

Messung und Modellierung von Spurengasen in der Mesosphäre und Thermosphäre

Dissertation

vorgelegt von

Martin Kaufmann

Bergische Universität Wuppertal

Fachbereich 8 - Physik

März 2003

WUB-DIS 2003-2

Abstract

The CRISTA experiment (CRyogenic Infrared Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere) measured the global distribution of infrared limb emission spectra during 2 Space Shuttle missions in November 1994 and August 1997. Among other things, CRISTA was able to measure the emissions of carbon dioxide, ozone and atomic oxygen in the mesosphere and lower thermosphere. These species are of special interest, because they play an important role in the energy budget of the upper atmosphere.

The CO₂ 4.3 μm daytime-radiances have been inverted to CO₂ number densities in the 60-130 km altitude range by using a non-local thermodynamic equilibrium model. A detailed sensitivity study of retrieved CO₂ was carried out. The resultant CO₂ volume mixing ratio (vmr) deviates from the constant value (≈ 360 ppm) between 70 and 80 km. This is approximately 10 km lower than indicated by model calculations. The decrease of the CO₂ vmr in the upper mesosphere is caused by molecular diffusion, which is of similar magnitude to turbulent diffusion at these altitudes. Atmospheric models are able to reproduce the CRISTA CO₂ profiles if the vertical eddy diffusion coefficient is reduced by a factor of 5–10. The global distribution of CRISTA-2 CO₂ density shows significant longitudinal and latitudinal structures which are compared with results obtained by the TIME-GCM, showing a very good agreement for the latitudinal distribution which represents the basic patterns of the global circulation.

Ozone 9.6 μm infrared radiances were inverted to O₃ number densities in the 50–95 km altitude range. The ozone abundance profiles indicate vmrs of 1–2 ppmv at the stratopause, 0.5 ppmv or less around 80 km and typically 1 ppmv during daytime and 10 ppmv during night-time at the secondary maximum. The global distribution of upper mesospheric ozone shows significant latitudinal gradients and an enhancement in the equatorial upper mesosphere. ROSE-2 3D-model results indicate that the latitudinal gradients are strongly influenced by solar tides. At the polar night terminator a third ozone maximum is observed around 72 km, which is caused by a shift of the photochemical equilibrium between ozone-producing and destructing processes due to the low solar zenith angles.

CRISTA performed the first global measurement of atomic oxygen 63 μm -radiation. Atomic oxygen densities were retrieved in the 130–175 km altitude regime. The resultant densities are approximately 40% lower than the predictions of the MSIS model for the low solar activity conditions of the CRISTA experiment. Radar measurements in the middle thermosphere show similar results and indicate that the atomic oxygen densities depend much more heavily on solar activity than previously assumed.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Das CRISTA-Experiment	3
2 Kohlendioxid	7
2.1 Bedeutung von CO ₂ in der Erdatmosphäre	7
2.2 Verschiedene Methoden zur Messung von CO ₂ in der oberen Atmosphäre	8
2.3 Simulation der gemessenen Strahlungsdichten	9
2.4 Modellierung der Vibrationsanregung von CO ₂	12
2.5 Verfahren zur Ableitung von CO ₂	17
2.6 Der CRISTA 4,3 μm Kanal	17
2.7 Empfindlichkeitsstudie und Fehleranalyse des Retrievals	22
2.7.1 Fehler des Messgeräts	22
2.7.2 Einflüsse der non-LTE Modellparameter	26
2.7.3 Unsicherheiten durch die Modellierung des O(¹ D)-Profils	27
2.7.4 Bedeutung der kinetischen Temperatur	30
2.8 Ergebnisse des Retrievals	35
2.8.1 Höhenverlauf der CO ₂ -Mischungsverhältnisse	36
2.8.2 Modellierung des CO ₂ -Höhengradienten	37
2.8.3 Vergleich mit anderen Messungen	40
2.8.4 Globale Verteilung der CO ₂ -Dichten	42
2.8.5 Vergleich mit dem TIME-GCM	44
2.9 Zusammenfassung	47
3 Ozon	49
3.1 Ozonchemie in der Mesosphäre	49
3.2 Verschiedene Methoden zur Messung von Ozon in der Mesosphäre	51

3.3	Modellierung der Infrarot-Emissionen	53
3.4	Produktions- und Verlustmechanismen von Ozon	58
3.5	Verfahren zur Ableitung von Ozon	60
3.6	Die CRISTA 9,6 μm -Kanäle	60
3.7	Empfindlichkeitsstudie und Fehleranalyse	63
3.7.1	Instrumentenfehler	64
3.7.2	Fehler durch die non-LTE Modellparameter	65
3.7.3	Unsicherheiten durch atomaren Sauerstoff	66
3.7.4	Empfindlichkeit des Retrievals auf die kinetische Temperatur	68
3.8	Ergebnisse des Retrievals	72
3.8.1	Vergleich mit anderen Experimenten	75
3.8.2	Das dritte Ozonmaximum	79
3.8.3	Strukturen der globalen Zirkulation	86
3.8.4	Gezeitensignaturen am Äquator	90
3.9	Zusammenfassung	91
4	Atomarer Sauerstoff	93
4.1	Bedeutung von atomarem Sauerstoff in der oberen Atmosphäre	93
4.2	Messungen von atomarem Sauerstoff in der Thermosphäre	94
4.3	Modellierung des Feinstruktur-Übergangs	95
4.4	Die CRISTA 63 μm -Kanäle	96
4.5	Ableitung der Sauerstoffdichten	98
4.5.1	Glättung der Strahlungsdichten	100
4.5.2	Effizienz und Fehler der Glättung	102
4.5.3	Weitere systematische Fehler	103
4.6	Ergebnisse des Retrievals	105
4.6.1	Vergleich mit dem MSIS-Modell	105
4.6.2	Die globale Verteilung der Sauerstoffdichten	108

