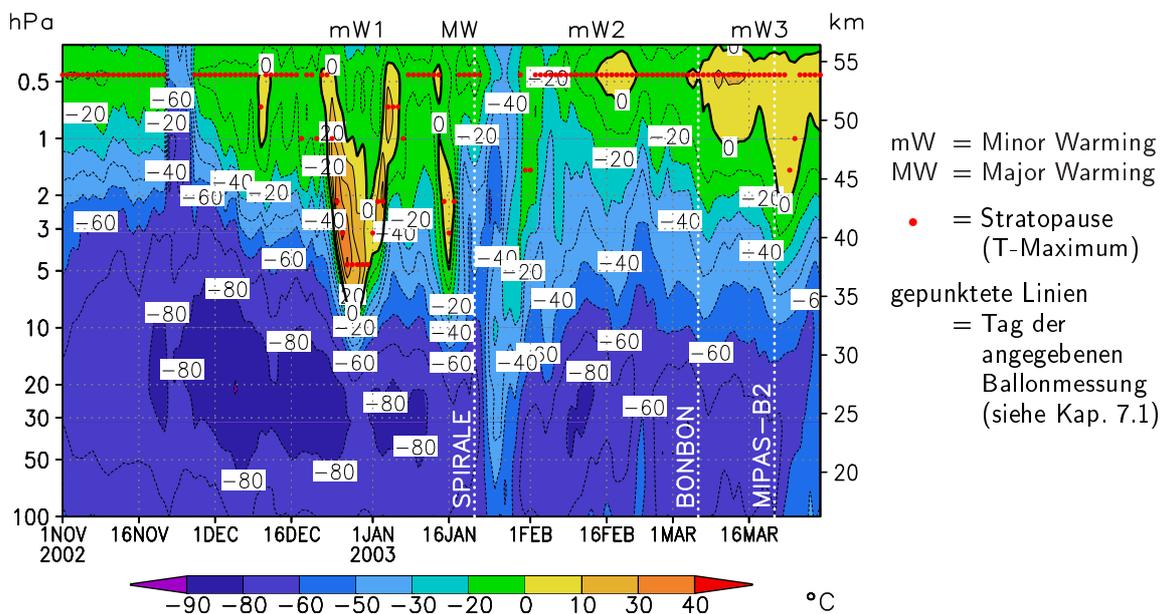


Abb. 7.5.: Zeit-Höhen-Schnitt der Temperatur über Kiruna (Gitterpunkt 70°N, 20°E) vom 01.11.2002 bis 30.03.2003 [Daten: UKMO]

in der zweiten Novemberhälfte – mit Temperaturen knapp unter 0°C zunächst um 0,5 hPa. Während des Minor Warmings Ende Dezember erhöhte sich die Temperatur im Stratopausenniveau innerhalb weniger Tage um mehr als 40 K. Gleichzeitig sank die Stratopause auf ca. 5 hPa ab. Eine solche Entwicklung ist typisch für starke, plötzliche Stratosphärenenerwärmungen [Labitzke, 1972; Manney et al., 2008b]. Auch das Major Warming Mitte Januar führte zu einer Temperaturerhöhung und einer Absenkung der Stratopause. Dieser neue Wärmeimpuls konnte sich bis in die untere Stratosphäre durchsetzen. In Folge des Major Warmings kühlten sich die obere Stratosphäre und die untere Mesosphäre ab, so dass eine annähernd isotherme Atmosphäre ohne definierte Stratopause entstand [vgl. Labitzke, 1972; Manney et al., 2008b]. Die Stratopause bil-

dete sich vermutlich Anfang Februar in Höhen oberhalb von 0,3 hPa neu aus [vgl. Manney et al., 2008b]. Ab Mitte Februar befand sich die Stratopause wieder in Höhen um 0,5 hPa und auch die Temperaturverteilung in der mittleren und unteren Stratosphäre zeigte wieder ein annähernd ungestörtes Bild. Die folgenden Minor Warmings Mitte Februar und Mitte März 2003 führten erneut zu einer Temperaturerhöhung. Die für den Spätwinter typische Temperaturverteilung mit dem Temperaturminimum in der unteren Stratosphäre blieb aber i. Allg. erhalten und wurde erst im Zusammenhang mit dem Final Warming ab Ende März zerstört.

### 7.3. Untersuchung der Luftmassenherkunft anhand von Trajektorien

Um den Ursprung der Anfang März über Kiruna gemessenen Luftmassen (siehe Kap. 7.1) näher zu analysieren und den Zeitpunkt des mesosphärischen Eintrages zu bestimmen, wird im Folgenden die Herkunft der Luftmassen anhand von Langzeittrajektorien untersucht. Trajektorienrechnungen über lange Zeiträume erlauben qualitative Aussagen zu den wesentlichen Transportprozessen und der zeitlichen Entwicklung der Luftmassenzusammensetzung. Eine quantitative Übereinstimmung mit der anhand der Spurengasmessungen abgeleiteten Herkunft ist dabei nur bedingt zu erwarten. So können beispielsweise kleinskalige Mischungsprozesse, die im Verlauf des Luftmassentransportes auftreten, mit der hier durchgeführten Trajektorienrechnung nicht erfasst werden. Auch die konkrete Position der einzelnen Trajektorie ist mit wachsender Entfernung vom Initialisierungszeitpunkt immer größeren Unsicherheiten unterworfen (vgl. Kap. 5). Trotzdem erlaubt die statistische Auswertung von Langzeittrajektorien eine Analyse der wesentlichen Luftmassenbewegungen. Mit ihrer Hilfe können z.B. das Absinken innerhalb des Polarwirbels in hohen Breiten im Winter sowie Mischungsprozesse über den Polarwirbelrand untersucht werden [z.B. Manney et al., 1999; Rosenfeld und Schoeberl, 2001 und dort jeweils genannte Referenzen].

Die Trajektorienrechnungen wurden mit der FUB-Modellversion mit einer horizontalen Auflösung von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  und 25 vertikalen Theta-Flächen unter Verwendung der aktuellen Erwärmungsraten von SLIMCAT (vgl. Abschnitt 4.3.2) durchgeführt. Als meteorologische Eingangsdaten dienten operationelle ECMWF-Daten<sup>2</sup>. (1000–1 hPa) mit einer zeitlichen Auflösung von 6 Stunden. Die Trajektorien wurden am 06.03.2003 12 UT – dem Tag an dem die BONBON-Messung stattfand – in einem Längen-Breiten-Gitter um Kiruna ( $66,25^\circ\text{N}$ – $68,75^\circ\text{N}$ , Abstand  $0,25^\circ$ ;  $20,0^\circ\text{E}$ – $22,5^\circ\text{E}$ , Abstand  $0,5^\circ$ ) in verschiedenen Höhen zwischen 475 K und 840 K (ca. 20–30 km) initialisiert. Die Initialisierungspunkte der jeweils 66 Trajektorien sind in Abbildung 7.6 zusammen mit der PV in zwei ausgewählten Höhen dargestellt. Wie die Abbildung zeigt, erfolgte die Initialisierung über den gesamten Höhenbereich innerhalb des Polarwirbels. Tabelle 7.1 gibt einen Überblick über die zur Initialisierung gewählten Werte für die potentielle Temperatur

<sup>2</sup> Die Verwendung der UKMO-Daten würde eine Berechnung der Trajektorien bis in die Mesosphäre erlauben. Die UKMO-Daten liegen allerdings nur mit einer zeitlichen Auflösung von 24 Stunden vor und die räumliche Auflösung der Daten ist geringer als beim ECMWF. Vor der Verwendung des UKMO-Datensatzes als meteorologische Eingangsdaten müsste daher zunächst eine Überprüfung der Güte der Trajektorien ähnlich wie in Kapitel 5 erfolgen. Dies war im Rahmen dieser Arbeit nicht realisierbar.

Tab. 7.1.: Initialisierung der Trajektorien am 06.03.2003 12 UT

Potentielle Temperatur [K]	~Höhe [km]	~Druck [hPa]	Potentielle Temperatur [K]	~Höhe [km]	~Druck [hPa]
475	20,0	46	650	25,5	18
500	21,0	38	665	25,8	17
525	22,0	32	680	26,2	16
550	22,8	28	695	26,5	15
590	23,9	23	710	26,9	14
605	24,3	22	740	27,9	12
620	24,7	20	790	28,9	10
635	25,1	19	840	29,9	9

und die daraus resultierende Höhe bzw. den dementsprechenden Druck. Zur Initialisierung der Trajektorien wurde der Abstand zwischen den Theta-Flächen so gewählt, dass sich in etwa ein Höhenabstand von 1 km ergibt ( $\Delta\Theta$ : 25–50 K). In dem Bereich, in dem die BONBON-Messungen ungewöhnliche Spurengaskonzentrationen zeigen, wurde der Abstand zwischen den Theta-Flächen auf 15 K (0,3–0,4 km, siehe Tab. 7.1) verringert. Trajektorien wurden ausgehend vom 06.03.2003 rückwärts bis zum 01.11.2002 und vorwärts bis zum 30.03.2003 berechnet. Der obere Rand des Trajektorienmodelles liegt bei 1600 K, was in etwa der Stratopausenhöhe entspricht (vgl. Abb. 4.5 und Abb. 2.1). Die Luftmassen lassen sich anhand der Rückwärtstrajektorien damit bis zu ihrem Eintritt in die Stratosphäre zurückverfolgen.

Abbildung 7.7 stellt die zeitliche Entwicklung der potentiellen Temperatur (Mittelwert und Standardabweichung) für ausgewählte Höhen dar. Die drei in Kapitel 7.1 beschriebenen Ballonmessungen sind als schwarze Balken dargestellt und der jeweilige Höhenbereich mit Messungen, die auf einen mesosphärischen Ursprung der Luftmassen hinweisen, ist rot gekennzeichnet. Trajektorien, die am 06.03.2003 unterhalb von 640 K (gelbe Linie und darunter in Abb. 7.7) initialisiert wurden, verbleiben über den gesamten Winter in der Stratosphäre. Luftmassen, die sich am 06.03.2003 in 665 K ( $\sim$ 25,8 km, rot in Abb. 7.7) befinden, haben im Mittel Ende November die obere Stratosphäre erreicht. In den darüberliegenden Schichten ist die Standardabweichung sehr hoch, was auf eine hohe Variabilität in der Herkunft und in den von den Luftmassen zurückgelegten Transportwegen schließen lässt. Für die Luftmassen um 695 K ( $\sim$ 26,5 km, braun in Abb. 7.7) lässt sich aufgrund der hohen Variabilität der Zeitpunkt für einen möglichen Eintrag aus der Mesosphäre nur unzureichend bestimmen. Die Trajektorien in den Höhen oberhalb von 700 K (dunkelblau bzw. violett in Abb. 7.7) sind überwiegend zwischen Dezember und Anfang Januar aus der Mesosphäre in die Stratosphäre eingetreten.

Für ausgewählte Tage ist in Abbildung 7.8 die Position der einzelnen Trajektorien als Höhe (angegeben als potentielle Temperatur) über der geografischen Breite dargestellt. Die schwarzen Symbole geben jeweils die Position am 06.03.2003 - dem Zeitpunkt der Initialisierung der Rückwärtstrajektorien - an. Anfang November (Abb. 7.8a) befindet sich die überwiegende Anzahl der am 06.03.2003 unterhalb von 640 K initialisierten Trajektorien innerhalb der Stratosphäre zwischen 50°N und dem Pol. Nur einige wenige dieser Trajektorien liegen südlich von 50°N bzw.

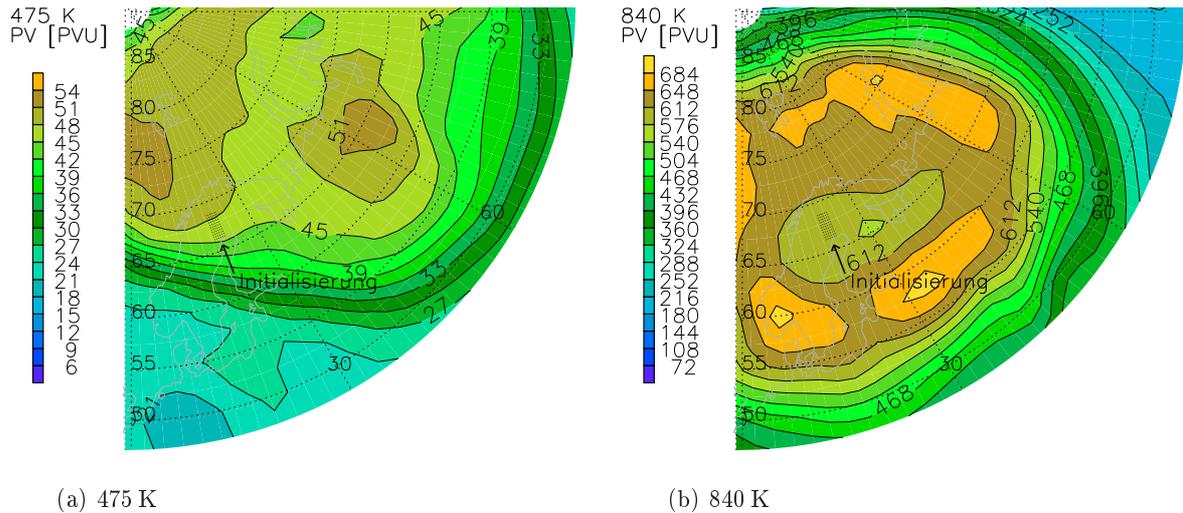


Abb. 7.6.: Potentielle Vorticity [Daten: ECMWF] und Initialisierungspunkte der Trajektorien für ausgewählte Theta-Flächen

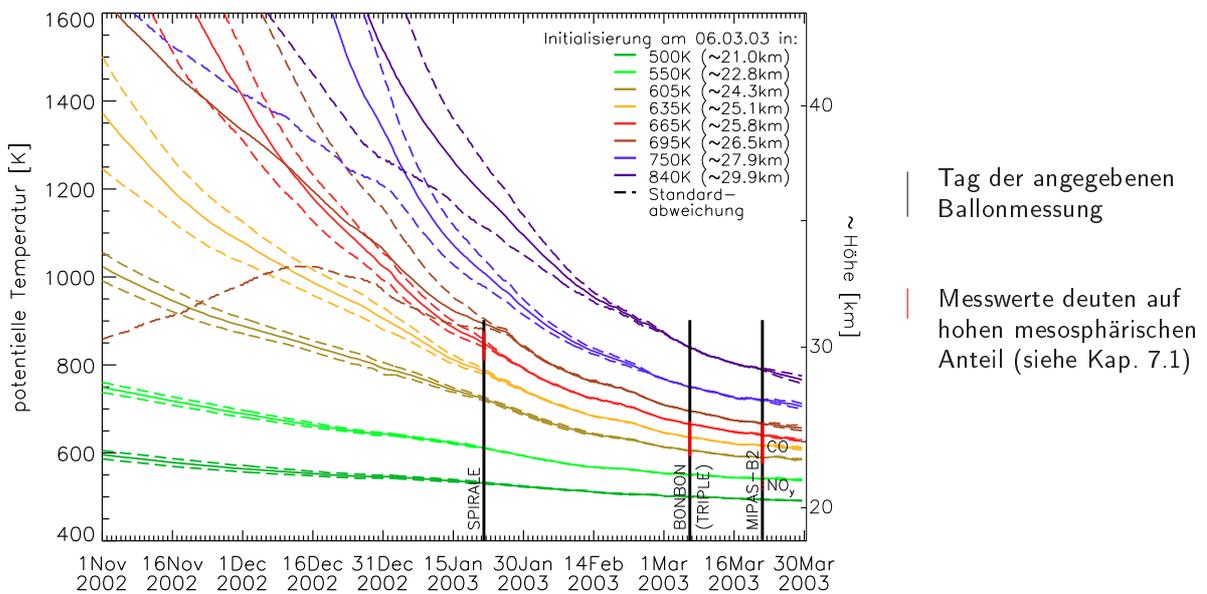


Abb. 7.7.: Zeitliche Entwicklung der potentiellen Temperatur (Mittelwert und Standardabweichung) für ausgewählte Initialisierungshöhen

treten gerade ins Modellgebiet ein (z.B. gelbe Symbole um 1600 K in ca. 80°N). Die oberhalb von 640 K initialisierten Trajektorien befinden sich zum Großteil außerhalb des Modellgebietes – d.h. außerhalb der nordhemisphärischen Stratosphäre. Die meisten dieser Trajektorien werden in den folgenden Wochen von Höhen oberhalb von 1600 K die obere Stratosphäre erreichen; einige Trajektorien kommen dann aus Gebieten südlich des Äquators. Am 01.12.2002 (Abb. 7.8b) ist in der oberen Stratosphäre in mittleren und hohen Breiten eine Häufung von Trajektorien erkennbar, die am 06.03.2003 in 665 K bzw. 680 K initialisiert wurden (rote Kreise bzw. Dreiecke). Die meisten dieser Trajektorien haben die Stratosphäre Ende November aus der Mesosphäre kommend erreicht. Weitere Trajektorien dieser Höhenschicht folgen in den nächsten Tagen An-

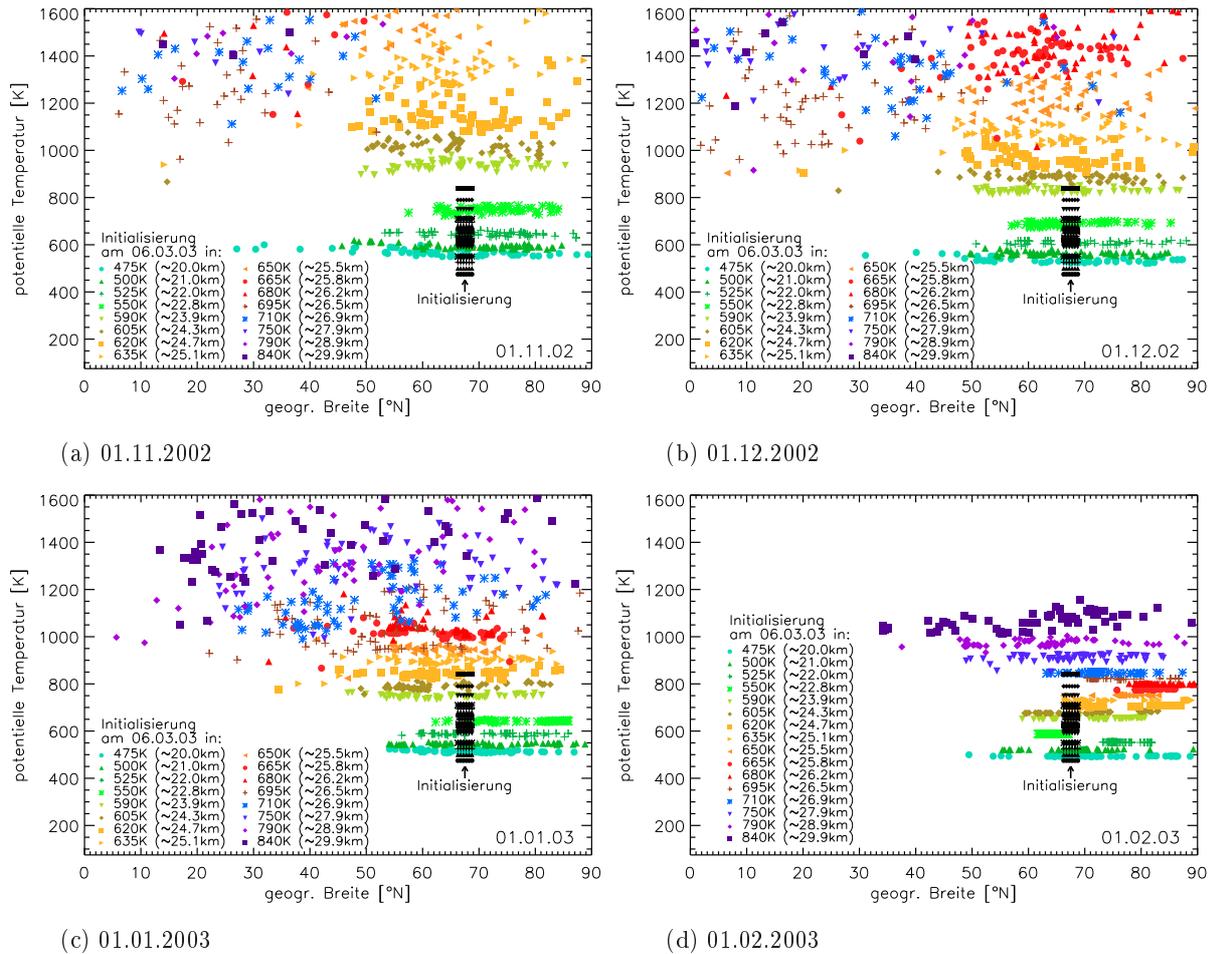


Abb. 7.8.: Trajektorienpositionen für die am 06.03.2003 initialisierten Rückwärtstrajektorien an ausgewählten Tagen (Details siehe Text)

fang Dezember auf demselben Weg. Wie schon anhand von Abbildung 7.7 festgestellt, zeigen die in 695 K initialisierten Trajektorien (braune Kreuze) demgegenüber sehr unterschiedliche Positionen und Transportwege. Sie verteilen sich am 01.12.2002 annähernd über die gesamte obere Stratosphäre, wobei nur relativ wenige dieser Trajektorien in hohen nördlichen Breiten anzutreffen sind. Anfang Januar (Abb. 7.8c) hat auch der überwiegende Teil der oberhalb von 700 K initialisierten Trajektorien (blaue Symbole) die obere Stratosphäre erreicht. Dabei sind die meisten dieser Trajektorien in mittleren und hohen Breiten aus der Mesosphäre in die Stratosphäre eingetreten. Allerdings ist auch ein relativ hoher Anteil dieser Trajektorien innerhalb der Stratosphäre aus niedrigen Breiten antransportiert worden (vgl. Abb. 7.8a und b). Abbildung 7.8d zeigt die Trajektorienpositionen Anfang Februar. Im Gegensatz zu Abbildung 7.8c liegen hier auch die Trajektorien, die oberhalb von 665 K initialisiert wurden, in einem jeweils relativ kleinen Höhenbereich, der sich gut von den Positionen der in benachbarten Höhen initialisierten Trajektorien abgrenzen lässt. Die Schichtung der Trajektorien in den oberen Höhen (braune Kreuze und darüber) entsprechend ihrer Initialisierungshöhe geht hauptsächlich Mitte Januar – im Zusammenhang mit dem Major Warming und der damit verbundenen starken Vermischung der Luftmassen – verloren (nicht gezeigt).

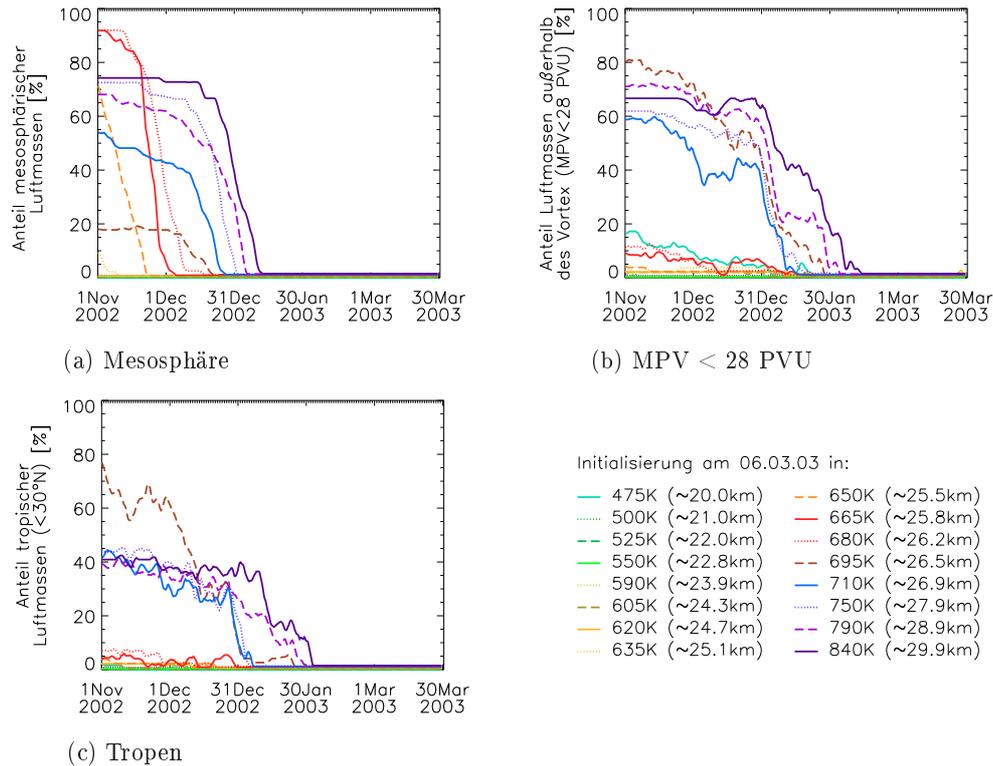


Abb. 7.9.: Zeitliche Entwicklung des Anteils (a) mesosphärischer Luftmassen ( $\Theta \geq 1550$  K), (b) von Luftmassen außerhalb des Polarwirbels (MPV < 28 PVU) und (c) tropischer Luftmassen ( $\varphi < 30^\circ\text{N}$ )

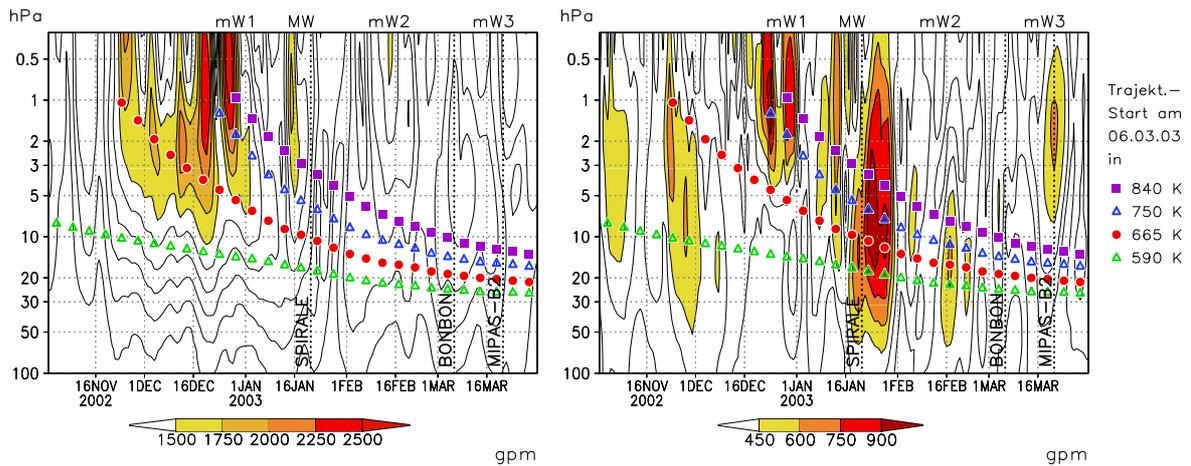
Abbildung 7.9 zeigt die zeitliche Entwicklung des Anteils von Luftmassen verschiedener Herkunft. Als mesosphärische Luft (Abb. 7.9a) werden dabei solche Trajektorien identifiziert, die eine potentielle Temperatur von 1550 K und mehr aufweisen. Tropische Luftmassen (Abb. 7.9c) werden anhand der geografischen Lage der Trajektorien bei Positionen südlich von  $30^\circ\text{N}$  definiert. Zur Bestimmung der Luftmassen, die außerhalb des Polarwirbels liegen (Abb. 7.9b), wird die modifizierte potentielle Vorticity nach Müller und Günther [2003] herangezogen (MPV<sub>MG03</sub>, siehe Abschnitt 2.2.5, Gl. 2.29). Im Folgenden wird sie ohne Index als MPV bezeichnet. Streibel et al. [2006] bestimmen den PV-Wert des Polarwirbelrandes in 475 K für Ende November 2002 auf 28 PVU<sup>3</sup> und stellen eine Zunahme des Wertes bis Anfang Januar 2003 auf 36 PVU fest. Entsprechend werden Trajektorien als außerhalb des Polarwirbels liegend klassifiziert, wenn die MPV kleiner als 28 PVU ist<sup>4</sup>. Rückwärtstrajektorien, die das Modellgebiet verlassen (i. Allg. über den oberen Modellrand von 1600 K, in einigen wenigen Fällen durch Positionen südlich vom Äquator; zum Längen-Breiten-Gitter des Trajektorienmodelles vgl. Abb. 4.2), behalten ihre Eigenschaften vom letzten Zeitschritt, an dem sie sich im Modellgebiet befinden. Erreicht eine Rückwärtstra-

<sup>3</sup> Streibel et al. [2006] verwenden die skalierte PV nach Dunkerton und Delisi [1986], deren Zahlenwert in 475 K mit dem Wert der isentropen PV übereinstimmt [siehe Rex et al., 1999]. Die MPV wird hier mit der potentiellen Temperatur 475 K als Referenzwert gebildet (siehe Gl. 2.29), so dass ihr Zahlenwert mit der skalierten PV, wie sie Streibel et al. [2006] verwenden, übereinstimmt.

<sup>4</sup> Als Polarwirbelgrenze ergeben sich entlang der hier untersuchten Trajektorien bei einem MPV-Wert von 28 PVU beispielsweise folgende PV-Werte: in 550 K 50 PVU, in 750 K 175 PVU, in 1000 K 550 PVU sowie in 1500 K 2770 PVU [vgl. auch Werte für einen südhemisphärischen Winter in Müller und Günther, 2003].

jektorie beispielsweise am 23.12.2002 in 80°N eine potentielle Temperatur von 1600 K, dann ist ihre Position für davorliegende Zeitschritte nicht mehr bestimmbar. Diese Trajektorie wird bei Bestimmung der Anteile zur Luftmassenherkunft für den Zeitraum vom 01.11.–22.12.2002 als Luftmasse mit mesosphärischer Herkunft gezählt. Entsprechendes gilt für die Ermittlung der Luftmassen außerhalb des Polarwirbels und für Luftmassen tropischer Herkunft.

Auch in Abbildung 7.9 wird die unterschiedliche Herkunft der Luftmassen, die am 06.03.2003 im Gebiet um Kiruna ankommen, deutlich. Die meisten Trajektorien, die oberhalb von ca. 700 K ( $\sim 26,7$  km, blaue Farbtöne) initialisiert wurden, sind aus der Mesosphäre abgesunken. In Abbildung 7.9a ist zu erkennen, dass ca. 40 bis 70 % dieser Luftmassen innerhalb weniger Tage zwischen Ende Dezember und Anfang Januar aus der Mesosphäre in die Stratosphäre eingetragen wurden. Mit der Höhe steigt dabei der mesosphärische Anteil i. Allg. an und der Zeitpunkt des Eintrages verschiebt sich nach hinten. Wie Abbildung 7.9c zeigt, stammen gleichzeitig ca. 40 % der Trajektorien in den oberen Höhen aus den Tropen, wobei diese Luftmassen in erster Linie während des Minor Warmings Ende Dezember bzw. während des Major Warmings Mitte Januar in hohe Breiten transportiert wurden. Die Einmischung von Luftmassen aus niedrigen und mittleren Breiten in den Polarwirbel erfolgte vor allem während des Major Warmings Mitte Januar und teilweise während des Minor Warmings Anfang Februar (Abb. 7.9b). In der Schicht um 26,5 km Höhe (695 K, braune gestrichelte Linien in Abb. 7.9) stammen knapp 80 % der Trajektorien ursprünglich aus den Tropen und der Anteil mesosphärischer Luft ist im Vergleich zu den umliegenden Höhen mit ca. 20 % relativ gering. Die Luftmassen, die sich am 06.03.2003 in etwa 26 km Höhe befinden (665–680 K, rote durchgezogene bzw. gepunktete Linien in Abb. 7.9), weisen demgegenüber maximal einen Anteil von 15 % auf, der aus Regionen außerhalb des Polarwirbels kommt. Entsprechend gering ist der Anteil von Luftmassen tropischer Herkunft, der hier weniger als 10 % beträgt. Der Anteil mesosphärischer Luftmassen, die zwischen Ende November und Anfang Dezember die Stratosphäre erreichen, beträgt für diesen Höhenbereich mehr als 90 %. Auch um 650 K ( $\sim 25,5$  km) lässt sich mit 70 % ein hoher Anteil von Luftmassen aus der Mesosphäre und ein sehr geringer Anteil von Luftmassen tropischen Ursprunges feststellen. Die darunterliegenden Luftmassen stammen, wie bereits in Abbildung 7.7 gezeigt, fast ausschließlich aus mittleren und hohen Breiten in der Stratosphäre. Mit Ausnahme der in 475 K initialisierten Trajektorien ist auch hier der Anteil von Luftmassen, die von außerhalb des Polarwirbels stammen, sehr gering. Diese prinzipielle Einschätzung ändert sich auch nicht, wenn der MPV-Grenzwert zur Bestimmung von Luftmassen außerhalb des Polarwirbels auf den von Streibel et al. [2006] ab Anfang Januar 2003 als Polarwirbelgrenze ermittelten Werte von 36 PVU festgelegt wird. Lediglich die in 475 K initialisierten Trajektorien weisen dann einen um bis zu ca. 25 % höheren Anteil von Luftmassen außerhalb des Polarwirbels auf (vgl. auch Abb. 7.6), der kurz nach dem Major Warming Mitte Januar in den Polarwirbel eingemischt wird. In allen anderen Höhen ergeben sich bis ca. 25.03.2003 im Vergleich zum in Abbildung 7.9b angewendeten Grenzwert von 28 PVU nur geringe Änderungen beim Anteil von Luftmassen außerhalb des Polarwirbels (i. Allg. unterhalb von 665 K  $< 1$  % und darüber  $< 5$  % bzw. Verschiebungen des Eintrages um wenige Tage). Ende März steigt der Anteil von Luftmassen außerhalb des Polarwirbels beim Zugrundelegen eines MPV-Grenzwertes von 36 PVU im Zusammenhang mit dem Beginn des Final Warmings zum Teil sprunghaft an.



(a) Höhenwelle 1 [gpm]

(b) Höhenwelle 2 [gpm]

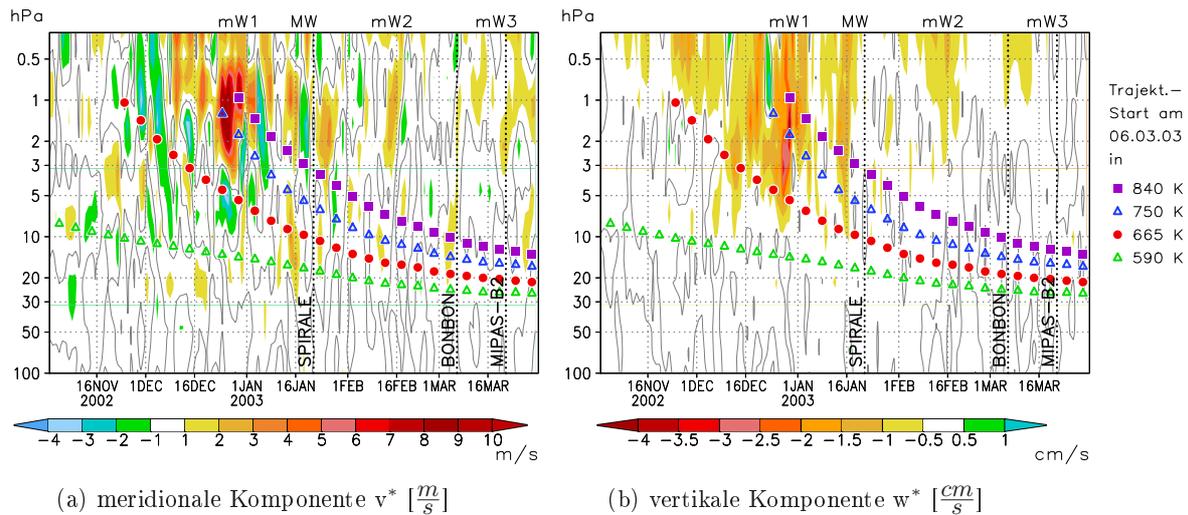
mW = Minor Warming, MW = Major Warming  
 gepunktete Linien = Tag der angegebenen Ballonmessung (siehe Kap. 7.1)

Abb. 7.10.: Amplituden der Höhenwelle 1 und 2 in  $60^\circ\text{N}$  im Winter 2002/03 [Daten: UKMO] und Höhenverlauf der Trajektorien für ausgewählte Initialisierungshöhen (Isolinienabstand 250 bzw. 150 gpm)

Die Trajektorienrechnungen zeigen, dass die Schicht mit dem hohen mesosphärischen Anteil zu Beginn des Winters in die Stratosphäre eingetragen wurde und dann über den gesamten Winter relativ kompakt erhalten blieb. Die verschiedenen Störungen im Winter 2002/03 haben offensichtlich nicht zu einem wesentlichen Eintrag von Luftmassen aus niedrigen Breiten geführt, was zunächst ungewöhnlich erscheint. Um dieses Phänomen weiter zu untersuchen, werden im Folgenden die Höhenwellen 1 und 2 in  $60^\circ\text{N}$  (siehe z.B. Abschnitt 2.3.2) sowie die mittlere meridionale Restzirkulation<sup>5</sup> im Winter 2002/03 im Zusammenhang mit dem mittleren Höhenverlauf der Trajektorien analysiert.

Die Amplitude der Höhenwelle 1 (Abb. 7.10a), die eine Verschiebung des Polarwirbelzentrums weg vom Pol anzeigt, ist in der oberen Stratosphäre über den gesamten Dezember relativ groß (vgl. auch Abb. 7.8b). Während des Minor Warmings Ende Dezember verstärken sich die Amplituden beider Höhenwellen in der oberen Stratosphäre. Die Phasen, in denen der Polarwirbel in zwei Zentren geteilt war, sind anhand der starken Welle 2 (Abb. 7.10b) Mitte Januar in der gesamten Stratosphäre und Mitte Februar in der mittleren und unteren Stratosphäre erkennbar. Die Höhenschicht, die am 06.03.2003 einen sehr hohen mesosphärischen Anteil aufwies (rote Punkte in Abb. 7.10), liegt nur während dieser beiden Erwärmungen in Höhen mit einer verstärkten Welle-2-Amplitude. Die oberhalb dieser Schicht initialisierten Trajektorien befinden sich zwischen Mitte Dezember und Anfang Februar fast durchgehend in Höhenbereichen mit einer starken Welle 2. In diesen Höhenbereichen ist der Polarwirbelrand schwächer ausgeprägt als unter ungestörten Verhältnissen. Daher tritt hier ein stärkerer horizontaler Austausch von Luftmassen über die Polarwirbelgrenze auf.

<sup>5</sup> Die mittlere meridionale Restzirkulation ist ein Formalismus zur Beschreibung der Brewer-Dobson-Zirkulation (siehe Kap. 2.3.4), der z.B. in Brasseur und Solomon [2005] ausführlich hergeleitet wird. Die mittlere meridionale Restzirkulation beschreibt den Netto-Massentransport in der Atmosphäre.



(a) meridionale Komponente  $v^*$  [ $\frac{m}{s}$ ]                      (b) vertikale Komponente  $w^*$  [ $\frac{cm}{s}$ ]  
 mW = Minor Warming, MW = Major Warming  
 gepunktete Linien = Tag der angegebenen Ballonmessung (siehe Kap. 7.1)  
 Abb. 7.11.: Meridionale und vertikale Komponente der mittleren meridionalen Restzirkulation in 61,25°N im Winter 2002/03 [Daten: UKMO] und Höhenverlauf der Trajektorien für ausgewählte Initialisierungshöhen

Vergleichbare Schlussfolgerungen lassen sich auch aus der Betrachtung der mittleren meridionalen Restzirkulation ziehen, deren Komponenten  $v^*$  und  $w^*$  in 61,25°N in Abbildung 7.11 dargestellt sind. Die Höhen, die am 06.03.2003 durch Luftmassen mesosphärischen Ursprunges geprägt sind (rote Punkte), werden lediglich während des Major Warmings im Januar und an einzelnen Tagen im Februar und März durch einen großräumigen polwärtigen Transport (meridionale Komponente  $v^*$  positiv) von Luftmassen aus niedrigen Breiten beeinflusst (Abb. 7.11a). In den darüberliegenden Schichten kommt es v.a. während des Minor Warmings Ende Dezember zu einem verstärkten Transport in Richtung Pol. Diese Entwicklung wird qualitativ auch von den Trajektorien wiedergegeben (siehe Abb. 7.9c). Die vertikale Komponente der meridionalen Restzirkulation ist aufgrund der adiabatischen Kompression infolge des Transportes Richtung Pol (siehe Kap. 2.3) ebenfalls während des Minor Warmings Ende Dezember stark negativ (Absinken der Luftmassen). Diese starke Abwärtsbewegung ist verbunden mit der Absenkung der Stratopause (vgl. Abb. 7.5) und dem Eintrag der in den oberen Höhen initialisierten Trajektorien von der Mesosphäre in die Stratosphäre ( Abb. 7.9a). Auch von diesem welleninduzierten Abwärtstransport wird die Höhenschicht mit hauptsächlich mesosphärischer Herkunft im Verhältnis zu den darüberliegenden Schichten nur wenig erfasst (Abb. 7.11b).

## 7.4. Diskussion

### Vergleich mit den Ballonmessungen

Die anhand der Trajektorien identifizierte Schicht mit einem hohen Anteil mesosphärischer Luftmassen stimmt sehr gut mit den Messungen von SPIRALE am 21.01.2003 und von BONBON am 06.03.2003 überein. Ende März liegt die basierend auf den Trajektorien ermittelte Schicht mit

mesosphärischer Luft in ca. 25 km Höhe. Dies entspricht dem von Müller et al. [2007] anhand der MIPAS-B2-Messungen ermittelten Höhenbereich mit einem hohen mesosphärischen Anteil (vgl. Kap. 7.1 bzw. Abb. 7.7). Kleinskalige Mischungsprozesse werden bei der Trajektorienrechnung nicht berücksichtigt, so dass der mesosphärische Anteil in der stark mesosphärisch beeinflussten Schicht wahrscheinlich überschätzt und in den Höhen darüber und darunter vermutlich etwas unterschätzt wird. Engel et al. [2006] bestimmen den Anteil mesosphärischer Luft ausgehend vom Alter der Luft, das aus den SF<sub>6</sub>- und CO<sub>2</sub>-Messungen berechnet wurde, in der am 06.03.2003 beobachteten Schicht auf mehr als 36 % und maximal 100 %. Aus den Trajektorienrechnungen lässt sich ein maximaler Anteil von 90 % ableiten.

### Vergleich mit anderen Untersuchungen zum Winter 2002/03

Untersuchungen mit dem Karlsruher Simulationsmodell der mittleren Atmosphäre (Karlsruhe Simulation Model of the Middle Atmosphere, KASIMA [Reddmann et al., 2001 und dort genannte Referenzen]) ergeben prinzipiell das gleiche Bild wie die Trajektorienrechnungen. Für den Winter 2002/03 zeigen die KASIMA-Simulationen in hohen nördlichen Breiten mesosphärische Luftmassen, die zu Beginn des Winters aus etwa 50 km (Ende Oktober) relativ schnell auf Höhen um 42 km (Mitte November) bzw. 35 km (Anfang Dezember) absinken [Engel et al., 2006]. Ende Dezember wird der Zufluss mesosphärischer Luftmassen in der oberen Stratosphäre offensichtlich durch einen Transport stratosphärischer Luft in Richtung Pol unterbrochen. Damit entsteht um 32 km eine isolierte Schicht mit hohem mesosphärischen Anteil, die im Laufe des Winters weiter nach unten sinkt [Engel et al., 2006]. Die Trajektorienrechnungen implizieren eine identische Entwicklung. Über den mesosphärischen Luftmassen, die Ende Dezember im Mittel in etwa 1050 K ( $\sim 32,5$  km, siehe Abb. 7.7) liegen, zeigen sie einen Höhenbereich, der Ende Dezember sehr stark von tropischen Luftmassen beeinflusst wird (siehe Abb. 7.9c). Auch die KASIMA-Simulationen geben den Höhenbereich der stark mesosphärisch beeinflussten Schicht im Vergleich zu den Messungen im Januar und März gut wieder [Engel et al., 2006 bzw. Müller et al., 2007].

Die anhand der hier durchgeführten Trajektorienuntersuchungen identifizierte Schicht, die fast ausschließlich durch mesosphärische Luftmassen dominiert wird (am 06.03.2003 zwischen 665 und 680 K), ist relativ schmal. Daher ist nur mit einem geringen Einfluß auf das Spurengasbudget der Stratosphäre – beispielsweise durch das Absinken NO<sub>x</sub>-reicher Luftmassen aus der Mesosphäre – zu rechnen. Konopka et al. [2007] untersuchen anhand von CLaMS-Simulationen in einem Höhenbereich der potentiellen Temperatur zwischen 350 und 1400 K (ca. 15–45 km) für den Winter 2002/03 den Anteil des NO<sub>x</sub>-induzierten Ozonabbaus. NO<sub>x</sub>-reiche Luftmassen wurden demnach v.a. während des Major Warmings Mitte Januar durch die Einmischung subtropischer Luftmassen in polare Breiten transportiert. Zu einem geringeren Teil ist die erhöhte NO<sub>x</sub>-Konzentration auf das Absinken mesosphärischer Luftmassen zurückzuführen [Konopka et al., 2007]. Die CLaMS-Simulationen starten erst Mitte November 2002 und der obere Modellrand liegt bei den Untersuchungen in 1400 K. Die Ausbildung der mesosphärischen Schicht kann anhand der CLaMS-Simulationen daher nicht weiter untersucht werden.

### Vergleich mit anderen Untersuchungen zum mesosphärischen Eintrag

Rosenfield und Schoeberl [2001] stellen anhand von Trajektorienrechnungen für verschiedene arktische und antarktische Winter in den 1990er Jahren eine starke zwischenjährliche Variabilität für den Eintrag mesosphärischer Luftmassen in die Stratosphäre fest. Die von Rosenfield und Schoeberl [2001] betrachtete Höhe entspricht in etwa den am 06.03.2003 in 665 K initialisierten Trajektorien, die einen mesosphärischen Anteil von über 90 % aufweisen. Ähnlich hohe Werte<sup>6</sup> bestimmen Rosenfield und Schoeberl [2001] für zwei arktische Winter (1993/94 und 1997/98). Andere Winter weisen im Gegensatz dazu einen mesosphärischen Anteil von weniger als 20 % auf. Rosenfield und Schoeberl [2001] führen dies v.a. auf Unterschiede bei der Bildung des Polarwirbels im Herbst/Frühwinter zurück. In Wintern mit einem geringen mesosphärischen Anteil hat sich der Polarwirbel i. Allg. vergleichsweise spät gebildet. Damit tragen wesentlich mehr Luftmassen aus niedrigen und mittleren Breiten zur Bildung des Polarwirbels bei, als in Wintern mit einem hohen mesosphärischen Anteil [Rosenfield und Schoeberl, 2001]. Die Ausbildung der mesosphärischen Schicht im Winter 2002/03 kann auf den kalten Beginn des Winter (siehe Abb. 7.4), der mit der frühen Etablierung eines ungestörten Polarwirbels verbunden war, zurückgeführt werden.

Die mesosphärische Schicht sank im Winter 2002/03 aufgrund der starken Wellenaktivität relativ weit bis in die untere Stratosphäre ab. Manney et al. [2008a] zeigen anhand von Spurengasmessungen für den kalten, ungestörten Winter 2004/05 ein Absinken mesosphärischer Luftmassen von Anfang Dezember bis zum Beginn des Final Warmings Anfang März bis in die mittlere Stratosphäre in Höhen knapp unterhalb von 10 hPa ( $\sim 30$  km). Die mesosphärischen Luftmassen lagen damit Anfang März etwa 5 km höher als im hier untersuchten Winter 2002/03.

Oberhalb der hier identifizierten Schicht mit einem hohen mesosphärischen Anteil, wird die mesosphärische Signatur im Zusammenhang mit den Erwärmungen Ende Dezember und Anfang Januar zerstört. Ähnliches können Rosenfield und Schoeberl [2001] für den Winter 1998/99, der im Herbst und Frühwinter ebenfalls relativ kalt war, zeigen. Dieser Winter war durch zwei Major Warmings und einen entsprechend schwachen Polarwirbel gekennzeichnet<sup>7</sup>, so dass die Polarwirbelluft in 650 K zum Ende des Winters von Luft aus der unteren und mittleren Stratosphäre dominiert wird und in dieser Schicht nur ein geringer mesosphärischer Einfluss festgestellt werden kann. Die vergleichbaren Luftmassen lagen im Winter 2002/03 höher als 1998/99, was wahrscheinlich auf ein langsames Absinken im Winter 2002/03 im Vergleich zum Winter 1998/99 zurückzuführen ist. Außerdem war der Polarwirbel in der unteren Stratosphäre im Winter 2002/03 – abgesehen von den Phasen Mitte Januar und Mitte Februar, in denen er geteilt war – relativ stabil und isoliert von Luftmassen aus mittleren Breiten [Günther et al., 2008, siehe auch Abb. 7.10]. Bei der Neubildung des Polarwirbels nach dem Major Warming im Januar und dem Minor Warming im Februar 2003 wurden Luftmassen aus niedrigen und mittleren Breiten

---

<sup>6</sup> Die konkreten Zahlenwerte sind nur bedingt vergleichbar. Einerseits haben Rosenfield und Schoeberl [2001] einen längeren Zeitraum betrachtet, wodurch sich der mesosphärische Anteil im Vergleich zu der hier durchgeführten Methode erhöht. Andererseits wurde der mesosphärische Ursprung an einer Herkunft aus Regionen oberhalb von 1700 K festgemacht. Damit verringert sich der Anteil mesosphärischer Luft im Vergleich zu den hier ermittelten Ergebnissen.

<sup>7</sup> Weitere Major Warmings traten in dem von Rosenfield und Schoeberl [2001] untersuchten Zeitraum zwischen 1992/93 und 1999/2000 nicht auf [vgl. Pawson und Naujokat, 1999].

hauptsächlich in Form von dünnen Filamenten vom sich neu bildenden Polarwirbel eingeschlossen und innerhalb weniger Tage mit den Luftmassen aus dem Polarwirbel vermischt [Günther et al., 2008]. Die im März über Kiruna gemessene Schicht mesosphärischen Ursprunges muss von den eingemischten Filamenten relativ unbeeinflusst geblieben sein. Anderenfalls wären die für mesosphärische Luftmassen charakteristischen Spurengaskonzentrationen verlorengegangen. Die hier durchgeführten Trajektorienrechnungen wurden in einem begrenzten Gebiet innerhalb des Polarwirbels in der unmittelbaren Umgebung von Kiruna initialisiert. Geringe Einmischungen, die in anderen Gebieten des Polarwirbels stattfanden, können damit nicht erfasst werden. Der aus den Trajektorien bestimmte mesosphärische Anteil ist daher wahrscheinlich höher als in der Realität.

Rosenfield und Schoeberl [2001] begrenzen ihre Untersuchungen auf eine Höhe (für die Nordhemisphäre: 650 K). Damit ergibt sich nur ein unvollständiges Bild des mesosphärischen Eintrages. Für den Winter 1999/2000 ermitteln Rosenfield und Schoeberl [2001] einen relativ geringen Anteil von ca. einem Drittel mesosphärischer Luftmassen. Messungen und Modellstudien für diesen Winter [Ray et al., 2002; Plumb et al., 2002] zeigen aber einen hohen mesosphärischen Einfluss, der in abgeschwächter Form bis in die untere Stratosphäre erkennbar war. Beispielsweise wurden bei einer Messung Mitte März 2000 in Kiruna um ca. 750 K ( $\sim 28$  km) stark erhöhte CO-Konzentrationen festgestellt [Plumb et al., 2002]. Diese Schicht mit einem hohen mesosphärischen Anteil liegt höher als die von Rosenfield und Schoeberl [2001] untersuchte isentrope Fläche. Auch der sehr kalte Beginn des Winters (vgl. Abb. 7.4) lässt einen relativ hohen mesosphärischen Anteil vermuten. Der Winter 1999/2000 war – trotz eines relativ starken Minor Warmings Mitte Januar – auch im späteren Verlauf sehr kalt [vgl. Labitzke und Naujokat, 2000; Greenblatt et al., 2002]. Damit ist das Absinken im Laufe des Winters geringer als bei einem stark gestörten Winter wie dem Winter 2002/03 [vgl. Tegtmeier et al., 2008].

Der Eintrag von Luftmassen aus der Mesosphäre in die Stratosphäre findet in jedem Winter statt [z.B. Sutton, 1994; Rosenfield und Schoeberl, 2001; Plumb et al., 2002]. In ungestörten Wintern kann dabei aufgrund des stärker ausgeprägten Polarwirbelrandes, der die Einmischung von Luftmassen aus niedrigeren Breiten verhindert, ein prinzipiell höherer Anteil mesosphärischer Luftmassen erwartet werden. Da das Absinken innerhalb des Polarwirbels in ungestörten Wintern schwächer ist als in gestörten Wintern [Tegtmeier et al., 2008], können die mesosphärischen Luftmassen wahrscheinlich jedoch nur maximal die mittlere Stratosphäre erreichen. Inwieweit mesosphärisch geprägte Luftmassen in gestörten Wintern bei ihrem Abwärtstransport im Laufe des Winters erhalten bleiben, hängt wesentlich davon ab, ob die betreffende Schicht durch Einmischungen aus mittleren und niedrigen Breiten beeinflusst wird. Insbesondere bei kräftigen Stratosphärenenerwärmungen treten starke horizontale Mischungsprozesse auf. Die Erhaltung einer stark mesosphärischen Schicht beim Auftreten solcher Erwärmungen, wie sie hier für den Winter 2002/03 gezeigt werden konnte, dürfte daher relativ selten auftreten.

## 7.5. Zusammenfassung

Die am 06.03.2003 über Kiruna gemessenen Spurengaskonzentrationen lassen sich aufgrund der hier durchgeführten Trajektorienrechnungen auf eine komplexe vertikale Struktur des Luftmassenurprunges zurückführen (Abb. 7.9). Die Höhenschicht um 25 km (Initialisierung am 06.03.2003 in 650 K–680 K), die einen sehr hohen mesosphärischen Anteil aufweist, bildete sich zu Beginn des Winters. Der kalte Winterbeginn war mit der Ausbildung eines von Luftmassen aus mittleren Breiten unbeeinflussten Polarwirbels verbunden, was zu einem hohen Anteil mesosphärischer Luftmassen in dieser Schicht führte. Im Laufe des Winters sanken diese Luftmassen innerhalb der Stratosphäre ab. Die verschiedenen Erwärmungen im Winter 2002/03 implizieren ein insgesamt stärkeres Absinken in der Stratosphäre als in ungestörten Wintern, so dass die mesosphärische Schicht bis Ende März relativ weit bis in ca. 24–25 km ( $\sim 22$  hPa) vordringen konnte. Während ihres Absinkens blieb die Schicht mit einem hohen mesosphärischen Anteil im Wesentlichen erhalten, da sie nur an wenigen Tagen unmittelbar von den dynamischen Prozessen beeinflusst wurde (Abb. 7.10 und 7.11). In Folge dieser Störungen wurden Luftmassen aus niedrigen und mittleren Breiten v.a. als dünne Filamente in den Polarwirbel eingemischt. Diese Einmischungen sind aber offensichtlich insgesamt zu gering, um die mesosphärische Signatur wesentlich zu beeinflussen. Der mesosphärische Anteil lässt sich basierend auf den Trajektorienrechnungen auf maximal 90 % festlegen.

Mesosphärische Luftmassen wurden auch während des Minor Warmings Ende Dezember (am 06.03.2003 in 695 K–750 K) und während des Major Warmings Mitte Januar (790 K–840 K) in die Stratosphäre eingetragen. Dabei kam es jeweils innerhalb weniger Tage zu einem Absinken der Stratopause und einem schnellen Abwärtstransport mesosphärischer Luftmassen. Die mesosphärische Charakteristik in diesen Höhenbereichen wurde jedoch durch eine unterschiedlich starke Einmischung von Luftmassen aus niedrigen Breiten überdeckt. Mesosphärische Luftmassen, die ab Ende Januar in die Stratosphäre transportiert wurden, können bis Ende März maximal die mittlere Stratosphäre in Höhen um ca. 30 km erreicht haben (vgl. Abb. 7.7). Ein erhöhter Eintrag mesosphärischer Luftmassen ab Ende Januar sollte daher keine Auswirkungen auf den Ozonabbau in der unteren Stratosphäre zum Ende des Winters haben.

Die Komplexität der Luftmassenherkunft für die verschiedenen Höhenbereiche ließ sich nur aufgrund der sehr hohen vertikalen Auflösung bei der Initialisierung der Trajektorien analysieren. Stark ausgeprägte Unterschiede im Luftmassenursprung zeigen sich z.B. zwischen den in 680 K (hoher mesosphärischer Anteil) und den in 695 K (hoher tropischer Anteil) initialisierten Trajektorien – also in einem vertikalen Abstand zwischen den isentropen Flächen von nur 15 K ( $\sim 0,3$  km). Die Untersuchung nur eines Höhenbereiches wie bei Rosenfield und Schoeberl [2001] reicht nicht aus, um den mesosphärischen Eintrag in die Stratosphäre innerhalb eines Winters annähernd realistisch zu beschreiben.

## 8. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Untersuchungen mit der stratosphärischen Version des Trajektorienmodelles der FU Berlin durchgeführt. Das Modell verwendet operationelle ECMWF-Daten als meteorologische Eingangsdaten und wird mit der potentiellen Temperatur als Vertikalkoordinate betrieben. Vertikalbewegungen können über verschiedene Annahmen zum quasi-isentropen Transport berechnet werden (u.a. über aktuelle Erwärmungsraten von SLIMCAT). Das Modell ist ein hybrides Modell, bei dem die Trajektorienposition aus einer kinematischen Lösung, die aus den horizontalen Windfeldern abgeleitet wird, und einer dynamischen Lösung, die auf der Analyse des Montgomery-Potentials beruht, bestimmt wird. Das Vorgehen zur Berechnung dieser beiden Lösungen und zur Ermittlung der Trajektorienposition wurde hier für die aktuelle Version des Modelles erstmals vollständig beschrieben, was zukünftige Verbesserungen im Modellcode erheblich vereinfachen wird.

Anhand von Sensitivitätsstudien wurde die Güte des Trajektorienmodelles untersucht. Dafür wurde u.a. eine Modellversion mit einer verbesserten vertikalen Auflösung (L59 anstelle von L25) implementiert. Trajektorien wurden an 4 verschiedenen geografischen Orten (Kiruna, 68°N; Aire sur l'Adour, 44°N; Teresina, 5°S und Bauru, 22°S) unter unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen in einem Höhenbereich ab ca. 5 km ( $\sim 500$  hPa) bis maximal ca. 34 km ( $\sim 6$  hPa) initialisiert. Sie wurden sowohl vorwärts als auch rückwärts für einen Zeitraum von 5 Tagen berechnet. Es konnte gezeigt werden, dass Unterschiede zwischen den basierend auf den verschiedenen FUB-Modellversionen berechneten Trajektorien stark vom betrachteten Höhenbereich und von der meteorologischen Situation abhängen. Für die in der Stratosphäre oberhalb von 380 K (je nach meteorologischen Bedingungen ca. 12 bis 17 km) berechneten Trajektorien lassen sich die Ergebnisse wie folgt zusammenfassen:

- Der mittlere Abstand, der sich aufgrund der Kombination aller untersuchten Modellparameter (horizontale und vertikale Auflösung sowie Vertikaltransport) ergibt, beträgt nach 5 Tagen maximal ca. 400 km. Nur in Ausnahmefällen ergeben sich relativ große horizontale Differenzen von mehr als 2000 km (nach 4,5 Tagen in 2 % der Fälle). Diese Abstände liegen innerhalb des Größenbereiches, der sich in der Stratosphäre beim Vergleich zwischen Trajektorien und den von Ballonen zurückgelegten Wegen ermitteln lässt [z.B. Knudsen et al., 2001, 2006].
- Im Allgemeinen ist die horizontal geringer aufgelöste FUB-Modellversion ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ ) ausreichend, um den Luftmassenweg in der Stratosphäre realistisch darzustellen. Die Sensitivitätsstudien zeigen, dass mit den operationellen ECMWF-Daten auf Standard-Druckflächen

sich stark ändernde vertikale Windgradienten in der mittleren Stratosphäre nicht erfasst werden können. Aufgrund der QBO treten solche Gradienten regelmässig in den Tropen auf. Hier kann daher nur für einen Zeitraum von 0,5 bis einem Tag von einer annähernd realistischen Wiedergabe der horizontalen Trajektorienposition ausgegangen werden.

- Die vertikale Position der Trajektorien wird in der Stratosphäre v.a. durch Annahmen zum Vertikaltransport bestimmt. In Einzelfällen lassen sich nach 4,5 Tagen Differenzen der potentiellen Temperatur von bis zu 35 K (bzw. 1200 m) feststellen. In geringerem Maße wird die vertikale Trajektorienposition auch durch die vertikale Auflösung bestimmt.
- Der Temperaturverlauf entlang von Trajektorien wird nicht nur von der Art der meteorologischen Eingangsdaten sondern – wie hier erstmals untersucht – auch vom verwendeten Trajektorienmodell und seiner räumlichen Auflösung beeinflusst. Die Wahrscheinlichkeit für Temperaturdifferenzen von mehr als 2 K beträgt nach einer Transportzeit von 4,5 Tagen 18 %. In Einzelfällen sind erheblich höhere Temperaturunterschiede von bis zu ca. 15 K feststellbar.
- Mit dem Vorwärts-/Rückwärts-Test lassen sich bei hybriden Modellen – wie dem Trajektorienmodell der FU Berlin – einzelne Trajektorien identifizieren, für die der Luftmassenweg nicht eindeutig bestimmbar ist. Mit Einschränkungen ist dafür auch die Überprüfung der PV-Erhaltung entlang der Trajektorien anwendbar.

Die Unterschiede in der Trajektorienposition, die sich im Vergleich zu anderen Trajektorienmodellen (CLaMS [McKenna et al., 2002] und AWI [Tegtmeier, 2006; Tegtmeier et al., 2008]) ergeben, liegen in derselben Größenordnung wie die Differenzen, die sich bei einer Kombination aller hier untersuchten Parameter des FUB-Modelles ermitteln lassen. Die Kombination aller Modellparameter wurde daher in folgenden Untersuchungen benutzt, um den Einfluss des zugrundeliegenden Trajektorienmodelles auf die Ergebnisse der ENVISAT-Validierung zu analysieren.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Methode zur trajektorienbasierten Ermittlung von Koinzidenzen zwischen Satelliten- und Ballonmessungen erstmals bereits während der Ballonflugplanung eingesetzt werden. Dadurch wurde für mehr als 20 Ballonflüge sichergestellt, dass die Ballon-Instrumente Spurengasprofile messen, die durch ihre räumliche und zeitliche Lage für die ENVISAT-Validierung geeignet sind. Die Ballonmesskampagnen fanden zwischen September 2002 und Juni 2008 in verschiedenen Breiten und zu unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen statt. Für die Validierung der ENVISAT-Instrumente steht damit eine Vielzahl von Spurengasmessungen zur Verfügung, die die unterschiedlichsten atmosphärischen Zustände beschreiben. Die Bereitstellung der ENVISAT-Daten für die Ballonflüge ab 2005 hat sich zum Teil verzögert, so dass umfangreiche Validierungsergebnisse bisher nur basierend auf den Messungen zwischen 2002 und 2004 vorliegen.

Anhand von Fallstudien zur ENVISAT-Validierung konnte gezeigt werden, dass die trajektorienbasierte Methode zur Ermittlung der Matches die Validierungsergebnisse nicht wesentlich beeinflusst. Die Sensitivität der Validierungsergebnisse bezüglich der zugrundeliegenden Trajektorien wurde für einzelne SCIAMACHY-Limb-Koinzidenzen mit LPMA/DOAS-Messungen für  $O_3$  und  $NO_2$  untersucht. Es konnte festgestellt werden, dass die Art des verwendeten Trajekto-

---

rienmodelles i. Allg. keinen Einfluss auf die ermittelten Satelliten-Matches hat. Darüberhinaus ist im betrachteten zeitlichen Abstand zwischen Ballon- und Satellitenmessung von maximal einem Tag auch die photochemische Modellierung für  $\text{NO}_2$  robust gegenüber Änderungen in den zugrundeliegenden Trajektorien. Die Validierungsergebnisse im Höhenbereich ab 20 km variieren aufgrund der von den Trajektorien abhängigen photochemischen Korrektur um maximal 4%. MIPAS-E-Profile der langlebigen Spurengase  $\text{CH}_4$  und  $\text{N}_2\text{O}$  (IMK V3O\_8 bzw. V3O\_9) wurden anhand von BONBON-Messungen validiert. In Übereinstimmung mit anderen Studien [z.B. Glatthor et al., 2005] wurde dabei eine prinzipielle Überschätzung der tatsächlichen Spurengaskonzentrationen durch MIPAS-E sowie Oszillationen in den Differenzen zu den Referenzmessungen festgestellt. Die Koinzidenzen zwischen den MIPAS-E- und den BONBON-Messungen wurden basierend auf bis zu 5-Tages-Trajektorien ermittelt, die anhand unterschiedlicher Versionen des FUB-Modelles berechnet wurden. Der daraus resultierende mittlere Fehler liegt für den Höhenbereich ab 20 km bei maximal 8%. Der von Danilin et al. [2002b] anhand von trajektorienbasierten Koinzidenzen eines Satelliteninstrumentes mit sich selbst und anhand von Vergleichen zwischen verschiedenen Satelliteninstrumenten abgeschätzte Fehler von 3–5% erscheint daher als zu gering.

Für die hier untersuchten Fälle liegt der methodisch bedingte Fehler i. Allg. deutlich unterhalb des kombinierten Fehlers aus den beiden Messgeräten. Trajektorienbasierte Koinzidenzen zwischen den Ballon- und den Satellitenmessungen sind damit ein wichtiges Hilfsmittel, um eine Satellitenvalidierung anhand der sehr genauen Ballonmessungen zu ermöglichen.

Zum Abschluss wurden Trajektorienrechnungen dazu verwendet, die Luftmassenherkunft im Winter 2002/03 zu bestimmen. Eine hohe vertikale Auflösung bei der Initialisierung der Trajektorien ermöglichte es, die komplexe vertikale Struktur des Luftmassenursprunges für die u.a. am 06.03.2003 über Kiruna gemessenen Spurengaskonzentrationen abzubilden. Ursächlich für die Anfang März 2003 um 25 km festgestellte Höhenschicht mit einem hohen mesosphärischen Anteil war die frühe Ausbildung eines kalten, kräftigen Polarwirbels, der nicht von Luftmassen aus mittleren Breiten beeinflusst wurde. Das Absinken dieser Luftmassen im Laufe des Winters wurde v.a. durch zwei starke Stratosphärenwärmungen im Dezember und Januar verstärkt, was im Vergleich zu anderen, ungestörten Wintern intensivere Abwärtsbewegungen zur Folge hatte. Die Schicht mit einem hohen mesosphärischen Anteil war nur an wenigen Tagen unmittelbar von den dynamischen Prozessen betroffen, die zu den plötzlichen Stratosphärenwärmungen führten. Damit konnten diese Luftmassen ohne wesentliche Einmischungen von Luft aus mittleren Breiten bis zum Ende des Winters relativ weit bis in Höhen um 24–25 km vordringen. Luftmassen, die direkt im Zusammenhang mit dem Minor Warming Ende Dezember und dem Major Warming im Januar aus der Mesosphäre in die Stratosphäre eingetragen wurden und Ende März 2003 in etwa 27 km Höhe und darüber lagen, verloren ihre mesosphärische Struktur durch den Eintrag von Luftmassen aus niedrigeren Breiten.

## Ausblick

Das FUB-Modell sollte so erweitert werden, dass eine flexible Verwendung unterschiedlicher meteorologischer Eingangsdaten in unterschiedlicher zeitlicher Auflösung möglich ist. Dann könnten Sensitivitätsstudien auch für die Art der meteorologischen Eingangsdaten und ihre zeitliche Auflösung durchgeführt werden. Außerdem könnte das Modell dann Höhenbereiche in der unteren Mesosphäre umfassen, so dass die Luftmassenherkunft direkt bis in diese Schichten zurückverfolgt werden könnte. Darüberhinaus ist es denkbar, die von Klimamodellen berechneten meteorologischen Felder als Eingangsdaten für das Trajektorienmodell verfügbar zu machen. Dies ermöglicht einerseits eine Validierung dieser Modelle anhand von Beobachtungsdaten und andererseits könnten beispielsweise zukünftige Veränderungen der Luftmassenherkunft für polare Breiten im Winter untersucht werden.

Der Einfluss der zugrundeliegenden Trajektorien auf die Ergebnisse der Satellitenvalidierung wurde im Rahmen dieser Arbeit für ausgewählte Fälle und Spurengase untersucht. Die dabei festgestellte geringe Sensitivität ist aufgrund unterschiedlicher Lebenszeiten der Spurengase nicht ohne weiteres auf andere Anwendungen übertragbar. Die Untersuchungen sollten daher mit anderen Spurengasen und – für die photochemische Korrektur – für zeitlich weiter auseinanderliegende Messungen wiederholt werden.

Die Match-Methode wurde bereits erfolgreich dazu eingesetzt, den Ozonabbau im Winter anhand von Satellitenmessungen zu bestimmen [Terao et al., 2002; Streibel, 2005]. Diese Methode kann prinzipiell auf die beiden ENVISAT-Instrumente SCIAMACHY- und MIPAS-E übertragen werden. Für passive Spurengase ergibt sich daraus außerdem die Möglichkeit, die Konsistenz der Messungen der einzelnen ENVISAT-Geräte zu überprüfen.

Die Untersuchungen zum mesosphärischen Eintrag sollten für weitere arktische Winter durchgeführt werden. Damit ließe sich z.B. feststellen, wie häufig ein ungestörter Transport von Luftmassen aus der Mesosphäre bis in die untere Stratosphäre auftritt. Voraussetzung dafür ist die Verfügbarkeit aktueller Erwärmungsraten, die bisher aus SLIMCAT-Rechnungen nur für einzelne Winter vorliegen. Für die letzten Winter stehen Spurengasmessungen mehrerer in jüngster Zeit gestarteter Satelliten zur Verfügung [vgl. z.B. Manney et al., 2008a]. Diese Daten können – bei erfolgreicher Validierung – u.a. ebenfalls zur Untersuchung des mesosphärischen Eintrages in die Stratosphäre verwendet werden.

# Publikationen

Teile dieser Arbeit wurden veröffentlicht in:

- Butz, A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, M. Dorf, G. Dufour, **K. Grunow**, P. Jeseck, S. Köhl, S. Payan, I. Pepin, J. Pukite, A. Rozanov, C. von Savigny, C. Sioris, T. Wagner, F. Weidner und K. Pfeilsticker, 2006. Inter-comparison of stratospheric O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> abundances retrieved from balloon borne direct sun observations and Envisat/SCIAMACHY limb measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 1293–1314. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-1293.
- Engel, A., T. Möbius, H.-P. Haase, H. Bönisch, T. Wetter, U. Schmidt, I. Levin, T. Reddman, H. Oelhaf, G. Wetzol, **K. Grunow**, N. Huret und M. Pirre, 2006. On the observation of mesospheric air inside the arctic stratospheric polar vortex in early 2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 267–282. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-267.

Mit den im Rahmen dieser Arbeit berechneten Trajektorien wurde zu folgenden Veröffentlichungen beigetragen:

- Dorf, M., H. Bösch, A. Butz, C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, A. Engel, F. Goutail, **K. Grunow**, F. Hendrick, S. Hrechanyy, B. Naujokat, J.-P. Pommereau, M. Van Roozendaal, C. Sioris, F. Stroh, F. Weidner und K. Pfeilsticker, 2006. Balloon-borne stratospheric BrO measurements: comparison with Envisat/SCIAMACHY BrO limb profiles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 2483–2501. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-2483.
- Laube, J. C., A. Engel, H. Bönisch, T. Möbius, D. R. Worton, W. T. Sturges, **K. Grunow** und U. Schmidt, 2008. Contribution of short-lived organic substances to stratospheric chlorine and bromine in the tropics – a case study. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **8**, 8491–8515. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2008-8-8491.  
(akzeptiert für *Atmospheric Chemistry and Physics*)
- Payan, S., C. Camy-Peyret, H. Oelhaf, G. Wetzol, G. Maucher, C. Keim, M. Pirre, N. Huret, A. Engel, M. C. Volk, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, U. Cortesi, G. Bianchini, F. Mencaraglia, P. Raspollini, G. Redaelli, C. Vigouroux, M. De Mazière, S. Mikuteit, T. Blumenstock, V. Velazco, J. Notholt, M. Mahieu, P. Duchatelet, D. Smale, S. Wood, N. Jones, C. Piccolo, V. Payne, A. Bracher, N. Glatthor, G. Stiller, **K. Grunow**, P. Jeseck, Y. Te, K. Pfeilsticker, und A. Butz, 2007. Validation and data characteristics of methane and nitrous oxide profiles observed by MIPAS and processed with Version 4.61

---

algorithm. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **7**, 18043–18111. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2007-7-18043.

Darüberhinaus wurden die im Rahmen dieser Arbeit berechneten Trajektorien angewendet von:

- Olinger, A., 2005. *Validierung von SCIAMACHY Messungen mit MIPAS-B Daten mit Hilfe von Trajektorienberechnungen*. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe (TH)/ Forschungszentrum Karlsruhe.
- Wetzel, G., A. Bracher, B. Funke, F. Goutail, F. Hendrick, J.-C. Lambert, S. Mikuteit, C. Piccolo, M. Pirre, A. Bazureau, C. Belotti, T. Blumenstock, M. De Mazière, H. Fischer, N. Huret, D. Ionov, M. López-Puertas, G. Maucher, H. Oelhaf, J.-P. Pommereau, R. Ruhnke, M. Sinnhuber, G. Stiller, M. Van Roozendael und G. Zhang, 2007. Validation of MIPAS-ENVISAT NO<sub>2</sub> operational data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7**, 3261–3284. SRef-ID: 1680-7324/acp/2007-7-3261.
- Zhang, G., 2006. *Validation of target parameters of ENVISAT chemistry instruments with correlative balloon observations obtained by MIPAS-B*. Dissertation, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH), Forschungszentrum Karlsruhe in der Helmholtz-Gemeinschaft, Wissenschaftliche Berichte FZKA 7242.

# Literaturverzeichnis

- Andrews, D., J. Holton und C. Leovy, 1987. *Middle atmosphere dynamics*. International Geophysics Series, Vol. 40. Academic Press, London.
- Austin, J. und A. F. Tuck, 1985. The calculation of stratospheric air parcel trajectories using satellite data. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **111**(468), 279–307. doi: 10.1002/qj.49711146803.
- Baehr, J., C. M. Volk, E. Ivanova, A. Werner, T. Wetter, A. Engel, H.-P. Haase, T. Moebius, U. Schmidt, G. Stiller, T. von Clarmann, N. Glatthor, S. Kellmann, K. Grunow und I. Levin, 2004. Validation of MIPAS-ENVISAT CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, CFC-11 and CFC-12 by airborne in situ observations. In: *ENVISAT Symposium - Abstract & Programme Book, Salzburg, Austria, 6 - 10 Sept. 2004*, European Space Agency, ESA SP-572, 2005, S. 167–172.
- Baldwin, M. P. und L. J. Gray, 2005. Tropical stratospheric zonal winds in ECMWF ERA-40 reanalysis, rocketsonde data, and rawinsonde data. *Geophysical Research Letters*, **32**, L09806. doi: 10.1029/2004GL022328.
- Baldwin, M. P., L. J. Gray, T. J. Dunkerton, K. Hamilton, P. H. Haynes, W. J. Randel, J. R. Holton, M. J. Alexander, I. Hirota, T. Horinouchi, D. B. A. Jones, J. S. Kinnersley, C. Marquardt, K. Sato und M. Takahashi, 2001. The quasi-biennial oscillation. *Reviews of Geophysics*, **39**(2), 179–229. doi: 10.1029/1999RG000073.
- Bauer, N., 1997. *Charakterisierung des DOAS-Ballon-Spektrographen zur Bestimmung stratosphärischer Spurenstoffe*. Diplomarbeit, Fakultät für Physik und Astronomie, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Baumann, K. und A. Stohl, 1997. Validation of a long-range trajectory model using gas balloon tracks from the Gordon Bennett Cup 95. *Journal of Applied Meteorology*, **36**, 711–720.
- Bonazzola, M. und P. H. Haynes, 2004. A trajectory-based study of the tropical tropopause region. *Journal of Geophysical Research*, **109**, D20112. doi: 10.1029/2003JD004356.
- Borsche, M., G. Kirchengast und U. Foelsche, 2007. Tropical tropopause climatology as observed with radio occultation measurements from CHAMP compared to ECMWF and NCEP analyses. *Geophysical Research Letters*, **34**, L03702. doi: 10.1029/2006GL027918.
- Bösch, H., C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, R. Fitzenberger, H. Harder, U. Platt und K. Pfeilsticker, 2003. Upper limits of stratospheric IO and OIO inferred from center-to-limb-darkening-corrected balloon-borne solar occultation visible spectra: Implications for total gaseous iodine and stratospheric ozone. *Journal of Geophysical Research*, **108**(D15), 4455. doi: 10.1029/2002JD003078.
- Bovensmann, H., J. Burrows, M. Buchwitz, J. Frerick, S. Noël und V. Rozanov, 1999. SCIAMACHY: Mission Objectives and Measurement Modes. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **56**(2), 127–150.
- Bracher, A., H. Bovensmann, K. Bramstedt, J. P. Burrows, T. von Clarmann, K.-U. Eichmann, H. Fischer, B. Funke, S. Gil-López, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, M. Kaufmann,

- S. Kellmann, M. Kiefer, M. E. Koukouli, A. Linden, M. López-Puertas, G. M. Tsidu, M. Milz, S. Noel, G. Rohen, A. Rozanov, V. V. Rozanov, C. von Savigny, M. Sinnhuber, J. Skupin, T. Steck, G. P. Stiller, D.-Y. Wang, M. Weber und M. W. Wuttke, 2005a. Cross comparisons of O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> measured by the atmospheric ENVISAT instruments GOMOS, MIPAS, and SCIAMACHY. *Advances in Space Research*, **36**(5), 855–867. doi: 10.1016/j.asr.2005.04.005.
- Bracher, A., M. Sinnhuber, A. Rozanov und J. P. Burrows, 2005b. Using a photochemical model for the validation of NO<sub>2</sub> satellite measurements at different solar zenith angles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 393–408. SRef-ID: 1680-7324/acp/2005-5-393.
- Brasseur, G. und S. Solomon, 2005. *Aeronomy of the Middle Atmosphere – Chemistry and Physics of the Stratosphere and Mesosphere*. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht/ Boston/ Lancaster, dritte Auflage.
- Brasseur, G., J. J. Orlando und G. S. Tyndall (Herausgeber), 1999. *Atmospheric chemistry and global change*. Oxford University Press, Inc., New York, Oxford.
- Bregman, B., E. Meijer und R. Scheele, 2006. Key aspects of stratospheric tracer modeling using assimilated winds. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 4529–4543. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-4529.
- Brewer, A. W., 1949. Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **75**(326), 351–363. doi: 10.1002/qj.49707532603.
- Brinksma, E. J., A. Bracher, D. E. Lolkema, A. J. Segers, J. S. Boyd, K. Bramstedt, H. Claude, S. Godin-Beekmann, G. Hansen, G. Kopp, T. Leblanc, I. S. McDermid, Y. J. Meijer, H. Nakane, A. Parrish, C. von Savigny, K. Strebel, D. P. J. Swart, G. Taha und A. J. M. Pijters, 2006. Geophysical validation of SCIAMACHY Limb Ozone Profiles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 197–209. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-197.
- Burrows, J., H. Fischer, K. F. Künzi, K. Pfeilsticker, U. Platt, A. Richter, M. Riese, G. Stiller und T. Wagner, 2007. Atmosphärische Spurenstoffe und ihre Sondierung. *Chemie in unserer Zeit*, **41**(3), 170–191. doi: 10.1002/ciuz.200700426.
- Businger, S., R. Johnson, J. Katzfey, S. Siems und Q. Wang, 1999. Smart tetroons for Lagrangian air-mass tracking during ACE 1. *Journal of Geophysical Research*, **104**(D9), 11,709–11,722. doi: 10.1029/1998JD100094.
- Butz, A., 2006. *Case Studies of Stratospheric Nitrogen, Chlorine and Iodine Photochemistry Based on Balloon Borne UV/visible and IR Absorption Spectroscopy*. Dissertation, Fakultät für Naturwissenschaften und Mathematik, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Butz, A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, M. Dorf, G. Dufour, K. Grunow, P. Jeseck, S. Kühl, S. Payan, I. Pepin, J. Pukite, A. Rozanov, C. von Savigny, C. Sioris, T. Wagner, F. Weidner und K. Pfeilsticker, 2006. Inter-comparison of stratospheric O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> abundances retrieved from balloon borne direct sun observations and Envisat/SCIAMACHY limb measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 1293–1314. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-1293.
- Camy-Peyret, C., 1995. Balloon-borne infrared Fourier transform spectroscopy for measurements of atmospheric trace species. *Spectrochimica Acta, Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, **51**(7), 1143–1152. doi: 10.1016/0584-8539(94)00145-2.
- Camy-Peyret, C., P. Jeseck, T. Hawat, G. Durré, S. Payan, G. Berubé, L. Rochette und D. Huguenin, 1995. The LPMA Balloon-Borne FTIR Spectrometer for Remote Sensing of Atmospheric Constituents. In: *Proceedings of the 12th ESA Symposium on Rocket and Balloon Programmes and Related Research, Lillehammer, Norway, 29 May – 1 June 1995*, ESA SP-370, S. 323–328.