4.7 Zusammenfassung	113
Resümee	115
Danksagung	117
Literaturverzeichnis	119
Anhang	135

Abbildungsverzeichnis

1	Die Messgeometrie von CRISTA	3
2	Fotografie von CRISTA im Orbit	4
3	Breitenabhängigkeit der Lokalzeit und des solaren Zenitwinkels	5
4	Messverfahren der Horizontsondierung	9
5	Termschema der Vibrationszustände von CO ₂	14
6	CO ₂ -Vibrationstemperaturen	16
7	Integrierte 4,3 μm-Strahlungsdichten für verschiedene Sonnenstände	18
8	Simulierte 4,3 μm Spektren	19
9	Optische Tiefe für 4,3 μm-Limbstrahlung	20
10	Herkunft der 4,3 μm-Limbstrahlung	21
11	Empfindlichkeit des CO ₂ -Retrievals auf Strahlungsdichte-Änderungen	25
12	Einfluss der Ratenkonstanten auf das CO ₂ -Retrieval	26
13	Verschiedene O(¹ D)-Profile	28
14	O(¹ D)-Abhängigkeit des CO ₂ -Retrievals	30
15	Temperaturabhängigkeit des CO ₂ -Retrievals	32
16	Temperaturabhängigkeit des CO ₂ -Retrievals an der polaren Sommermesopause	33
17	CO ₂ -Retrieval: Beispielprofile	35
18	CRISTA CO ₂ -Mischungsverhältnisse im Vergleich mit Atmosphären-Modellen	36
19	Modellierung von CO ₂ -Höhenprofilen unter Verwendung verschiedener Eddy-Diffusionskoeffizienten	38
20	Vergleich der CRISTA CO ₂ -Mischungsverhältnisse mit anderen Experimenten	41
21	Globale Verteilung der CRISTA CO ₂ -Dichten	43
22	Höhen-Längenschnitt der CO ₂ -Dichten	44
23	Höhen-Breitenschnitt der CO ₂ -Dichten	45

24	CO ₂ -Mischungsverhältnisse und Totdichten aus dem TIME-GCM	46
25	Mischungsverhältnisse von Ozon und atomarem Sauerstoff aus dem ROSE-2 Modell	49
26	Chemische Lebensdauer von reaktivem Sauerstoff	50
27	Termschema der Vibrationszustände von O ₃	54
28	Änderung der O ₃ ($\nu_3=1$)-Vibrationstemperaturen bei Vernachlässigung der Rekombinationsreaktion $O+O_2\rightarrow O_3^*$	56
29	O ₃ -Vibrationstemperaturen	57
30	Photochemische Produktions- und Verlustmechanismen von Ozon	59
31	Integrierte 9,6 μm -Strahlungsdichten für verschiedene Tageszeiten	61
32	Simulierte 9,6 μm -Spektren	62
33	Optische Tiefe und Herkunft der 9,6 μm -Limbstrahlung	63
34	Wechselwirkung von Ozon mit atomarem Sauerstoff	65
35	O(³ P)-Abhängigkeit des Ozon-Retrievals	67
36	Temperaturabhängigkeit des Ozon-Retrievals	69
37	Temperaturabhängigkeit des Ozon-Retrievals an der polaren Sommermesopause	70
38	O ₃ -Retrieval: Beispielprofile	72
39	Vergleich zwischen gemessenen und gerechneten 9,6 μm -Spektren	73
40	CRISTA Ozon-Mischungsverhältnisse bei Tag	74
41	Tagesgänge von Ozon (ROSE-2 Simulation)	75
42	Ozon-Mischungsverhältnisse bei Tag: Vergleich mit anderen Experimenten	76
43	Ozon-Mischungsverhältnisse bei Nacht: Vergleich mit anderen Experimenten	78
44	Höhen-Breitenschnitte von CRISTA-Ozon	80
45	Höhen-Breitenschnitte von MLS-Ozon	81
46	ROSE-2 Simulation des 3. Ozonmaximums	82
47	Tagesgänge von reaktivem Sauerstoff (ROSE-2 Simulation)	83

48	Photodissoziationskoeffizienten von O_2 und H_2O	85
49	Meridionale Stromfunktion	87
50	Antikorrelation von Ozon und Wasserdampf	89
51	ROSE-2 Simulation für Ozon bei CRISTA-1	91
52	Termschema von $OI(1s^22s^22p^4)$	95
53	Strahlungsdichteprofile und Spektren bei $63\ \mu m$	96
54	Temperaturabhängigkeit der $63\ \mu m$ -Strahlungsdichten	97
55	Optische Tiefe und Herkunft der $63\ \mu m$ -Limbstrahlung	98
56	Test-Retrieval für gering verrauschte $63\ \mu m$ -Strahlungsdichten	99
57	Glättung der CRISTA-2 SCL-5 Strahlungsdichteprofile mit Polynomen	101
58	Güte der Polynomfits	102
59	Fehler der Polynomfits	103
60	$O(^3P)$ -Retrieval: Beispielprofile	105
61	Vergleich zwischen CRISTA- und MSIS-Sauerstoff (Breitenschnitt) . .	106
62	Höhe des $63\ \mu m$ -Strahlungsdichte-Maximums in Abhängigkeit von der $O(^3P)$ -Dichte und dem Temperaturprofil	107
63	Globale Verteilung von atomarem Sauerstoff bei CRISTA und MSIS .	109
64	Höhen-Breitenschnitte von atomarem Sauerstoff	110
65	Meridionale Zirkulation in der Thermosphäre im Nordsommer	111
66	Höhen-Längenschnitte von atomarem Sauerstoff	112
67	Antikorrelation von $O(^3P)$ und CO_2	113
68	Globale Verteilung von NO^+ (TIME-GCM Simulation)	137

Tabellenverzeichnis

1	CRISTA-Messmoden	5
2	Systematische Fehler der CO ₂ -Dichten	23
3	Statistische Fehler der CO ₂ -Dichten	23
4	Systematische Fehler der Ozondichten	64
5	Systematische Fehler der Sauerstoffdichten	104
6	Zeitliche Verteilung der Mesosphären- und Thermosphärenmoden . .	135

Einleitung

Die Mesosphäre und untere Thermosphäre (50–150 km) sind verhältnismäßig unerforschte Regionen der Erdatmosphäre. Im Zusammenhang mit der globalen Klimaänderung ist das Interesse an diesem Gebiet stark gestiegen. Es wird vermutet, dass die Mesopausenregion (80–100 km) besonders empfindlich auf anthropogene Störungen reagiert. Nach Wasserdampf ist CO₂ das wichtigste Treibhausgas in der Atmosphäre. Modellstudien zeigen, dass unter Annahme einer CO₂-Verdopplung im nächsten Jahrhundert die Temperaturen am Erdboden 1–5 K zunehmen, an der Mesopause jedoch etwa 10 K abnehmen werden [*Crutzen, 1997*].

Ein weiteres, wichtiges Spurengas, das die Temperaturverteilung in der mittleren Atmosphäre bestimmt, ist Ozon. Ozon absorbiert UV-Strahlung der Sonne. Dies stellt den wichtigsten Heizungsmechanismus in der Stratosphäre (15–50 km) dar und führt dort zu einer Umkehr des Temperaturgradienten.

Schwerewellen koppeln die Mesosphäre an die Troposphäre (0–15 km). Die Windfelder der Stratosphäre, die durch das thermische Gleichgewicht bestimmt sind und damit von der Ozondichte abhängen, fungieren als Wellenfilter und lassen nur bestimmte Wellen passieren. Wenn die Schwerewellen die Mesosphäre erreicht haben, ist ihre Amplitude so stark gestiegen, dass sie brechen. Das Brechen ist mit einem Impulsübertrag verbunden und treibt die globale Zirkulation in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre an. Ein Ozonabbau in der Stratosphäre wird also auch in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre bemerkbar sein.

Diese beiden Beispiele zeigen, dass Mesosphäre und untere Thermosphäre nicht nur aus wissenschaftlicher Sicht interessante Teile unserer Erdatmosphäre sind, sondern auch als Frühwarnsystem für globale Klimaänderungen dienen können. Die Rolle von Ozon macht in diesem Zusammenhang deutlich, dass einzelne Teile der Atmosphäre nicht isoliert voneinander betrachtet werden können, sondern wirksam miteinander wechselwirken.

Diese komplexen Zusammenhänge können nur unter Zuhilfenahme von Atmosphären- und Klimamodellen verstanden und quantifiziert werden. Messungen sind zur Validierung dieser Modelle unverzichtbar. Einen globalen Datensatz von besonders guter horizontaler Auflösung liefert das CRISTA-Experiment (Cryogene Infrarot Spektro-

meter und Teleskope für die Atmosphäre) [*Offermann et al.*, 1999; *Grossmann et al.*, 2002] der Bergischen Universität Wuppertal. Die Aufbereitung und Interpretation der CRISTA-Daten in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre sind Gegenstand dieser Arbeit.

1 Das CRISTA-Experiment

CRISTA ist ein Fernerkundungs-Experiment, das aus einer Erdumlaufbahn die tangential zur Erdoberfläche emittierte Infrarotstrahlung ($4\text{--}71\ \mu\text{m}$) von Spurengasen vermisst. Eine hohe räumliche Datendichte in allen drei Dimensionen wird durch die Verwendung von drei Teleskopen erzielt, deren Sehstrahlen horizontal um jeweils 18° versetzt sind (Abbildung 1). Den drei Teleskopen sind Gitterspektrometer vom Ebert-Fastie-Typ für den Wellenlängenbereich von $4\text{--}15\ \mu\text{m}$ nachgeschaltet. Das zentrale Teleskop enthält zusätzlich ein Spektrometer für den Wellenlängenbereich von $14\text{--}71\ \mu\text{m}$. Die Detektoren des linken und rechten Spektrometers werden im Folgenden mit SL ('Spectrometer Left') bzw. SR bezeichnet; die des zentralen Spektrometers mit SCS ('Spectrometer Center Short wavelength') für die kurzen ($4\text{--}15\ \mu\text{m}$) bzw. SCL ('Spectrometer Center Long wavelength') für die langen Wellenlängen ($14\text{--}71\ \mu\text{m}$). Die Spektrometer haben ein moderates spektrales Auflösungsvermögen von etwa 500, mit dem die verschiedenen Vibrationsbanden der Moleküle gut aufgelöst werden können. Die Heliumkühlung der Detektoren macht es möglich, dass der gesamte Wellenlängenbereich von $4\text{--}71\ \mu\text{m}$ auf 10–12 Kanäle verteilt in nur 1 Sekunde vermessen werden kann. Je nach Messmodus wird in 30–60 s ein komplettes Höhenprofil aufgenommen.

CRISTA wurde, eingebaut in den ASTRO-SPAS Trägersatelliten [Wattenbach und Moritz, 1997], bei zwei Flügen des US Space-Shuttle in 300 km Höhe in eine Erdum-

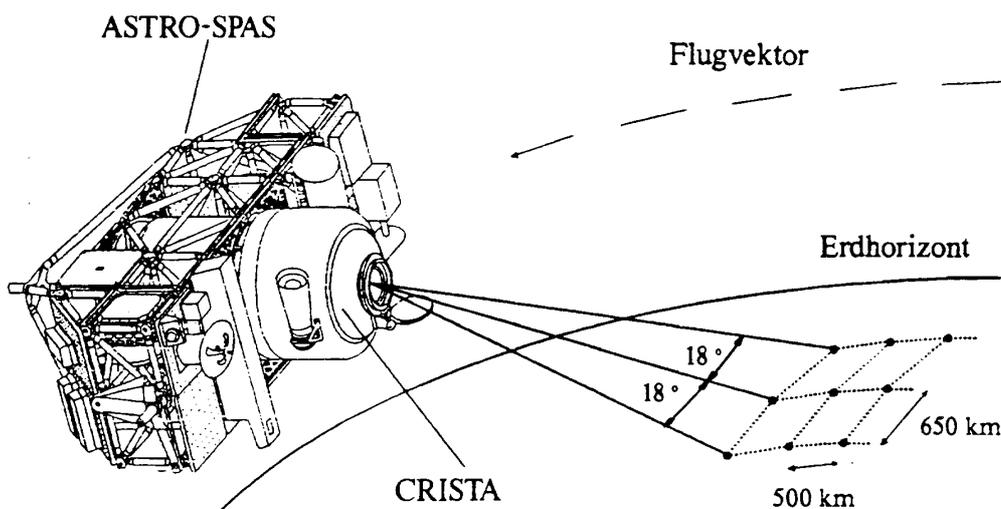


Abbildung 1: Die Messgeometrie von CRISTA

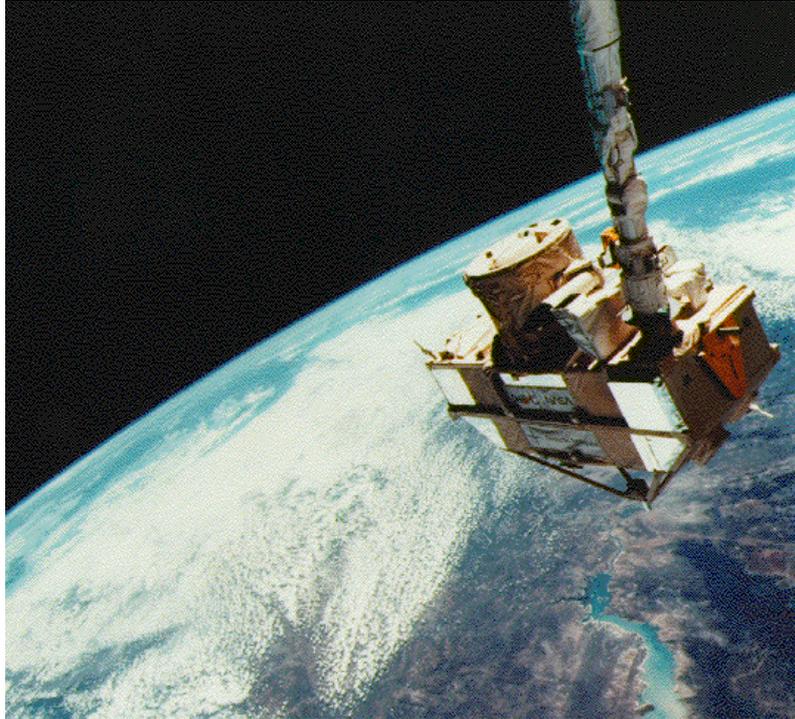


Abbildung 2: Das CRISTA-Messgerät in dem ASTRO-SPAS Trägersatelliten wird mit dem Manipulator-Arm aus der Ladebucht des US Space-Shuttle ausgesetzt.