- Canty, T., E. D. Rivière, R. J. Salawitch, G. Berthet, J.-B. Renard, K. Pfeilsticker, M. Dorf, A. Butz, H. Bösch, R. M. Stimpfle, D. M. Wilmouth, E. C. Richard, D. W. Fahey, P. J. Popp, M. R. Schoeberl, L. R. Lait und T. P. Bui, 2005. Nighttime OCIO in the winter Arctic vortex. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D01301. doi: 10.1029/2004JD005035.
- Carslaw, K. S., M. Wirth, A. Tsias, B. P. Luo, A. Dörnbrack, M. Leutbecher, H. Volkert, W. Renger, J. T. Bachmeister, E. Reimer und T. Peter, 1998. Increased stratospheric ozone depletion due to mountain-induced atmospheric waves. *Nature*, **391**, 675–678. doi: 10.1038/35589.
- Charney, J. G. und P. G. Drazin, 1961. Propagation of Planetary-Scale Disturbances from the Lower into the Upper Atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, **66**(1), 83–109. doi: 10.1029/JZ066i001p00083.
- Chipperfield, M. P., 1999. Multiannual simulations with a three-dimensional chemical transport model. *Journal of Geophysical Research*, **104**(D1), 1781–1805. doi: 10.1029/98JD02597.
- Chipperfield, M. P., M. L. Santee, L. Froidevaux, G. L. Manney, W. G. Read, J. W. Waters, A. E. Roche und J. M. Russell, 1996. Analysis of UARS data in the southern polar vortex in September 1992 using a chemical transport model. *Journal of Geophysical Research*, **101**(D13), 18861–18882. doi: 10.1029/96JD00936.
- CNES, 2008. *Balloons at a glance*. WWW-Seite des Centre national d'études spatiales, <http://www.cnes.fr/web/4938-balloons-at-a-glance.php>.
- Considine, D. B., M. Natarajan, T. D. Fairlie, G. S. Lingenfelter, R. B. Pierce, L. Froidevaux und A. Lambert, 2008. Noncoincident validation of Aura MLS observations using the Langley Research Center Lagrangian chemistry and transport model. *Journal of Geophysical Research*, **113**, D16S33. doi: 10.1029/2007JD008770.
- Dameris, M., T. Peter, U. Schmidt und R. Zellner, 2007. Das Ozonloch und seine Ursachen. *Chemie in unserer Zeit*, **41**(3), 152–168. doi: 10.1002/ciuz.200700418.
- Danielsen, E. F., 1961. Trajectories: isobaric, isentropic and actual. *Journal of Meteorology*, **18**, 479–486.
- Danilin, M. Y., M. K. W. Ko, R. M. Bevilacqua, L. V. Lyjak, L. Froidevaux, M. L. Santee, J. M. Zawodny, K. W. Hoppel, E. C. Richard, J. R. Spackman, E. M. Weinstock, R. L. Herman, K. A. McKinney, P. O. Wennberg, F. L. Eisele, R. M. Stimpfle, C. J. Scott, J. W. Elkins und T. V. Bui, 2002a. Comparison of ER-2 aircraft and POAM III, MLS, and SAGE II satellite measurements during SOLVE using traditional correlative analysis and trajectory hunting technique. *Journal of Geophysical Research*, **107**, 8315, [printed 108(D5), 2003]. doi: 10.1029/2001JD000781.
- Danilin, M. Y., M. K. W. Ko, L. Froidevaux, M. L. Santee, L. V. Lyjak, R. M. Bevilacqua, J. M. Zawodny, Y. Sasano, H. Irie, Y. Kondo, J. M. Russell, C. J. Scott und W. G. Read, 2002b. Trajectory hunting as an effective technique to validate multiplatform measurements: Analysis of the MLS, HALOE, SAGE-II, ILAS, and POAM-II data in October–November 1996. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D20), 4420. doi: 10.1029/2001JD002012.
- Davis, C. A., 1996. Potential vorticity. In: *Encyclopedia of Climate and Weather*, herausgegeben von S. H. Schneider, S. 602–608. Oxford University Press, Oxford.
- De Mazière, M., C. Vigouroux, P. F. Bernath, P. Baron, T. Blumenstock, C. Boone, C. Brogniez, V. Catoire, M. Coffey, P. Duchatelet, D. Griffith, J. Hannigan, Y. Kasai, I. Kramer, N. Jones, E. Mahieu, G. L. Manney, C. Piccolo, C. Randall, C. Robert, C. Senten, K. Strong, J. Taylor, C. Tétard, K. A. Walker und S. Wood, 2008. Validation of ACE-FTS v2.2 methane profiles from the upper troposphere to the lower mesosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 2421–2435. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-2421.

- Demtröder, W., 2000. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York, 2. Auflage.
- Dessler, A. E., 2000. *The Chemistry and Physics of Stratospheric Ozone*. International Geophysics Series, Vol. 74. Academic Press, San Diego/ San Francisco/ New York.
- Dobson, G. M. B., 1956. Origin and Distribution of the Polyatomic Molecules in the Atmosphere. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A*, **236**(1205), 187–193.
- Dobson, G. M. B., D. Harrison und J. Lawrence, 1929. Measurements of the Amount of Ozone in the Earth's Atmosphere and Its Relation to Other Geophysical Conditions. Part III. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A*, **122**(790), 456–486.
- Dorf, M., 2005. *Investigation of Inorganic Stratospheric Bromine using Balloon-Borne DOAS Measurements and Model Simulations*. Dissertation, Fakultät für Naturwissenschaften und Mathematik, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Dorf, M., H. Bösch, A. Butz, C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, A. Engel, F. Goutail, K. Grunow, F. Hendrick, S. Hrechanyy, B. Naujokat, J.-P. Pommereau, M. Van Roozendaal, C. Sioris, F. Stroh, F. Weidner und K. Pfeilsticker, 2006. Balloon-borne stratospheric BrO measurements: comparison with Envisat/SCIAMACHY BrO limb profiles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 2483–2501. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-2483.
- Draxler, R. R. und G. Hess, 2004. *Description of the HYSPLIT\_4 modeling system*. Technischer Bericht, NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, Air Resources Laboratory, Silver Spring (Maryland). 1997, Überarbeitung Januar 2004, <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html> (07.10.2005).
- Dunkerton, T. und D. Delisi, 1986. Evolution of Potential Vorticity in the Winter Stratosphere of January–February 1979. *Journal of Geophysical Research*, **91**(D1), 1199–1208. doi: 10.1029/JD091iD01p01199.
- Dütsch, H. U., 1970. Atmospheric ozone – A short review. *Journal of Geophysical Research*, **75**(9), 1707–1712. doi: 10.1029/JC075i009p01707.
- Dvorkin, Y., N. Paldor und C. Basdevant, 2001. Reconstructing balloon trajectories in the tropical stratosphere with a hybrid model using analysed fields. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **127**, Part A(573), 975–988. doi: 10.1256/smsj.57313.
- ECMWF, 2002. *Brief history of the ECMWF analysis and forecasting system*. WWW-Seite des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF), [http://www.ecmwf.int/products/data/operational\\_system/description/brief\\_history.html](http://www.ecmwf.int/products/data/operational_system/description/brief_history.html) (21.01.2002).
- ECMWF, 2006. *Revisions during 2006*. WWW-Seite des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF), [http://www.ecmwf.int/products/data/operational\\_system/evolution/evolution\\_2006.html](http://www.ecmwf.int/products/data/operational_system/evolution/evolution_2006.html) (13.09.2006).
- Ehhalt, D. H., 1980. In situ observations. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, **296**(1418), 175–189. The Middle Atmosphere as Observed from Balloons, Rockets and Satellites.
- Ejiri, M. K., Y. Terao, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, G. C. Toon, B. Sen, G. Wetzel, H. Oelhaf, J. Urban, D. Murtagh, H. Irie, N. Saitoh, T. Tanaka, H. Kanzawa, M. Shiotani, S. Aoki, G. Hashida, T. Machida, T. Nakazawa, H. Kobayashi und Y. Sasano, 2006. Validation of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) Version 1.4 nitrous oxide and methane profiles. *Journal of Geophysical Research*, **111**, D22S90. doi: 10.1029/2005JD006449.

- Engel, A., U. Schmidt und R. A. Stachnik, 1997. Partitioning Between Chlorine Reservoir Species Deduced from Observations in the Arctic Winter Stratosphere. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **27**(2), 107–126. doi: 10.1023/A:1005781919448.
- Engel, A., M. Strunk, M. Müller, H.-P. Haase, C. Poss, I. Levin und U. Schmidt, 2002. Temporal development of total chlorine in the high-latitude stratosphere based on reference distributions of mean age derived from CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub>. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D12). doi: 10.1029/2001JD000584.
- Engel, A., T. Möbius, H.-P. Haase, H. Bönisch, T. Wetter, U. Schmidt, I. Levin, T. Reddmann, H. Oelhaf, G. Wetzel, K. Grunow, N. Huret und M. Pirre, 2006. On the observation of mesospheric air inside the arctic stratospheric polar vortex in early 2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 267–282. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-267.
- Ertel, H., 1942. Ein neuer hydrodynamischer Wirbelsatz. *Meteorologische Zeitschrift*, **59**(9), 277–281.
- ESA, 1998. *ENVISAT-1 Mission and System Summary*. Europäische Raumfahrtagentur. [http://envisat.esa.int/support-docs/pdf/mis\\_sys.pdf](http://envisat.esa.int/support-docs/pdf/mis_sys.pdf).
- ESA, 2006. *Envisat Instrument Availability Interruptions*. WWW-Seite der Europäischen Raumfahrtagentur (ESA), <http://envisat.esa.int/instruments/availability/> (13.03.2006).
- Etling, D., 2002. *Theoretische Meteorologie*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York, zweite Auflage.
- Farman, J. C., B. G. Gardiner und J. D. Shanklin, 1985. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO<sub>x</sub>/NO<sub>x</sub> interaction. *Nature*, **315**, 207–210. doi: 10.1038/315207a0.
- Ferlemann, F., C. Camy-Peyret, R. Fitzenberger, H. Harder, T. Hawat, H. Osterkamp, M. Schneider, D. Perner, U. Platt, P. Vradelis und K. Pfeilsticker, 1998. Stratospheric BrO profiles measured at different latitudes and seasons: Instrument description, spectral analysis and profile retrieval. *Geophysical Research Letters*, **25**(20), 3847–3850.
- Ferlemann, F., N. Bauer, R. Fitzenberger, H. Harder, H. Osterkamp, D. Perner, U. Platt, M. Schneider, P. Vradelis und K. Pfeilsticker, 2000. Differential optical absorption spectroscopy instrument for stratospheric balloonborne trace-gas studies. *Applied Optics*, **39**(15), 2377–2386.
- Fischer, H., 1992. Remote Sensing of Atmospheric Trace Constituents Using Fourier Transform Spectrometry. *Berichte der Bunsen-Gesellschaft für Physikalische Chemie*, **96**(3), 306–314.
- Fischer, H. und H. Oelhaf, 1996. Remote sensing of vertical profiles of atmospheric trace constituents with MIPAS limb-emission spectrometers. *Applied Optics*, **35**(16), 2787–2796.
- Fischer, H., M. Birk, C. Blom, B. Carli, M. Carlotti, T. von Clarmann, L. Delbouille, A. Dudhia, D. Ehhalt, M. Endemann, J. M. Flaud, R. Gessner, A. Kleinert, R. Koopmann, J. Langen, M. López-Puertas, P. Mosner, H. Nett, H. Oelhaf, G. Perron, J. Remedios, M. Ridolfi, G. Stiller und R. Zander, 2008. MIPAS: an instrument for atmospheric and climate research. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 2151–2188. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-2151.
- Fisher, M. e. e., 1993. Rapid descent of mesospheric air into stratospheric polar vortex. *Geophysical Research Letters*, **20**, 1267–1270. doi: 10.1029/93GL01104.
- Forster, P., V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, R. Betts, D. W. Fahey, J. Haywood, J. Lean, D. C. Lowe, G. Myhre, J. Nganga, R. Prinn, G. Raga, M. Schulz und R. van Dorland, 2007. Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007 - The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, herausgegeben von S. Solomon, D. Qin,

- M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor und H. L. Miller. Cambridge University Press, Cambridge/ New York.
- Friedl-Vallon, F., G. Maucher, M. Seefelder, O. Trieschmann, A. Kleinert, A. Lengel, C. Keim, H. Oelhaf und H. Fischer, 2004. Design and Characterization of the Balloon-Borne Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS-B2). *Applied Optics*, **43**(16), 3335–3355.
- Fueglistaler, S., H. Wernli und T. Peter, 2004. Tropical troposphere-to-stratosphere transport inferred from trajectory calculations. *Journal of Geophysical Research*, **109**, D03108. doi: 10.1029/2003JD004069.
- Fuelberg, H. E., R. O. Loring Jr, M. V. Watson, M. C. Sinha, K. E. Pickering, A. M. Thompson, G. W. Sachse, D. R. Blake und M. R. Schoeberl, 1996. TRACE A trajectory intercomparison. 2. Isentropic and kinematic methods. *Journal of Geophysical Research*, **101**(D19), 23,927–23,939.
- Funke, B., M. García-Comas, M. López-Puertas, N. Glatthor, G. P. Stiller, T. von Clarmann, K. Semeniuk und J. C. McConnell, 2008a. Enhancement of N<sub>2</sub>O during the October–November 2003 solar proton events. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 3805–3815. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-3805.
- Funke, B., M. López-Puertas, M. Garcia-Comas, G. P. Stiller, T. von Clarmann und N. Glatthor, 2008b. Mesospheric N<sub>2</sub>O enhancements as observed by MIPAS on Envisat during the polar winters in 2002–2004. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 5787–5800. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-5787.
- Funke, B., M. López-Puertas, S. Gil-López, T. von Clarmann, G. P. Stiller, H. Fischer und S. Kellmann, 2005. Downward transport of upper atmospheric NO<sub>x</sub> into the polar stratosphere and lower mesosphere during the Antarctic 2003 and Arctic 2002/2003 winters. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D24308. doi: 10.1029/2005JD006463.
- Glatthor, N., T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, T. Steck, G. Stiller, G. Tsidu und D. Wang, 2005. Mixing Processes during the Antarctic Vortex Split in September–October 2002 as Inferred from Source Gas and Ozone Distributions from ENVISAT-MIPAS. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **62**(3), 787–800. doi: 10.1175/JAS-3332.1.
- Goody, R. M. und Y. L. Yung, 1989. *Atmospheric Radiation*. Oxford University Press, New York/ Oxford, 2. Auflage.
- Gottwald, M., H. Bovensmann, G. Lichtenberg, S. Noël, A. von Bargaen, S. Slijkhuis, A. Pisters, R. Hoogeveen, C. von Savigny, M. Buchwitz, A. Kokhanovsky, A. Richter, A. Rozanov, T. Holzer-Popp, K. Bramstedt, J.-C. Lambert, J. Skupin, F. Wittrock, H. Schrijver und J. Burrows, 2006. *SCIAMACHY, Monitoring the Changing Earth's Atmosphere*. Hg.: DLR. [http://atmos.caf.dlr.de/projects/scops/sciamachy\\_book/sciamachy\\_book.html](http://atmos.caf.dlr.de/projects/scops/sciamachy_book/sciamachy_book.html) (28.03.2007).
- Grainger, J. F. und J. Ring, 1962. Anomalous Fraunhofer Line Profiles. *Nature*, **193**, 762. doi: 10.1038/193762a0.
- Greenblatt, J. B., H.-J. Jost, M. Loewenstein, J. R. Podolske, D. F. Hurst, J. W. Elkins, S. M. Schauffler, E. L. Atlas, R. L. Herman, C. R. Webster, T. P. Bui, F. L. Moore, E. A. Ray, S. Oltmans, H. Vömel, J.-F. Blavier, B. Sen, R. A. Stachnik, G. C. Toon, A. Engel, M. Müller, U. Schmidt, H. Bremer, R. B. Pierce, B. Sinnhuber, M. Chipperfield und F. Lefèvre, 2002. Tracer-based determination of vortex descent in the 1999/2000 Arctic winter. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D20), 8279. doi: 10.1029/2001JD000937.

- Greenspan, D., 1972. A New Explicit Discret Mechanics With Applications. *Journal of The Franklin Institute*, **294**(4), 231–240.
- Greenspan, D., 1973. *Discrete Models*. Applied Mathematics and Computation, Nr. 3. Addison-Wesley Publishing Company, Reading, Massachusetts.
- Groß, J.-U. und J. M. Russell, 2005. Technical note: A stratospheric climatology for O<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, NO<sub>x</sub>, HCl and HF derived from HALOE measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 2797–2807. SRef-ID: 1680-7324/acp/2005-5-2797.
- Günther, G., R. Müller, M. von Hobe, F. Stroh, P. Konopka und C. M. Volk, 2008. Quantification of transport across the boundary of the lower stratospheric vortex during Arctic winter 2002/2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 3655–3670. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-3655.
- Gurlit, W., H. Bösch, H. Bovensmann, J. P. Burrows, A. Butz, C. Camy-Peyret, M. Dorf, K. Gerilowski, A. Lindner, S. Noël, U. Platt, F. Weidner und K. Pfeilsticker, 2005. The UV-A and visible solar irradiance spectrum: inter-comparison of absolutely calibrated, spectrally medium resolution solar irradiance spectra from balloon- and satellite-borne measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 1879–1890. SRef-ID: 1680-7324/acp/2005-5-1879.
- Haagenson, P. L., Y.-H. Kuo und M. Skumanich, 1987. Tracer Verification of Trajectory Models. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, **26**(3), 410–426.
- Haase, H.-P., 2004. *Zur Variabilität der Dynamik in der Stratosphäre – Eine Untersuchung auf Grundlage der Varianz von chemischen Tracern*. Dissertation, Fachbereich Geowissenschaften/Geographie der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main.
- Hall, T. M. und R. A. Plumb, 1994. Age as diagnostic of stratospheric air. *Journal of Geophysical Research*, **99**(D1), 1059–1070.
- Haltiner, G. J. und R. T. Williams, 1980. *Numerical prediction and dynamic meteorology*. John Wiley & Sons, Inc., Second edition.
- Harris, J. M., R. R. Draxler und S. J. Oltmans, 2005. Trajectory model sensitivity to differences in input data and vertical transport method. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D14109. doi: 10.1029/2004JD005750.
- Hauchecorne, A., S. Godin, M. Marchand, B. Heese und C. Souprayen, 2002. Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D20), 8289. doi: 10.1029/2001JD000491.
- Haynes, P. H. und M. E. McIntyre, 1990. On the conservation and impermeability theorems for potential vorticity. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **47**(16), 2021–2031.
- Hertzog, A., C. Basdevant, F. Vial und C. R. Mechoso, 2004. The accuracy of stratospheric analyses in the northern hemisphere inferred from long-duration balloon flights. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **130**(597), 607–626. doi: 10.1256/qj.03.76.
- Holton, J. R., 1976. A Semi-Spectral Numerical Model for Wave-Mean Flow Interactions in the Stratosphere: Application to Sudden Stratospheric Warmings. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **33**(8), 1639–1649.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood und L. Pfister, 1995. Stratosphere-Troposphere Exchange. *Reviews of Geophysics*, **33**(4), 403–439. doi: 10.1029/95RG02097.
- Hoogen, R., J. P. Burrows, S. Noël, U. Platt und T. Wagner, 1999. SCIAMACHY mission objectives and validation concept: the german contribution. In: *Proceedings of the 14th ESA*

- Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research, Potsdam, Germany, 31 May – 3 June 1999*, ESA SP-437, S. 227–234.
- Hoskins, B., 1997. A potential vorticity view of synoptic development. *Meteorological Applications*, **4**(4), 325–334. doi: 10.1017/S1350482797000716.
- Houghton, J. T., 1969. Absorption and Emission by Carbon Dioxide in the Mesosphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **95**, 1–20.
- Huret, N., M. Pirre, A. Hauchecorne, C. Robert und V. Catoire, 2006. On the vertical structure of the stratosphere at midlatitudes during the first stage of the polar vortex formation and in the polar region in the presence of a large mesospheric descent. *Journal of Geophysical Research*, **111**, D06111. doi: 10.1029/2005JD006102.
- IPCC, 2007. *Climate Change 2007 - The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. herausgegeben von S. Solomon, D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor und H. L. Miller, Cambridge University Press, Cambridge/ New York.
- Kähler, M., 1988. *Thermische Gezeiten in einem 3-dimensionalen Zirkulationsmodell*. Dissertation, Fachbereich Geowissenschaften der Freien Universität Berlin.
- Kahl, J. D. und P. J. Samson, 1986. Uncertainty in trajectory calculations due to low resolution meteorological data. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, **25**, 1816–1831.
- Kahl, J. D., J. M. Harris, G. A. Herbert und M. P. Olson, 1989. Intercomparison of three long-range trajectory models applied to Arctic haze. *Tellus*, **41B**, 524–536.
- Kanzawa, H., T. Sugita, H. Nakajima, G. E. Bodeker, H. Oelhaf, M. Stowasser, G. Wetzel, A. Engel, U. Schmidt, I. Levin, G. C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier, S. Aoki, T. Nakazawa, K. W. Jucks, D. G. Johnson, W. A. Traub, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, I. Murata, H. Fukunishi, M. von König, H. Bremer, H. Küllmann, J. H. Park, L. L. Pan, T. Yokota, M. Suzuki, M. Shiotani und Y. Sasano, 2003. Validation and data characteristics of nitrous oxide and methane profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with the Version 5.20 algorithm. *Journal of Geophysical Research*, **108**(D16), 8003. doi: 10.1029/2002JD002458.
- Keil, M., M. Heun, J. Austin, W. Lahoz, G. Lou und A. O’Neill, 2001. The use of long-duration balloon data to determine the accuracy of stratospheric analyses and forecasts. *Journal of Geophysical Research*, **106**(D10), 10,299–10,312.
- Kiehl, J. und S. Solomon, 1986. On the Radiative Balance of the Stratosphere. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **43**(14), 1525–1534.  
doi: 10.1175/1520-0469(1986)043<1525:OTRBOT>2.0.CO;2.
- Kirch, U., 1985. *Ein objektives, dreidimensionales Trajektorienmodell zur Untersuchung grossräumiger Strömungen*. Diplomarbeit, Fachbereich 24 der Freien Universität Berlin.
- Klein, V. und C. Werner, 1993. *Fernmessung von Luftverunreinigungen mit Lasern und anderen spektroskopischen Verfahren*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York.
- Knudsen, B., 1993. *An Isentropic Trajectory Model*. Scientific Report, 93-7. Danish Meteorological Institute, Copenhagen, Denmark.
- Knudsen, B. M. und G. D. Carver, 1994. Accuracy of the isentropic trajectories calculated for the EASOE campaign. *Geophysical Research Letters*, **21**(13), 1199–1202.
- Knudsen, B. M., J. M. Rosen, N. T. Kjöme und A. T. Whitten, 1996. Comparison of analyzed stratospheric temperatures and calculated trajectories with long-duration balloon data. *Journal of Geophysical Research*, **101**(D14), 19,137–19,145.

- Knudsen, B., J.-P. Pommereau, A. Garnier, M. Nunez-Pinharanda, L. Denis, G. Letrenne, M. Durand und J. Rosen, 2001. Comparison of stratospheric air parcel trajectories based on different meteorological analyses. *Journal of Geophysical Research*, **106**(D4), 3415–3424.
- Knudsen, B., J. Pommereau, A. Garnier, M. Nunes-Pinharanda, L. Denis, P. Newman, G. Letrenne und M. Durand, 2002. Accuracy of analyzed stratospheric temperatures in the winter Arctic vortex from infrared Montgolfier long-duration balloon flights 2. Results. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D20), 4316. doi: 10.1029/2001JD001329.
- Knudsen, B. M., T. Christensen, A. Hertzog, A. Deme, F. Vial und J.-P. Pommereau, 2006. Accuracy of analyzed temperatures, winds and trajectories in the Southern Hemisphere tropical and midlatitude stratosphere as compared to long-duration balloon flights. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 5391–5397. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-5391.
- Kolb, W. und E. Reimer, 1989. Determination of the origin or the trace of contaminated aerosols by 3-D-trajectory analysis. In: *The radioecology of natural and artificial radionuclides*, herausgegeben von W. Feldt, S. 97–101. Verlag TÜV Rheinland, Köln. Proceedings of the XVth Regional Congress of IRPA, Visby, Gotland, Sweden, 10-14 September 1989, ISBN 3-88585-668-9.
- Konopka, P., A. Engel, B. Funke, R. Müller, J.-U. Grooß, G. Günther, T. Wetter, G. Stiller, T. von Clarmann, N. Glatthor, H. Oelhaf, G. Wetzel, M. López-Puertas, M. Pirre, N. Huret und M. Riese, 2007. Ozone loss driven by nitrogen oxides and triggered by stratospheric warmings can outweigh the effect of halogens. *Journal of Geophysical Research*, **112**, D05105. doi: 10.1029/2006JD007064.
- Kouker, W., A. Beck, H. Fischer und K. Petzoldt, 1995. Downward transport in the upper stratosphere during the minor warming in February 1979. *Journal of Geophysical Research*, **100**(D6). doi: 10.1029/95JD00214.
- Kritten, L., A. Butz, M. Dorf, K. Grunow, H. Oelhaf, U. Reichl, B. Simmes, F. Weidner, G. Wetzel und K. Pfeilsticker, 2007. Time Resolved Profiling of Stratospheric Radical Species by Balloonborne Skylight Limb Observations. *Geophysical Research Abstracts*, **9**. EGU General Assembly, Vienna, Austria, 15-20 April 2007, SRef-ID: 1607-7962/gra/EGU2007-A-00853.
- Kuo, Y.-H., M. Skumanich, P. L. Haagenson und J. S. Chang, 1985. The accuracy of trajectory models as revealed by the observing system simulation experiments. *Monthly Weather Review*, **113**, 1852–1867.
- Labitzke, K., 1972. Temperature changes in the mesosphere and stratosphere connected with circulation changes in winter. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **29**(4), 756–766. doi: 10.1175/1520-0469(1972)029<0756:TCITMA>2.0.CO;2.
- Labitzke, K. und B. Naujokat, 2000. The lower arctic stratosphere in winter since 1952. *SPARC Newsletter*, **Nr. 15**, 11–14.  
[http://www.atmosp.physics.utoronto.ca/SPARC/News15/15\\_Labitzke.html](http://www.atmosp.physics.utoronto.ca/SPARC/News15/15_Labitzke.html).
- Labitzke, K. G., 1999. *Die Stratosphäre: Phänomene, Geschichte, Relevanz*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York.
- Lacis, A. A. und J. E. Hansen, 1974. A Parameterization for the Absorption of Solar Radiation in the Earth's Atmosphere. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **31**(1), 118–133.
- Lait, L. R., 1994. An Alternative Form for Potential Vorticity. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **51**(12), 1754–1759. doi: 10.1175/1520-0469(1994)051<1754:AAFFPV>2.0.CO;2.
- Langematz, U., K. Labitzke und E. Reimer, 1987. Synoptic analysis and trajectories during the MAP/GLOBUS campaign 1983. *Planetary and Space Science*, **35**(5), 525–538.

- doi: 10.1016/0032-0633(87)90120-6.
- Langford, A. O., R. Schofield, J. S. Daniel, R. W. Portmann, M. L. Melamed, H. L. Miller, E. G. Dutton und S. Solomon, 2007. On the variability of the Ring effect in the near ultraviolet: understanding the role of aerosols and multiple scattering. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7**(3), 575–586. SRef-ID: 1680-7324/acp/2007-7-575.
- Laube, J. C., A. Engel, H. Bönisch, T. Möbius, D. R. Worton, W. T. Sturges, K. Grunow und U. Schmidt, 2008. Contribution of short-lived organic substances to stratospheric chlorine and bromine in the tropics – a case study. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **8**, 8491–8515. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2008-8-8491.
- Le Texier, H., S. Solomon und R. Garcia, 1988. The role of molecular hydrogen and methane oxidation in the water vapour budget of the stratosphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **114**, Part B(480), 281–295. doi: 10.1002/qj.49711448002.
- Lilly, D. K., 1965. On the computational stability of numerical solutions of time-dependent non-linear geophysical fluid dynamics problems. *Monthly Weather Review*, **93**(1), 11–26.
- Liou, K. N., 2002. *An Introduction to Atmospheric Radiation*. International Geophysics Series, Vol. 84. Academic Press, Second edition, Amsterdam/ Boston/ London.
- Loewenstein, M., J. R. Podolske, K. R. Chan und S. E. Strahan, 1990. N<sub>2</sub>O as a dynamical tracer in the Arctic vortex. *Geophysical Research Letters*, **17**(4), 477–480.
- Lu, C.-H., G. K. Yue, G. L. Manney, H. Jäger und V. A. Mohnen, 2000. Lagrangian approach for Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) II intercomparisons. *Journal of Geophysical Research*, **105**(D4), 4563–4572. doi: 10.1029/1999JD901077.
- Lumpe, J. D., M. Fromm, K. Hoppel, R. M. Bevilacqua, C. E. Randall, E. V. Browell, W. B. Grant, T. McGee, J. Burris, L. Twigg, E. C. Richard, G. C. Toon, J. J. Margitan, B. Sen, K. Pfeilsticker, H. Boesch, R. Fitzenberger, F. Goutail und J.-P. Pommereau, 2002. Comparison of POAM III ozone measurements with correlative aircraft and balloon data during SOLVE. *Journal of Geophysical Research*, **107**, 8316, [printed 108(D5), 2003]. doi: 10.1029/2001JD000472.
- Lyjak, L. V. und V. A. Yudin, 2005. Diagnostics of the large-scale mixing properties from stratospheric analyses. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D17107. doi: 10.1029/2004JD005577.
- Malberg, H., 1997. *Meteorologie und Klimatologie*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York, 3. Auflage.
- Manney, G. L., R. W. Zurek, A. O’Neill und R. Swinbank, 1994. On the Motion of Air through the Stratospheric Polar Vortex. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **51**(20), 2973–2994. doi: 10.1175/1520-0469(1994)051<2973:OTMOAT>2.0.CO;2.
- Manney, G. L., H. A. Michelsen, M. L. Santee, M. R. Gunson, F. W. Irion, A. E. Roche und N. J. Livesey, 1999. Polar vortex dynamics during spring and fall diagnosed using trace gas observations from the Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy instrument. *Journal of Geophysical Research*, **104**(15), 18841–18866. doi: 10.1029/1999JD900317.
- Manney, G. L., H. A. Michelsen, R. M. Bevilacqua, M. R. Gunson, F. W. Irion, N. J. Livesey, J. Oberheide, M. Riese, J. M. Russell III, G. C. Toon und J. M. Zawodny, 2001. Comparison of satellite ozone observations in coincident air masses in early November 1994. *Journal of Geophysical Research*, **106**(D9), 9923–9944.
- Manney, G. L., J. L. Sabutis, S. Pawson, M. L. Santee, B. Naujokat, R. Swinbank, M. E. Gelman und W. Ebisuzaki, 2003. Lower stratospheric temperature differences between meteorological analyses in two cold Arctic winters and their impact on polar processing studies. *Journal of*

- Geophysical Research*, **108**(D5), 8328. doi: 10.1029/2001JD001149.
- Manney, G. L., D. R. Allen, K. Krüger, B. Naujokat, M. L. Santee, J. L. Sabutis, S. Pawson, R. Swinbank, C. E. Randall, A. J. Simmons und C. Long, 2005a. Diagnostic Comparison of Meteorological Analyses during the 2002 Antarctic Winter. *Monthly Weather Review*, **133**(5), 1261–1278.
- Manney, G. L., J. L. Sabutis, D. R. Allen, W. A. Lahoz, A. A. Scaife, C. E. Randall, S. Pawson, B. Naujokat und R. Swinbank, 2005b. Simulations of Dynamics and Transport during the September 2002 Antarctic Major Warming. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **62**(3), 690–707. doi: 10.1175/JAS-3313.1.
- Manney, G. L., W. H. Daffer, J. M. Zawodny, P. F. Bernath, K. W. Hoppel, K. A. Walker, B. W. Knosp, C. Boone, E. E. Remsberg, M. L. Santee, V. L. Harvey, S. Pawson, D. R. Jackson, L. Deaver, C. T. McElroy, C. A. McLinden, J. R. Drummond, H. C. Pumphrey, A. Lambert, M. J. Schwartz, L. Froidevaux, S. McLeod, L. L. Takacs, M. J. Suarez, C. R. Trepte, D. C. Cuddy, N. J. Livesey, R. S. Harwood und J. W. Waters, 2007. Solar occultation satellite data and derived meteorological products: Sampling issues and comparisons with Aura Microwave Limb Sounder. *Journal of Geophysical Research*, **112**, D24S50. doi: 10.1029/2007JD008709.
- Manney, G. L., W. H. Daffer, K. B. Strawbridge, K. A. Walker, C. D. Boone, P. F. Bernath, T. Kerzenmacher, M. J. Schwartz, K. Strong, R. J. Sica, K. Krüger, H. C. Pumphrey, A. Lambert, M. L. Santee, N. J. Livesey, E. E. Remsberg, M. G. Mlynczak und J. R. Russell III, 2008a. The high Arctic in extreme winters: vortex, temperature, and MLS and ACE-FTS trace gas evolution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 505–522. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-505.
- Manney, G. L., K. Krüger, S. Pawson, K. Minschwaner, M. J. Schwartz, W. H. Daffer, N. J. Livesey, M. G. Mlynczak, E. E. Remsberg, J. M. Russell und J. W. Waters, 2008b. The evolution of the stratopause during the 2006 major warming: Satellite data and assimilated meteorological analyses. *Journal of Geophysical Research*, **113**, D11115. doi: 10.1029/2007JD009097.
- Marchand, M., S. Bekki, A. Hauchecorne und J.-L. Bertaux, 2004. Validation of the self-consistency of GOMOS NO[3], NO[2] and O[3] data using chemical data assimilation. *Geophysical Research Letters*, **31**, L10107. doi: 10.1029/2004GL019631.
- Marquardt, C., 1998. *Die tropische QBO und dynamische Prozesse in der Stratosphäre*. Meteorologische Abhandlungen, Serie A, Band 9, Heft 4. Verlag Dietrich Reimer, Berlin. Dissertation am Fachbereich Geowissenschaften der Freien Universität Berlin.
- Matsuno, T., 1966. Numerical Integrations of the Primitive Equations by a Simulated Backward Difference Method. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, **44**(1), 76–84.
- McElroy, M. B., R. J. Salawitch, S. C. Wofsy und J. A. Logan, 1986. Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine. *Nature*, **321**, 759–762. doi: 10.1038/321759a0.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, 1984. The 'surf zone' in the stratosphere. *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, **46**(9), 825–849.
- McKenna, D. S., P. Konopka, J.-U. Groöf, G. Günther, R. Müller, R. Spang, D. Offermann und Y. Orsolini, 2002. A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 1. Formulation of advection and mixing. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D16). doi: 10.1029/2000JD000114.
- Meijer, E. W., B. Bregman, A. Segers und P. F. J. van Velthoven, 2004. The influence of data assimilation on the age of air calculated with a global chemistry-transport model using ECMWF wind fields. *Geophysical Research Letters*, **31**, L23114. doi: 10.1029/2004GL021158.

- Merrill, J. T., R. Bleck und L. Avila, 1985. Modeling Atmospheric Transport to the Marshall Islands. *Journal of Geophysical Research*, **90**(D7), 12,927–12,936.
- Merrill, J. T., R. Bleck und D. Boudra, 1986. Techniques of Lagrangian trajectory analysis in isentropic coordinates. *Monthly Weather Review*, **114**, 571–581.
- Michelsen, H. A., G. L. Manney, M. R. Gunson, C. P. Rinsland und R. Zander, 1998a. Correlations of stratospheric abundances of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O derived from ATMOS measurements. *Geophysical Research Letters*, **25**(15), 2777–2780. doi: 10.1029/98GL01977.
- Michelsen, H. A., G. L. Manney, M. R. Gunson und R. Zander, 1998b. Correlations of stratospheric abundances of NO<sub>y</sub>, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, and CH<sub>4</sub> derived from ATMOS measurements. *Journal of Geophysical Research*, **103**(D21), 28,347–28,359. doi: 10.1029/98JD02850.
- Müller, R., S. Tilmes, J.-U. Grooß, A. Engel, H. Oelhaf, G. Wetzela, N. Huret, M. Pirre, V. Catoire, G. Toon und H. Nakajima, 2007. Impact of mesospheric intrusions on ozone-tracer relations in the stratospheric polar vortex. *Journal of Geophysical Research*, **112**, D23307. doi: 10.1029/2006JD008315.
- Molina, L. T. und M. J. Molina, 1987. Production of Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> from the self-reaction of the ClO radical. *Journal of Physical Chemistry*, **91**(2), 433–436.
- Monge-Sanz, B. M., M. P. Chipperfield, A. J. Simmons und S. M. Uppala, 2007. Mean age of air and transport in a CTM: Comparison of different ECMWF analyses. *Geophysical Research Letters*, **34**, L04801. doi: 10.1029/2006GL028515.
- Montgomery, R. B., 1937. A Suggested Method for Representing Gradient Flow in Isentropic Surfaces. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **18**(6-7), 210–212.
- Morcrette, J.-J., 1991. Radiation and cloud radiative properties in the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts forecasting system. *Journal of Geophysical Research*, **96**(D5), 9121–9132.
- Morcrette, J.-J., S. Clough, E. Mlawer und M. Iacono, 1998. *Impact of a validated radiative transfer scheme, RRTM, on the ECMWF model climate and 10-day forecasts*. ECMWF Technical Memorandum, Nr. 252.  
<http://www.ecmwf.int/publications/library/do/references/list/14#1998> (17.11.2006).
- Moreau, G., C. Robert, V. Catoire, M. Chartier, C. Camy-Peyret, N. Huret, M. Pirre, L. Pommathiod und G. Chalumeau, 2005. SPIRALE: a multispecies in situ balloonborne instrument with six tunable diode laser spectrometers. *Applied Optics*, **44**(28), 5972–5989.
- Morris, G. A., M. R. Schoeberl, L. C. Sparling, P. A. Newman, L. R. Lait, L. Elson, J. Waters, R. A. Suttie, A. Roche, J. Kumer und J. M. Russell III, 1995. Trajectory mapping and applications to data from the Upper Atmosphere Research Satellite. *Journal of Geophysical Research*, **100**(D8), 16,491–16,506.
- Morris, G. A., J. F. Gleason, J. Ziemke und M. R. Schoeberl, 2000. Trajectory mapping: A tool for validation of trace gas observations. *Journal of Geophysical Research*, **105**(D14), 17,875–17,894.
- Morris, G. A., B. R. Bojkov, L. R. Lait und M. R. Schoeberl, 2005. A review of the Match technique as applied to AASE-2/EASOE and SOLVE/THESEO 2000. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 2571–2592. SRef-ID: 1680-7324/acp/2005-5-2571.
- Müller, M., 2001. *Polare Stratosphärenwolken und mesoskalige Dynamik am Polarwirbelrand*. Dissertation, Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin.
- Müller, R. und G. Günther, 2003. A Generalized Form of Lait’s Modified Potential Vorticity. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **60**(17), 2229–2237.