laufbahn (Orbit-Inklination 57°) ausgesetzt (Abbildung 2). Die beiden Flüge fanden vom 3. bis 14. November 1994 (CRISTA-1) und vom 7. bis 19. August 1997 (CRISTA-2) statt. Das Messverfahren der Horizontsondierung in Kombination mit der Manövrierfähigkeit des ASTRO-SPAS erlaubt es, Messvolumina auch jenseits des 57° Orbits zu überdecken [Grossmann *et al.*, 2002]. Die Breitenüberdeckung beträgt 57°S – 64°N bei CRISTA-1 und 73°S – 73°N bei CRISTA-2. Zu welcher Lokalzeit die verschiedenen geographischen Breiten überflogen werden, hängt von der Startzeit des Space-Shuttle und der Inklination des Orbits ab und ist für die beiden CRISTA-Missionen unterschiedlich (Abbildung 3).

Die Messzeit von CRISTA ist in Blöcke von einigen Stunden bis Tagen Länge eingeteilt, in denen verschiedene Messmoden durchgeführt wurden (Tabelle 6 im Anhang). Die Blöcke unterscheiden sich in der horizontalen und vertikalen Auflösung sowie im überdeckten Höhenbereich (Tabelle 1). Bei beiden CRISTA-Missionen wird hauptsächlich in der Stratosphäre gemessen; für Beobachtungen der Mesosphäre standen bei CRISTA-1 insgesamt 17 h und bei CRISTA-2 70 h Messzeit zur Verfügung; in der Thermosphäre (>130 km) wurde 4 h bei CRISTA-1 und 24 h bei CRISTA-2 gemessen.

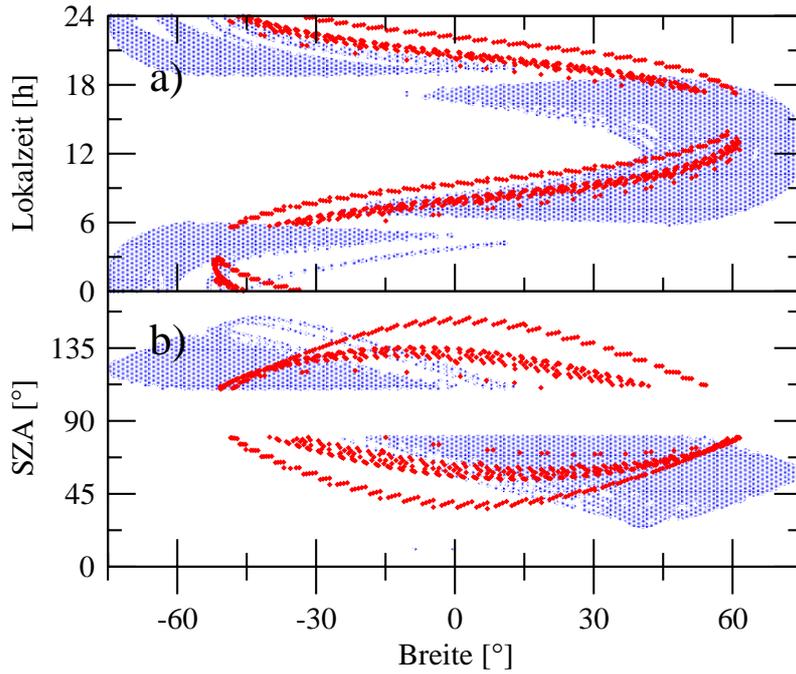


Abbildung 3: a) Lokalzeit-Breiten-Überdeckung der Mesosphären-Daten bei CRISTA-1 (8.–11. November 1994; rote Punkte) und bei CRISTA-2 (8.–16. August 1997; blaue Punkte). b) Solarer Zenitwinkel (SZA)-Breiten-Überdeckung.

Tabelle 1: CRISTA-Messmoden in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre. Die 'High Altitude Scans'/'Extended Spectral Scans' decken einen erweiterten Höhenbereich/ Spektralbereich ab und werden nur bei jedem vierten Höhenprofil durchfahren. Das SCL-Spektrometer blickt grundsätzlich 24 km höher als SCS.

Mission	Messmode	z [km]	Δz^α [km]	Δx^β [km]	Spektrometer
1	1	16–79 ^a /125 ^b	2,7	1500	SCS
1	M/T	60–164	2,7	360	SCS
2	M	15–105	2,15	390 ^c /1850 ^d	SL,SR
2	M	40–130	2,15	390 ^c /1850 ^d	SCS
2	T	60–102	1,0	390 ^c	SL,SR
2	T	60–165	2,5	390 ^c	SCS

^{α} vertikale Schrittweite

^a 'Low Altitude Scan'

^b 'High Altitude Scan'

^{β} horizontale Schrittweite

^d 'Extended Spectral Scan'

^c 'Normal Spectral Scan'

2 Kohlendioxid

2.1 Bedeutung von CO₂ in der Erdatmosphäre

Die Konzentration von Kohlendioxid ist in den letzten Jahrzehnten stark angestiegen (etwa 1–2 ppmv/Jahr; *Brasseur et al.*, 1999). Dieser Anstieg ist vornehmlich auf anthropogene Einflüsse wie die Verbrennung von fossilen Energieträgern oder Änderungen der Landnutzung zurückzuführen. Änderungen von CO₂ am Erdboden sind aufgrund der stabilen Schichtung der Stratosphäre mit einer Verzögerung von 5–6 Jahren in der Mesosphäre bemerkbar [*Bischof et al.*, 1985]. Die Symptome des CO₂-Anstiegs sind die globale Erwärmung der Erdoberfläche durch die Verstärkung des Treibhauseffektes sowie eine Abkühlung der mittleren und oberen Atmosphäre durch eine Erhöhung der Infrarot-Strahlungskühlung [*Roble und Dickinson*, 1989].