- doi: 10.1175/1520-0469(2003)060<2229:AGFOLM>2.0.CO;2.
- Naujokat, B., 1986. An Update of the Observed Quasi-Biennial Oscillation of the Stratospheric Winds over the Tropics. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **43**(17), 1873–1877.
- Naujokat, B., 1992. Stratosphärenenerwärmungen: Synoptik. *promet*, **22**(2-4), 81–89.
- Naujokat, B., 2005. Variabilität in der Stratosphäre: Die QBO. *promet*, **31**(1), 30–32.
- Naujokat, B. und K. Grunow, 2003. The stratospheric arctic winter 2002/03: Balloon flight planning by trajectory calculations. In: *Proceedings of the 16th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research, St.Gallen 2003, European Space Agency*, ESA SP-530, S. 421–425.
- Naujokat, B. und H. Roscoe, 2005. Evidence against an Antarctic Stratospheric Vortex Split during the Periods of Pre-IGY Temperature Measurements. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **62**(3), 885–889. doi: 10.1175/JAS-3317.1.
- Naujokat, B., K. Krüger, K. Matthes, J. Hoffmann, M. Kunze und K. Labitzke, 2002. The early major warming in December 2001 - exceptional? *Geophysical Research Letters*, **29**(21), 2023. doi: 10.1029/2002GL015316.
- Newman, P. A. und J. E. Rosenfield, 1997. Stratospheric thermal damping times. *Geophysical Research Letters*, **24**(4), 433–436. doi: 10.1029/96GL03720.
- Newman, P. A., N. R. P. Harris, A. Adriani, G. T. Amanatidis, J. G. Anderson, G. O. Braathen, W. H. Brune, K. S. Carslaw, M. S. Craig, P. L. DeCola, M. Guirlet, R. S. Hipskind, M. J. Kurylo, H. Küllmann, N. Larsen, G. J. Mégie, J.-P. Pommereau, L. R. Poole, M. R. Schoeberl, F. Stroh, O. B. Toon, C. R. Trepte und M. Van Roozendaal, 2002. An overview of the SOLVE/THESEO 2000 campaign. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D20), 8259. doi: 10.1029/2001JD001303.
- Noda, A., M. Yoshizaki, S. Kusunoki und Kyousei-Modeling Group, 2005. A time-slice global warming experiment with super high resolution global and regional climate models on the earth Simulator. *Geophysical Research Abstracts*, **7**. SRef-ID: 1607-7962/gra/EGU05-A-09483.
- Noël, S., H. Bovensmann, M. W. Wuttke, J. P. Burrows, M. Gottwald, E. Krieg, A. P. H. Goede und R. Mager, 2000. SCIAMACHY nominal operations and special features. In: *Proceedings of the ERS-ENVISAT Symposium, Gothenburg, 16 – 20 October 2000*.
- Noël, S., H. Bovensmann, M. W. Wuttke, J. P. Burrows, M. Gottwald, E. Krieg, A. P. H. Goede und C. Müller, 2002. Nadir, limb, and occultation measurements with SCIAMACHY. *Advances in Space Research*, **29**(11), 1819–1824.
- Nüntel, R., 2001. *Trajektorien in Theorie und Praxis*. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie, Freie Universität Berlin.
- Offermann, D., 1987. The MAP/GLOBUS Campaign 1983: introduction. *Planetary and Space Science*, **35**(5), 515–524.
- Olinger, A., 2005. *Validierung von SCIAMACHY Messungen mit MIPAS-B Daten mit Hilfe von Trajektorienberechnungen*. Diplomarbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe (TH)/ Forschungszentrum Karlsruhe.
- Öllers, M. C., P. F. J. van Velthoven, H. M. Kelder und L. P. J. Kamp, 2002. A study of the leakage of the Antarctic polar vortex in late austral winter and spring using isentropic and 3-D trajectories. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D17), 4328. doi: 10.1029/2001JD001363.
- Osterkamp, H., 1997. *Messung von atmosphärischen O<sub>4</sub>-Profilen*. Diplomarbeit, Fakultät für Physik und Astronomie, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Paldor, N., Y. Dvorkin und C. Basdevant, 2002. Improving the calculation of particle trajectories

- in the extra-tropical troposphere using standard NCEP fields. *Atmospheric Environment*, **36**(3), 483–490.
- Parrondo, M. C., M. Yela, M. Gil, P. von der Gathen und H. Ochoa, 2007. Mid-winter lower stratosphere temperatures in the Antarctic vortex: comparison between observations and ECMWF and NCEP operational models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7**, 435–441. SRef-ID: 1680-7324/acp/2007-7-435.
- Pawson, S., 1993. The role of radiation in the stratosphere and its representation in models. In: *The role of the stratosphere in global change, NATO ASI Series, Subseries I "Global Environmental Change"*, herausgegeben von M.-L. Chanin, Band 8, S. 215–226. Springer-Verlag.
- Pawson, S. und B. Naujokat, 1999. The cold winters of the middle 1990s in the northern lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research*, **104**(D12), 14209–14222. doi: 10.1029/1999JD900211.
- Pawson, S., I. Stajner, S. R. Kawa, H. Hayashi, W. Tan, J. E. Nielsen, Z. Zhu, L. Chang und N. J. Livesey, 2007. Stratospheric transport using 6-h-averaged winds from a data assimilation system. *Journal of Geophysical Research*, **112**, D23103. doi: 10.1029/2006JD007673.
- Payan, S., C. Camy-Peyret, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Maucher, C. Keim, M. Pirre, N. Huret, A. Engel, M. C. Volk, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, U. Cortesi, G. Bianchini, F. Mençaraglia, P. Raspollini, G. Redaelli, C. Vigouroux, M. De Mazière, S. Mikuteit, T. Blumenstock, V. Velasco, J. Notholt, M. Mahieu, P. Duchatelet, D. Smale, S. Wood, N. Jones, C. Piccolo, V. Payne, A. Bracher, N. Glatthor, G. Stiller, K. Grunow, P. Jeseck, Y. Te, K. Pfeilsticker, und A. Butz, 2007. Validation and data characteristics of methane and nitrous oxide profiles observed by MIPAS and processed with Version 4.61 algorithm. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **7**, 18043–18111. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2007-7-18043.
- Petersen, R. A. und L. W. Uccellini, 1979. The computation of isentropic atmospheric trajectories using a "Discrete Model" formulation. *Monthly Weather Review*, **107**, 566–574. doi: 10.1175/1520-0493(1979)107<0566:TCOIAT>2.0.CO;2.
- Petzold, K. und U. Schmidt, 1993. Trajectories of trace constituents in a strong flow around the polar vortex during the development of a midwinter warming. *Advances in Space Research*, **13**(1), 343–350.
- Pfeilsticker, K. und U. Platt, 1994. Airborne measurements during the Arctic stratospheric experiment: Observation of O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub>. *Geophysical Research Letters*, **21**(13), 1375–1378. doi: 10.1029/93GL01870.
- Pichler, H., 1997. *Dynamik der Atmosphäre*. Spektrum-Hochschultaschenbuch. Spektrum Akademischer Verlag GmbH, Heidelberg/ Berlin/ Oxford, 3. Auflage.
- Pierce, R. B., J.-U. Grooss, W. L. Grose, J. M. Russell III, P. J. Crutzen, T. D. Fairlie und G. Lingenfelter, 1997. Photochemical Calculations Along Air Mass Trajectories During ASHOE/MAESA. *Journal of Geophysical Research*, **102**(D11), 13153–13167. doi: 10.1029/96JD03506.
- Piters, A. J. M., K. Bramstedt, J.-C. Lambert und B. Kirchhoff, 2006. Overview of SCIAMACHY validation: 2002–2004. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 127–148. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-127.
- Platt, U., 1994. Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS). In: *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*, herausgegeben von M. W. Sigrist, Chemical analysis, Vol. 127. John Wiley & Sons, Inc., New York/ Chichester/ Brisbane.
- Platt, U., K. Pfeilsticker und M. Vollmer, 2007. Radiation and Optics in the Atmosphere (Part

- D, Chapter 19). In: *Springer Handbook of Lasers and Optics*, herausgegeben von F. Träger, S. 1165–1203. Springer-Verlag, Heidelberg/ New York. doi: 10.1007/978-0-387-30420-5\_19.
- Plumb, R. A., 1996. A “tropical pipe“ model of stratospheric transport. *Journal of Geophysical Research*, **101**(D2), 3957–3972.
- Plumb, R. A., 2007. Tracer interrelationships in the stratosphere. *Reviews of Geophysics*, **45**, RG4005. doi: 10.1029/2005RG000179.
- Plumb, R. A. und M. K. W. Ko, 1992. Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents. *Journal of Geophysical Research*, **97**(D9), 10,145–10,156.
- Plumb, R. A., W. Heres, J. L. Neu, N. M. Mahowald, J. del Corral, G. C. Toon, E. Ray, F. Moore und A. E. Andrews, 2002. Global tracer modeling during SOLVE: High-latitude descent and mixing. *Journal of Geophysical Research*, **107**, 8309. doi: 10.1029/2001JD001023 [printed 108(D5), 2003].
- Pommereau, J.-P. und J. Piquard, 1994. Ozone and nitrogen dioxide vertical distributions by UV-visible solar occultation from balloons. *Geophysical Research Letters*, **21**(13), 1227–1230.
- Pope, F. D., J. C. Hansen, K. D. Bayes, R. R. Friedl und S. P. Sander, 2007. Ultraviolet Absorption Spectrum of Chlorine Peroxide, ClOOC. *The Journal of Physical Chemistry A*, **111**(20), 4322–4332. doi: 10.1021/jp067660w.
- Pukite, J., S. Kühl, T. Deutschmann, U. Platt und T. Wagner, 2008. Accounting for the effect of horizontal gradients in limb measurements of scattered sunlight. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 3045–3060. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-3045.
- Pundt, I., J.-P. Pommereau, M. P. Chipperfield, M. Van Roozendaal und F. Goutail, 2002. Climatology of the stratospheric BrO vertical distribution by balloon-borne UV-visible spectrometry. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D24), 4806. doi: 10.1029/2002JD002230.
- Randel, W., P. Udelhofen, E. Fleming, M. Geller, M. Gelman, K. Hamilton, D. Karoly, D. Ortland, S. Pawson, R. Swinbank, F. Wu, M. Baldwin, M.-L. Chanin, P. Keckhut, K. Labitzke, E. Remsberg, A. Simmons und D. Wu, 2004. The SPARC Intercomparison of Middle-Atmosphere Climatologies. *Journal of Climate*, **17**(5), 986–1003.
- Ray, E. A., M. J. Alexander und J. R. Holton, 1998. An analysis of the structure and forcing of the equatorial semiannual oscillation in zonal wind. *Journal of Geophysical Research*, **103**(D2), 1759–1774.
- Ray, E. A., F. L. Moore, J. W. Elkins, D. F. Hurst, P. A. Romashkin, G. S. Dutton und D. W. Fahey, 2002. Descent and mixing in the 1999–2000 northern polar vortex inferred from in situ tracer measurements. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D20), 8285. doi: 10.1029/2001JD000961.
- Reddmann, T., R. Ruhnke und W. Kouker, 2001. Three-dimensional model simulations of SF6 with mesospheric chemistry. *Journal of Geophysical Research*, **106**(D13), 14,525–14,537.
- Reid, S., M. Rex, P. von der Gathen, I. Floisand, F. Stordal, G. Carver, A. Beck, E. Reimer, R. Kruger, Carstensen, L. De Haan, G. Braathen, V. Dorokhov, H. Fast, E. Kyro, M. Gil, Z. Litynska, M. Molyneux, G. Murphy, F. O’, Connor, F. Ravegnani, C. Varotsos, J. Wenger und C. Zerefos, 1998. A study of ozone laminae using diabatic trajectories, contour advection and photochemical trajectory model simulations. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **30**(1), 187–207.
- Reimer, E., 1977. *Untersuchung zur Vorhersage charakteristischer synoptischer Strukturen mit Hilfe eines numerischen Modells der feuchten Atmosphäre*. Dissertation, Fachbereich Geowissenschaften der Freien Universität Berlin. Meteorologische Abhandlung, FU Berlin.

- Reimer, E., 1980. A Test of Objective Meteorological Analysis with Optimum Utilization of the Radiosonde Network in Central Europe. *Contributions to Atmospheric Physics*, **53**(3), 311–335.
- Reimer, E. und H. Kaupp, 1997. – INTERREG II Research Project OMKAS – Source Identification of Odour Compounds Using Trajectories. In: *ECO-INFORMA'97, October 6–9, 1997, Information and Communication in Environmental and Health Issues*, herausgegeben von K. Alef, J. Brandt und H. Fiedler, Band 12, S. 572–577. Eco-Infoma Press, Bayreuth.
- Rex, M., 1997. *Der Ozonabbau in der arktischen Stratosphäre: Ergebnisse einer neuen Meßstrategie (Match)*. Dissertation, Fachbereich Geowissenschaften der Freien Universität Berlin.
- Rex, M., N. R. P. Harris, P. von der Gathen, R. Lehmann, G. O. Braathen, E. Reimer, A. Beck, M. P. Chipperfield, R. Alfier, M. Allaart, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, Z. Litynska, I. S. Mikkelsen, M. G. Molyneux, H. Nakane, J. Notholt, M. Rummukainen, P. Viatte und J. Wenger, 1997. Prolonged stratospheric ozone loss in the 1995/96 Arctic winter. *Nature*, **389**, 835–838.
- Rex, M., P. von der Gathen, N. R. P. Harris, D. Lucic, B. M. Knudsen, G. O. Braathen, S. J. Reid, H. De Backer, H. Claude, R. Fabian, H. Fast, M. Gil, E. Kyrö, I. S. Mikkelsen, M. Rummukainen, H. G. Smit, J. Stähelin, C. Varotsos und I. Zaitcev, 1998. In situ measurements of stratospheric ozone depletion rates in the Arctic winter 1991/1992: A Lagrangian approach. *Journal of Geophysical Research*, **103**(D5). doi: 10.1029/97JD03127.
- Rex, M., P. von der Gathen, G. Braathen, N. Harris, E. Reimer, A. Beck, R. Alfier, R. Krügercarstensen, M. Chipperfield, H. De Backer, D. Balis, F. O'Connor, H. Dier, V. Dorokhov, H. Fast, A. Gamma, M. Gil, E. Kyrö, Z. Litynska, I. Mikkelsen, M. Molyneux, G. Murphy, S. Reid, M. Rummukainen und C. Zerefos, 1999. Chemical Ozone Loss in the Arctic Winter 1994/95 as Determined by the Match Technique. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **32**(1), 35–59. doi: 10.1023/A:1006093826861.
- Ridolfi, M. und L. Sgheri, 2008. A self-adapting and altitude-dependent regularization method for atmospheric profile retrievals. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **8**, 18007–18037. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2008-8-18007.
- Rizi, V., G. Redaelli, G. Visconti, F. Masci, C. Wedekind, B. Stein, F. Immler, B. Mielke, P. Rairoux, L. Wosté, M. del Guasta, M. Morandi, F. Castagnoli, S. Balestri, L. Stefanutti, R. Matthey, V. Mitev, M. Dourard, J. Wolf, E. Kyrö, M. Rummukainen und R. Kivi, 1999. Trajectory Studies of Polar Stratospheric Cloud Lidar Observations at Sodankylä (Finland) during SESAME: Comparison with Box Model Results of Particle Evolution. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **32**, 165–181.
- Rodgers, C. D., 2000. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*. Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics, Vol. 2. World Scientific Publishing, Singapore/ New Jersey/ London.
- Rolph, G. D. und R. R. Draxler, 1990. Sensitivity of threedimensional trajectories to the spatial and temporal densities of the wind field. *Journal of Applied Meteorology*, **29**, 1043–1054.
- Roscoe, H. K. und J. A. Pyle, 1987. Measurements of solar occultation: the error in a naive retrieval if the constituent's concentration changes. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **5**(3), 323–341. doi: 10.1007/BF00114110.
- Roscoe, H., J. Shanklin und S. Colwell, 2005. Has the Antarctic Vortex Split before 2002? *Journal of the Atmospheric Sciences*, **62**(3), 581–588. doi: 10.1175/JAS-3331.1.
- Rosenfield, J. E. und M. R. Schoeberl, 2001. On the origin of polar vortex air. *Journal of Geophysical Research*, **106**(D24), 33,485–33,497.

- Rosenfield, J. E., P. A. Newman und M. R. Schoeberl, 1994. Computations of diabatic descent in the stratospheric polar vortex. *Journal of Geophysical Research*, **99**(D8), 16,677–16,690.
- Rummukainen, M., B. Knudsen und P. von der Gathen, 1994. Dynamical diagnostics of the edges of the polar vortices. *Annales Geophysicae*, **12**(10/11), 1114–1118.
- Sachs, L., 1999. *Angewandte Statistik: Anwendung statistischer Methoden*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York, 9. Auflage.
- Salby, M. L., 1996. *Fundamentals of Atmospheric Physics*. International Geophysics Series, Vol. 61. Academic Press, San Diego/ New York/ Boston.
- Salby, M. L. und P. F. Callaghan, 2006. Residual mean transport in the stratosphere: Contributions from wave driving and seasonal transience. *Journal of Geophysical Research*, **111**, D22304. doi: 10.1029/2005JD006767.
- Satoh, M., T. Matsuno, H. Tomita, H. Miura, T. Nasuno und S. Iga, 2008. Nonhydrostatic icosahedral atmospheric model (NICAM) for global cloud resolving simulations. *Journal of Computational Physics*, **227**(7), 3486–3514. doi: 10.1016/j.jcp.2007.02.006.
- Scheele, M. P., P. C. Siegmund und P. F. J. Velthoven, 1996. Sensitivity of trajectories to data resolution and its dependence on the starting point: in or outside a tropopause fold. *Meteorological Applications*, **3**, 267–273.
- Scheele, M. P., P. C. Siegmund und P. F. J. van Velthoven, 2005. Stratospheric age of air computed with trajectories based on various 3D-Var and 4D-Var data sets. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 1–7. SRef-ID: 1680-7324/acp/2005-5-1.
- Schmidt, U., G. Kulesa, A. Khedim, D. Knapska und J. Rudolph, 1983. Sampling of long lived trace gases in the middle and upper stratosphere. In: *Proceedings of the Sixth ESA Symposium on European rocket and balloon programmes*, ESA SP-183, S. 141–145.
- Schmidt, U., G. Kulesa, E. Klein, E.-P. Röth, P. Fabian und R. Borchers, 1987. Intercomparison of balloon-borne cryogenic whole air samplers during the MAP/GLOBUS 1983 campaign. *Planetary and Space Science*, **35**(5), 647–656.
- Schmidt, U., A. Engel und M. Volk, 2002. Ist der globale Ozonabbau gestoppt? Spurengasmessungen in der Stratosphäre geben Aufschluss. In: *Geowissenschaften in Frankfurt*, herausgegeben von A. Junge, S. 1–13. E. Schweizerbart'sche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart.
- Schoeberl, M. R. und L. C. Sparling, 1995. Trajectory modelling. In: *Diagnostic Tools in Atmospheric Physics. Proceedings of the International School of Physics "Enrico Fermi", Course CXXIV, 22 June-2 July 1993*, herausgegeben von G. Fiocco und G. Visconti, S. 289–305. IOS Press, Amsterdam/ Oxford/ Tokyo/ Washington DC.
- Schoeberl, M. R., A. R. Douglass, Z. Zhu und S. Pawson, 2003. A comparison of the lower stratospheric age spectra derived from a general circulation model and two data assimilation systems. *Journal of Geophysical Research*, **108**(D3). doi: 10.1029/2002JD002652.
- Schofield, R., K. Frieler, I. Wohltmann, M. Rex, M. von Hobe, F. Stroh, G. Koch, T. Peter, T. Canty, R. Salawitch und C. M. Volk, 2008. Polar stratospheric chlorine kinetics from a self-match flight during SOLVE-II/EUPLEX. *Geophysical Research Letters*, **35**, L01807. doi: 10.1029/2007GL031740.
- Seppälä, A., P. T. Verronen, M. A. Clilverd, C. E. Randall, J. Tamminen, V. Sofieva, L. Backman und E. Kyrölä, 2007. Arctic and Antarctic polar winter NO<sub>x</sub> and energetic particle precipitation in 2002-2006. *Geophysical Research Letters*, **34**, L12810. doi: 10.1029/2007GL029733.
- Shine, K. P., 1987. The middle atmosphere in the absence of dynamical heat fluxes. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **113**(476), 603–633. doi: 10.1002/qj.49711347610.

- Sigrist, M. W. (Herausgeber), 1994. *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*. Chemical analysis, Vol. 127. John Wiley & Sons, Inc., New York/ Chichester/ Brisbane.
- Simmons, A. J. und L. Bengtsson, 1984. Atmospheric general circulation models: their design and use for climate studies. In: *The global climate*, herausgegeben von J. T. Houghton, S. 37–62. Cambridge University Press, Cambridge/ London/ New York.
- Simmons, A. J., M. Hortal, G. Kelly, A. McNally, A. Untch und S. Uppala, 2005. ECMWF analyses and forecasts of stratospheric winter polar vortex break-up: September 2002 in the Southern Hemisphere and related events. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **62**(3), 668–689.
- Solomon, S., R. R. Garcia und M. E. McIntyre, 1987. Current Understanding of Mesospheric Transport Processes [and Discussion]. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Series A*, **323**(1575), 655–666. doi: 10.1098/rsta.1987.0112.
- SOST, 2006. *SCIAMACHY Operations Support*. WWW-Seite des SCIAMACHY Operational Support Teams (09.03.2006), <http://atmos.caf.dlr.de/projects/scops/> → Geolocation → Nadir/Limb bzw. [ftp://atmos.caf.dlr.de/pub/scia/scops/swath\\_geoloc\\_ascii/](ftp://atmos.caf.dlr.de/pub/scia/scops/swath_geoloc_ascii/).
- Stiller, G. P., T. von Clarmann, M. Höpfner, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, A. Kleinert, A. Linden, M. Milz, T. Reddman, T. Steck, H. Fischer, B. Funke, M. López-Puertas und A. Engel, 2008. Global distribution of mean age of stratospheric air from MIPAS SF<sub>6</sub> measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 677–695. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-677.
- Stohl, A., 1998. Computation, Accuracy and Applications of Trajectories - A Review and Bibliography. *Atmospheric Environment*, **32**(6), 947–966.
- Stohl, A. und P. Seibert, 1998. Accuracy of trajectories as determined from the conservation of meteorological tracers. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **124**, Part A(549), 1465–1484. doi: 10.1002/qj.49712454907.
- Stohl, A., G. Wotawa, P. Seibert und H. Kromp-Kolb, 1995. Interpolation errors in wind fields as a function of spatial and temporal resolution and their impact on different types of kinematic trajectories. *Journal of Applied Meteorology*, **34**, 2149–2165.
- Stohl, A., L. Haimberger, M. P. Scheele und H. Wernli, 2001. An intercomparison of results from three trajectory models. *Meteorological Applications*, **8**, 127–135.
- Stohl, A., O. R. Cooper und P. James, 2004. A Cautionary Note on the Use of Meteorological Analysis Fields for Quantifying Atmospheric Mixing. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **61**(12), 1446–1453.
- Streibel, M., 2005. *Bestimmung von Ozonabbauraten über der Arktis und Antarktis mittels Ozonsonden- und Satellitendaten*. Dissertation, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät der Universität Potsdam. Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung, Sektion Atmosphärische Zirkulation.
- Streibel, M., M. Rex, P. von der Gathen, R. Lehmann, N. R. P. Harris, G. O. Braathen, E. Reimer, H. Deckelmann, M. Chipperfield, G. Millard, M. Allaart, S. B. Andersen, H. Claude, J. Davies, H. De Backer, H. Dier, V. Dorokov, H. Fast, M. Gerding, E. Kyrö, Z. Litynska, D. Moore, E. Moran, T. Nagai, H. Nakane, C. Parrondo, P. Skrivankova, R. Stübi, G. Vaughan, P. Viatte und V. Yushkov, 2006. Chemical ozone loss in the Arctic winter 2002/2003 determined with Match. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 2783–2792. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-2783.
- Strobel, D. F., 1978. Parameterization of the Atmospheric Heating Rate From 15 to 120 km Due to O<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> Absorption of Solar Radiation. *Journal of Geophysical Research*, **83**(C12), 6225–6230.

- Strong, K., M. A. Wolff, T. E. Kerzenmacher, K. A. Walker, P. F. Bernath, T. Blumenstock, C. Boone, V. Catoire, M. Coffey, M. De Mazière, P. Demoulin, P. Duchatelet, E. Dupuy, J. Hannigan, M. Höpfner, N. Glatthor, D. W. T. Griffith, J. J. Jin, N. Jones, K. Jucks, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, A. Lambert, E. Mahieu, J. C. McConnell, J. Mellqvist, S. Mikuteit, D. P. Murtagh, J. Notholt, C. Piccolo, P. Raspollini, M. Ridolfi, C. Robert, M. Schneider, O. Schrems, K. Semeniuk, C. Senten, G. P. Stiller, A. Strandberg, J. Taylor, C. Tétard, M. Toohey, J. Urban, T. Warneke und S. Wood, 2008. Validation of ACE-FTS N<sub>2</sub>O measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 4759–4786. SRef-ID: 1680-7324/acp/2008-8-4759.
- Strunk, M., A. Engel, U. Schmidt, C. M. Volk, T. Wetter, I. Levin und H. Glatzel-Mattheier, 2000. CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub> as stratospheric age tracers: consistency and the effect of mesospheric SF<sub>6</sub>-loss. *Geophysical Research Letters*, **27**(3), 341–344.
- Stunder, B. J. B., 1996. An assessment of the quality of forecast trajectories. *Journal of Applied Meteorology*, **35**, 1319–1331.
- Stutz, J., 1996. *Messung der Konzentration troposphärischer Spurenstoffe mittels Differentieller-Optischer-Absorptionsspektroskopie: Eine neue Generation von Geräten und Algorithmen*. Dissertation, Institut für Umweltphysik, Universität Heidelberg.
- Sutton, R., 1994. Lagrangian flow in the middle atmosphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **120**, Part B(519), 1299–1321. doi: 10.1002/qj.49712051909.
- Sutton, R., H. Maclean, R. Swinbank, A. O'Neill und F. Taylor, 1994. High-Resolution Stratospheric Tracer Fields Estimated from Satellite Observations Using Lagrangian Trajectory Calculations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **51**(20), 2995–3005.
- Swartz, W. H., J.-H. Yee, C. E. Randall, R. E. Shetter, E. V. Browell, J. F. Burris, T. J. McGee und M. A. Avery, 2006. Comparison of high-latitude line-of-sight ozone column density with derived ozone fields and the effects of horizontal inhomogeneity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6**, 1843–1852. SRef-ID: 1680-7324/acp/2006-6-1843.
- Té, Y., P. Jeseck, C. Camy-Peyret, S. Payan, G. Perron und G. Aubertin, 2002. Balloonborne Calibrated Spectroradiometer for Atmospheric Nadir Sounding. *Applied Optics*, **41**, 6431–6441.
- Tegtmeier, S., 2006. *Variationen der stratosphärischen Residualzirkulation und ihr Einfluss auf die Ozonverteilung*. Dissertation, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät der Universität Potsdam. Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung, Forschungsstelle Potsdam.
- Tegtmeier, S., K. Krüger, I. Wohltmann, K. Schoellhammer und M. Rex, 2008. Variations of the residual circulation in the Northern Hemispheric winter. *Journal of Geophysical Research*, **113**, D16109. doi: 10.1029/2007JD009518.
- Terao, Y., Y. Sasano, H. Nakajima, H. L. Tanaka und T. Yasunari, 2002. Stratospheric ozone loss in the 1996/1997 Arctic winter: Evaluation based on multiple trajectory analysis for double-sounded air parcels by ILAS. *Journal of Geophysical Research*, **107**(D24), 8210. doi: 10.1029/2001JD000615.
- Thépaut, J.-N. und E. Andersson, 2003. Assimilation of high-resolution satellite data. *ECMWF Newsletter No. 97*, S. 6–12. Spring 2003, <http://www.ecmwf.int/publications>.
- Thomas, G. E., 1987. Trace Constituents in the Mesosphere. *Physica Scripta*, **T18**, 281–288. doi: 10.1088/0031-8949/1987/T18/028.
- Tilmes, S., R. Müller, J.-U. Groöß, D. S. McKenna, J. M. Russell und Y. Sasano, 2003. Calculation of chemical ozone loss in the Arctic winter 1996-1997 using ozone-tracer correlations: Comparison of Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and Halogen Oc-

- cultation Experiment (HALOE) results. *Journal of Geophysical Research*, **108**(D2). doi: 10.1029/2002JD002213.
- Uppala, S., P. Kållberg, A. Hernandez, S. Saarinen, M. Fiorini, X. Li, K. Onogi, N. Sokka, U. Andrae und V. Da Costa Bechtold, 2004. ERA-40: ECMWF 45-year reanalysis of the global atmosphere and surface conditions 1957-2002. *ECMWF Newsletter No. 101*, S. 2–21. Summer/Autumn 2004, <http://www.ecmwf.int/publications>.
- URAP, 2001. *UARS Reference Atmosphere Project*. WWW-Seite zum Projekt (30.07.2001), [http://code916.gsfc.nasa.gov/Public/Analysis/UARS/urap/reference\\_atmosphere\\_data\\_plots.html](http://code916.gsfc.nasa.gov/Public/Analysis/UARS/urap/reference_atmosphere_data_plots.html).
- Urban, J., N. Latié, E. Le Flochmoën, C. Jiménez, P. Eriksson, J. de La Noë, E. Dupuy, L. El Amraoui, U. Frisk, F. Jégou, D. Murtagh, M. Olberg, P. Ricaud, C. Camy-Peyret, G. Dufour, S. Payan, N. Huret, M. Pirre, A. D. Robinson, N. R. P. Harris, H. Bremer, A. Kleinböhl, K. Küllmann, K. Künzi, J. Kuttippurath, M. K. Ejiri, H. Nakajima, Y. Sasano, T. Sugita, T. Yokota, C. Piccolo, P. Raspollini und M. Ridolfi, 2005. Odin/SMR limb observations of stratospheric trace gases: Validation of N<sub>2</sub>O. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D09301. doi: 10.1029/2004JD005394.
- Vogel, B., P. Konopka, J.-U. Grooß, R. Müller, B. Funke, M. López-Puertas, T. Reddmann, G. Stiller, T. von Clarmann und M. Riese, 2008. Model simulations of stratospheric ozone loss caused by enhanced mesospheric NO<sub>x</sub> during Arctic Winter 2003/2004. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **8**(2), 4911–4947. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2008-8-4911.
- von Hobe, M., 2007. ATMOSPHERIC SCIENCE: Revisiting Ozone Depletion. *Science*, **318**(5858), 1878–1879. doi: 10.1126/science.1151597.
- von Zahn, U., J. Fiedler, B. Naujokat, U. Langematz und K. Krüger, 1998. A note on record-high temperatures at the northern polar stratopause in winter 1997/98. *Geophysical Research Letters*, **25**(22), 4169–4172. doi: 10.1029/1998GL900091.
- Wagner, T., K. Chance, U. Frieß, M. Gil, F. Goutail, G. Hönniger, P. V. Johnston, K. Karlsen-Tørnkvist, I. Kostadinov, H. Leser, A. Petritoli, A. Richter, M. Van Roozendael und U. Platt, 2001. Correction of the Ring effect and I0-effect for DOAS observations of scattered sunlight. *Proceedings of the 1st DOAS Workshop*. Heidelberg, Germany, 13.-14. September 2001, <http://satellite.iup.uni-heidelberg.de/Thomas/RING4.pdf>.
- Waibel, A., T. Peter, K. Carslaw, H. Oelhaf, G. Wetzol, P. Crutzen, U. Poschl, A. Tsias, E. Reimer und H. Fischer, 1999. Arctic ozone loss due to denitrification. *Science*, **283**(5410), 2064–2069.
- Warnecke, G., 1997. *Meteorologie und Umwelt: Eine Einführung*. Springer-Verlag, Berlin/ Heidelberg/ New York, zweite Auflage.
- Waugh, D. W. und T. M. Hall, 2002. Age of stratospheric air: Theory, observations, and models. *Reviews of Geophysics*, **40**(4), 1010. doi: 10.1029/2000RG000101.
- Weidner, F., H. Bösch, H. Bovensmann, J. P. Burrows, A. Butz, C. Camy-Peyret, M. Dorf, K. Gerilowski, W. Gurlit, U. Platt, C. von Friedeburg, T. Wagner und K. Pfeilsticker, 2005. Balloon-borne limb profiling of UV/vis skylight radiances, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, and BrO: technical set-up and validation of the method. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 1409–1422. SRef-ID: 1680-7324/acp/2005-5-1409.
- Wetzol, G., H. Oelhaf, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, R. Ruhnke, H. Nakajima, Y. Sasano, T. Sugita und T. Yokota, 2006. Intercomparison and validation of ILAS-II version 1.4 target parameters with MIPAS-B measurements. *Journal of Geophysical Research*, **111**, D11S06. doi: 10.1029/2005JD006287.
- Wetzol, G., A. Bracher, B. Funke, F. Goutail, F. Hendrick, J.-C. Lambert, S. Mikuteit, C. Piccolo, M. Pirre, A. Bazureau, C. Belotti, T. Blumenstock, M. De Mazière, H. Fischer, N. Huret, D. Ionov, M. López-Puertas, G. Maucher, H. Oelhaf, J.-P. Pommereau, R. Ruhnke, M. Sinnhuber, G. Stiller, M. Van Roozendael und G. Zhang, 2007. Validation of MIPAS-ENVISAT NO<sub>2</sub> operational data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **7**, 3261–3284. SRef-ID: 1680-7324/acp/2007-7-3261.
- Wiegele, A., A. Kleinert, H. Oelhaf, R. Ruhnke, G. Wetzol, F. Friedl-Vallon, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer und H. Fischer, 2008. Spatiotemporal variations of NO<sub>y</sub> species in the northern latitudes stratosphere measured with the balloon-borne MIPAS instrument. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **8**(2), 4693–4725. SRef-ID: 1680-7375/acpd/2008-8-4693.

- WMO, 1999. *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 1998*. World Meteorological Organization Global Ozone Research and Monitoring Project, Report No. 44, Geneva, Switzerland.
- WMO, 2007. *Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2006*. World Meteorological Organization Global Ozone Research and Monitoring Project, Report No. 50, Geneva, Switzerland.
- Zhang, G., 2006. *Validation of target parameters of ENVISAT chemistry instruments with correlative balloon observations obtained by MIPAS-B*. Dissertation, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH), Forschungszentrum Karlsruhe in der Helmholtz-Gemeinschaft, Wissenschaftliche Berichte FZKA 7242.
- Zhong, W. und J. D. Haigh, 1995. Improved broadband emissivity parametrization for water vapor cooling rate calculations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **52**(1), 124–138.
- Ziv, B. und P. Alpert, 1994. Isobaric to Isentropic Interpolation Errors and Implication to Potential Vorticity Analysis. *Journal of Applied Meteorology*, **33**(6), 694–703.



# Variablenverzeichnis

$A$	Arbeit [ $J = \frac{kg \cdot m^2}{s^2}$ ]
$B(\lambda, T)$	nach dem Planckschen Strahlungsgesetz abgestrahlte Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ] (siehe Gl. 3.7, S. 36)
$c$	Lichtgeschwindigkeit [ $\frac{m}{s}$ ] = $3 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$
$c_p$	spezifische Wärmekapazität trockener Luft bei konstantem Druck [ $\frac{J}{kg \cdot K}$ ] = $1005 \frac{J}{kg \cdot K}$
$d_{VR}$	aus dem Vorwärts-/Rückwärts-Test (bzw. Rückwärts-/Vorwärts-Test für Rückwärtstrajektorien) ermittelter horizontaler Abstand [ $km$ ] (siehe Abschnitt 5.3)
$e_{inn,kin,pot}$	spezifische Energie (inn = innere, kin = kinetische, pot = potentielle), d.h. Energie pro Masseneinheit [ $\frac{J}{kg} = \frac{m^2}{s^2}$ ]
$E_{inn,kin,pot}$	Energie (inn = innere, kin = kinetische, pot = potentielle) [ $J = \frac{kg \cdot m^2}{s^2}$ ]
$g$	Erdbeschleunigung [ $\frac{m}{s^2}$ ]
$h$	geopotentielle Höhe [gpdam] (siehe Gl. 2.7, S. 8)
$h$	spezifische Enthalpie [ $\frac{m^2}{s^2}$ ] (siehe S. 9)
$h$	Plancksches Wirkungsquantum [ $J \cdot s$ ] = $6,62 \cdot 10^{-34} J \cdot s$
$I$	Strahlungsintensität [ $\frac{W}{nm \cdot m^2 \cdot sr}$ ]
$\vec{i}, \vec{j}$	horizontale Einheitsvektoren [-]; Vektoren der Länge 1 in x- bzw. y-Richtung: $\vec{i} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ bzw. $\vec{j} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$
$k$	Boltzmann-Konstante [ $\frac{J}{K}$ ] = $1,38 \cdot 10^{-23} \frac{J}{K}$
$k_{a,e,s}$	Absorptions-, Emissions- bzw. Streukoeffizient [ $m^{-1}$ ] bzw. [ $cm^{-1}$ ]
$\vec{k}$	vertikaler Einheitsvektor [-]; Vektor der Länge 1 in z-Richtung: $\vec{k} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$
$m$	Masse [ $kg$ ]
$M$	Montgomery-Potential [ $\frac{m^2}{s^2}$ ] (siehe Gl. 2.17, S. 11)
$MPV$	modifizierte potentielle Vorticity [ $\frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}$ ] bzw. [ $PVU = 10^{-6} \frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}$ ] (siehe Gl. 2.28, S. 15)
$n$	Anzahl der den Sensitivitätstests zugrundeliegenden Trajektorienpaare
$n$	Teilchenzahldichte (Anzahl der Moleküle pro Volumeneinheit) [ $m^{-3}$ ] bzw. [ $cm^{-3}$ ] (siehe Gl. 3.3, S. 33)
$p$	Druck [ $Pa = \frac{kg}{m \cdot s^2}$ ] bzw. [ $hPa$ ]
$P(\vec{\Omega}, \vec{\Omega}')$	Phasenfunktion [-] (siehe Gl. 3.4, S. 33)
$PV$	potentielle Vorticity [ $\frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}$ ] bzw. [ $PVU = 10^{-6} \frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}$ ] (siehe Abschnitt 2.2.5)

$R_L$	Gaskonstante für trockene Luft $[\frac{J}{kg \cdot K}] = 287 \frac{J}{kg \cdot K}$
$s$	Maßstabsfaktor für stereografische Projektion (siehe Gl. 4.10, S. 69)
$s$	Weglänge in einer Schicht $[cm]$ bzw. $[m]$
$t$	Zeit $[s]$
$T$	Temperatur $[K]$ bzw. $[^{\circ}C]$
$u$	zonale Windkomponente (Ost-/Westrichtung) $[\frac{m}{s}]$
$v$	meridionale Windkomponente (Nord-/Südrichtung) $[\frac{m}{s}]$
$v$	spezifisches Volumen $[\frac{m^3}{kg}]$
$\vec{v}, \vec{v}_h$	Geschwindigkeitsvektor $[\frac{m}{s}]$
$\vec{v}_g$	geostrophischer Wind $[\frac{m}{s}]$ (siehe Abschnitte 2.2.2 und 2.2.4)
$w$	vertikale Windkomponente $[\frac{m}{s}]$
$\vec{X}$	Positionsvektor
$x, y, z$	Ortskoordinaten $[m]$
$z$	Höhe $[m]$ bzw. $[km]$
$\alpha$	Newtonian Cooling Koeffizient $[\frac{1}{s}]$ (siehe Gl. 4.17, S. 75)
$\zeta$	relative Vorticity $[\frac{1}{s}]$ (siehe Gl. 2.23, S. 12)
$\eta$	absolute Vorticity $[\frac{1}{s}]$ (siehe Gl. 2.24, S. 12)
$\lambda$	Wellenlänge $[m]$ bzw. $[nm]$
$\lambda$	geografische Länge $[^{\circ}]$
$\Phi$	Geopotential $[\frac{m^2}{s^2}]$ (siehe Gl. 2.6, S. 8)
$\varphi$	geografische Breite $[^{\circ}]$
$\Pi$	Exnerfunktion $[-]$ (siehe Gl. 2.15, S. 9)
$\sigma$	Standardabweichung
$\sigma$	vertikale Koordinate in Modellen (Die durch $\sigma$ beschriebenen Modellflächen folgen in den bondennahen Schichten dem Verlauf der Topographie und nähern sich, je höher sie liegen, den Druckflächen an.)
$\sigma_{a,s}$	Wirkungsquerschnitt für Absorption bzw. Streuung $[cm^2]$ (siehe Gl. 3.3, S. 33)
$\tau$	Relaxationszeit, Lebenszeit $[s]$
$\Theta$	potentielle Temperatur $[K]$ (siehe Gl. 2.14, S. 9)
$\Theta_{t=0}$	potentielle Temperatur $[K]$ zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien
$\nabla$	Nabla-Operator: $\nabla = \vec{i} \frac{\partial}{\partial x} + \vec{j} \frac{\partial}{\partial y} + \vec{k} \frac{\partial}{\partial z}$
$\nabla_{h=p,z,\Theta}$	horizontaler Nabla-Operator: $\nabla_h = \vec{i} \frac{\partial}{\partial x} + \vec{j} \frac{\partial}{\partial y}$ (auf Flächen konstanten Druckes $p$ , konstanter Höhe $z$ oder konstanter potentieller Temperatur $\Theta$ )
$\vec{\Omega}$	Raumwinkel $[sr]$

# Abkürzungsverzeichnis

ACVT	Atmospheric Chemistry and Validation Team (Validierungsgruppe für ENVISAT-Geräte)
AHTD	Absolute Horizontal Transport Deviation (absolute horizontale Abweichung, siehe Gl. 4.8 auf S. 61)
ARL	Air Resources Laboratory (Silver Spring, Maryland), NOAA
AWI	Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung
CHAMP	CHallenging Minisatellite Payload (Satelliteninstrument)
BONBON	Ballonmessgerät für in-situ-Messungen (siehe Abschnitt 3.3.2)
CLaMS	Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere
CMDL	Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory (Boulder, Colorado), NOAA
CNES	Centre national d'études spatiales
DAO	Data Assimilation System, NASA GSFC
DOAS	Differentielle Optische Absorption-Spektroskopie (englisch: <i>Differential Optical Absorption Spectroscopy</i> ; Messprinzip, Ballonmessgerät)
DU	Dobson Unit (Einheit für die Ozonsäulendichte, siehe Anmerkung auf S. 24)
EASOE	European Arctic Stratospheric Ozone Experiment (Messkampagne)
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage)
ERA-40	ECMWF ReAnalysis: reanalysierter, globaler Datensatz des ECMWF für September 1957 bis August 2002
ERS	European Remote Sensing Satellite
ESA	European Space Agency (Europäische Raumfahrtagentur)
ESABC	ENVISAT Stratospheric Aircraft and Balloon Campaign (Messkampagne)
ENVISAT	ENVironmental SATellite (siehe Kap. 3.2)
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe
FTIR	Fourier-Transformations-Infrarot(-Spektroskopie)
FUB	Freie Universität Berlin
FZJ	Forschungszentrum Jülich
FZK	Forschungszentrum Karlsruhe
GSFC	Goddard Space Flight Center, NASA

GOME	Global Ozone Monitoring Experiment (Satelliteninstrument, Vorgänger von SCIAMACHY)
GOMOS	Global Ozone Monitoring by Occultation of the Stars (Messinstrument auf ENVISAT)
gpm, gpdam	geopotentielle Meter bzw. Dekameter (Einheit der geopotentiellen Höhe $h$ )
GRIB	GRid In Binary (Dateiformat)
HALOE	Halogen Occultation Experiment (Satelliteninstrument)
HB	Hohe Breiten
HIRS	High resolution Infrared Radiation Sounder (Satelliteninstrument)
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Spectrometer (Satelliteninstrument)
ILAS	Improved Limb Atmospheric Spectrometer (Satelliteninstrument)
IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung Karlsruhe (Forschungszentrum Karlsruhe und Universität Karlsruhe)
in-situ	Analyse bzw. Probenahme vor Ort (Messverfahren)
IR	infrarot
IUP	Institut für Umweltphysik (Heidelberg bzw. Bremen)
JJA	Juni, Juli, August
KASIMA	Karlsruhe Simulation Model of the Middle Atmosphere
KNMI	Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut
LOS	Line-of-Sight (Sichtlinie bei Fernerkundungsgeräten)
L25 bzw. L59	Version des Trajektorienmodelles der FU Berlin mit 25 bzw. 59 $\Theta$ -Flächen
LPMA	Limb Profile Monitor of the Atmosphere (Ballonmessgerät)
LPMA-IASI	Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications – Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (Ballonmessgerät)
MAM	März, April, Mai
MB	Mittlere Breiten
MIDRAD	von SLIMCAT verwendetes Strahlungsschema (siehe S. 76)
MIMOSA	Modélisation Isentrope du transport Mésos-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection
MIPAS	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (Messinstrument auf ENVISAT, siehe Kap. 3.2)
MIPAS-B2	MIPAS-Ballonversion 2 (Ballonmessgerät)
NASA	National Aeronautics and Space Administration (Luft- und Raumfahrtbehörde der USA)
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NCEP	National Centers for Environmental Prediction
NIVR	Nederlands Instituut voor Vliegtuigontwikkeling en Ruimtevaart
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NWP	Numerical Weather Prediction (numerische Wettervorhersage)
ppb	parts per billion, Volumenmischungsverhältnis: 1 Teilchen pro $10^9$ Luftteilchen

POVORBEX	Polar Vortex Ballon Experiment (Messkampagne)
ppt	parts per trillion, Volumenmischungsverhältnis: 1 Teilchen pro $10^{12}$ Luftteilchen
PSC	Polar Stratospheric Clouds (polare stratosphärische Wolken)
PVU	<i>Potential Vorticity Unit</i> : Einheit der potentiellen Vorticity $1 PVU = 10^{-6} \frac{K \cdot m^2}{kg \cdot s}$
QBO	Quasi-Biennial Oscillation: annähernd zweijährige Schwingung des zonalen Windes in der unteren und mittleren Stratosphäre der Tropen (siehe Abschnitt 2.3.3)
RGC	Radiometric Gain Calibration
RHTD	Relative Horizontal Transport Deviation (relative horizontale Abweichung, siehe Gl. 4.9 auf S. 61)
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (Satelliteninstrument)
SAO	Semi-Annual Oscillation: halbjährliche Schwingung des zonalen Windes in der oberen Stratosphäre und in der Mesosphäre in den Tropen (siehe Abschnitt 2.3.3)
SAOZ	Systeme d'Analyse par Observation Zenithale (Ballonmessgerät)
SBUV	Solar Backscatter Ultra-Violet radiometer (Satelliteninstrument)
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric ChartographY (Messinstrument auf ENVISAT, siehe Kap. 3.2)
SCIAVALIG	SCIAMACHY Validation and Interpretation Group
SCOUT-O3	Stratospheric-Climatic Links with Emphasis on the Upper Troposphere and Lower Stratosphere (EU-Projekt)
SLIMCAT	isentropes 3-dimensionales Chemie-Transport-Modell (siehe S. 76)
SOLVE	SAGE III Ozone Loss and Validation Experiment (Messkampagne)
SOST	SCIAMACHY Operational Support Team
SPIRALE	Spectromètre Infra Rouge pour l'étude de l'Atmosphère par diodes Laser Embarquées (Ballonmessgerät)
SUN	Rechnersystem des Computerherstellers Sun Microsystems
SZA	Solar Zenith Angle, Sonnenzenitwinkel
TDL	Tunable Diode Laser (regelbare Laserdioden)
THESEO	Third European Stratospheric Experiment on Ozone (Messkampagne)
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
TRIPLE/TWIN	Ballongondel mit mehreren Messgeräten
Txxx, z.B. T106	T für englisch: <i>triangular truncation</i> [siehe z.B. Simmons und Bengtsson, 1984], bei spektralen Modellen Angabe, wieviele Wellenzahlen in zonaler Richtung berechnet werden. Die kleineren Wellen werden "abgeschnitten". Eine spektrale Auflösung von T106 entspricht am Äquator einem Gitterpunktabstand von ca. 120 km.
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
üNN	über Normal Null, Höhe über dem Meeresspiegel

UKMO	U.K. Meteorological Office
UNIX	Betriebssystem auf SUN
UT	Universal Time
UV	ultraviolett
VAX	Virtual Address eXtension (Rechnersystem des Computerherstellers Digital Equipment Corporation)
VIS	sichtbar (Abkürzung von englisch: <i>visible</i> )
VMS	Virtual Memory System (Betriebssystem auf VAX)
WCC	Wear Control Cycle

# A. Das Trajektorienmodell der FU Berlin

Das Trajektorienmodell der FU Berlin ist auf zwei verschiedenen Rechnersystemen mit unterschiedlichen Betriebssystemen implementiert (VAX/VMS und SUN/UNIX). Der prinzipielle Programmablauf ist auf beiden Systemen identisch und soll hier kurz vorgestellt werden.