Kohlendioxid hat in der unteren und mittleren Atmosphäre ein nahezu konstantes Mischungsverhältnis, da die Atmosphäre in diesem Höhenbereich turbulent durchmischt ist, und CO₂ in der mittleren Atmosphäre keine bedeutenden Quellen oder Senken besitzt. Die CO₂-Quellen am Erdboden führen zu einem leichten Anstieg des CO₂-Mischungsverhältnisses zu niedrigen Höhen. In der oberen Mesosphäre nimmt das CO₂-Mischungsverhältnis durch molekulare Diffusion stark ab [*Chabrillat et al.*, 2002].

Die Kenntnis der CO₂-Dichte in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre ist nicht nur für das Studium der Energiebilanz wichtig, sondern mit einem chemisch trägen Spurengas wie CO₂ lassen sich auch Mischungsvorgänge und Transporte in diesem Höhenbereich sehr gut studieren. Außerdem ist die Kenntnis der CO₂-Dichte in dieser Höhe unverzichtbar für die Ableitung der kinetischen Temperatur aus den CO₂ 15 μ m Emissionen.

2.2 Verschiedene Methoden zur Messung von CO₂ in der oberen Atmosphäre

Die ersten CO₂-Messungen in der oberen Erdatmosphäre wurden mit raketengestützten Massenspektrometern durchgeführt [Offermann und Grossmann, 1973; Philbrick et al., 1973; Trinks und Fricke, 1978; Offermann et al., 1981]. Da dies in-situ Messungen sind, ist die Datenmenge auf eine kleine Zahl von Einzelprofilen beschränkt.

Bei CO₂-Absorptions- oder Okkultationsmessungen wird von Raketen oder Satelliten die Absorption des Sonnenlichts durch die CO₂-Moleküle gemessen. Die Änderung des solaren Zenitwinkels während eines Sonnenauf- oder untergangs, der durch die Eigenbewegung des Satelliten nur wenige Minuten dauert, erlaubt die Messung von kompletten Höhenprofilen. Bei erdnahen Umlaufbahnen dauert eine Erdumkreisung etwa 90 Minuten. Dies führt zu je 16 Höhenprofilen bei Sonnenauf- bzw. untergang pro Messtag. Trotz dieser geringen Messdichte haben Okkultationsmessungen einen großen Vorteil: Die Absorption hängt nur von der CO₂-Dichte, der kinetischen Temperatur und dem Druck ab und nicht oder nur in geringem Maße von der Anregung der CO₂-Moleküle. Solare Okkultationsmessungen von Kohlendioxid wurden mit dem GRILLE Spektrometer auf Spacelab-1 [Girard et al., 1988] und dem Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy (ATMOS) Instrument auf Spacelab-3 [Rinsland et al., 1992] und auf den Atmospheric Laboratory for Applications and Science (ATLAS) 1, 2 und 3 Missionen [Kaye und Miller, 1996] durchgeführt.

Emissionsmessungen liefern im Vergleich zu den solaren Okkultationsmessungen eine wesentlich größere Messdichte und Lokalzeitüberdeckung, da sie unabhängig vom Sonnenstand erfolgen können. 4,3 μm -Messungen bei Tag sind zur Ableitung von CO₂ besonders geeignet, da diese Emissionen sehr stark sind und sich verhältnismäßig genau modellieren lassen. Raketengestützte Emissionsmessungen bei 4,3 μm wurden mit SPIRE (Spectral Infrared Rocket Experiment) [Wintersteiner et al., 1992; Nebel et al., 1994] und den SISSI- (Spectroscopic Infrared Structure Signatures Investigation) [Vollmann und Grossmann, 1997] Experimenten durchgeführt. Eine Vielzahl weiterer Experimente studierte diese Emissionen bezüglich ihrer Empfindlichkeit auf Aurora-Ereignisse [Stair et al., 1975 und die hierin zitierten Referenzen]. Der Stratospheric and Mesospheric Sounder (SAMS) auf dem Nimbus-7 Satelliten

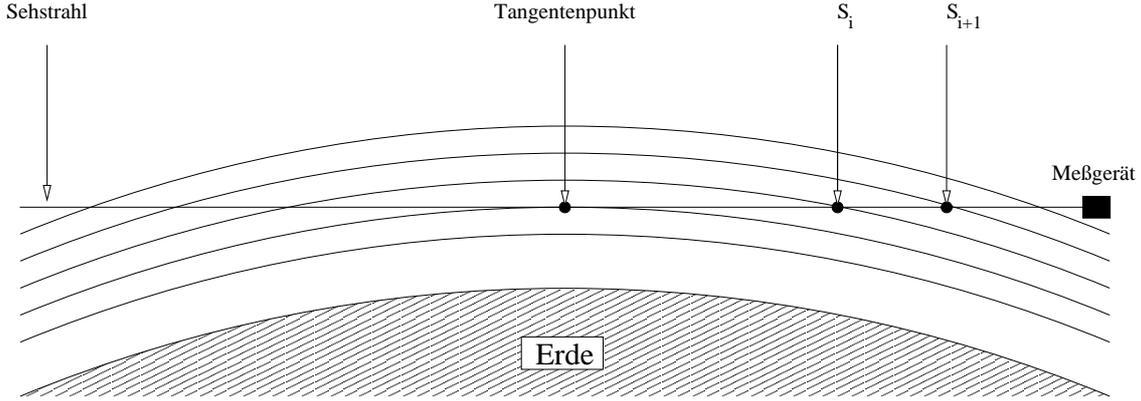


Abbildung 4: Messverfahren der Horizontsondierung

[López-Puertas und Taylor, 1989] hat erstmals die globale Verteilung der CO_2 $4,3 \mu\text{m}$ Strahlung bis 100 km Höhe vermessen. Sein Nachfolger, der Improved Stratospheric and Mesospheric Sounder (ISAMS) auf dem Upper Atmosphere Research Satellite (UARS) [López-Puertas et al., 1998b; Zaragoza et al., 2000] hat CO_2 bis 120 km Höhe gemessen.

2.3 Simulation der gemessenen Strahlungsdichten

Bei dem Messverfahren der Horizontsondierung (Abbildung 4), wie es von CRISTA angewandt wird, wird aus 1000–2000 km Entfernung die tangential aus der Atmosphäre austretende Strahlung registriert. Hierbei wird explizit von der Krümmung der Atmosphäre Gebrauch gemacht, um durch Schwenken des Sehstrahls Emissionen aus den verschiedenen Höhen der Atmosphäre zu messen. Der erste Schritt der Datenauswertung ist, aus den gemessenen Strahlungsdichten auf die Zahl und den Ort der emittierenden Moleküle zurückzuschließen, d.h. es muss die Wechselwirkung der elektromagnetischen Strahlung I_ν mit dem Medium 'Atmosphäre' modelliert werden. Allgemein wird dies durch die Strahlungstransportgleichung bei der Frequenz ν beschrieben:

$$\frac{dI_\nu(s)}{ds} = -k_\nu n_\alpha [I_\nu(s) - J_\nu(s)], \quad (1)$$

wobei n_α die Dichte der absorbierenden Moleküle, ds die Dicke des Mediums und

$$J_\nu = \frac{j_\nu}{k_\nu} \quad (2)$$

die Quellfunktion mit dem Absorptionskoeffizienten k_ν und dem Emissionskoeffizienten j_ν ist:

$$j_\nu = \frac{h\nu}{4\pi} n_j A_{ij}, \quad k_\nu = \frac{c^2}{8\pi\nu^2} n_j A_{ij} \left(\frac{n_i/g_i}{n_j/g_j} - 1 \right) \quad (3)$$

Darin bezeichnet A_{ij} den Einsteinkoeffizient für spontane Emission vom Zustand i nach j , h das Planck'sche Wirkungsquantum, c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum, n_i, n_j die Besetzung der Zustände i, j und g_i, g_j deren Entartung. Mit diesen Ausdrücken lässt sich die Quellfunktion J_ν dann folgendermaßen schreiben:

$$J_\nu(\gamma) = \frac{2h\nu^3}{c^2} \frac{1}{1/\gamma - 1}, \quad \gamma = \frac{n_j/g_j}{n_i/g_i} \quad (4)$$

γ wird häufig in Analogie zur Planckfunktion durch eine Exponentialfunktion unter Definition einer Temperatur T beschrieben, die je nach Art der Anregung Elektronentemperatur, Vibrationstemperatur oder Rotationstemperatur genannt wird:

$$\gamma = \frac{n_j/g_j}{n_i/g_i} = \exp\left(\frac{h\nu}{kT}\right) \quad (5)$$

k steht in dieser Gleichung für den Boltzmannfaktor. Die integrale Lösung der Strahlungstransportgleichung lautet:

$$I_\nu(s_0, s) = I_\nu(s_0) \exp(-\tau_\nu^{s_0, s}) + \int_0^{\tau_\nu^{s_0, s}} J_\nu(s') \exp(-\tau_\nu^{s_0, s'}) d\tau_\nu, \quad (6)$$

wobei τ_ν die optische Tiefe zwischen zwei Punkten s und s' beschreibt und folgendermaßen definiert ist:

$$\tau_\nu^{s, s'} = \int_{s'}^s k_\nu(s'') n_\alpha(s'') ds''. \quad (7)$$

In Gleichung 6 beschreibt der erste Summand die Abnahme der einfallenden Strahlung $I_\nu(s_0)$ und der zweite Term die Eigenemission des Mediums zwischen s_0 und s . Geht man davon aus, dass das Medium bzw. die Atmosphäre diskret geschichtet ist bzw. abgetastet wird, kann man I_ν auch als Summe aus den Beiträgen der einzelnen Schichten zusammensetzen:

$$I_\nu(s_0, s) = \sum_{s_i=s_0}^s I_\nu(s_0, s_i), \quad (8)$$

Mit der Definition der Emissivität $\epsilon_\nu^i = 1 - \exp(-\tau_\nu^{s_i, s_{i+1}})$ einer Schicht, der Transmissivität $\alpha_\nu^i = \exp(-\tau_\nu^{s_0, s_i})$ der zwischenliegenden Atmosphäre, der Gewichtsfunktion $w_\nu^i = \epsilon_\nu^i \alpha_\nu^i$ und der Voraussetzung, dass die Quellfunktion in jeder Schicht durch eine Konstante \bar{J}_ν approximiert werden kann, ergibt sich für die einzelnen Beiträge:

$$I_\nu(s_0, s_i) = \bar{J}_\nu(s_i, s_{i+1}) w_\nu^i. \quad (9)$$

Die Integration des Strahlungsfeldes über die Frequenz wird in der vorliegenden Arbeit mit dem klassischen 'Linie-für-Linie' Verfahren vorgenommen. Hierbei berechnet man zunächst die Emissions- und Absorptionskoeffizienten j_ν und k_ν entlang des druck- und stoßverbreiterten Profils jeder einzelnen Linie. In der Mesosphäre überlappen die Profile der einzelnen Linien in der Regel nicht, und diese Größen können unabhängig voneinander bestimmt werden.

Bei großen optischen Tiefen (z.B. bei CO₂ in der unteren Mesosphäre) sind die Linienzentren optisch dicht und der Strahlungstransport findet vor allem über die breiten Linienflanken statt, so dass es leicht zu einer Überlappung der Linien kommen kann. In diesem Fall muß die optische Tiefe und die Quellfunktion aus den Beiträgen der einzelnen Linien j zusammengesetzt werden [vgl. *Mlynczak und Drayson, 1990b*]:

$$\tau_\nu \rightarrow \sum_j \tau_\nu^j, \quad J_\nu \rightarrow \frac{\sum_j k_\nu^j J_\nu^j}{\sum_j k_\nu^j} \quad (10)$$

Die vollständige Berücksichtigung von Linienüberlappung schließt nicht nur viele approximative Verfahren zur Berechnung des Strahlungstransportes aus sondern erfordert auch, dass bei dem klassischen Linie-für-Linie Verfahren bis in die Linienflanken auf einem sehr feinen Frequenzgitter gerechnet wird. Dies würde in dem vorliegenden Modell, das die Dichte der Frequenzstützstellen zu den Linienflanken exponentiell abfallen lässt, zu einer drastischen Erhöhung der Rechenzeit führen. Da Linienüberlappung nur in der unteren Mesosphäre von Bedeutung ist, wird diesem Effekt approximativ durch Anwendung von Korrekturfaktoren Rechnung getragen. Diese Korrekturfaktoren wurden mit dem GENLN-2 Strahlungstransportprogramm [*Edwards, 1992*] als Funktion der Höhe und des solaren Zenitwinkels berechnet, da andere Größen wie die CO₂-Dichte oder die Temperatur nur einen geringen Einfluss auf die Größe der Korrektur haben [*Kaufmann et al., 2002a*]. Die Stärke der Korrekturen liegt in 60 km Höhe bei 5–6% und bei 70 km um 3%.