Das Programmpaket zur Berechnung von Trajektorien besteht aus mehreren FORTRAN-Programmen, die über eine Steuerungsdatei (unter VMS separate Dateien für Vorwärts-/Rückwärtsrechnungen und Nord- bzw. Südhemisphäre: *px3\_awi\*.com*; unter UNIX: *caltra*) nacheinander abgearbeitet werden. Im ersten Schritt werden die meteorologischen Eingangsdaten von Druck- auf  $\Theta$ -Flächen umgerechnet. Dies ist schematisch in Abbildung A.1 dargestellt. Die auf  $\Theta$ -Flächen vorliegenden Daten werden dann in ein Feld (*T77.DAT* bzw. *meteo.dat*) eingelesen (via *PS\_THETA?.com* bzw. *m\*\_ibfto\*.f*), in dem die einzelnen Termine im 6-Stunden-Abstand

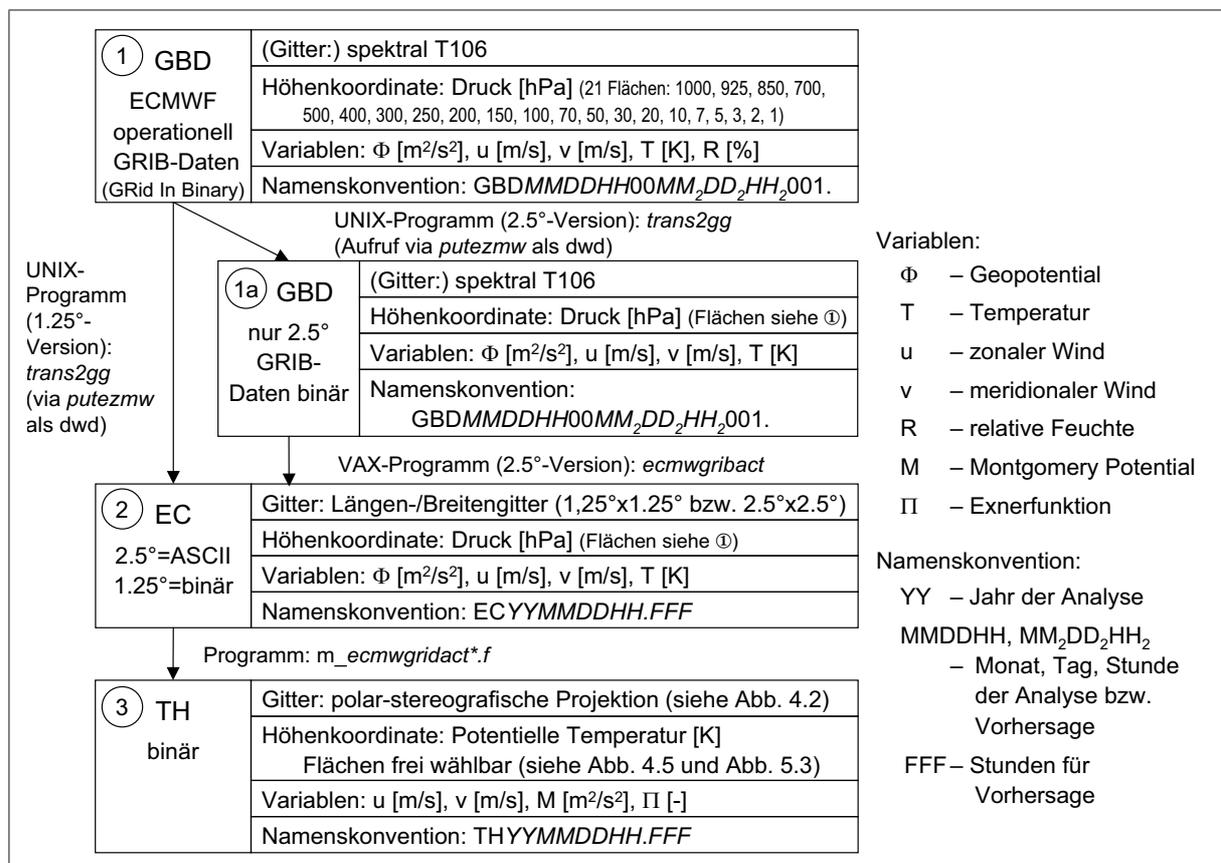


Abb. A.1.: Programmablauf zur Umrechnung der Eingangsdaten auf  $\Theta$ -Flächen

Tag	0	1	2	3...7	8	9	10	11	12	13	
Met. Eingangsdaten											
Nr. der Zeitsequenz	-	1-2	3-6	7-26	27-30	31-34	35-38	39-42	43-46	47-49	
Uhrzeit [UT]		12/18	0/6/12/18	0/6/12/18	0/6/12/18	0/6/12/18	0/6/12/18	0/6/12/18	0/6/12/18	0/6/12	
Zeitstrahl											
	12 UT=	Analysis	Analysis	Analysis	Analysis	Analysis	f24h	f48h	f72h	f96h	
Name der Startdatei (VAX)							X				
Referenzzeit (12 UT)											
Vorwärtsrechnung		X									
Rückwärtsrechnung										X	
Datumsvariablen											
	date1	date2			date3	date4		date6	date5	date8	
	date7										
fnnh: nn-Stunden-Vorhersage											
Datumsvariablen (VAX) in <i>px3_awi*4days.com</i> im operationellen Betrieb:											
date1	YYMMDD	Datum der zu löschenden Analyse-Dateien				date6	YYMMDD12	Datum für den Start der nächsten Rechnung			
date2	YYMMDD12	Beginn des einzulesenden Zeitraumes									
date3	YYMMDD18	Beginn der neuen Analysen				date7	YYMMDD12	Datum der zu löschenden Vorhersage-Dateien			
date4	YYMMDD12	letzter Termin mit Analysedaten									
date5	YYMMDD12	in aktueller Version irrelevant (alt: Ende des Zeitraumes)				date8	YYMMDD12	Ende des einzulesenden Zeitraumes			

Abb. A.2.: Referenzzeit für den Trajektorienstart und einzulesende Analyse- und Vorhersagedaten im operationellen Betrieb

abgelegt werden. Für die VAX-Version des Programmes ist die Größe des Feldes bzw. des in einem Programmablauf berechenbaren Zeitraumes auf 12 Tage festgesetzt. In der UNIX-Version ist dieser Zeitraum flexibel einstellbar. Nach dem Einlesen der Trajektorienstartpunkte erfolgt die Berechnung der Trajektorien mit einem Zeitschritt von 10 Minuten durch Interpolation innerhalb des eingelesenen Feldes (*m\_traawirad\*.f*). Der Zeitpunkt zur Initialisierung einer Trajektorie wird relativ zum eingelesenen Zeitraum angegeben. Dabei ist die Referenzzeit für Vorwärtsrechnungen der Beginn und für Rückwärtstrajektorien das Ende des eingelesenen Zeitraumes. Das Schema in Abbildung A.2 zeigt die Daten, die für den 12-Tages-Zeitraum eingelesen werden, sowie die Referenzzeiten beim operationellen Betrieb des Trajektorienprogrammes (VAX-Version im Vorhersagemodus).

Die gewünschten Initialisierungspunkte der Trajektorien werden als Textdateien für das Programm bereitgestellt (Startdatei). Die Ausgabe der berechneten Trajektorien erfolgt ebenfalls als Textdateien, wobei eine Datei mehrere Trajektorien enthalten kann (Trajektoriendatei). Eine Startdatei kann die Startinformationen für mehrere Trajektoriendateien (Pakete) enthalten.

Abbildung A.3 zeigt beispielhaft einen Ausschnitt aus einer solchen Datei mit den Initialisierungspunkten für zwei Trajektorienpakete. Die Startdateien sind wie folgt aufgebaut:

1. Zeile: Information über Anzahl der Pakete und Art des Höhenparameters     \_ = Leerzeichen

```
**JJMMTT_nnnn_pp
**JJMMTT VAX-Version: für Programm nicht relevant, bei UNIX-Version: Referenzdatum
```

nnnn    Anzahl der nachfolgenden Trajektorienpakete (= Anzahl der vom Programm erzeugten Ausgabedateien)

pp       Parameter für die Höhenangabe (nur VAX-Version):

        01 als potentielle Temperatur [K]

        02 als Druck [Pa]

        03 als Höhe über dem Boden [m]

        04 als Höhe über Normal Null [m]

Alle Höhenangaben in einer Startdatei müssen in derselben Einheit erfolgen.

2. Zeile: Angaben zum folgenden Trajektorienpaket

```
aaaaaaaa.xxx_ttt
aaaaaaaa.xxx   Dateiname für die Ausgabedatei
ttt            Anzahl der nachfolgenden Trajektorienstartpunkte (= Anzahl der Trajektorien in der Ausgabedatei)
```

3. Zeile: Initialisierungspunkt für eine Trajektorie

```
1111.11_bbb.bb_hhhh.h_sss
1111.11   Geografische Länge, Format F7.2, negative Werte für West
bbb.bb    Geografische Breite, Format F6.2, negative Werte für Süd
hhhh.h    Höhenangabe, Format F6.x, je nach Parameter in der 1. Zeile als potentielle Temperatur, Druck, Höhe über dem Boden oder als Höhe über Normal Null (bei UNIX nur potentielle Temperatur)
sss       Festlegen der Startzeit als Anzahl von 10-Minuten-Zeitschritten bezogen auf die Referenzzeit (siehe Abb. A.2), Format i6, Startzeit einer Vorwärtstrajektorie ist sss*10 Minuten nach der Referenzzeit und Startzeit einer Rückwärtstrajektorie ist sss*10 Minuten vor der Referenzzeit; Referenzzeit ergibt sich bei der VAX-Version aus dem Namen der Startdatei und bei der UNIX-Version aus den Angaben in der 1. Zeile; Start zur Referenzzeit bei VAX-Version: Zeitschritt = 1, bei UNIX-Version: Zeitschritt = 0
```

folgende Zeilen (bis ttt+2): weitere Initialisierungspunkte für das erste Trajektorienpaket

Anschließend: ggfls. Beschreibung weiterer Trajektorienpakete, wie ab Zeile 2

pp030307.inb				
1	20030307	2	3	
2	C1BA0304.C2B	53		
3	24.13	67.01	31381.	844
...				
55	21.34	67.92	9143.	857
56	C1SS0304.C2B	23		
57	14.34	66.13	13694.	839
58	15.88	66.16	18611.	840
59	16.26	66.17	19726.	840
60	16.64	66.18	20798.	840
61	17.03	66.20	21835.	841
62	17.41	66.22	22852.	841
63	17.80	66.24	23773.	841
64	18.18	66.27	24640.	841
65	18.57	66.30	25493.	841
66	18.96	66.33	26290.	841
67	19.34	66.36	26985.	842
68	19.73	66.40	27669.	842
69	20.11	66.44	28280.	842
70	20.50	66.48	28822.	842
71	20.88	66.52	29337.	842
72	21.26	66.56	29778.	842
73	21.64	66.61	30147.	843
74	22.02	66.66	30467.	843
75	22.40	66.71	30765.	843
76	22.77	66.76	30982.	843
77	23.15	66.81	31086.	843
78	23.52	66.87	31264.	843
79	23.89	66.93	31405.	844

Abb. A.3.: Beispiel für eine Trajektorienstartdatei (Rückwärtsrechnung für die LPMA/DOAS-Messung am 04.03.03)

In Abbildung A.4 ist beispielhaft der Anfang einer Trajektorien-datei gezeigt, wie sie vom Programm ausgegeben wird. Für jeden Ausgabezeitschritt (1 Stunde oder 10 Minuten) stehen hier die geografische Position der Trajektorie und einige ergänzende Informationen:

<code>_YYMMDDHH_MMLLLLLL_BBBBBB_ppppp_TTTT_HHHH_PVPV</code>		<code>_ = Leerzeichen</code>																																																																																																																																																																							
<code>YYMMDD</code>	Datum	<table border="1"> <thead> <tr> <th colspan="7">C1SS0304.C2B</th> </tr> </thead> <tbody> <tr><td>03030416</td><td>20</td><td>1434</td><td>6613</td><td>1374</td><td>3693</td><td>1366</td><td>1233</td></tr> <tr><td>03030415</td><td>20</td><td>1304</td><td>6635</td><td>1378</td><td>3693</td><td>1364</td><td>1236</td></tr> <tr><td>03030414</td><td>20</td><td>1173</td><td>6653</td><td>1384</td><td>3693</td><td>1362</td><td>1239</td></tr> <tr><td>03030413</td><td>20</td><td>1040</td><td>6669</td><td>1390</td><td>3693</td><td>1359</td><td>1243</td></tr> <tr><td>03030412</td><td>20</td><td>906</td><td>6681</td><td>1397</td><td>3693</td><td>1356</td><td>1248</td></tr> <tr><td>03030411</td><td>20</td><td>772</td><td>6691</td><td>1404</td><td>3693</td><td>1352</td><td>1254</td></tr> <tr><td>03030410</td><td>20</td><td>639</td><td>6701</td><td>1411</td><td>3693</td><td>1349</td><td>1259</td></tr> <tr><td>03030409</td><td>20</td><td>505</td><td>6709</td><td>1419</td><td>3693</td><td>1345</td><td>1263</td></tr> <tr><td>03030408</td><td>20</td><td>372</td><td>6716</td><td>1428</td><td>3693</td><td>1341</td><td>1267</td></tr> <tr><td>03030407</td><td>20</td><td>241</td><td>6722</td><td>1437</td><td>3693</td><td>1337</td><td>1272</td></tr> <tr><td>03030406</td><td>20</td><td>111</td><td>6726</td><td>1448</td><td>3693</td><td>1332</td><td>1277</td></tr> <tr><td>03030405</td><td>20</td><td>-17</td><td>6728</td><td>1458</td><td>3694</td><td>1327</td><td>1283</td></tr> <tr><td>03030404</td><td>20</td><td>-142</td><td>6728</td><td>1469</td><td>3694</td><td>1322</td><td>1291</td></tr> <tr><td>03030403</td><td>20</td><td>-265</td><td>6726</td><td>1480</td><td>3694</td><td>1317</td><td>1300</td></tr> <tr><td>03030402</td><td>20</td><td>-386</td><td>6721</td><td>1493</td><td>3694</td><td>1313</td><td>1312</td></tr> <tr><td>03030401</td><td>20</td><td>-506</td><td>6715</td><td>1506</td><td>3694</td><td>1307</td><td>1325</td></tr> <tr><td>03030400</td><td>20</td><td>-624</td><td>6707</td><td>1519</td><td>3694</td><td>1302</td><td>1338</td></tr> <tr><td>03030323</td><td>20</td><td>-740</td><td>6697</td><td>1532</td><td>3695</td><td>1297</td><td>1350</td></tr> <tr><td>03030322</td><td>20</td><td>-856</td><td>6687</td><td>1544</td><td>3695</td><td>1292</td><td>1360</td></tr> <tr><td>03030321</td><td>20</td><td>-968</td><td>6676</td><td>1555</td><td>3695</td><td>1288</td><td>1368</td></tr> </tbody> </table>	C1SS0304.C2B							03030416	20	1434	6613	1374	3693	1366	1233	03030415	20	1304	6635	1378	3693	1364	1236	03030414	20	1173	6653	1384	3693	1362	1239	03030413	20	1040	6669	1390	3693	1359	1243	03030412	20	906	6681	1397	3693	1356	1248	03030411	20	772	6691	1404	3693	1352	1254	03030410	20	639	6701	1411	3693	1349	1259	03030409	20	505	6709	1419	3693	1345	1263	03030408	20	372	6716	1428	3693	1341	1267	03030407	20	241	6722	1437	3693	1337	1272	03030406	20	111	6726	1448	3693	1332	1277	03030405	20	-17	6728	1458	3694	1327	1283	03030404	20	-142	6728	1469	3694	1322	1291	03030403	20	-265	6726	1480	3694	1317	1300	03030402	20	-386	6721	1493	3694	1313	1312	03030401	20	-506	6715	1506	3694	1307	1325	03030400	20	-624	6707	1519	3694	1302	1338	03030323	20	-740	6697	1532	3695	1297	1350	03030322	20	-856	6687	1544	3695	1292	1360	03030321	20	-968	6676	1555	3695	1288	1368
C1SS0304.C2B																																																																																																																																																																									
03030416	20		1434	6613	1374	3693	1366	1233																																																																																																																																																																	
03030415	20		1304	6635	1378	3693	1364	1236																																																																																																																																																																	
03030414	20		1173	6653	1384	3693	1362	1239																																																																																																																																																																	
03030413	20		1040	6669	1390	3693	1359	1243																																																																																																																																																																	
03030412	20		906	6681	1397	3693	1356	1248																																																																																																																																																																	
03030411	20		772	6691	1404	3693	1352	1254																																																																																																																																																																	
03030410	20		639	6701	1411	3693	1349	1259																																																																																																																																																																	
03030409	20		505	6709	1419	3693	1345	1263																																																																																																																																																																	
03030408	20		372	6716	1428	3693	1341	1267																																																																																																																																																																	
03030407	20		241	6722	1437	3693	1337	1272																																																																																																																																																																	
03030406	20		111	6726	1448	3693	1332	1277																																																																																																																																																																	
03030405	20		-17	6728	1458	3694	1327	1283																																																																																																																																																																	
03030404	20		-142	6728	1469	3694	1322	1291																																																																																																																																																																	
03030403	20	-265	6726	1480	3694	1317	1300																																																																																																																																																																		
03030402	20	-386	6721	1493	3694	1313	1312																																																																																																																																																																		
03030401	20	-506	6715	1506	3694	1307	1325																																																																																																																																																																		
03030400	20	-624	6707	1519	3694	1302	1338																																																																																																																																																																		
03030323	20	-740	6697	1532	3695	1297	1350																																																																																																																																																																		
03030322	20	-856	6687	1544	3695	1292	1360																																																																																																																																																																		
03030321	20	-968	6676	1555	3695	1288	1368																																																																																																																																																																		
<code>HH_MM</code>	Uhrzeit [UT]																																																																																																																																																																								
<code>LLLLLL</code>	geografische Länge [°] *100 1434 = 14,34°E																																																																																																																																																																								
<code>BBBBB</code>	geografische Breite [°] *100 6613 = 66,13°N negativ = WEST bzw. SÜD																																																																																																																																																																								
<code>ppppp</code>	Druck [hPa] *10 1374 = 137,4 hPa																																																																																																																																																																								
<code>TTTT</code>	pot. Temperatur [K] *10 3693 = 369,3 K																																																																																																																																																																								
<code>HHHH</code>	geometr. Höhe üNN [km] *100 1366 = 13,66 km																																																																																																																																																																								
<code>PVPV</code>	skalierte pot. Vorticity = PV * 1 000 000 * Druck [hPa] PV = 1233 / (1 000 000 * 137,4) = 8,97 e-6 m*m*K/(s*kg) = 8,97 PVU																																																																																																																																																																								

Abb. A.4.: Beispiel für eine Trajektorien-datei (Rückwärtsrechnung für die LPMA/DOAS-Messung beim Sonnenuntergang am 04.03.03, Anfang der ersten Trajektorie)

Die einzelnen Trajektorien werden getrennt durch: ----- . . . ----- .

## B. Vergleichsstudien zum FUB-Modell

### B.1. Meteorologische Situation

Abbildung B.1 zeigt die PV und die MPV zum Zeitpunkt der Initialisierung der Trajektorien, auf denen die Sensitivitätsstudien zum Trajektorienmodell in Kapitel 5 (siehe auch Tab. 5.1 und Tab. 5.3) beruhen.

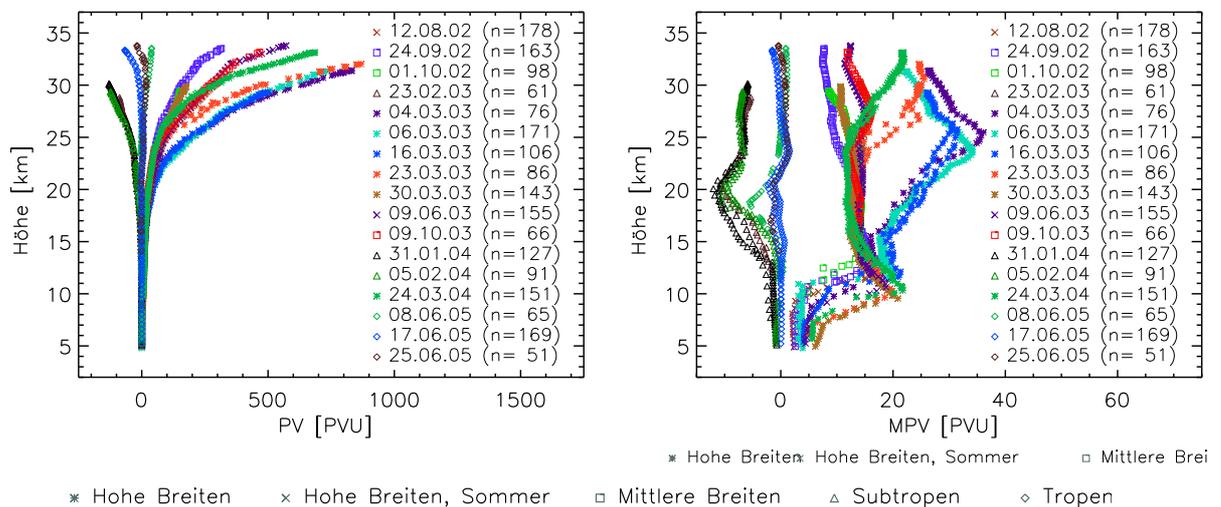


Abb. B.1.: PV (links) und MPV (rechts) zum Zeitpunkt der Initialisierung der Trajektorien dargestellt über die Höhe

In Abbildung B.2 ist anhand der beiden Windkomponenten (zonal und meridional) und der Temperatur ein Überblick zur meteorologischen Situation während der durchgeführten Ballonmesskampagnen (Kap. 6) gegeben, für die die Sensitivitätsstudien zum Trajektorienmodell der FU Berlin durchgeführt wurden (Kap. 5). Die Größen sind als Zeit-Höhen-Schnitte über einen Zeitraum von 40 Tagen dargestellt. Sie basieren auf den operationellen ECMWF-Daten (21 Standard-Druckflächen) des dem Kampagnenort nächstgelegenen Gitterpunktes.

Die Differenzen in den meteorologischen Daten, die sich durch eine unterschiedliche horizontale Auflösung der Eingangsdaten bzw. durch eine unterschiedliche Vertikalaufösung des Trajektorienmodelles zum Zeitpunkt der Initialisierung der Trajektorien ergeben, werden in Abbildung B.3 bzw. B.4 gezeigt (siehe auch Text auf S. 86 und Abb. 5.1). Die Windgeschwindigkeiten sind aus den in der ersten Stunde nach der Initialisierung der Trajektorien zurückgelegten Wegen

abgeleitet (siehe S. 86). In den Abbildungen ist für die jeweils dargestellte Größe der Mittelwert, die Standardabweichung und die Anzahl der zugrundeliegenden Werte (n) angegeben.

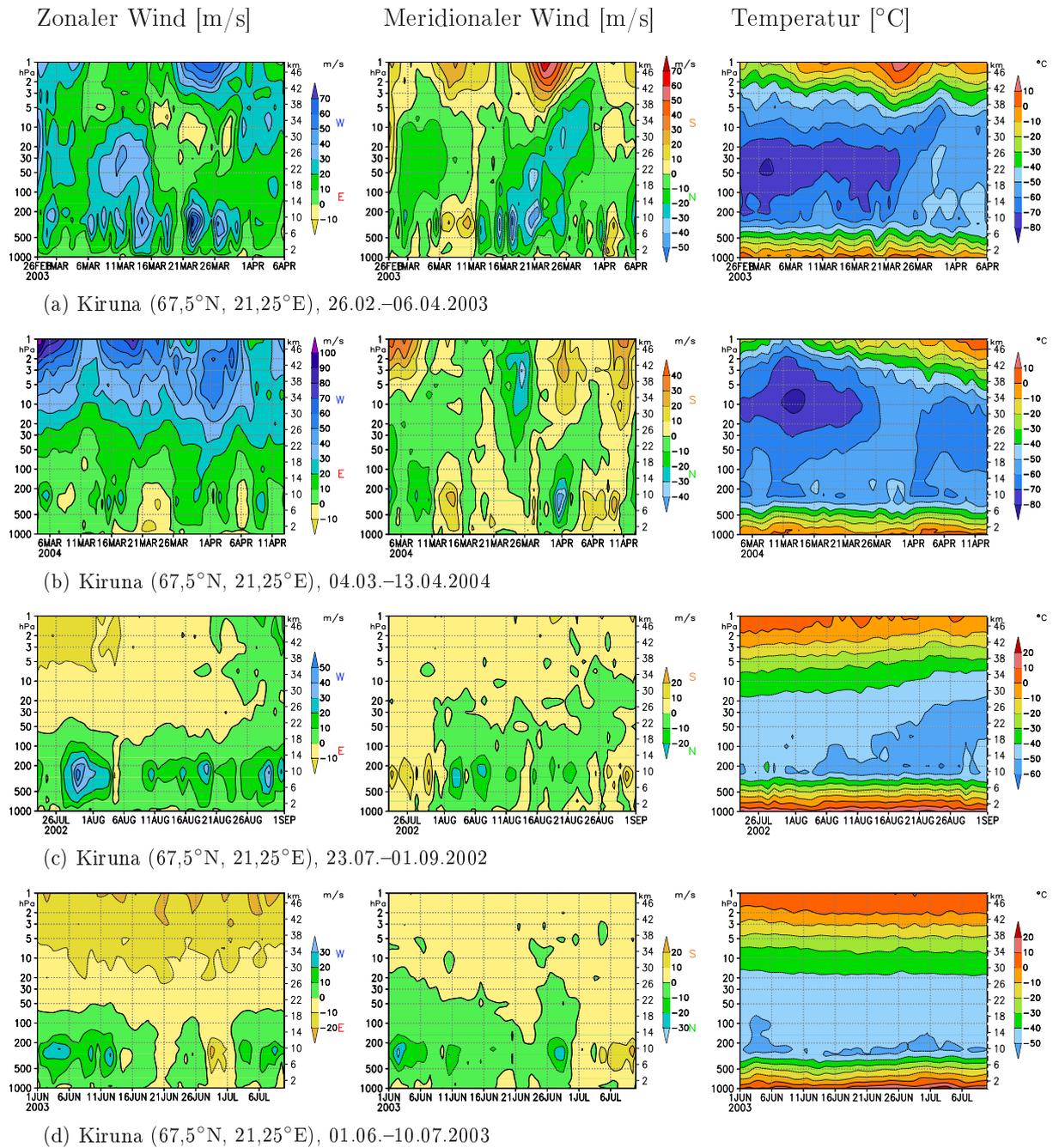
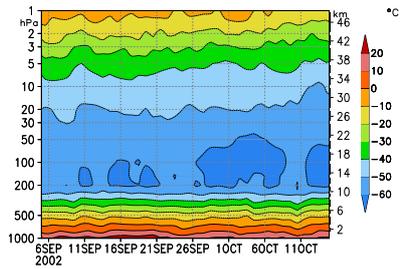
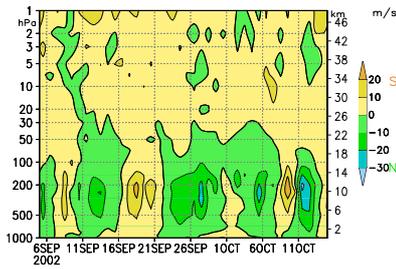
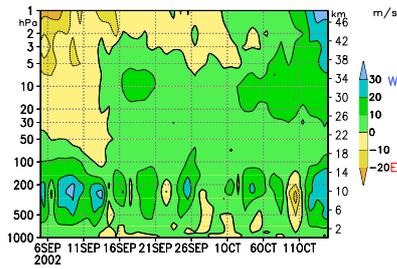


Abb. B.2.: Zeit-Höhen-Schnitte des zonalen Windes (links), des meridionalen Windes (Mitte) und der Temperatur (rechts) während der durchgeführten Messkampagnen; tägliche ECMWF-Daten des nächstgelegenen Gitterpunktes, 12 UT

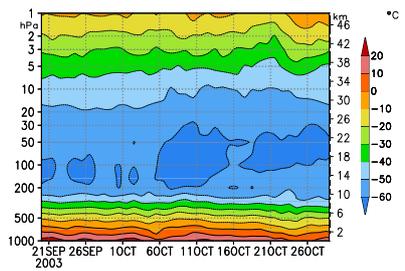
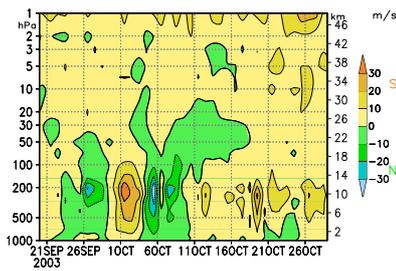
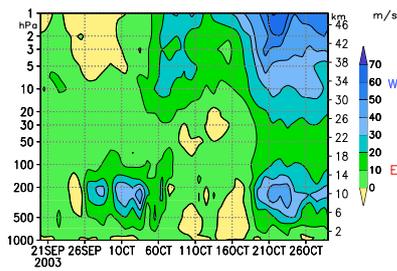
Zonaler Wind [m/s]

Meridionaler Wind [m/s]

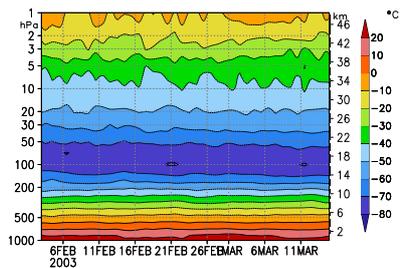
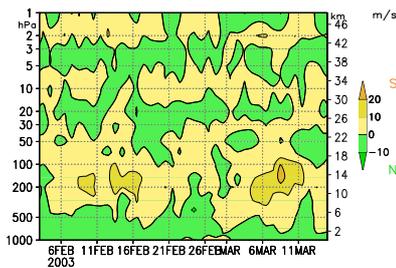
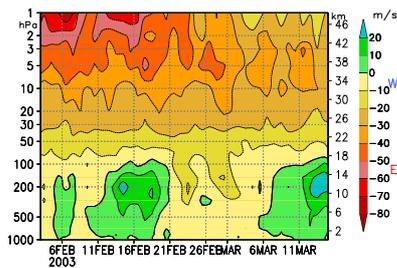
Temperatur [°C]



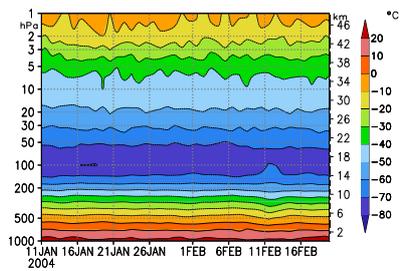
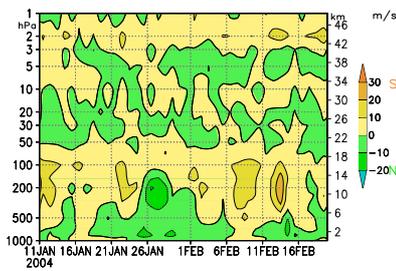
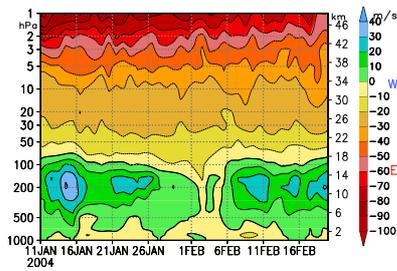
(e) Aire sur l'Adour (42,5°N, 0°E), 05.09.–15.10.2002



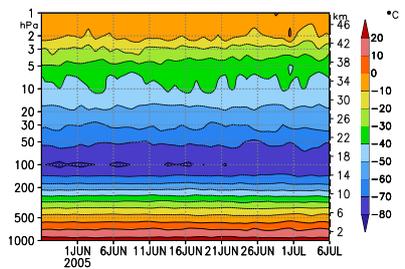
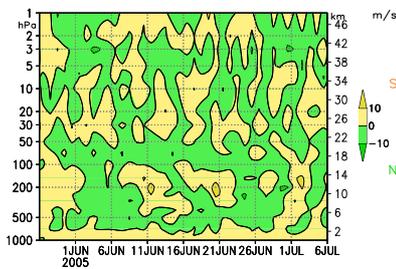
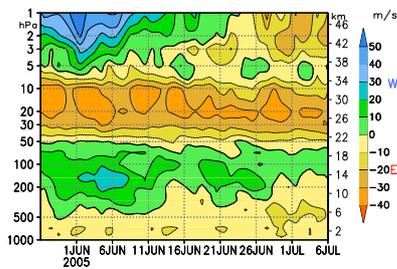
(f) Aire sur l'Adour (42,5°N, 0°E), 20.09.–29.10.2003



(g) Bauru (22,5°S, 50°W), 03.02.–15.03.2003

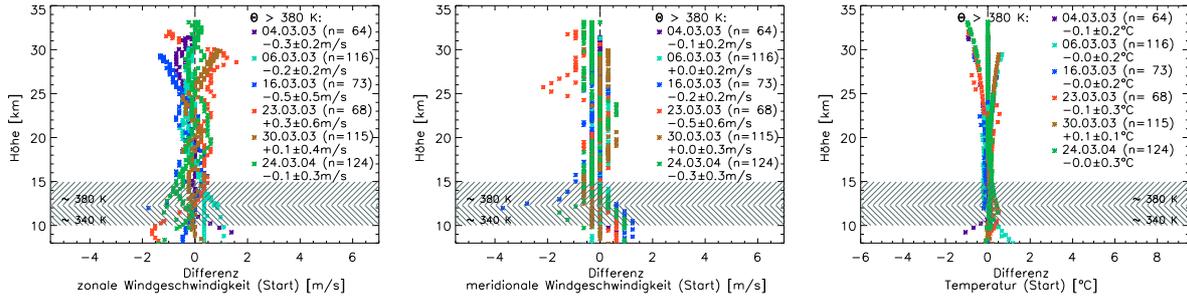


(h) Bauru (22,5°S, 50°W), 11.01.–20.02.2004

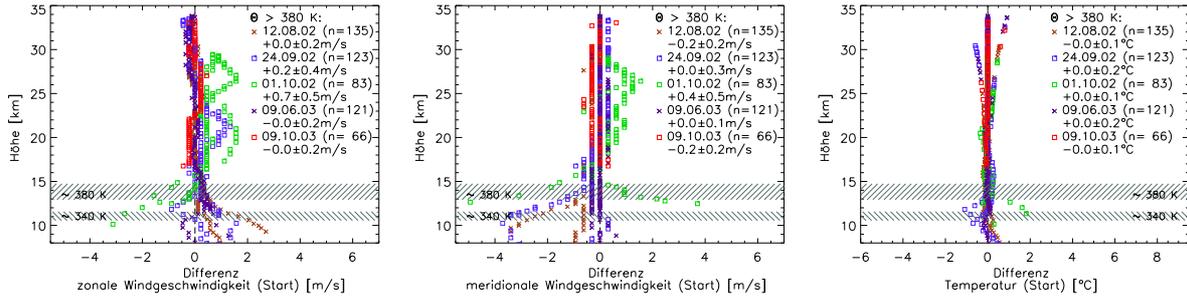


(i) Teresina (5°S, 42,5°W), 27.05.–06.07.2005

Abb. B.2 (Fortsetzung)

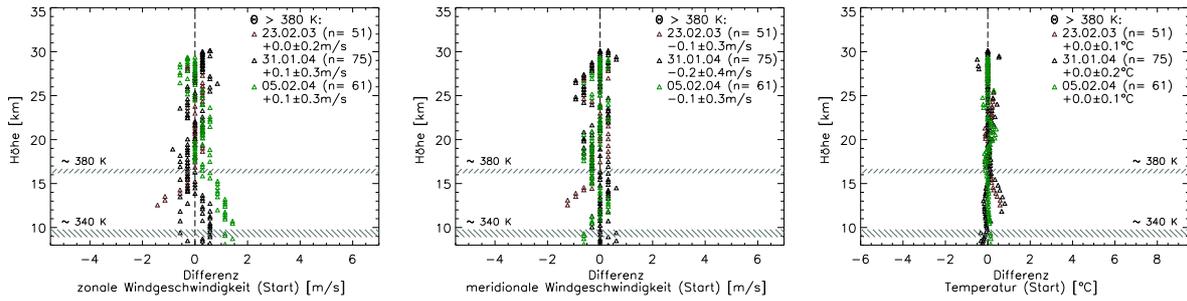


(a) Hohe Breiten: Frühjahr ( $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 261\text{ km}$ )

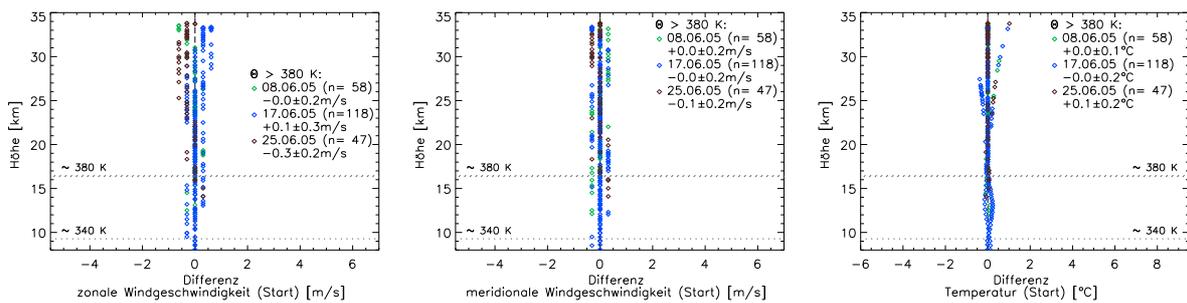


(b) Hohe und mittlere Breiten: Sommer/Herbst

(Hohe Breiten, Sommer:  $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 73\text{ km}$ , Mittlere Breiten:  $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 277\text{ km}$ )



(c) Subtropen ( $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 58\text{ km}$ )



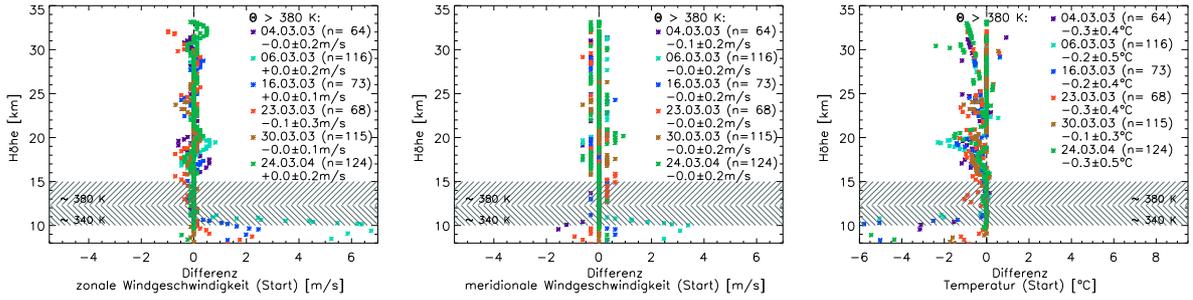
(d) Tropen ( $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 51\text{ km}$ )

\* Hohe Breiten    × Hohe Breiten, Sommer    □ Mittlere Breiten    △ Subtropen    ◇ Tropen

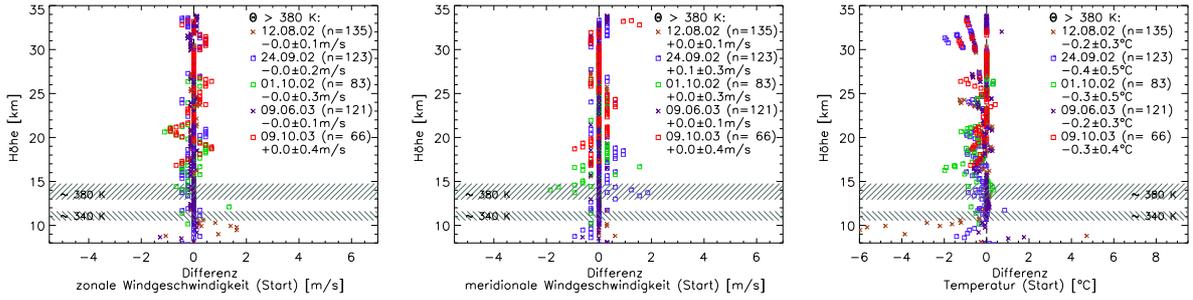
Die Zahlen geben den Mittelwert und die Standardabweichung der dargestellten Größe an (für  $\Theta_{t=0} > 380\text{ K}$ ),  
 $n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Werte oberhalb von 380 K

$\overline{d_{hor, 5\ Tage}}$  = mittlerer horizontaler Abstand nach 5 Tagen für Trajektorienvergleich mit  $\Theta_{t=0} > 380\text{ K}$

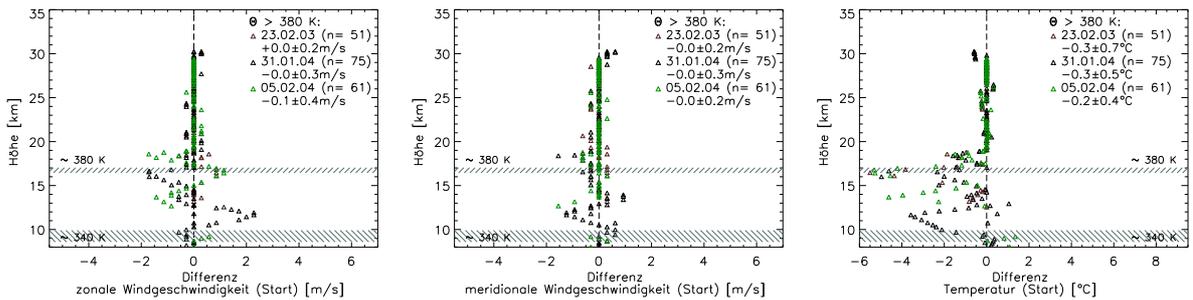
Abb. B.3.: Differenz in den Startwerten zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener horizontaler Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ – $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, klimatologische Erwärmungsraten) für die Windgeschwindigkeit (links: zonale Komponente, Mitte: meridionale Komponente) und die Temperatur (rechts)



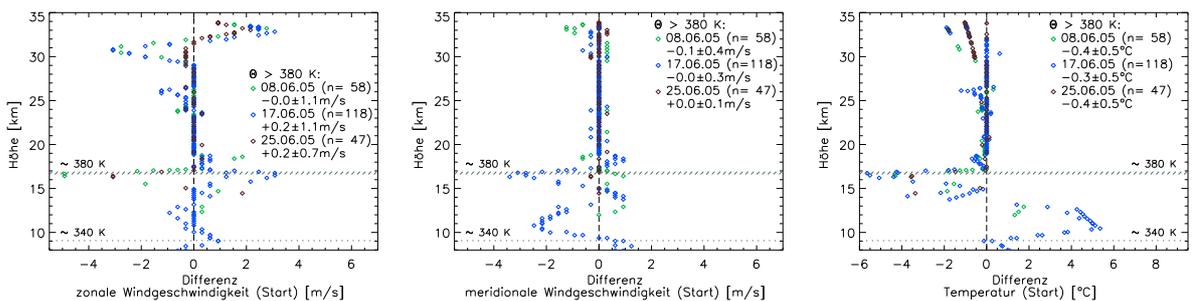
(a) Hohe Breiten: Frühjahr ( $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 72\text{ km}$ )



(b) Hohe und mittlere Breiten: Sommer/Herbst  
(Hohe Breiten, Sommer:  $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 30\text{ km}$ , Mittlere Breiten:  $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 135\text{ km}$ )



(c) Subtropen ( $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 47\text{ km}$ )



(d) Tropen ( $\overline{d_{hor, 5\ Tage}} = 244\text{ km}$ )

\* Hohe Breiten    x Hohe Breiten, Sommer    □ Mittlere Breiten    Δ Subtropen    ◇ Tropen

Die Zahlen geben den Mittelwert und die Standardabweichung der dargestellten Größe an (für  $\Theta_{t=0} > 380\text{ K}$ ),  
n = Anzahl der zugrundeliegenden Werte oberhalb von 380 K

$\overline{d_{hor, 5\ Tage}}$  = mittlerer horizontaler Abstand nach 5 Tagen für Trajektorienvergleich mit  $\Theta_{t=0} > 380\text{ K}$

Abb. B.4.: Differenz in den Startwerten zum Initialisierungszeitpunkt der Trajektorien bei verschiedener vertikaler Auflösung (L59–L25,  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , klimatologische Erwärmungsraten) für die Windgeschwindigkeit (links: zonale Komponente, Mitte: meridionale Komponente) und die Temperatur (rechts)

## B.2. Ergänzende Abbildungen zu den Vergleichsstudien

Die folgenden Abbildungen zeigen in Ergänzung zu Kapitel 5 weitere Ergebnisse der Trajektorienvergleiche. In Abweichung zu den Sensitivitätsstudien für das Trajektorienmodell der FU Berlin, die in Kapitel 5.2 vorgestellt wurden, liegt den hier eingeordneten Ergebnissen entweder eine andere horizontale Auflösung oder eine andere Annahme zum Vertikaltransport zugrunde. Die Abbildungen zeigen den Einfluss:

- (a) der horizontalen Auflösung:  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  vs.  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$   
für L25 und aktuelle Erwärmungsraten (in Kap. 5.2.1: isentrop),
- (b) der vertikalen Auflösung: L59 vs. L25  
für  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$  und aktuelle Erwärmungsraten (in Kap. 5.2.2: isentrop),
- (c) des Vertikaltransportes: aktuell vs. klimatologisch  
für  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  und L25 (in Kap. 5.2.3:  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ) und
- (d) des Vertikaltransportes: aktuell vs. isentrop  
für  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$  und L25 (in Kap. 5.2.3:  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ).