2.4 Modellierung der Vibrationsanregung von CO₂

Mit Hilfe der Strahlungstransportgleichung kann aus den gemessenen Strahlungsdichten zunächst nur auf die Zahl der angeregten Moleküle bzw. auf das Besetzungszahl-Verhältnis der beteiligten Niveaus zurückgeschlossen werden. Für atmosphärische Anwendungen ist man aber primär an der Gesamtzahl oder der Zahl der Moleküle im Grundzustand interessiert.

Im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht (engl. **L**ocal **T**hermodynamic **E**quilibrium, kurz LTE) ist dieses Problem trivial, da die Anregung eines Moleküls der Boltzmann-Verteilung folgt und für alle Zustände durch die kinetische Temperatur beschrieben werden kann. Dies setzt allerdings voraus, dass die Stoßfrequenz der Moleküle einige Größenordnungen höher ist als alle anderen Anregungsmechanismen. In der Mesosphäre und unteren Thermosphäre ist die Stoßfrequenz der Vibrationszustände allerdings häufig zu klein, um alle anderen Anregungsprozesse zu kompensieren. Die Anregung kann dann nicht mehr einheitlich durch die kinetische Temperatur beschrieben werden, sondern jedes Niveau und jeder Anregungszustand besitzt seine eigene Vibrationstemperatur. In diesem Fall spricht man von nicht lokalem thermodynamischen Gleichgewicht oder kurz non-LTE.

CO₂, ein lineares, symmetrisches Molekül ohne permanentes Dipolmoment, besitzt drei Grundschwingungen: Die symmetrische Streckschwingung (ν_1) bei 7,5 μm , die Biegeschwingung (ν_2) bei 15 μm und die asymmetrische Streckschwingung (ν_3) bei 4,3 μm . Die asymmetrische Streck- und die Biegeschwingung induzieren in dem CO₂-Molekül ein Dipolmoment und sind daher infrarotaktiv. Die Anregung bzw. Besetzung n_i der einzelnen Schwingungszustände wird mit der Kontinuitätsgleichung abgeleitet:

$$\frac{dn_i}{dt} = \sum_j P_{ji} - \sum_j L_{ij} \quad (11)$$

Die zeitliche Änderung der Besetzungszahlen ist meist sehr klein im Vergleich zu den Produktions- (P_{ji}) und Verlustprozessen (L_{ij}) und kann daher vernachlässigt werden. Bei den Produktions- und Verlustprozessen unterscheidet man Wechselwirkungen durch Strahlung, Stoß und (photo-)chemische Reaktionen:

Strahlungswechselwirkungen können spontan oder induziert stattfinden. Die Produktions- und Verlustprozesse lassen sich folgendermaßen ausdrücken:

$$P_{ji}^{\text{Strahlung}} = n_j (A_{ji} + B_{ji}I_\nu), \quad L_{ij}^{\text{Strahlung}} = n_i (A_{ij} + B_{ij}I_\nu) \quad (12)$$

Hierbei sind A_{ij} bzw. A_{ji} Einsteinkoeffizienten für spontane Emission ($A_{ij} = 0$ für $E_i < E_j$), B_{ij} bzw. B_{ji} sind die Einsteinkoeffizienten für induzierte Strahlungsübergänge und I_ν beschreibt das äußere Strahlungsfeld. Da auch weit entfernte Moleküle über den Austausch von Strahlung miteinander wechselwirken können, muss das Strahlungsfeld für die gesamte Atmosphäre berechnet werden.

Stoßwechselwirkungen können auf zweierlei Art stattfinden: Durch V-T-Stöße, bei denen die Vibrationsenergie eines Zustandes n_j in Translationsenergie des Stoßpartners M umgewandelt wird oder umgekehrt oder durch V-V-Stöße, bei denen ein Vibrationsniveau abgeregt und gleichzeitig ein oder mehrere andere Niveaus angeregt werden. Die entsprechenden Produktions- und Verlustprozesse lassen sich folgendermaßen beschreiben:

$$P_{ji}^{\text{Stoß}} = n_j \sum_M k_{ji}^M [M], \quad L_{ij}^{\text{Stoß}} = n_i \sum_M k_{ij}^M [M] \quad (13)$$

In dieser Notation bezeichnet $[M]$ sowohl die Dichte des Stoßpartners bei V-T-Stößen als auch die Dichte des zweiten Vibrationszustandes bei V-V-Stößen, und k_{ji}^M bzw. k_{ij}^M sind die Ratenkonstanten für den Stoß. Bei Stößen kann auch elektronische Energie in Vibrationsenergie umgewandelt werden, z.B. bei der für die Modellierung von CO_2 wichtigen Wechselwirkung zwischen $\text{O}(^1\text{D})$ und N_2 .

Chemische An- und Abregungsmechanismen werden bei der Modellierung von Ozon näher beschrieben (vgl. Kapitel 3.3)

Die Kontinuitätsgleichung beschreibt das statistische Gleichgewicht zwischen den Vibrationsniveaus. Gelöst wird dieses nicht-lineare Gleichungssystem iterativ mit einem Zwei-Schritt-Verfahren (sog. Lambda-Iteration): Im ersten Schritt wird das Strahlungsfeld I_ν unter Vorgabe von Besetzungszahlen $\{n_i\}$ berechnet. Im zweiten Schritt wird dann durch Lösung des Gleichungssystems ein neuer Satz von Besetzungszahlen $\{n_i\}$ berechnet. In einer optisch dichten Atmosphäre kann die Konvergenz dieses Verfahrens sehr langsam sein (mehrere hundert oder tausend