Der Einfluss der *Kombination* aller drei Parameter (horizontale Auflösung, vertikale Auflösung, Vertikaltransport) wird in Abbildung

- (e) über einen Vergleich von  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59, aktuelle Erwärmungsraten mit  $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25, klimatologische Erwärmungsraten dargestellt.

Außerdem werden die Ergebnisse

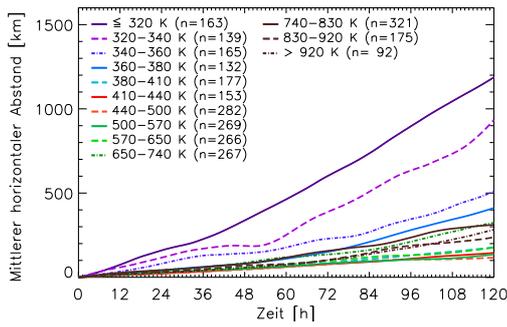
- (f) des Vorwärts-/Rückwärtstestes  
für  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L25 und aktuelle Erwärmungsraten (in Kap. 5.3.1: isentrop) gezeigt.

Für die Vergleiche mit anderen Modellen wurden in Kapitel 5.4 die Trajektorien des FUB-Modelles herangezogen, die mit der jeweils höchsten Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ , L59) und unter Berücksichtigung aktueller Erwärmungsraten berechnet wurden. In den Abbildungen

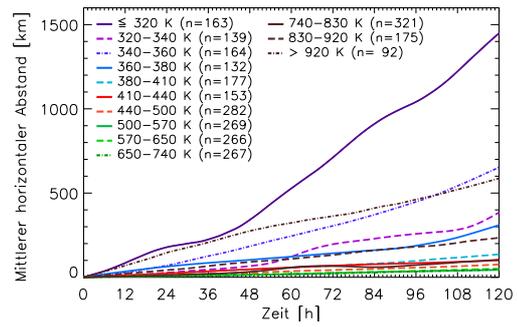
- (g) FUB vs. AWI und
- (h) FUB vs. CLaMS

werden die Ergebnisse der Vergleiche, die auf den FUB-Trajektorien mit der niedrigeren Auflösung ( $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ , L25) und aktuellen Erwärmungsraten beruhen, vorgestellt.

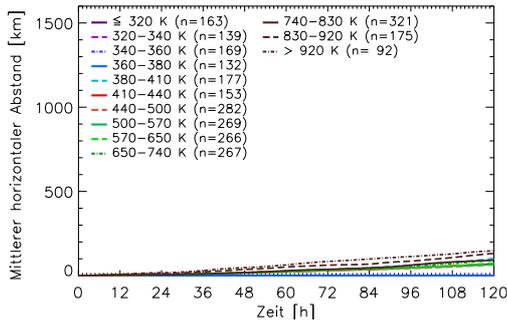
Detaillierte Angaben zur Initialisierung der Trajektorien finden sich in Tabelle 5.1 bzw. Tabelle 5.3 und auf S. 84f. Für die mittleren horizontalen Abstände zwischen zwei verschiedenen Modellversionen wurden die Ergebnisse der Vorwärts- und Rückwärtsrechnungen – wie schon in Kapitel 5 – zusammengefasst. Für die vertikalen Abstände sind jeweils nur die Ergebnisse der Vorwärtsrechnungen dargestellt, da sich bei einer Mittelwertbildung über die Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien eventuell auftretende Unterschiede zwischen zwei Modellversionen aufheben würden. Abbildungen werden auch dann gezeigt, wenn keine Unterschiede zu erwarten sind (aktuelle vs. klimatologische Erwärmungsraten mit  $\Theta_{t=0} \leq 380$  K).



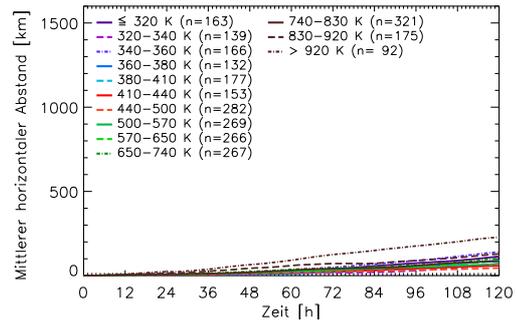
(a) Horizontale Auflösung:  $1.25^\circ$  vs.  $2.5^\circ$



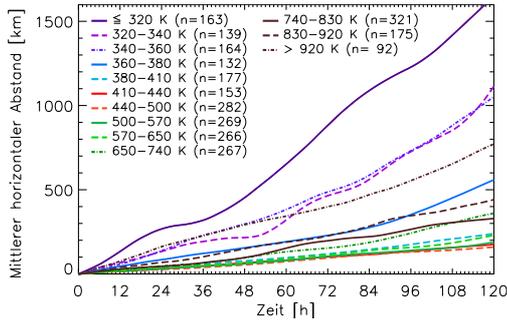
(b) Vertikale Auflösung: L59 vs. L25



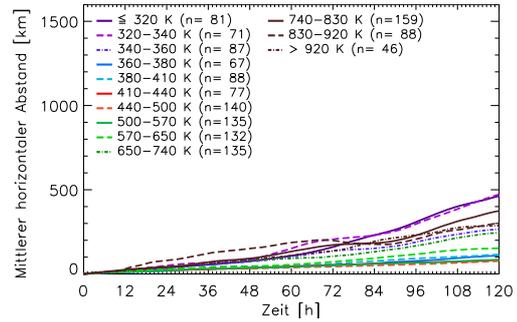
(c) Vertikaltransport:  
aktuell vs. klimatologisch



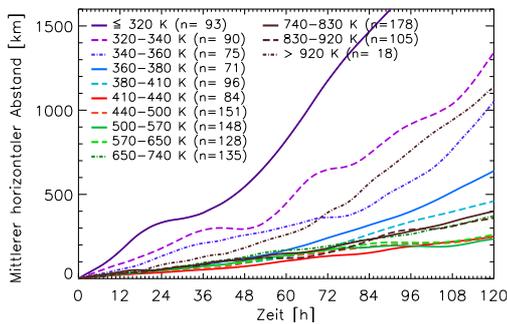
(d) Vertikaltransport:  
aktuell vs. isentrop



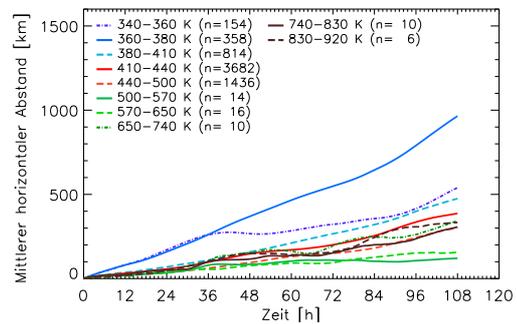
(e) Kombination:  $1.25^\circ$ , L59, aktuell vs.  
 $2.5^\circ$ , L25, klimatologisch



(f) Vorwärts-/Rückwärts-Test  
( $1.25^\circ$ , L25, aktuell)



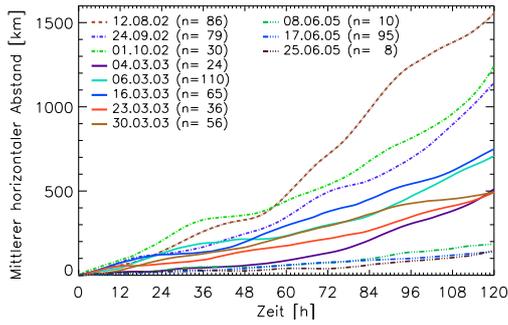
(g) FUB ( $2.5^\circ$ , L25, aktuell) vs. AWI



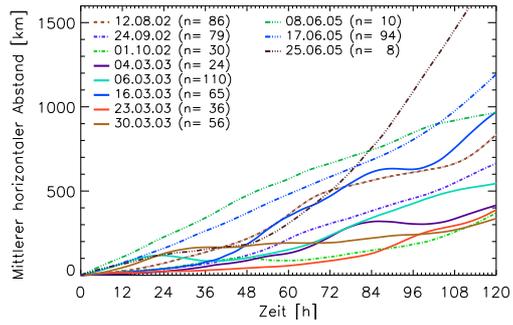
(h) FUB ( $2.5^\circ$ , L25, aktuell) vs. CLaMS

n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Text auf S. 238

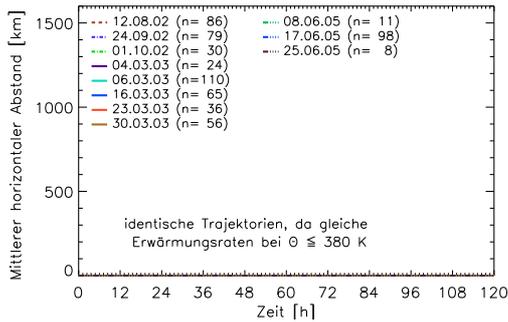
Abb. B.5.: Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen klassifiziert nach  $\Theta_{t=0}$



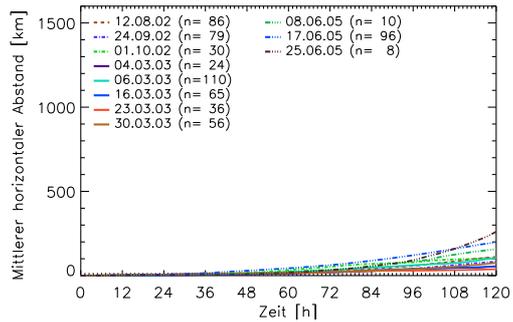
(a) Horizontale Auflösung:  $1.25^\circ$  vs.  $2.5^\circ$



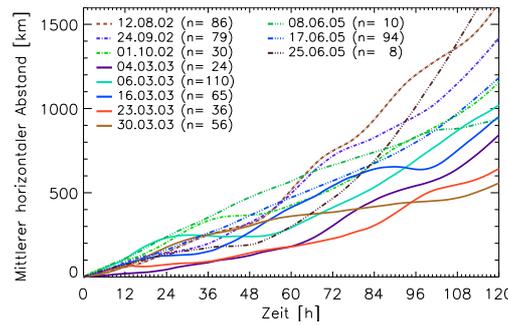
(b) Vertikale Auflösung: L59 vs. L25



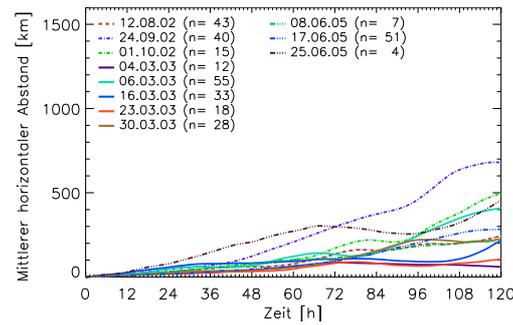
(c) Vertikaltransport:  
aktuell vs. klimatologisch



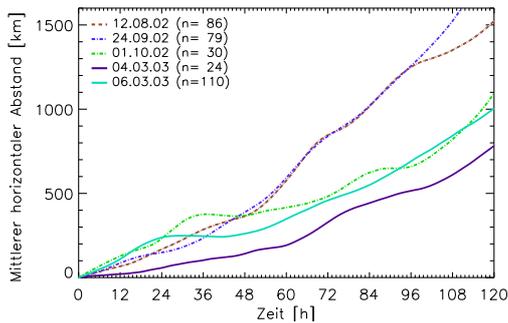
(d) Vertikaltransport:  
aktuell vs. isentrop



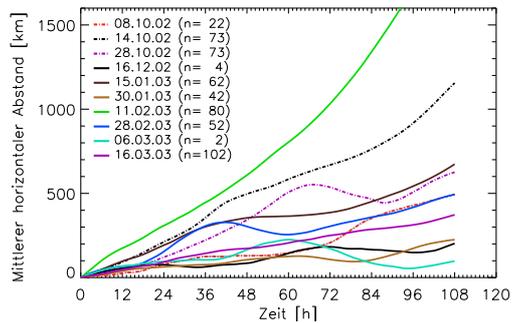
(e) Kombination:  $1.25^\circ$ , L59, aktuell vs.  $2.5^\circ$ , L25, klimatologisch



(f) Vorwärts-/Rückwärts-Test  
( $1.25^\circ$ , L25, aktuell)



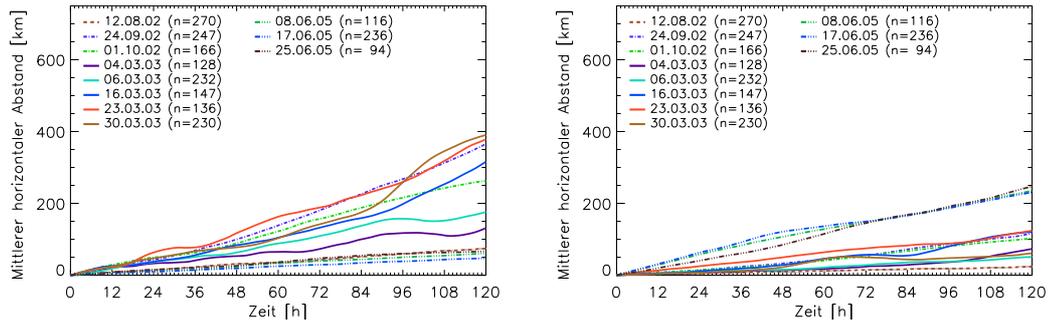
(g) FUB ( $2.5^\circ$ , L25, aktuell) vs. AWI



(h) FUB ( $2.5^\circ$ , L25, aktuell) vs. CLaMS

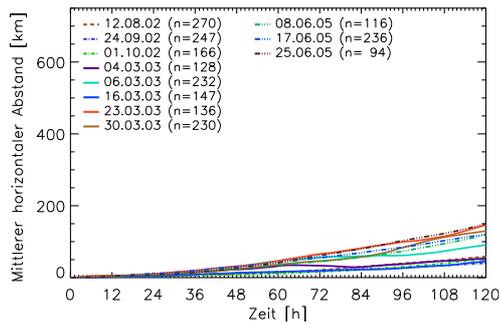
— Hohe Breiten    - - - Hohe Breiten, Sommer    - · - · - Mittlere Breiten    - - - Subtropen    - · - · - Tropen  
n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Text auf S. 238

Abb. B.6.: Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} \leq 380\text{ K}$

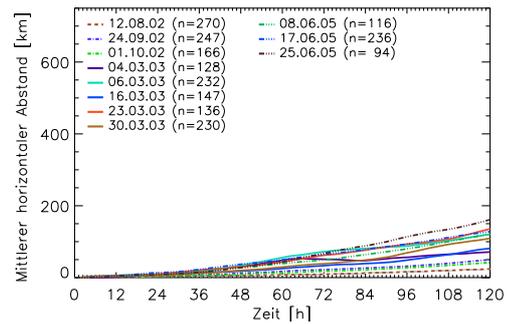


(a) Horizontale Auflösung: 1,25° vs. 2,5°

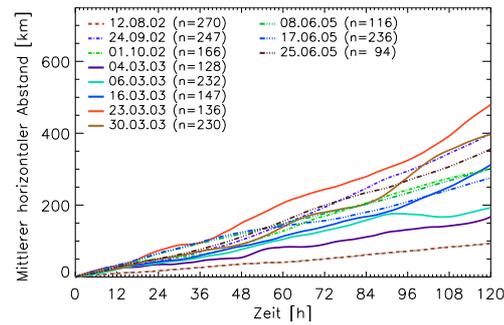
(b) Vertikale Auflösung: L59 vs. L25



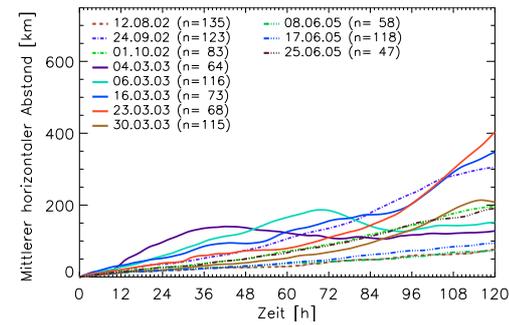
(c) Vertikaltransport:  
aktuell vs. klimatologisch



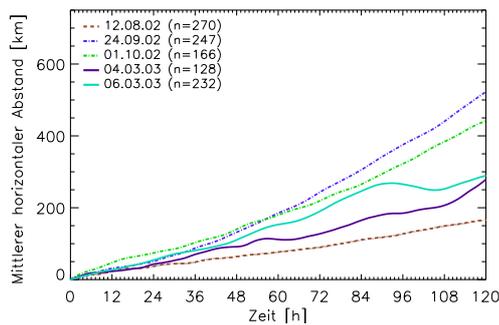
(d) Vertikaltransport:  
aktuell vs. isentrop



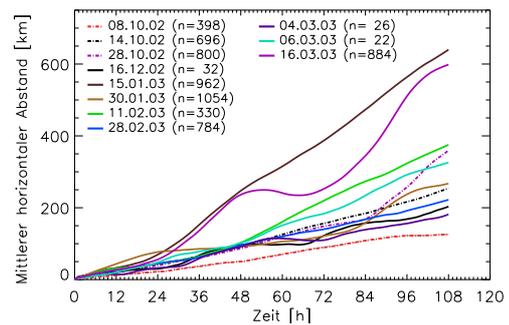
(e) Kombination: 1,25°, L59, aktuell vs.  
2,5°, L25, klimatologisch



(f) Vorwärts-/Rückwärts-Test  
(1,25°, L25, aktuell)



(g) FUB (2,5°, L25, aktuell) vs. AWI



(h) FUB (2,5°, L25, aktuell) vs. CLaMS

— Hohe Breiten    - - - Hohe Breiten, Sommer    - · - · - Mittlere Breiten    - - - Subtropen    - · - · - Tropen  
n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Text auf S. 238

Abb. B.7.: Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K

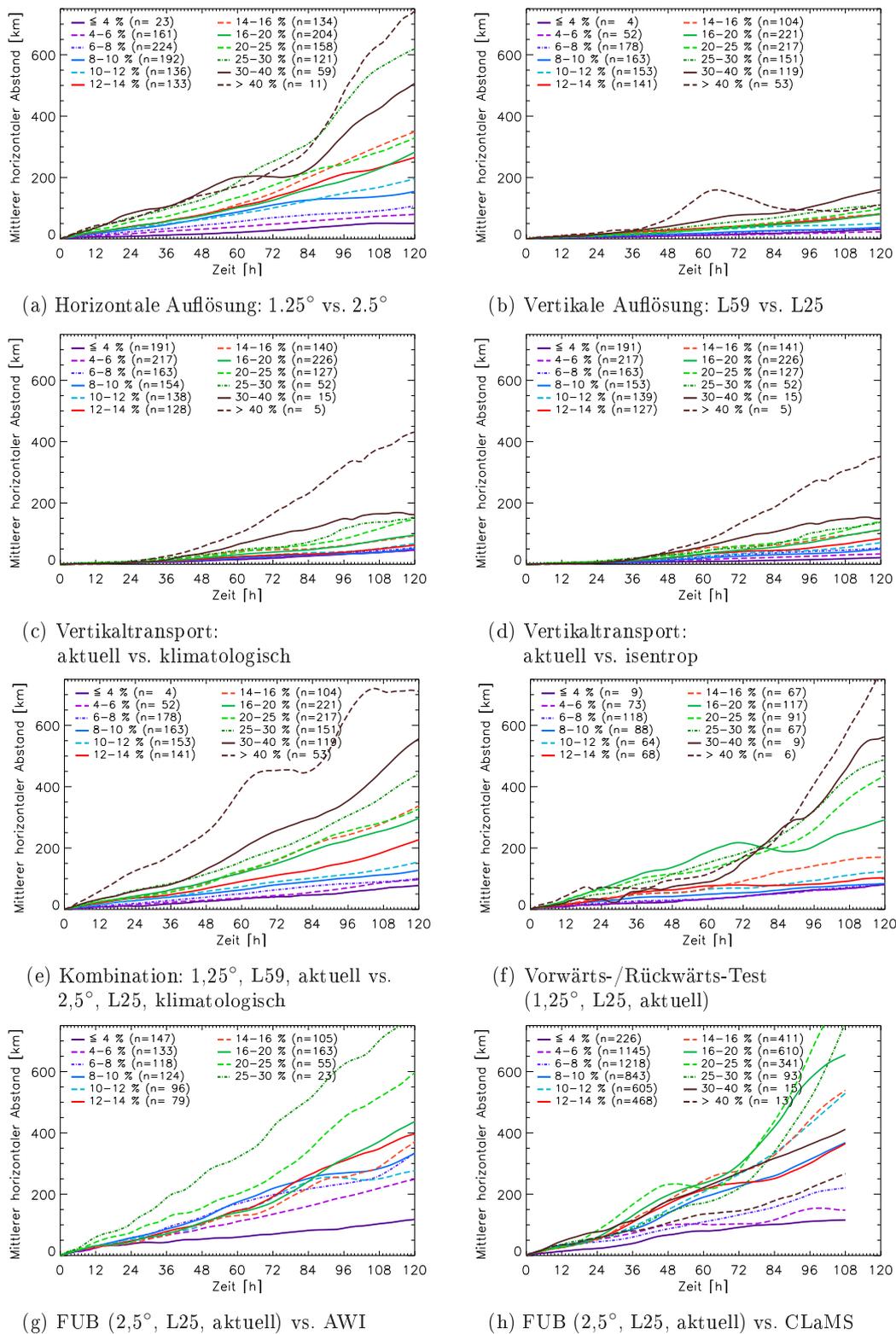


Abb. B.8.: Mittlerer horizontaler Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K klassifiziert nach der PV-Änderung innerhalb von 5 Tagen (a-g) bzw. 4,5 Tagen (h) ohne tropische Fälle (siehe auch Abschnitt 5.3.2)

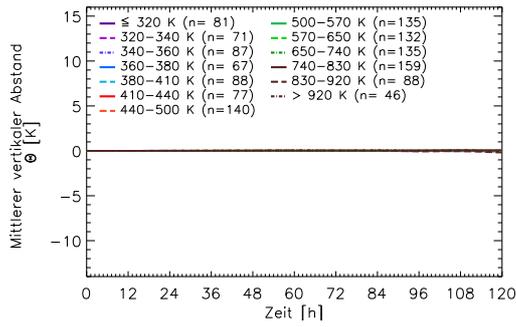
Tab. B.1.: Mittlerer horizontaler Abstand [km] für verschiedene Sensitivitätstudien und den Vorwärts-/Rückwärtstest mit dem FUB-Modell für Trajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K

Zeit (Tage)	Horizontale Auflösung ( $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ vs. $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ )			Vertikale Auflösung (L59 vs. L25)			Vorwärts-/Rückwärts- und Rückwärts-/Vorwärtstest <sup>1)</sup>		
	L25		L59	$1,25^\circ \times 1,25^\circ$		$2,5^\circ \times 2,5^\circ$	L59		L25
	isentrop	aktuell	isentrop	isentrop	aktuell	isentrop	isentrop	aktuell	isentrop
<i>Hohe Breiten (<math>n_1=1121, n_2=873</math>)</i>									
1	41	43	41	11	11	10	32	40	30
2	76	77	78	25	24	22	67	75	60
3	125	128	131	42	45	41	97	96	97
4	190	200	196	52	55	47	143	135	137
5	265	280	269	73	80	67	217	209	212
<i>Hohe Breiten, Sommer (<math>n_1=512, n_2=270</math>)</i>									
1	14	14	15	5	5	4	19	18	18
2	29	31	30	10	9	8	32	30	31
3	40	42	42	16	14	13	47	44	44
4	57	59	58	23	18	19	66	60	62
5	71	74	72	30	23	24	93	84	89
<i>Mittlere Breiten (<math>n_1=545, n_2=413</math>)</i>									
1	40	45	42	15	14	14	28	30	26
2	83	95	84	35	31	31	53	56	49
3	151	171	154	63	54	55	95	100	89
4	220	246	226	100	84	86	159	177	151
5	291	323	298	132	110	117	226	253	211
<i>Subtropen (<math>n_1=375</math>)</i>									
1	14	-	15	9	-	9	16	-	16
2	23	-	25	16	-	14	29	-	29
3	32	-	35	21	-	20	41	-	42
4	43	-	46	30	-	29	56	-	57
5	56	-	60	46	-	45	67	-	68
<i>Tropen (<math>n_1=446, n_2=446</math>)</i>									
1	10	11	11	57	57	56	22	21	19
2	20	21	22	111	109	111	41	42	37
3	33	35	34	151	148	150	68	72	61
4	42	46	44	195	188	192	101	104	91
5	51	55	55	245	235	241	134	138	120
<i>alle Trajektorien (<math>n_1=2999, n_2=2002</math>)</i>									
1	28	32	29	17	21	16	26	31	24
2	55	62	56	36	43	34	50	58	46
3	90	105	93	55	66	52	76	85	74
4	132	156	136	74	86	69	116	127	110
5	179	211	183	99	113	92	167	186	160

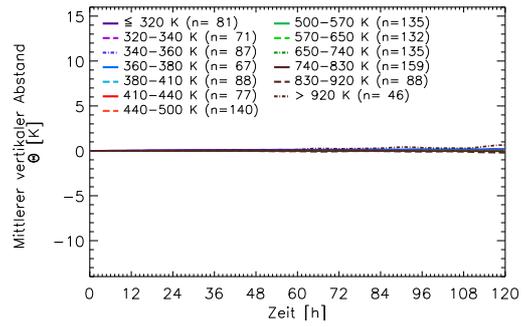
<sup>1)</sup> Die Abweichungen sind als Mittel aus dem Vorwärts-/Rückwärts- und dem Rückwärts-/Vorwärtstest gebildet (jeweils  $1,25^\circ \times 1,25^\circ$ ). Die konkreten Zahlenwerte für den mittleren horizontalen Abstand weichen daher z.T. geringfügig von denen in Tabelle 5.6 ab, die nur den Vorwärts-/Rückwärtstest umfasst.

$n_1$  = Anzahl der zugrundeliegenden isentropen Trajektorienpaare

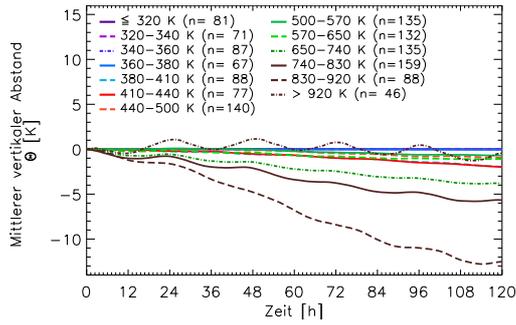
$n_2$  = Anzahl der Trajektorienpaare bei quasi-isentropen Transport mit aktuellen Erwärmungsraten



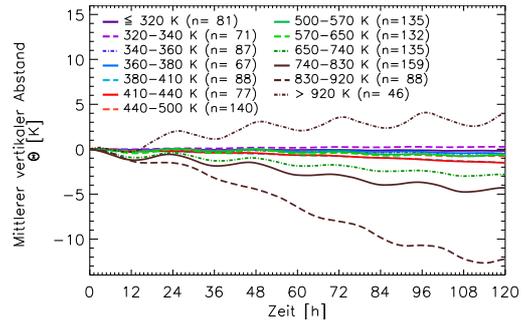
(a) Horizontale Auflösung:  $1.25^\circ - 2.5^\circ$



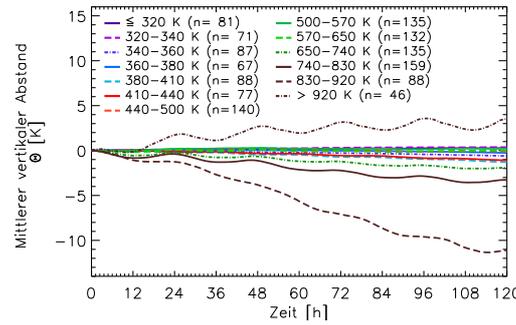
(b) Vertikale Auflösung: L59 - L25



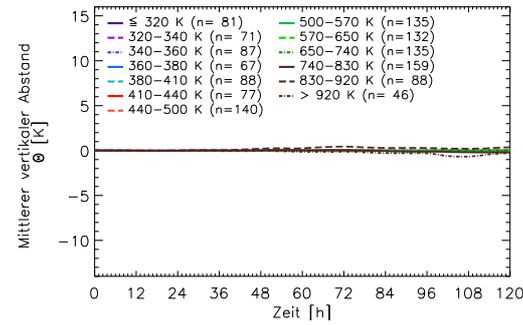
(c) Vertikaltransport:  
aktuell - klimatologisch



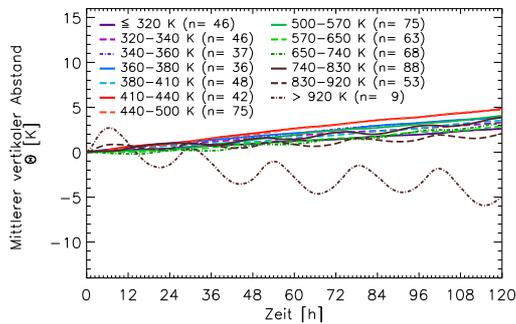
(d) Vertikaltransport:  
aktuell - isentrop



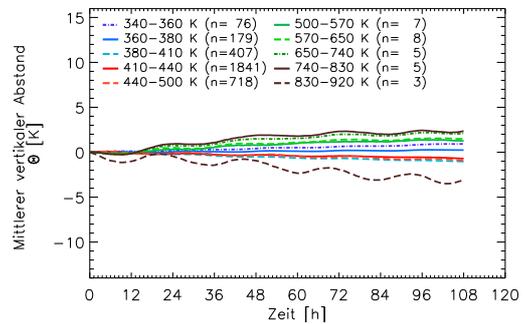
(e) Kombination:  $1.25^\circ$ , L59, aktuell -  $2.5^\circ$ , L25, klimatologisch



(f) Vorwärts-/Rückwärts-Test  
( $1.25^\circ$ , L25, aktuell)



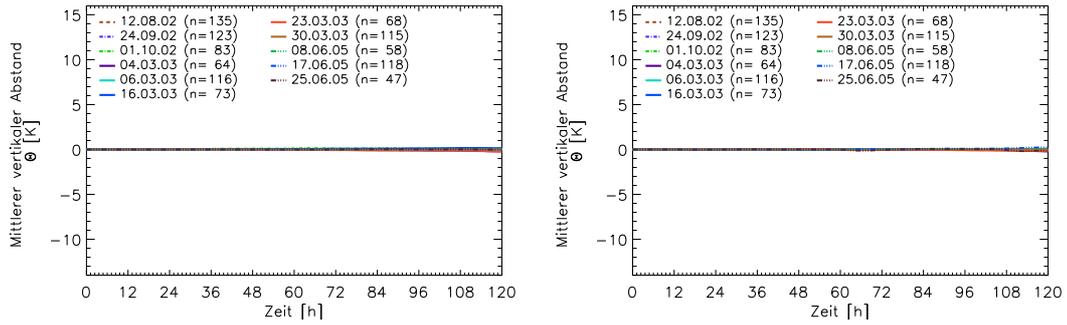
(g) FUB ( $2.5^\circ$ , L25, aktuell) - AWI



(h) FUB ( $2.5^\circ$ , L25, aktuell) - CLaMS

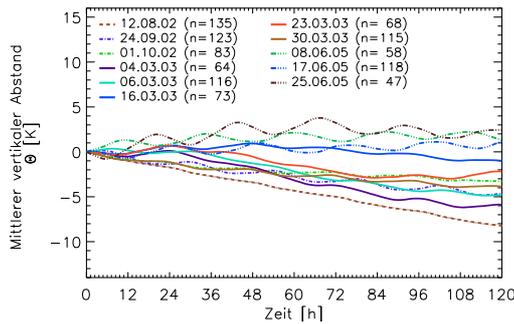
$n$  = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Text auf S. 238

Abb. B.9.: Mittlerer vertikaler Abstand (potentielle Temperatur) zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Vorwärtstrajektorien klassifiziert nach  $\Theta_{t=0}$

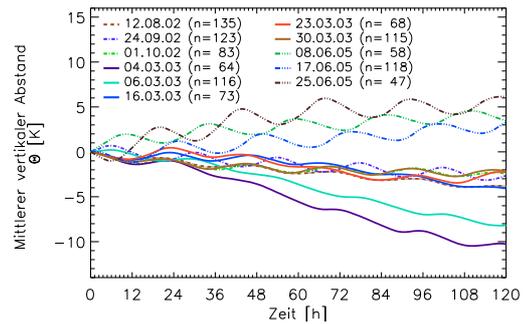


(a) Horizontale Auflösung:  $1,25^\circ - 2,5^\circ$

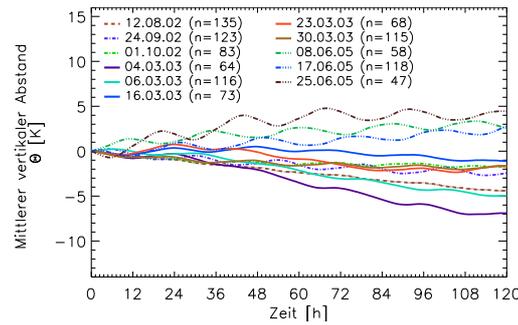
(b) Vertikale Auflösung: L59 – L25



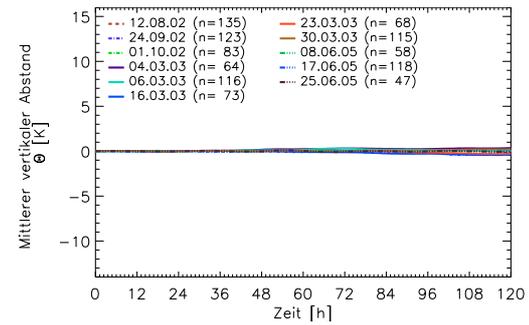
(c) Vertikaltransport:  
aktuell – klimatologisch



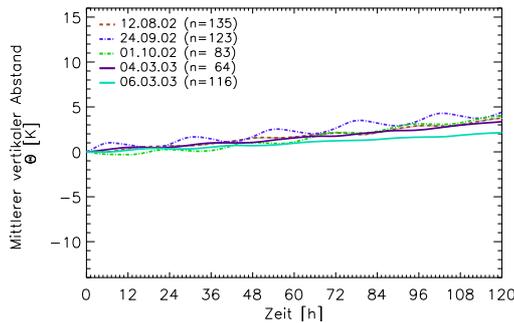
(d) Vertikaltransport:  
aktuell – isentrop



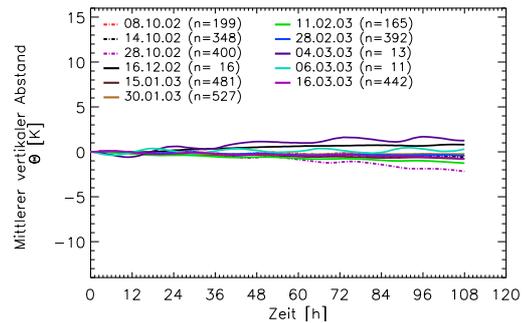
(e) Kombination:  $1,25^\circ$ , L59, aktuell –  $2,5^\circ$ , L25, klimatologisch



(f) Vorwärts-/Rückwärts-Test  
( $1,25^\circ$ , L25, aktuell)



(g) FUB ( $2,5^\circ$ , L25, aktuell) – AWI



(h) FUB ( $2,5^\circ$ , L25, aktuell) – CLaMS

— Hohe Breiten    - - - Hohe Breiten, Sommer    - · - · Mittlere Breiten    - - - Subtropen    - · - · Tropen

n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Text auf S. 238

Abb. B.10.: Mittlerer vertikaler Abstand (potentielle Temperatur) zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen für Vorwärtstrajektorien mit  $\Theta_{t=0} > 380$  K

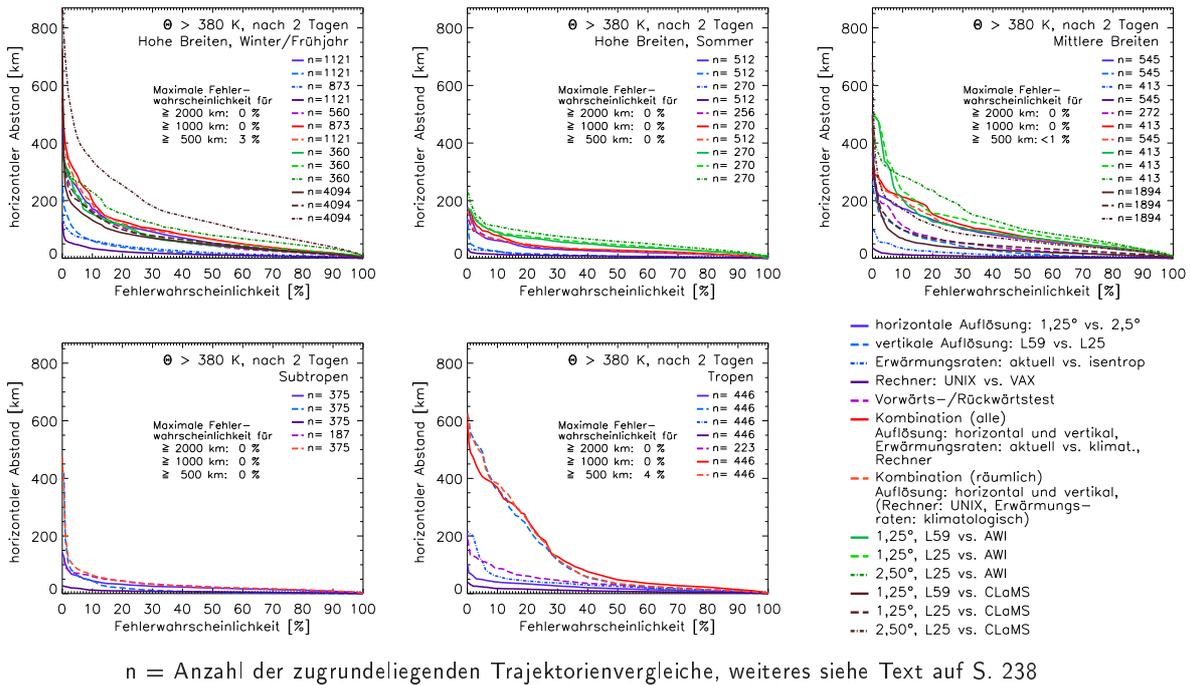


Abb. B.11.: Wahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen nach 2 Tagen in Abhängigkeit von der geografischen Lage ( $\Theta_{t=0} > 380 \text{ K}$ )

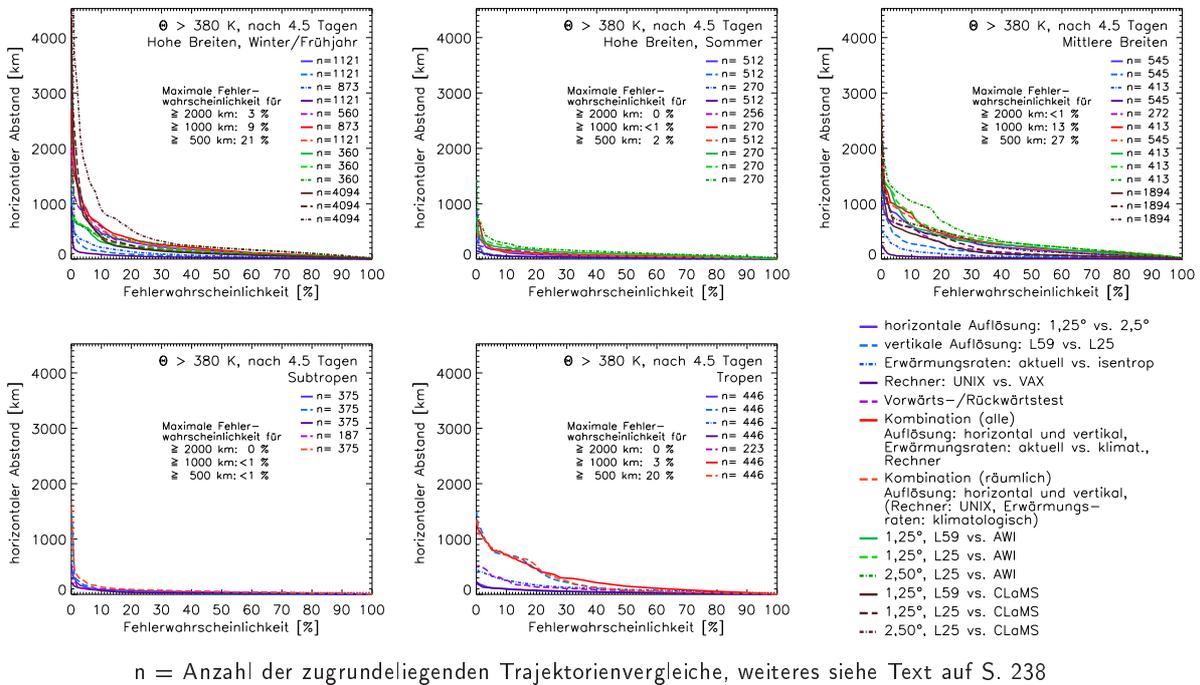
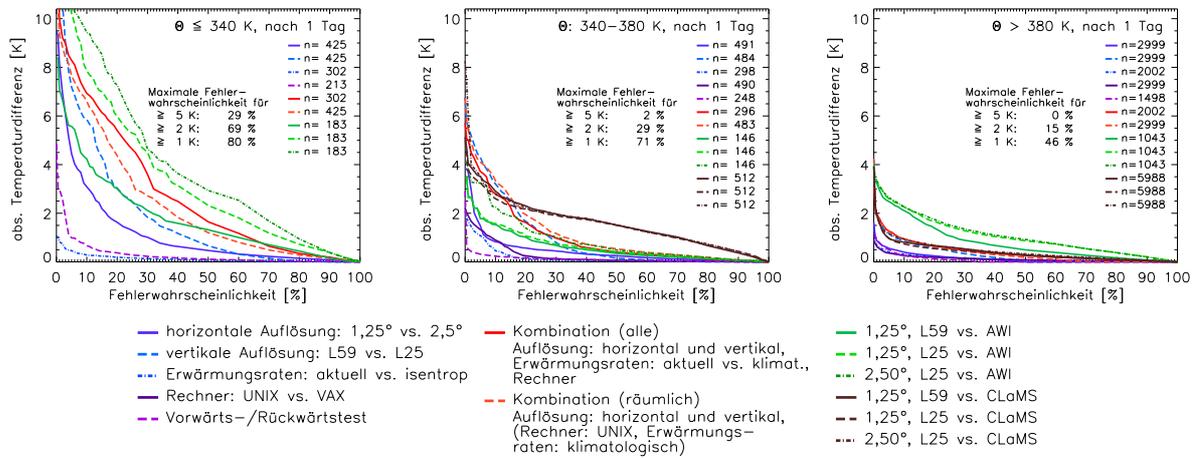
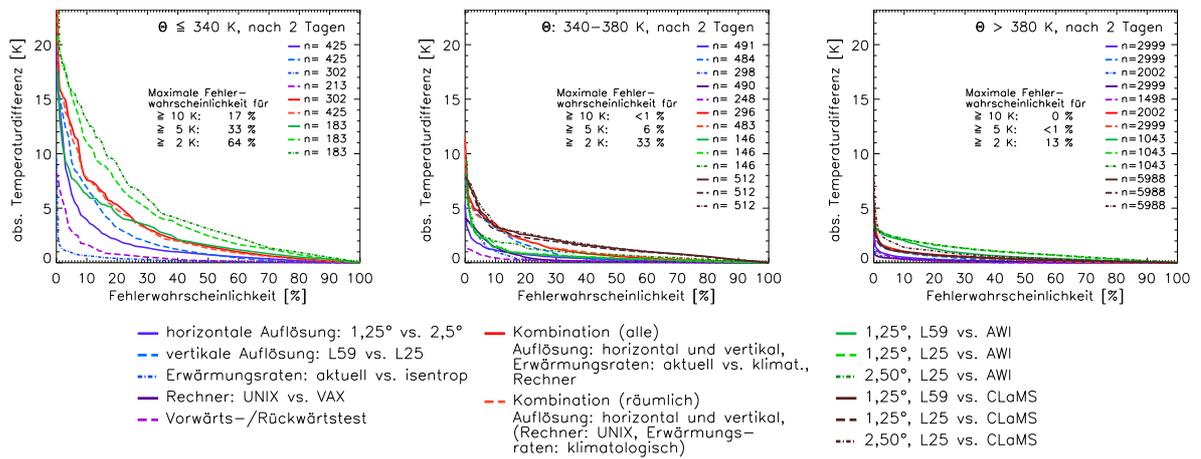


Abb. B.12.: Wahrscheinlichkeit für den horizontalen Abstand zwischen verschiedenen Trajektorienrechnungen nach 4,5 Tagen in Abhängigkeit von der geografischen Lage ( $\Theta_{t=0} > 380 \text{ K}$ )



n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. B.13.: Fehlerwahrscheinlichkeit für die Temperatur [K] nach einer Transportzeit von einem Tag für links:  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K, Mitte:  $340 \text{ K} < \Theta_{t=0} \leq 380$  K, rechts:  $\Theta_{t=0} > 380$  K



n = Anzahl der zugrundeliegenden Trajektorienvergleiche, weiteres siehe Tab. 5.1, Tab. 5.3 und Text auf S. 84f

Abb. B.14.: Fehlerwahrscheinlichkeit für die Temperatur [K] nach einer Transportzeit von 2 Tagen für links:  $\Theta_{t=0} \leq 340$  K, Mitte:  $340 \text{ K} < \Theta_{t=0} \leq 380$  K, rechts:  $\Theta_{t=0} > 380$  K



# C. Ergänzende Informationen zur ENVISAT-Validierung

## C.1. Datenbasis für die Messorte von SCIAMACHY und MIPAS-E

### C.1.1. SCIAMACHY

Für SCIAMACHY werden vom SCIAMACHY Operational Support Team (SOST) für die Nadir- und Limb-Messungen Dateien bereitgestellt [SOST, 2006], die die geplanten Messpunkte und -zeiten für einen einzelnen ENVISAT-Orbit enthalten. Abbildung C.1 zeigt beispielhaft den Anfang einer solchen Datei für SCIAMACHY-Limb-Messpunkte. Die Daten für die Nadir-Messungen sind entsprechend aufgebaut. Für eine Limb-Messung, die aus einzelnen Sondierungen über den gesamten Höhenbereich von 0 bis 100 Kilometern besteht, ist der zeitliche Beginn (Start) und das Ende (Stop) der Mess-Sequenz in UT angegeben. Sowohl für die Start- als auch für die Stop-Zeit sind verschiedene geografische Orte aufgelistet. Dabei stehen

- *LEFT\_W* bzw. *RIGHT\_W* für den äußersten linken bzw. rechten Punkt bei Messungen über 960 Kilometer Breite (W für englisch wide = weit),
- *LEFT\_S* bzw. *RIGHT\_S* für den äußersten linken bzw. rechten Punkt bei Messungen über 120 Kilometer Breite (S für englisch small = schmal) und
- *MID* für den Mittelpunkt der Messung.

Auch innerhalb einer Nadir-Messung können mehrere Scans erfolgen, die insgesamt die schmale oder weite Breite ergeben. In einem weiteren Nadir-Modus (*pointing*) wird der Punkt direkt unter dem Satelliten mehrfach vermessen, ohne dass ein Scan quer zur ENVISAT-Flugbahn erfolgt. Wie die Mess-Sequenz tatsächlich ausgeführt wird, d.h. über welche Breite gemessen wird, lässt sich anhand der ebenfalls angegebenen *State-ID* ermitteln. Aus der *State-ID* sind weitere Details zu den Mess-Sequenzen ableitbar (z.B. Dauer der Messung, Breite der einzelnen Scans, Orbitalposition; siehe auch SOST [2006]). Die Tabellen C.1 und C.2 zeigen die Limb- bzw. Nadir-State-Ids und die dazugehörigen Orbitalpositionen. Die Orbitalposition gibt Aufschluss darüber, unter welchen Lichtverhältnissen die SCIAMACHY-Messung durchgeführt werden soll. Auch kurz vor dem Erreichen bzw. kurz nach dem Verlassen der von der Sonne beschienenen Erdseite durch den Satelliten ENVISAT werden nominale SCIAMACHY-Messungen durchgeführt (siehe auch

Feb 20 2004 13:29		SCIAL_SIM_10798_geolocation.txt					Page 1				
<pre> ENVISAT Swath Geolocation File FILENAME = SCIAL_SIM_10798_geolocation.txt PHASE_START = +002 CYCLE_START = +025 REL_START_ORBIT = +00223 ABS_START_ORBIT = +10798 REPEAT_CYCLE = +35&lt;days&gt; CYCLE_LENGTH = +501&lt;orbits&gt; REL_REF_ORBIT = +00432 ABS_REF_ORBIT = +00486 REF_ANX_TIME = 04-APR-2002 00:37:34.262318 REF_ANX_LONGITUDE = +320.612549&lt;deg&gt; (ROE) -039.387451&lt;deg&gt; (ESOV) ANX_TIME = 24-MAR-2004 10:12:25.280282 ANX_LONGITUDE = +176.899963&lt;deg&gt; (ROE) 176.899963&lt;deg&gt; (ESOV) SWATH = SCIALL (Start) / SCIALH (Stop) SWATH_DESCRIPTOR = SCIAMACHY LIMB LOW/HIGH SWATH_TEMPLATE = SCIALL_501/SCIALH_501 SWATH_DEFINITION_FILE = MPL_SW_DETVRGT20020403_103845_00000000_XXXXXXXXX_20020404_003734_20781231_235959.N1 SWATH_CONTROL_FILE = SCIALL_SIM_10798.scf/SCIALH_SIM_10798.scf REFRACTION_MODEL = PRED_REF FREQ=+0300000000&lt;MHZ&gt; NUM_STATES = +00031 TIME = &lt;sec&gt; LEFT/MID/RIGHT = &lt;deg&gt; Auxiliary File ROE-FILE = MPL_ORB_EVVRGT20020305_174945_00000000_00000002_20020301_025355_20020617_215929.N1 TEMPLATE-FILE = SCIALL_501.N1 CTI-FILE(S) = mpl_cti_31_030910_new_converter COLOR-FILE(S) = mpl_csi_31_030908.txt FILE_GENERATION = 17-02-2004 </pre>											
INDEX	STATE_ID	ORBIT	ELAPS.	TIME	UTC	COORD	LEPT_W	LEPT_S	MID	RIGHT_S	RIGHT_W
01	28	Start	10798	0594.999531	24-MAR-2004 10:22:19.999531	LONG	+148.57	+155.55	+156.55	+157.72	+165.93
		Stop	10798	0650.870625	24-MAR-2004 10:23:15.870625	LAT	+059.29	+061.23	+061.50	+061.63	+062.51
						LONG	+147.88	+154.65	+155.62	+156.76	+164.75
						LAT	+060.74	+062.57	+062.83	+062.96	+063.81
02	28	Start	10798	0650.870625	24-MAR-2004 10:23:15.870625	LONG	+145.27	+152.81	+153.89	+155.20	+164.34
		Stop	10798	0706.741719	24-MAR-2004 10:24:11.741719	LAT	+062.29	+064.37	+064.67	+064.81	+065.79
						LONG	+144.35	+151.69	+152.73	+154.01	+162.96
						LAT	+063.72	+065.70	+065.98	+066.12	+067.07
03	28	Start	10798	0706.741719	24-MAR-2004 10:24:11.741719	LONG	+141.27	+149.43	+150.59	+152.07	+162.41
		Stop	10798	0762.612813	24-MAR-2004 10:25:07.612813	LAT	+065.20	+067.46	+067.78	+067.94	+069.05
						LONG	+140.04	+147.98	+149.12	+150.57	+160.74
						LAT	+066.60	+068.76	+069.07	+069.23	+070.32
04	28	Start	10798	0762.612813	24-MAR-2004 10:25:07.612813	LONG	+136.34	+145.12	+146.37	+148.07	+159.92
		Stop	10798	0818.483906	24-MAR-2004 10:26:03.483906	LAT	+067.98	+070.46	+070.82	+071.00	+072.28
						LONG	+134.65	+143.19	+144.41	+146.09	+157.82
						LAT	+069.34	+071.73	+072.07	+072.25	+073.54
05	29	Start	10798	0957.423531	24-MAR-2004 10:28:22.423531	LONG	+106.41	+113.56	+114.58	+117.33	+136.61
		Stop	10798	1013.294625	24-MAR-2004 10:29:18.294625	LAT	+075.63	+079.30	+079.82	+080.22	+083.01
						LONG	+101.41	+106.84	+107.61	+110.07	+127.24
						LAT	+076.51	+080.05	+080.56	+080.98	+083.91
06	29	Start	10798	1013.294625	24-MAR-2004 10:29:18.294625	LONG	+092.90	+095.42	+095.78	+097.86	+112.41
		Stop	10798	1069.165719	24-MAR-2004 10:30:14.165719	LAT	+076.69	+080.63	+081.19	+081.71	+085.33
						LONG	+086.78	+086.73	+086.72	+087.78	+095.19

Abb. C.1.: Ausschnitt aus einer von SOST bereitgestellten Datei für SCIAMACHY-Limb-Messungen

Tab. C.1.: State-Ids und Orbitalpositionen für SCIAMACHY-Limb-Messungen

Orbital- position [°]	Limb (960 km)		Limb (120 km)	
	Akronym	State-ID	Akronym	State-ID
< -20	limb01	<i>28</i>	limb08	<i>35</i>
-20 – -12	limb02	29	limb09	36
-12 – 9	limb03	30	limb10	37
9 – 20	limb04	31	limb11	34
20 – 125	limb05	32	limb12	41
125 – 146	limb04	31	limb11	34
146 – 157	limb03	30	limb10	37
> 157	limb06	<i>33</i>	limb13	<i>40</i>
<i>kursiv</i> : von der Validierung ausgeschlossene State-IDs.				

Abbildung 3.4b). Die Messorte dieser Mess-Sequenzen werden dabei je nach Höhenbereich nur teilweise vom Sonnenlicht erreicht. Eine korrekte Auswertung der so gewonnenen Daten ist nicht möglich, so dass diese Mess-Sequenzen entsprechend der Tabellen C.1 und C.2 von der Suche nach für die Validierung geeigneten Messpunkten (siehe Kapitel 6.1.2) ausgeschlossen werden.

Tab. C.2.: State-Ids und Orbitalpositionen für SCIAMACHY-Nadir-Messungen

Orbital- position [°]	Nadir (960 km)		Nadir (120 km)		Nadir (pointing)	
	Akronym	State-ID	Akronym	State-ID	Akronym	State-ID
< -3	nad01	<i>1</i>	nad09	<i>9</i>	nad23	<i>23</i>
-3 – 5	nad02	2	nad10	10	nad24	24
5 – 16	nad03	3	nad11	11	nad25	25
16 – 26	nad04	4	nad12	12	nad26	42
26 – 36	nad05	5	nad13	13	nad27	43
36 – 70	nad06	6	nad14	14	nad28	44
70 – 110	nad07	7	nad15	15	nad29	45
110 – 144	nad06	6	nad14	14	nad28	44
144 – 154	nad05	5	nad13	13	nad27	43
154 – 164	nad04	4	nad12	12	nad26	42
164 – 175	nad03	3	nad11	11	nad25	25
175 – 183	nad02	2	nad10	10	nad24	24
> 183	nad01	<i>1</i>	nad09	<i>9</i>	nad23	<i>23</i>

*kursiv*: von der Validierung ausgeschlossene State-IDs.

### C.1.2. MIPAS-E

#### ESA-Planung

Die geplanten Messpunkte für MIPAS-E werden von der ESA als Excel-Datei zur Verfügung gestellt. Mit Hilfe eines Excel-Makros lassen sich die geplanten Messorte und -zeiten in einem anzugebenden Umkreis um einen Kampagnenort berechnen und als Text-Datei abspeichern. Abbildung C.2 zeigt beispielhaft einen Ausschnitt aus einer so erzeugten Datei, die alle in einem Abstand von 9900 Kilometern (*MaxDist*) um den Nordpol (*Lat\_GS=90*, *Lon\_GS=0*) durchzuführenden MIPAS-E-Sequenzen enthält. Die Datei enthält damit alle in der Nordhemisphäre stattfindenden MIPAS-E-Messungen und dient sowohl für Aire sur l'Adour (Frankreich) als auch für Kiruna (Schweden) als Eingangsdatei für die Suche nach MIPAS-E-Messungen entlang der Luftmassen-Trajektorien (siehe Kapitel 6.1.2). Für Teresina (Brasilien) werden entsprechende Dateien erzeugt, die ebenfalls im Abstand von 9900 Kilometern alle MIPAS-E-Messungen um 5° Süd/40° West enthalten. Ähnlich wie bei den SCIAMACHY-Messungen ist für eine einzelne Sequenz jeweils für den ersten und den letzten Scan der Sequenz die Zeit, die geografische Lage und die Höhe des Scans angegeben. Außerdem ist ersichtlich, ob die Sequenz in einem Orbit mit nominalen Messungen stattfindet oder ob in diesem Orbit spezielle Operationen (z.B. zur Kalibrierung) geplant sind.

Messungen aus folgenden Orbits kommen dementsprechend als Validierungsmessungen (siehe Kapitel 6.1.2) nicht in Frage:

- *LOS ORBIT (PRIME)*

In diesen Orbits erfolgt eine Sichtlinien-Kalibrierung (*englisch: Line of Sight = LOS*) für MIPAS-E. Es werden keine nominalen Messungen durchgeführt.

MIPAS_10751_10800_90_0_9900_Bsp.prn										Page 1
Orbit	Start	10751	21.03.2004	03:33						
	Stop	10800	filename = MIPAS_STARTORBIT_STOPORBIT_LAT_LON_DIST.prn							
Lat_GS		90	Lat (deg), Lon (deg)							
Lon_GS		0	Dist (km) = Max. Distance from Lat/Lon							
MaxDist		9900	file created on 17.02.2004 by FU Berlin based on ESA tools							
Scan	Sweep	Orbit	ANX	Time	Date	Latitude	Longitude	Altitude(km)	Distance_GS	
Scan	Sweep	Orbit	ANX	Time	Date	Latitude	Longitude	Altitude(km)	Distance_GS(km)	
1	1	10751	574.30061	21.03.2004	03:33:51	9.47928	280.05012	67.16591	8963.53010	
1	17	10751	645.50944	21.03.2004	03:35:02	12.37067	279.51521	6.34176	8641.66122	
NOMINAL ORBIT										
...										
72	1	10753	432.09312	21.03.2004	06:52:41	1.12617	231.66254	67.18642	9893.39449	
72	17	10753	503.30195	21.03.2004	06:53:52	4.02604	231.12308	6.33109	9570.58162	
LOS ORBIT (Backup)										
...										
2	1	10755	655.25999	21.03.2004	10:17:36	14.93508	180.44020	67.17635	8356.19227	
2	17	10755	726.46882	21.03.2004	10:18:47	17.83476	180.04027	6.33883	8033.40199	
ORBIT with WCC										
...										
72	1	10798	432.09312	24.03.2004	10:19:37	1.12617	179.92602	67.18642	9893.39449	
72	17	10798	503.30195	24.03.2004	10:20:49	4.02604	179.38655	6.33109	9570.58162	
NOMINAL ORBIT										
1	1	10798	574.30061	24.03.2004	10:22:00	9.47928	178.01419	67.16591	8963.53010	
1	17	10798	645.50944	24.03.2004	10:23:11	12.37067	177.47928	6.34176	8641.66122	
NOMINAL ORBIT										
2	1	10798	655.25999	24.03.2004	10:23:20	14.93508	179.00307	67.17635	8356.19227	
2	17	10798	726.46882	24.03.2004	10:24:32	17.83476	178.60315	6.33883	8033.40199	
NOMINAL ORBIT										
3	1	10798	736.21937	24.03.2004	10:24:41	19.66677	177.97906	67.20849	7829.46348	
3	17	10798	807.42820	24.03.2004	10:25:53	22.55986	177.58327	6.32652	7507.40524	
...										
...										

Abb. C.2.: Ausschnitt aus einer aus den ESA-Daten abgeleiteten Datei für MIPAS-E-Messungen

- *ORBIT with PROBLEMS or SPECIAL CAL* (bzw. *SPECIAL CAL/MEAS*)

Es werden spezielle Operationen zur Kalibrierung durchgeführt, nominale Messungen finden nicht statt.

Als potentiell für die Validierung von MIPAS-E geeignete Messungen werden Mess-Sequenzen aus folgenden Orbits berücksichtigt:

- *NOMINAL ORBIT*

In diesen Orbits sind nur nominale – für die Validierung geeignete – Messungen geplant.

- *ORBIT with WCC* (Wear Control Cycle), *ORBIT with RGC* (Radiometric Gain Calibration), *ORBIT with WCC and RGC*

Die Kalibrierungs- bzw. Kontrollsequenzen finden im letzten Viertel eines Orbits statt, bis dahin werden nominale Messungen durchgeführt.

- *LOS ORBIT (BACKUP)*

Es sind nominale Messungen geplant, in Ausnahmefällen finden Sichtlinien-Kalibrierungen statt.

## IMK-Daten

Für die Validierungsvergleiche in Kapitel 6.4 wurden die MIPAS-E-Koinzidenzen anhand der vom IMK verfügbaren CH<sub>4</sub>- bzw. N<sub>2</sub>O-Profilen (Version V3O\_8 bzw. V3O\_9, siehe Tab. 6.3) berechnet. Damit konnte die Ermittlung möglicher Koinzidenzen auf solche MIPAS-E-Messungen eingeschränkt werden, bei denen für das jeweilige Spurengas ein vom IMK berechnetes Profil vorhanden ist.

Zum Einlesen der IMK-Daten wurden die vom IMK bereitgestellten IDL-Routinen verwendet<sup>1</sup>. Der Datensatz umfasst neben den Messorten und -zeiten sowie den Spurengasprofilen ergänzende Informationen zur Güte der abgeleiteten Profile in den einzelnen Höhen. Basierend auf diesen Diagnosewerten zur Profilhöhe wurden Daten von den weiteren Untersuchungen ausgeschlossen, bei denen

- für die betrachtete Höhe keine spektralen Daten vorhanden sind (*visibility flag = 0*) oder
- der ermittelte Spurengaswert nicht durch die Messung, sondern durch a priori Informationen bestimmt ist (*diagonal entry of averaging kernel matrix  $\leq 0,1$* ).

Die Messorte und -zeiten für die IMK-Daten stimmen sehr gut mit den von der ESA angegebenen Planungswerten überein. Die angegebenen Zeiten differieren maximal um eine Minute. Die Abweichungen zwischen den IMK-Ortskoordinaten und den von der ESA angegebenen Messorten sind für meisten MIPAS-E-Messungen kleiner als  $0,1^\circ$  geografische Länge bzw. Breite und führen daher zu identischen Koinzidenzen zwischen den Ballonmessungen und MIPAS-E. Lediglich in sehr hohen Breiten ( $> 87^\circ\text{N}$ ) treten etwas größere Unterschiede zwischen den ESA- und den IMK-Messorten auf. Die Differenzen zwischen den Messorten sind hier zwar immer kleiner als 100 km, können aber unter Umständen auch einen Einfluss auf die ermittelten Koinzidenzen zwischen den MIPAS-E- und den Ballonmessungen haben.

Entscheidende Unterschiede zwischen den anhand der ESA-Planung und den basierend auf den IMK-Daten ermittelten Koinzidenzen ergeben sich aufgrund der geringen Verfügbarkeit der IMK-Daten. Ursache dafür sind v.a. Probleme der ESA bei der Datenprozessierung und -bereitstellung. Die geringe Datenverfügbarkeit ist z.T. aber auch darauf zurückzuführen, dass beim IMK nicht alle MIPAS-E-Daten ausgewertet werden. In Anhang C.5 sind die ermittelten MIPAS-E-Koinzidenzen mit den BONBON-Messungen jeweils für die ESA-Planung und für die IMK-CH<sub>4</sub>-Daten dargestellt. Insbesondere für die Messung am 06.03.2003 wird dabei die geringe Verfügbarkeit der IMK-Daten deutlich: es gibt keine Vorwärtsmatches mit IMK-Daten, obwohl anhand der ESA-Planung – unter Berücksichtigung der im Folgenden dokumentierten Messausfälle – eine Vielzahl von Matches ermittelt werden konnte.

## C.2. Messausfälle von SCIAMACHY und MIPAS-E während der Ballonkampagnen

Die Zeiten, in denen die Messgeräte auf ENVISAT aufgrund von unerwarteten Funktionsstörungen ausfallen, werden von der ESA innerhalb weniger Tage nach der Störung via WWW-Seite bekanntgegeben [ESA, 2006]. In den folgenden zwei Tabellen sind diese ungeplanten Messausfälle für SCIAMACHY bzw. MIPAS-E jeweils für einen Zeitraum von fünf Tagen vor bis fünf Tagen nach einer Ballonmessung bzw. -kampagne aufgelistet. Von der endgültigen Berechnung der Luftmassen, die sowohl vom Ballonmessgerät als auch vom ENVISAT-Instrument beprobt wurden, werden die Ausfallzeiten des jeweiligen Satellitengerätes ausgeschlossen.

---

<sup>1</sup> Die IDL-Routinen sind wie die IMK-Daten nach einer Registrierung via <http://www.fzk.de/imk/asf/ame/envisat-data/> verfügbar.

Tab. C.3.: Ausfallzeiten von SCIAMACHY während der Ballonmesskampagnen

Beginn Datum, Zeit (UT)	Ende Datum, Zeit (UT)
<i>Februar/März 2003 (Kiruna, 28.02.–28.03.)</i>	
15.03.2003, 04:21:08	18.03.2003, 17:09:01
20.03.2003, 10:57:34	21.03.2003, 10:40:45

Tab. C.4.: Ausfallzeiten von MIPAS-E während der Ballonmesskampagnen

Beginn Datum, Zeit (UT)	Ende Datum, Zeit (UT)	Beginn Datum, Zeit (UT)	Ende Datum, Zeit (UT)
<i>August 2002 (Kiruna, 13.08.–24.08.)</i>		..	
06.08.2002, 03:23:59	22.08.2002, 02:19:00	<i>Juni/Juli 2005 (Teresina, 03.06.–05.07.)</i>	
<i>Sept. 2002 (Aire sur l'Adour, 19.09.–29.09.)</i>		21.06.2005, 11:37:50	21.06.2005, 12:38:54
28.09.2002, 06:19:02	28.09.2002, 10:11:00	21.06.2005, 16:18:44	21.06.2005, 17:46:17
29.09.2002, 20:29:04	11.10.2002, 13:22:00	27.06.2005, 00:50:15	27.06.2005, 01:06:13
<i>Februar/März 2003 (Kiruna, 28.02.–28.03.)</i>		27.06.2005, 12:22:58	27.06.2005, 12:50:24
07.03.2003, 13:51:12	07.03.2003, 17:52:00	27.06.2005, 14:59:40	27.06.2005, 16:17:12
08.03.2003, 11:22:25	08.03.2003, 17:45:00	29.06.2005, 02:30:33	29.06.2005, 03:24:11
13.03.2003, 13:26:14	13.03.2003, 18:05:00	29.06.2005, 03:24:24	29.06.2005, 05:10:22
15.03.2003, 04:21:08	19.03.2003, 12:55:12	02.07.2005, 21:53:24	02.07.2005, 21:56:31
26.03.2003, 01:30:26	26.03.2003, 11:23:00	03.07.2005, 11:17:19	03.07.2005, 13:01:54
<i>März 2004 (Kiruna, 19.03.–29.03.)</i>		<i>Februar/März 2006 (Kiruna, 24.02.–06.03.)</i>	
19.03.2004, 05:56:22	19.03.2004, 10:04:00	24.02.2006, 07:02:15	24.02.2006, 09:57:08
22.03.2004, 17:17:43	22.03.2004, 21:40:00	24.02.2006, 19:07:33	24.02.2006, 21:41:20
23.03.2004, 15:18:46	23.03.2004, 19:27:00	26.02.2006, 07:43:42	26.02.2006, 10:34:30
24.03.2004, 03:09:24	24.03.2004, 10:48:00	26.02.2006, 20:16:52	26.02.2006, 22:18:41
26.03.2004, 04:18:21	09.08.2004, 04:49:18	27.02.2006, 06:46:32	27.02.2006, 07:02:46
<i>Juni/Juli 2005 (Teresina, 03.06.–05.07.)</i>		28.02.2006, 06:31:37	28.02.2006, 09:31:16
14.06.2005, 14:30:17	14.06.2005, 14:39:36	28.02.2006, 17:23:41	28.02.2006, 18:15:20
15.06.2005, 03:13:26	16.06.2005, 10:15:11	28.02.2006, 18:15:48	28.02.2006, 21:15:27
20.06.2005, 14:38:41	20.06.2005, 14:51:07	01.03.2006, 06:48:24	01.03.2006, 07:40:08
..		01.03.2006, 22:24:49	10.03.2006, 06:48:27

### C.3. Beispiel für eine Textdatei mit ermittelten Matches

Die anhand der Luftmassen-Trajektorien gefundenen Matches werden in einer Textdatei abgespeichert. Eine solche Datei ist für Matches zwischen der Ballonaufstiegsmessung von LPMA/DOAS am 24.03.2004 und SCIAMACHY-Limb in Abbildung C.3 in Ausschnitten gezeigt. Sie enthält zunächst die auf der Grundlage der Rückwärtstrajektorien berechneten Matches und im Anschluss die Matches, die sich aus den Vorwärtstrajektorien ergeben haben.

Im jeweiligen Kopf (gekennzeichnet durch ---) finden sich Informationen zur zugrundeliegenden Trajektoriendatei (z.B. Name der Datei, Anzahl der Trajektorien, horizontale Auflösung der verwendeten meteorologischen Daten), zu den angewendeten Matchkriterien sowie zu den

```

-----
la040324_c5_1day_SCIAL.txt Page 1
-----
--- BA040324.C5B 1-day backward trajectories, total number: 78
--- LPMA/DOAS 20040324 balloon ascent
--- calculated on 20041214, matches on 20041215
--- trajectories based on ECMWF 2.5°x2.5°, climatological heating rates
--- matches calculated to the middle of the satellite scan,
--- criteria: time: 1 h distance: 500 km
--- ENVISAT instrument: SCIA, Scan mode: L
--- planned SCIA geolocations from SOST
--- excluded state id: 1, 9, 23, 28, 33, 35, 40
--- detailed information only if more than 2 trajectories
--- matches one ENVISAT geolocation
--- detailed information only if matched altitude range greater than 1.50 km
-----

Satellite Match: Orbit_nr: 10787 State id: 31
                  date UTC LEFT_W MID RIGHT_W
                  lat lon lat lon lat lon
Start: 20040323 16:10:42.266500 61.05 -68.75 62.48 -77.88 63.94 -87.43
Stop: 20040323 16:11:38.137594 59.95 -70.75 61.20 -79.00 62.57 -87.51
calculated to: 16:10:42 61.84 -78.44
trajectories: total: 78, match with 8 trajectories
distance trajectory point trajectory start
min km lat lon alt date UT lat lon alt date UT
-11 497.6 61.91 -68.94 29.61 040323 1600 67.46 21.91 31.17 040324 1600
-11 422.9 61.89 -70.37 29.85 040323 1600 67.44 21.97 31.42 040324 1600
-11 406.6 61.90 -70.68 29.92 040323 1600 67.42 22.02 31.49 040324 1600
-11 313.0 61.87 -72.47 30.23 040323 1600 67.40 22.07 31.82 040324 1600
-11 188.4 61.94 -74.85 30.69 040323 1600 67.39 22.12 32.30 040324 1600
-11 122.7 62.06 -76.14 30.98 040323 1600 67.37 22.17 32.58 040324 1600
-11 77.1 62.15 -77.12 31.22 040323 1600 67.36 22.22 32.81 040324 1600
-11 50.5 62.28 -78.68 31.59 040323 1600 67.35 22.27 33.16 040324 1600

Satellite Match: Orbit_nr: 10798 State id: 30
                  date UTC LEFT_W MID RIGHT_W
                  lat lon lat lon lat lon
Start: 20040324 10:35:48.904000 65.65 20.77 67.41 10.23 69.07 -1.20
Stop: 20040324 10:36:44.775094 64.63 18.20 66.16 8.70 67.69 -1.40
calculated to: 10:35:48 66.79 9.47
trajectories: total: 78, match with 61 trajectories
distance trajectory point trajectory start
min km lat lon alt date UT lat lon alt date UT
54 498.7 68.25 20.57 11.79 040324 1130 67.95 20.82 11.76 040324 1440
54 497.9 68.28 20.53 12.02 040324 1130 67.95 20.82 11.99 040324 1440
...
54 415.0 70.50 8.47 32.75 040324 1130 67.36 22.22 32.81 040324 1600
54 419.0 70.53 8.32 33.09 040324 1130 67.35 22.27 33.16 040324 1600

+++++
+++ summary BA040324.C5B 1 h 500 km, trajectories total: 78
+++ LPMA/DOAS 20040324 balloon ascent
+++ matched altitude range (alt) is just a 'first guess', there could be gaps
+++ within the altitude range, see detailed information above
orbit date UT lat range lon range ANX time Nr alt dist max time
[°] [°] [km] [km] delay [h]
10787 23.03.04 16:10 60.0 63.9 -87.5 -68.8 1492.47 8 30-32 50-498 23.8
10798 24.03.04 10:35 64.6 69.1 -1.4 20.8 1403.90 61 12-33 371-499 5.4
-----

--- BA040324.C5F 1-day forward trajectories, total number: 78
...

```

Abb. C.3.: Ausschnitt aus einer Datei mit berechneten Matches für die Aufstiegsmessungen während des LPMA/DOAS-Fluges vom 24.03.2004 mit SCIAMACHY-Limb-Messungen

berücksichtigten Messorten des Satelliteninstrumentes. Außerdem ist angegeben, für welche Matches im Folgenden keine Detailinformationen aufgeführt werden. Im gezeigten Beispiel werden Details zu den Matches nur genannt, wenn der Match für mehr als 2 Trajektorien gültig ist und sich über einen Höhenbereich von mehr als 1,5 km erstreckt.

In den Detailinformationen werden zunächst Angaben zur als Match identifizierten Satellitenmessung gemacht. Beispielsweise werden die Orbitnummer, die Startzeit und die Endzeit der

Messung sowie die geografische Lage der Satelliten-Messung mitgeteilt. Der Zeitpunkt und der geografische Ort, die zur Überprüfung der Matchkriterien dienen, ist ebenfalls angegeben. Im Beispiel in Abbildung C.3 wird aus den Mittelpunkten des ersten und des letzten Scans der SCIAMACHY-Limb-Messung durch Mittelwertbildung der Ort und die Zeit bestimmt, auf deren Grundlage die Matchkriterien geprüft werden. Anschließend ist aufgeführt, wieviele Trajektorien der Matchermittlung zugrunde liegen (im Beispiel 78) und für wieviele Trajektorien die Matchkriterien erfüllt sind (im Beispiel 8 bzw. 61). Dann ist für jede einzelne Luftmassen-Trajektorie, für die die Matchkriterien erfüllt sind, für den Zeitpunkt des Matches angegeben, wie groß der zeitliche und räumliche Abstand zum Mittelpunkt der Satellitenmessung war. In den nächsten Spalten (**trajectory point**) wird die Trajektorienposition zum Zeitpunkt des Matches anhand der Orts- und Zeitangaben beschrieben. Im Anschluss (**trajectory start**) werden dieselben Angaben für den Zeitpunkt der Trajektorieninitialisierung – also den Messpunkt der Ballonmessung – gemacht.

In der Zusammenfassung (gekennzeichnet durch **+++**) werden alle gefundenen Matches aufgeführt. In den ersten Spalten wird jeweils über die Satelliten-Messung informiert, für die die Matchkriterien erfüllt sind. Dabei wird z.B. der geografische Bereich, über den sich die Satellitenmessung erstreckt (**lat range, lon range**), mitgeteilt. Es folgen für den Match Angaben zur Anzahl der Trajektorien, zum Höhenbereich und zum räumlichen Abstand zwischen der Satelliten-Messung und den Luftmassen-Trajektorien. Der Höhenbereich ist aus der minimalen und der maximalen Höhe, für den der Match gültig ist, abgeleitet. Mögliche Lücken dazwischen werden nicht berücksichtigt, so dass der Höhenbereich anhand der Detailinformationen überprüft werden muss. In der letzten Spalte (**max time delay**) ist der maximale zeitliche Abstand zwischen der Ballonmessung – bzw. der Initialisierung der Trajektorien – und der Satellitenmessung angegeben. Im Anschluss an die Zusammenfassung für die gefundenen Rückwärtsmatches erfolgt die Beschreibung der Vorwärtsmatches in derselben Weise, wie hier beschrieben.

## C.4. Koinzidenzen zwischen LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen

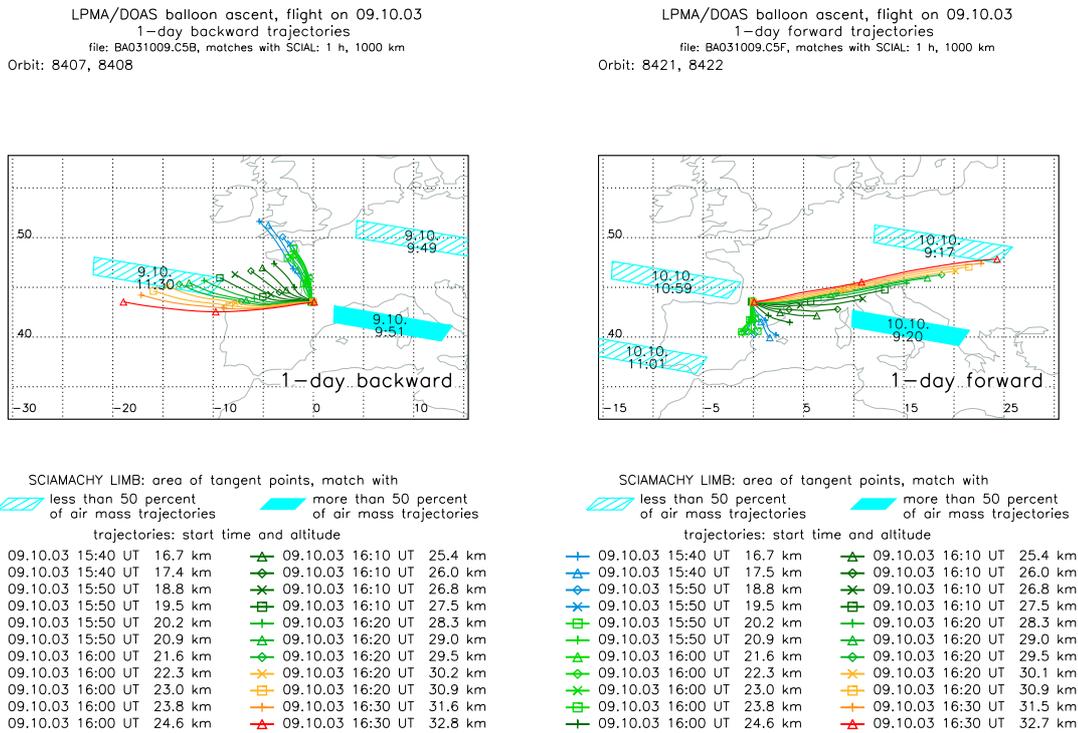


Abb. C.4.: Koinzidenzen von SCIAMACHY-Limb-Messungen mit der LPMA/DOAS-Ballon-aufstiegs-Messung am 09.10.2003 (Aire sur l'Adour) und zugrundeliegende 1-Tages-Trajektorien: (links) Rückwärts-Matches, (rechts) Vorwärts-Matches

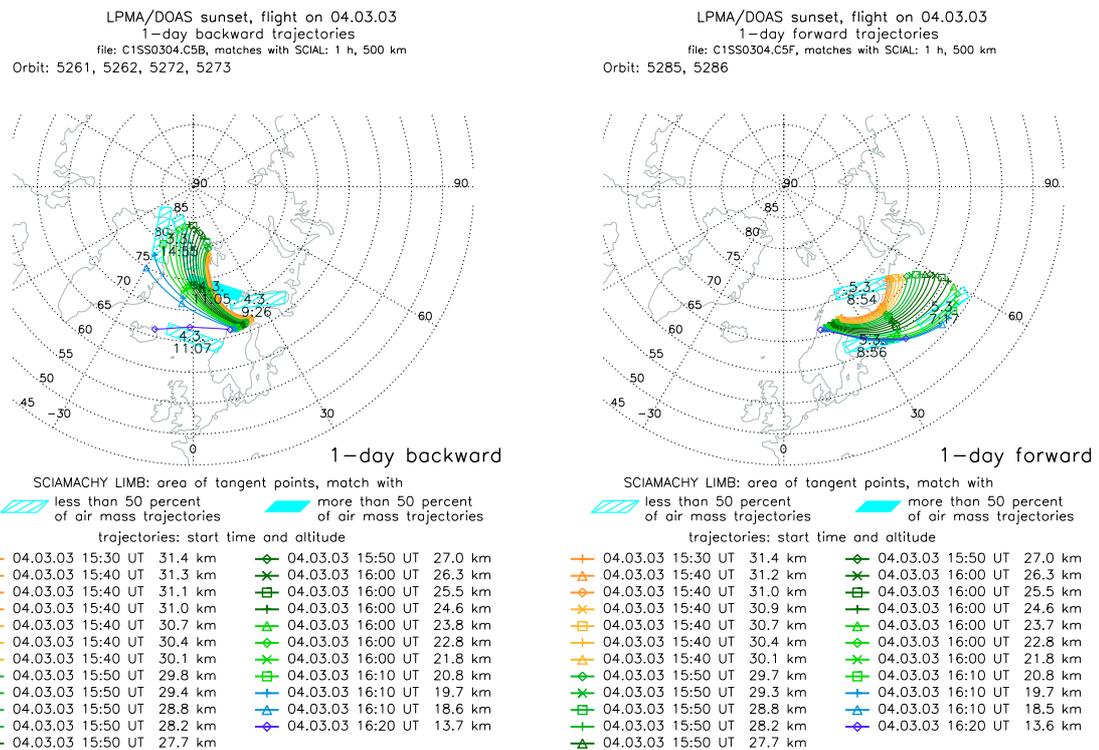


Abb. C.5.: Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 04.03.2003 (Kiruna)

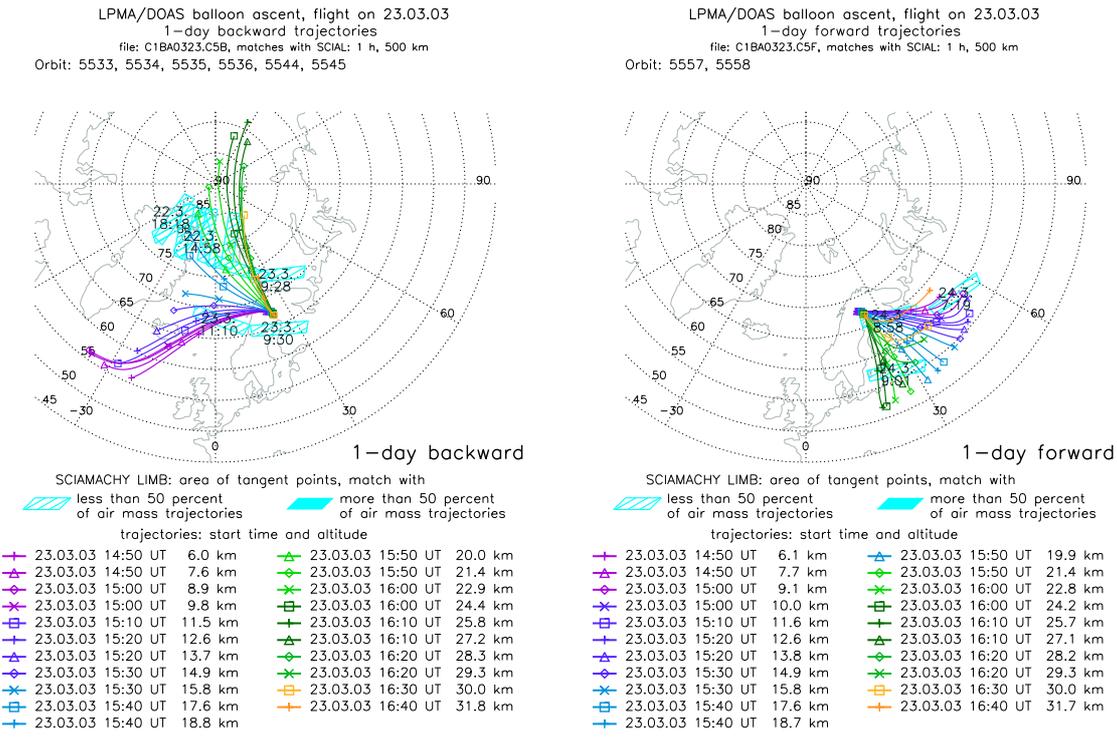


Abb. C.6.: Wie Abbildung C.4 für die Ballonaufstiegs-Messung am 23.03.2003 (Kiruna)

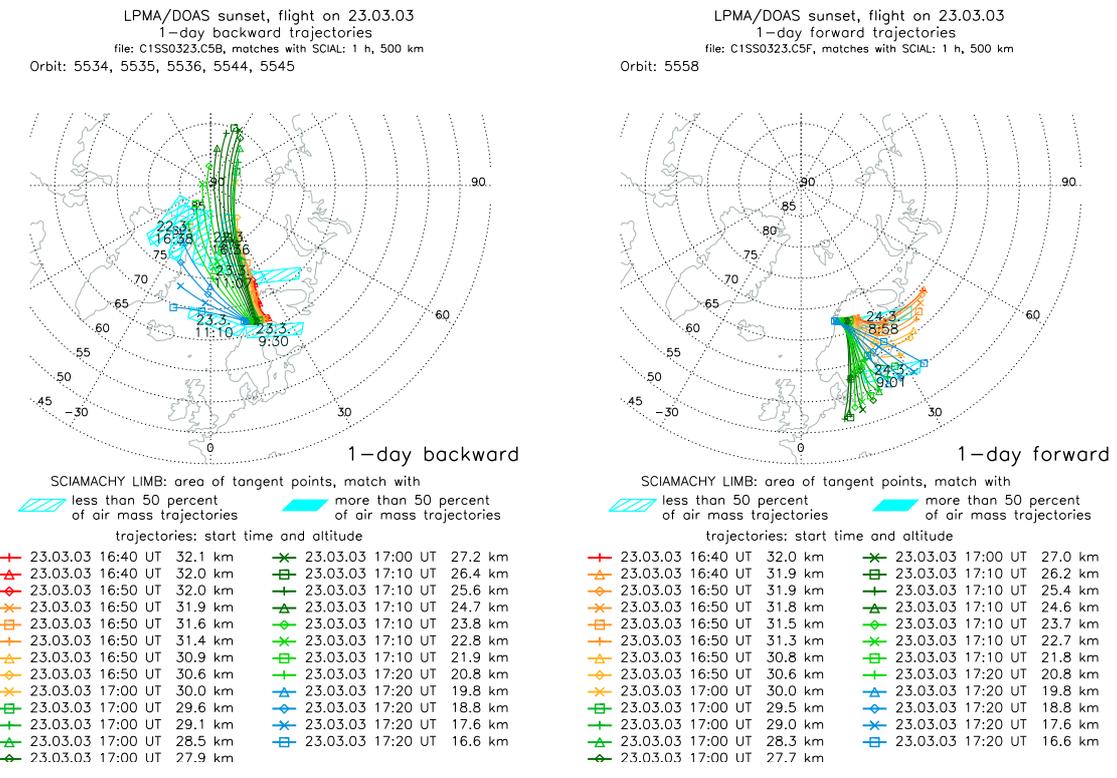


Abb. C.7.: Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 23.03.2003 (Kiruna)

# C.4 Koinzidenzen zwischen LPMA/DOAS- und SCIAMACHY-Limb-Messungen

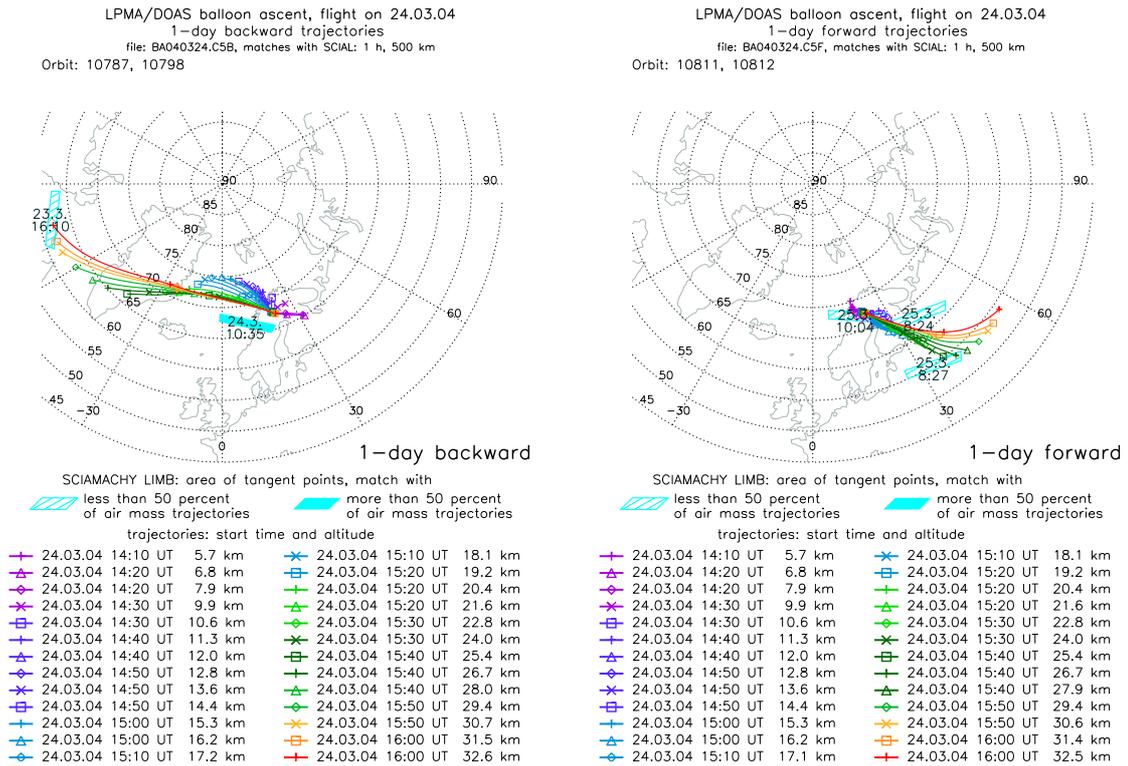


Abb. C.8.: Wie Abbildung C.4 für die Ballonaufstiegs-Messung am 24.03.2004 (Kiruna)

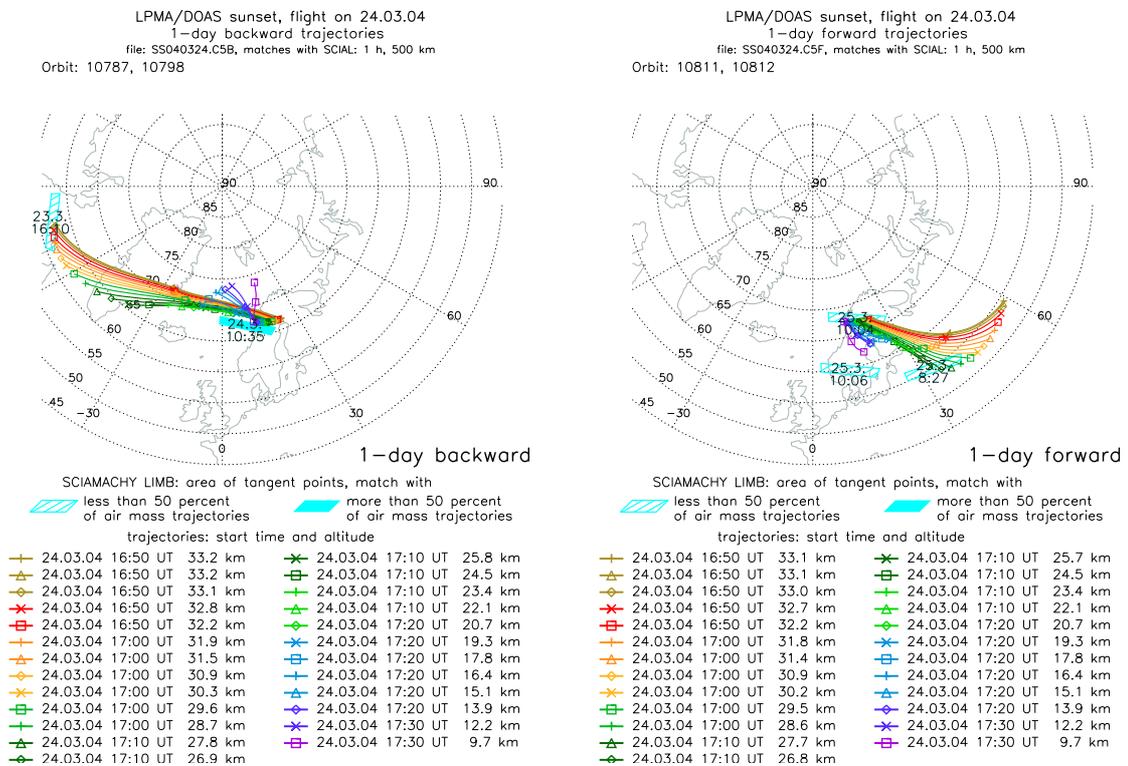


Abb. C.9.: Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 24.03.2004 (Kiruna)

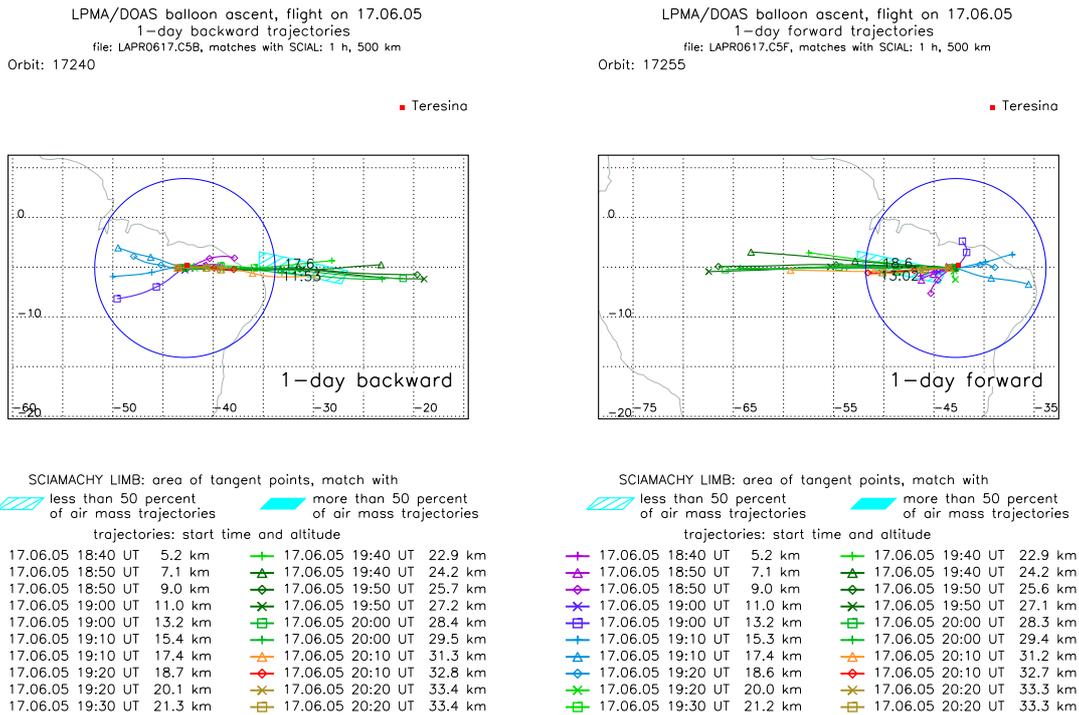


Abb. C.10.: Wie Abbildung C.4 für die Ballonaufstiegs-Messung am 17.06.2005 (Teresina)

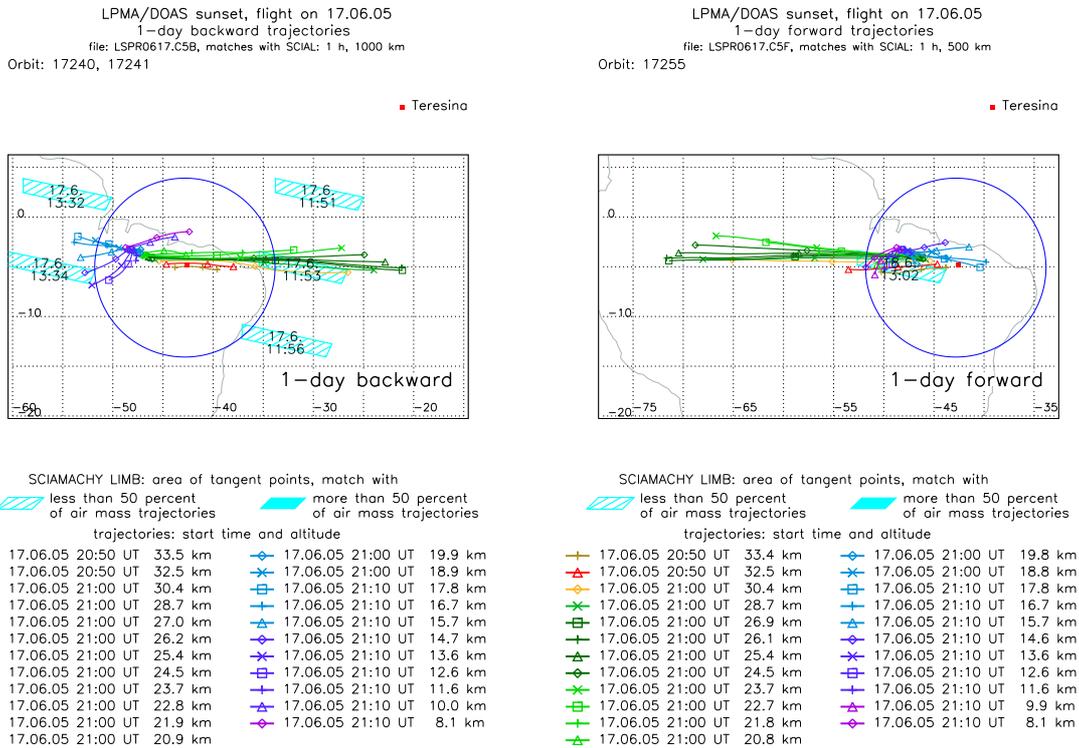


Abb. C.11.: Wie Abbildung C.4 für die Sonnenuntergangs-Messung am 17.06.2005 (Teresina)

## C.5. Koinzidenzen zwischen BONBON- und MIPAS-E-Messungen

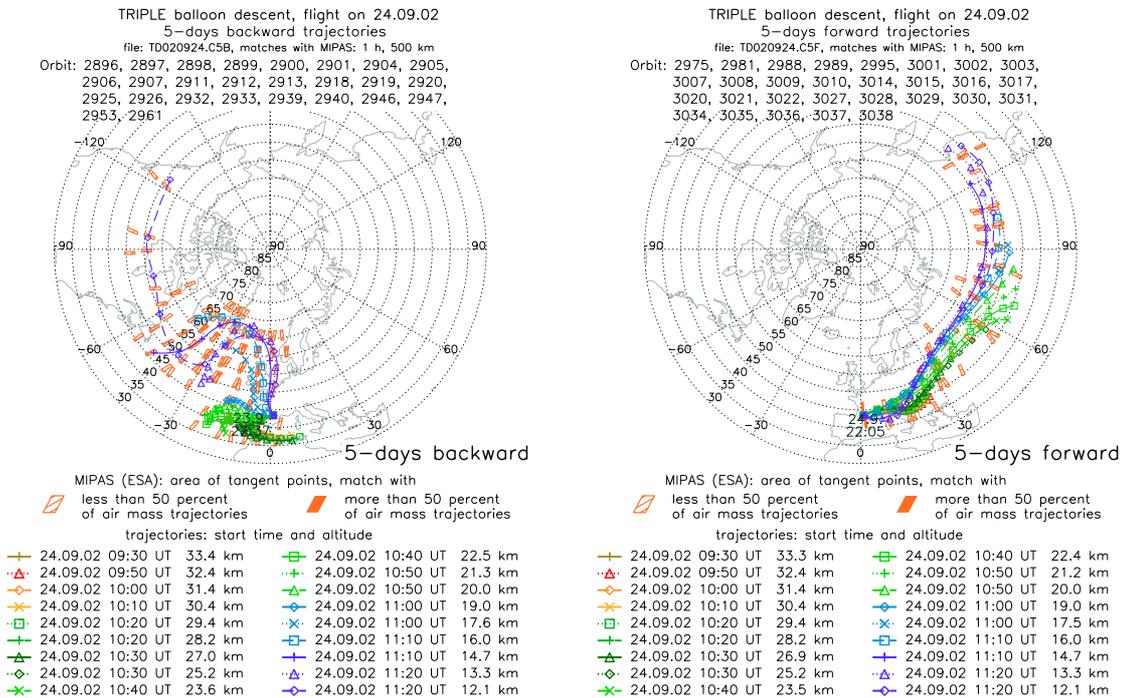


Abb. C.12.: Koinzidenzen von geplanten MIPAS-E-Messungen (ESA) mit der BONBON-Messung am 24.09.2002 (Aire sur l'Adour) und zugrundeliegende 5-Tages-Trajektorien, die basierend auf der geringer aufgelösten FUB-Modellversion (2,5°, L25, klimatologisch) ermittelt wurden: (links) Rückwärts-Matches, (rechts) Vorwärts-Matches

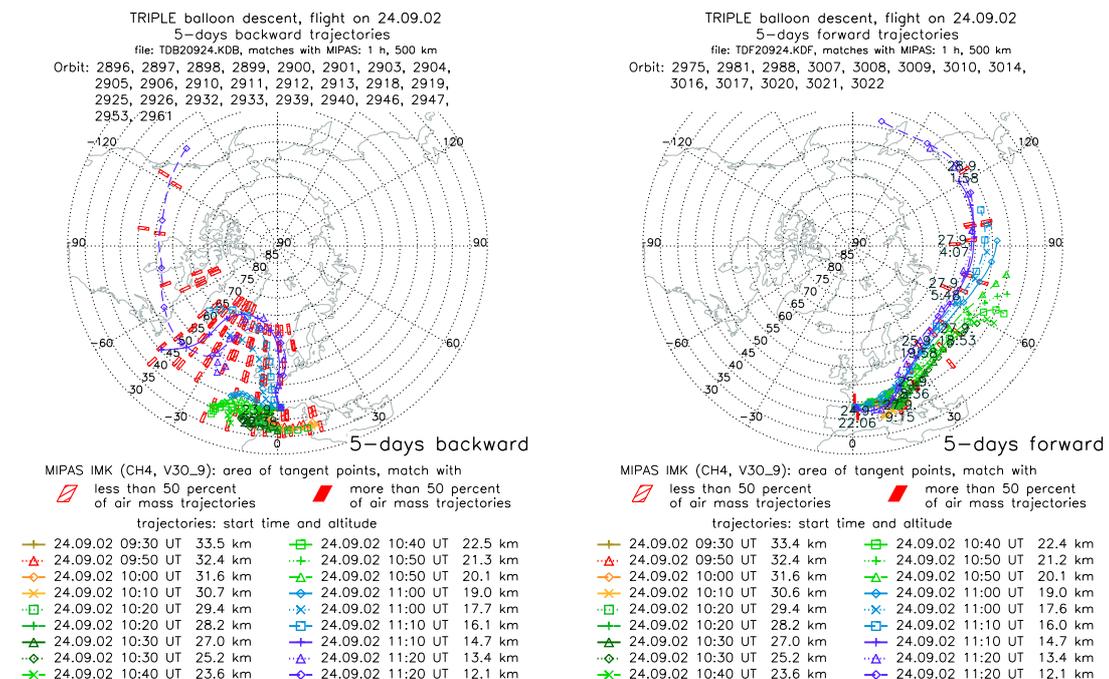


Abb. C.13.: Wie Abbildung C.12 für die verfügbaren CH<sub>4</sub>-Messungen (IMK) und zugrundeliegende 5-Tages-Trajektorien, die basierend auf der höher aufgelösten FUB-Modellversion (1,25°, L59, klimatologisch) ermittelt wurden

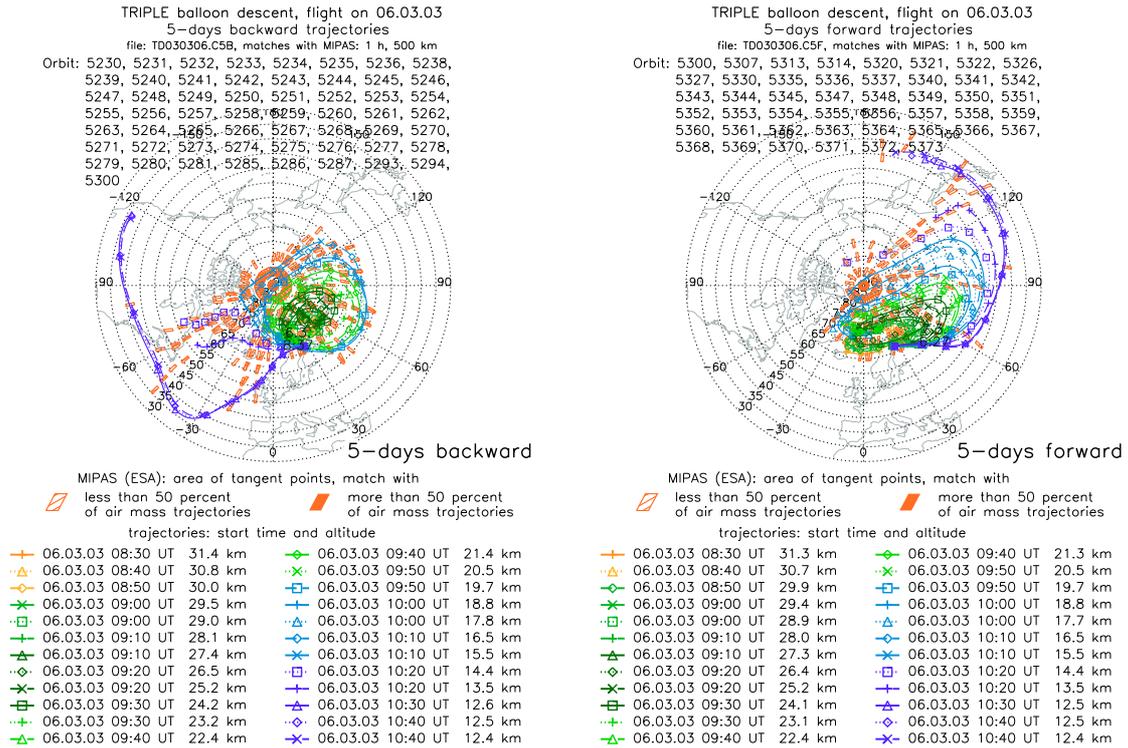


Abb. C.14.: Wie Abbildung C.12 für die BONBON-Messung am 06.03.2003 (Kiruna)

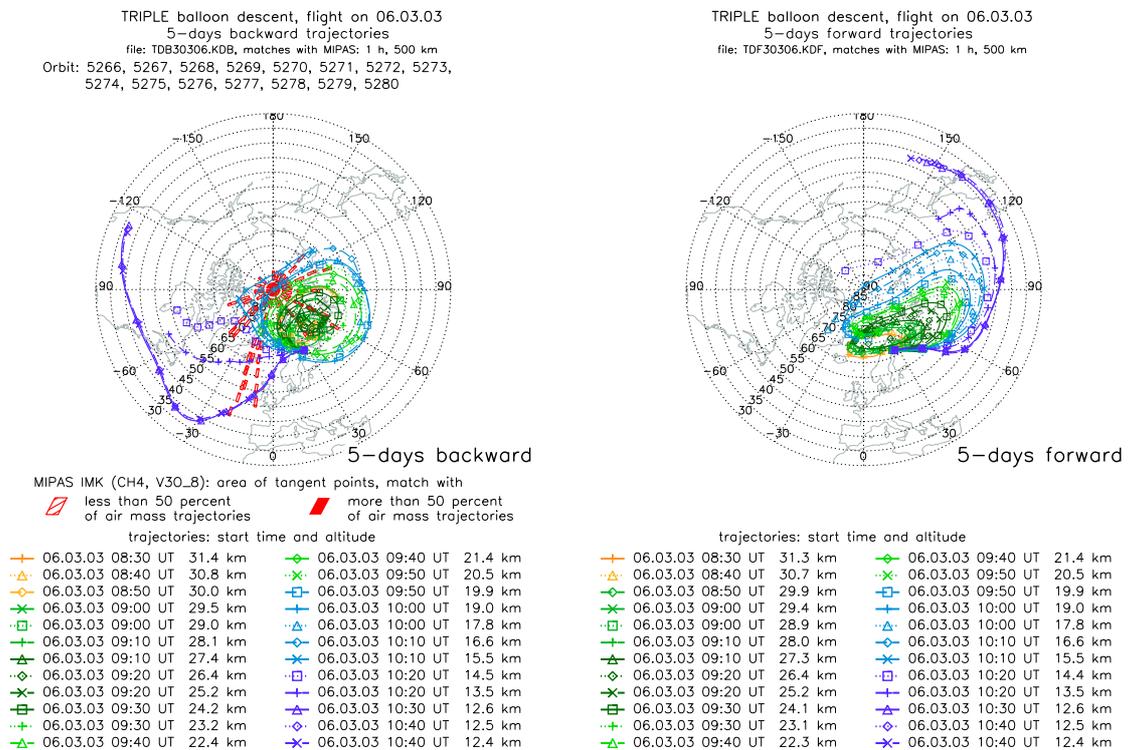


Abb. C.15.: Wie Abbildung C.13 für die BONBON-Messung am 06.03.2003 (Kiruna)

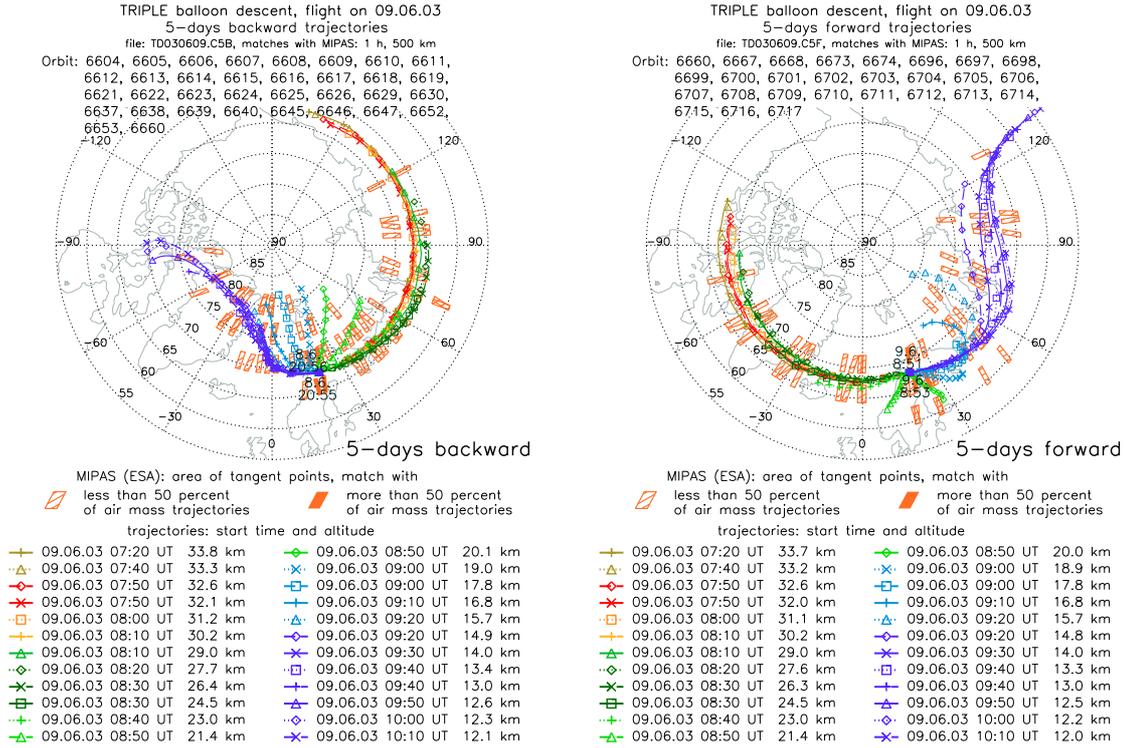


Abb. C.16.: Wie Abbildung C.12 für die BONBON-Messung am 09.06.2003 (Kiruna)

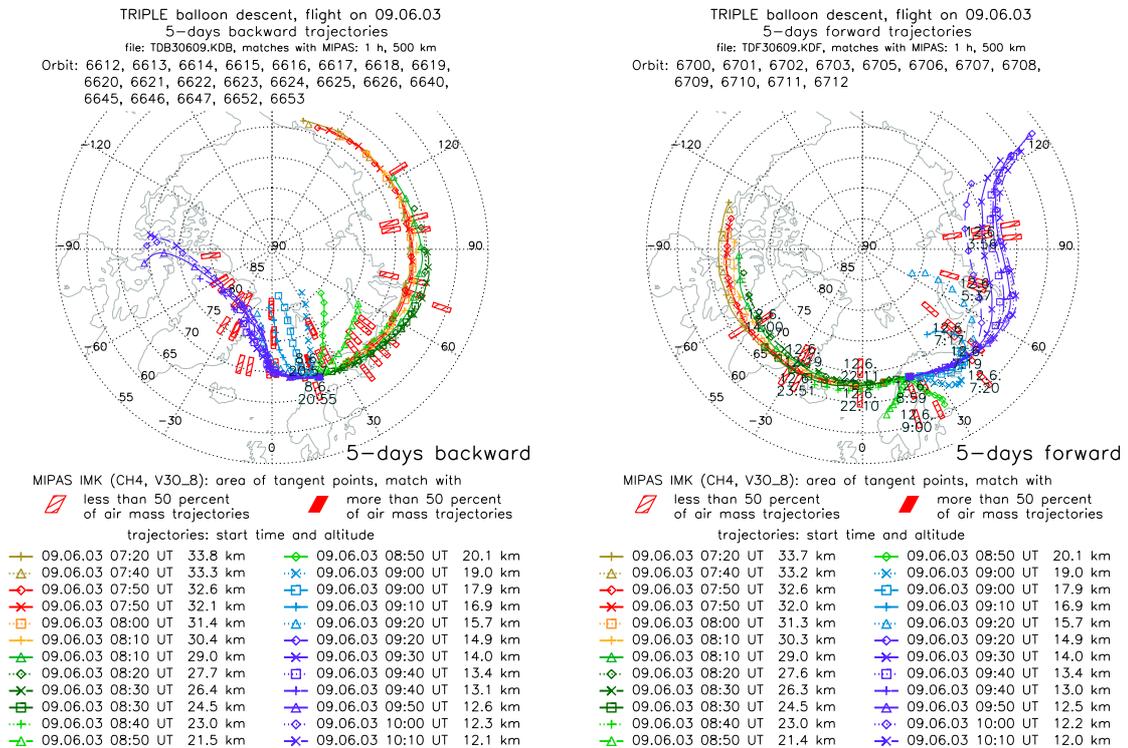


Abb. C.17.: Wie Abbildung C.13 für die BONBON-Messung am 09.06.2003 (Kiruna)



# Danksagung

Ganz herzlich bedanken möchte ich mich bei

Frau Privatdozentin Dr. Ulrike Langematz für die Betreuung dieser Arbeit, die sehr hilfreichen Kommentare und die Möglichkeit, weitgehend eigenständig zu arbeiten.

Herrn Professor Dr. Klaus Pfeilsticker, der die grundlegende Idee zu dieser Arbeit hatte und durch einen Unterauftrag innerhalb des Projektes zur ENVISAT-Validierung auch ihre Finanzierung sicherstellte. Seine schnellen Kommentare waren sehr hilfreich für den Abschluß dieser Arbeit.

Barbara Naujokat, die mich mit der stratosphärischen Synoptik vertraut gemacht hat, und die in der ersten Zeit unser Teilprojekt zur ENVISAT-Validierung leitete.

Frau Professor Dr. Kirstin Krüger und Dr. Renate Treffeisen, die durch ihre vielen, nützlichen Hinweise beide sehr zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Sie haben mich auch immer wieder motiviert, die Arbeit fortzusetzen und zu verbessern.

Dr. Eberhard Reimer, dessen Hilfe unentbehrlich war, um das dieser Arbeit zugrundeliegende Trajektorienprogramm zu verstehen, zu dokumentieren und zu erweitern.

Holger Deckelmann vom AWI für die Hilfe beim Installieren und Betreiben des Programmcodes sowie die hervorragende Zusammenarbeit beim Verbessern des Codes.

Dr. Susann Tegtmeier und Dr. Paul Konopka für ihre Trajektorien, die einen wichtigen Vergleich innerhalb dieser Arbeit ermöglichten. Vielen Dank auch für die hilfreichen Diskussionen.

Dr. Marcel Dorf und Dr. André Butz für die sehr konstruktive Zusammenarbeit, Einblicke in das DOAS-Verfahren und für sehr nützliche Kommentare zu dieser Arbeit. Dr. André Butz außerdem für Berechnungen zur photochemischen Korrektur und die Bereitstellung von Abbildungen.

Dr. Andreas Engel vor allem für die BONBON-Daten und sehr hilfreiche Kommentare zu den BONBON-Abschnitten.

Allen "Balloneuren" für die sehr gute Zusammenarbeit während der Ballonkampagnen und der anschließenden Auswertung, vor allem Hermann Oelhaf und seiner Gruppe.

Pierre Dedieu – dem Meteorologen der CNES – für die tägliche Bereitstellung der geplanten Ballonflugbahn während der Messkampagnen.

Manfred Gottwald (SOST) für die schnelle Beantwortung aller Fragen zu SCIAMACHY.

Michael Kiefer und weiteren Kollegen am IMK für die schnelle Hilfe bei Fragen rund um die MIPAS-E-Daten und die dafür nötigen Tools.

Dr. Martyn Chipperfield für die Bereitstellung der aktuellen Erwärmungsraten.

Frau Professor Dr. Karin Labitzke, die durch die jahrelange Pflege eines Datensatzes eine wesentliche Grundlage für die jetzige Arbeit der Stratosphärengruppe aufgebaut hat und diese Arbeit weiterhin unterstützt.

Allen Mitarbeitern der Stratosphärengruppe, die eine wertvolle Unterstützung für mich waren, insbesondere Dr. Katja Matthes und Anne Kubin für viele motivierende Gespräche und die Hilfe in letzter Minute, Markus Kunze vor allem für die Bereitstellung von Daten und Visualisierungsprogrammen sowie Peter Sinigoj für das sorgfältige Korrekturlesen.

Den ehemaligen Mitarbeitern der Stratosphärengruppe, vor allem Robert Reimer für die Einführung in Unix und weitere computertechnische Fragen und Dr. Chris Marquardt für viele nützliche Idl-Routinen.

Antje Claußnitzer und Dr. Andreas Kerschbaumer vor allem für die moralische Unterstützung, Privatdozent Dr. Peter Névir und Thomas Schartner außerdem für so manche Nachhilfestunde in der Theorie.

Allen meinen Freunden, für das Verständnis dafür, dass ich ganz schön oft keine Zeit hatte.

Christoph, meinen Eltern und meiner Familie für die Unterstützung und die Nachsicht, die vor allem in den letzten Wochen nötig war.