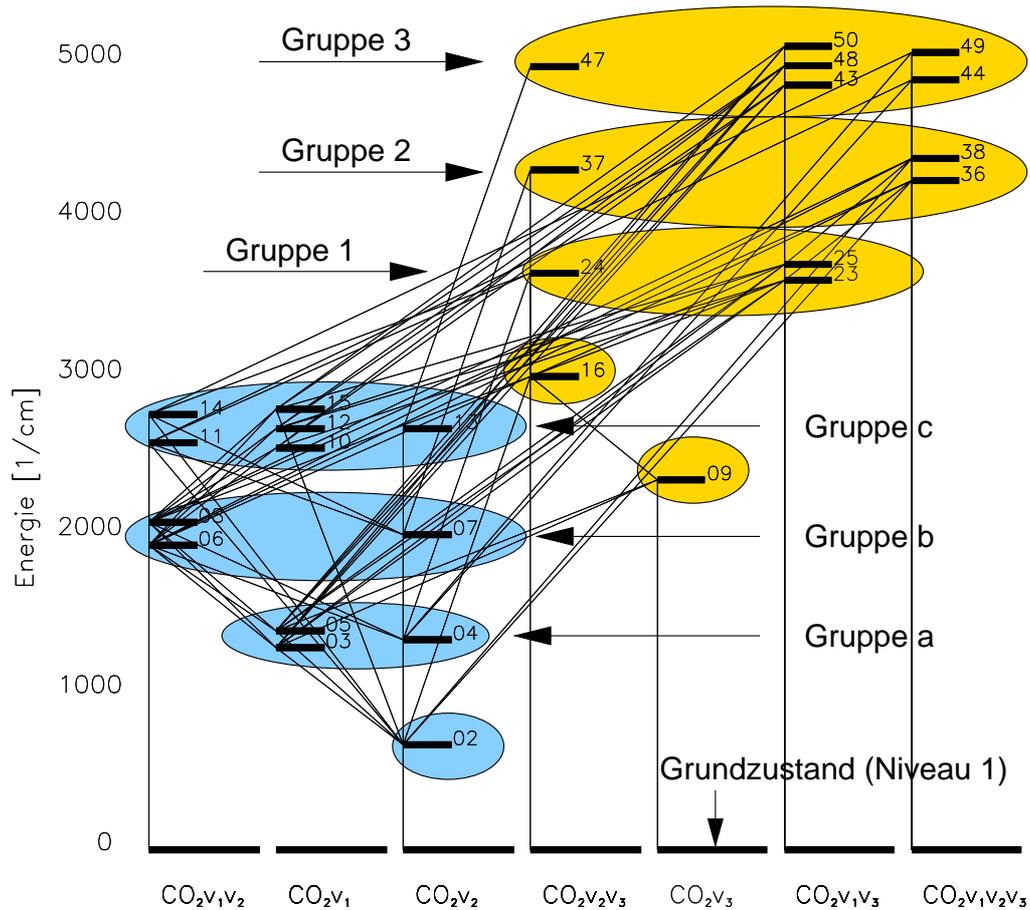


Abbildung 5: Termschema der Vibrationszustände von CO_2 . Auf der y-Achse ist die Energie bzw. Wellenzahl aufgetragen und auf der x-Achse die Zusammensetzung der Vibrationsniveaus. Die Vibrationszustände sind der Energie nach durchnummeriert; diese Numerierung wird auch in der HITRAN-Datenbank verwendet. Die blau markierten Zustände stellen die $15 \mu\text{m}$ Niveaus, die gelben die $4,3 \mu\text{m}$ Niveaus dar. Schwarze Linien zeigen Strahlungswechselwirkungen.

Iterationen). Ein Verfahren zur Beschleunigung der Konvergenz ist die sog. ALI-Methode (Accelerated Lambda Iteration, *Rybicki und Hummer, 1991; Kutepov et al., 1998*): Bei der verwendeten Variante wird das Strahlungsfeld I_ν in einen lokalen und einen nicht-lokalen Teil getrennt. Der lokale Teil kann analytisch in die Kontinuitätsgleichung integriert werden ohne eine weitere Nichtlinearität zu erzeugen. Damit ist das lokale Strahlungsfeld im Gleichgewicht mit den Besetzungszahlen $\{n_i\}$ und dies führt im optisch dichten Fall zu einer Reduktion der Iterationsschritte von mehreren Größenordnungen. Für die Modellierung von CO_2 im Rahmen dieser Arbeit werden Vibrationszustände mit Energien bis zu 5100 cm^{-1} berücksichtigt [*Kaufmann, 1997*]. Abbildung 5 zeigt die für das Hauptisotop verwendeten Energieniveaus und die in der HITRAN-96-Datenbank [*Rothman et al., 1998*] angegebenen

Strahlungswechselwirkungen. Farblich markiert sind Niveaus, die bedeutende Emittter von $15\ \mu\text{m}$ oder $4,3\ \mu\text{m}$ Strahlung sind; die entsprechenden Zustände werden kurz '15 μm -Niveaus' oder '4,3 μm -Niveaus' genannt. Die Anregung dieser beiden Gruppen und ihre Abweichung vom LTE ist sehr unterschiedlich:

Die Anregung der 15 μm Fundamentalbande weicht erst bei 80 km Höhe vom LTE ab (Abbildung 6). In diesem Zusammenhang sind folgende Prozesse wichtig [z.B. *Ogibalov et al.*, 1998]:

- Absorption von Strahlung aus der unteren Atmosphäre,
- Verlust von Strahlung in den Weltraum und
- V-T-Stöße mit atomarem Sauerstoff im Grundzustand ($\text{O}(^3\text{P})$).

Bedeutende Parameter sind die kinetische Temperatur, die atomare Sauerstoff- und CO_2 -Dichte und die Konstante für Stöße zwischen CO_2 und $\text{O}(^3\text{P})$. Für letztere wird in dieser Arbeit ein Wert von $3 \times 10^{-12} (\text{T}/300)^{0.5} \text{ cm}^3/\text{s}$ in Anlehnung an *López-Puertas et al.* [1998a] verwendet.

Die 4,3 μm Niveaus sind schon an der Stratopause nicht mehr im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht. Ursache ist das Fehlen einer effektiven Stoßabregung, ohne die sich allein durch Absorption von Strahlung aus der unteren Atmosphäre eine im Vergleich zu den $15\ \mu\text{m}$ Niveaus deutlich höhere Vibrationstemperatur einstellt. Bei Tag bewirkt die Anregung durch Sonnenstrahlung eine weitere Abweichung vom lokalen thermodynamischen Gleichgewicht. Die Vibrationstemperaturen der $4,3\ \mu\text{m}$ -Niveaus weichen bei Tag in 70 km Höhe 50–100 K und an der Mesopause 50–200 K von der kinetischen Temperatur ab (Abbildung 6).

Da die Solarstrahlung zu kurzen Wellenlängen stark zunimmt, werden die energiereichen $4,3\ \mu\text{m}$ Niveaus (Gruppe 1–3, vgl. Abbildung 5) bedeutend stärker angeregt. Durch die hohe Anregung dieser Niveaus kommt V-V-Stößen von $\text{CO}_2(\nu_3)$ mit N_2 besondere Bedeutung zu. Da N_2 mit etwa der gleichen Frequenz wie die CO_2 $4,3\ \mu\text{m}$ -Niveaus schwingt, kann N_2 durch die V-V-Wechselwirkung mit diesen Zuständen vibrationsangeregt werden. Dieser Mechanismus sorgt für eine Umverteilung von Vibrationsquanten aus den hoch angeregten $4,3\ \mu\text{m}$ -Zuständen in das

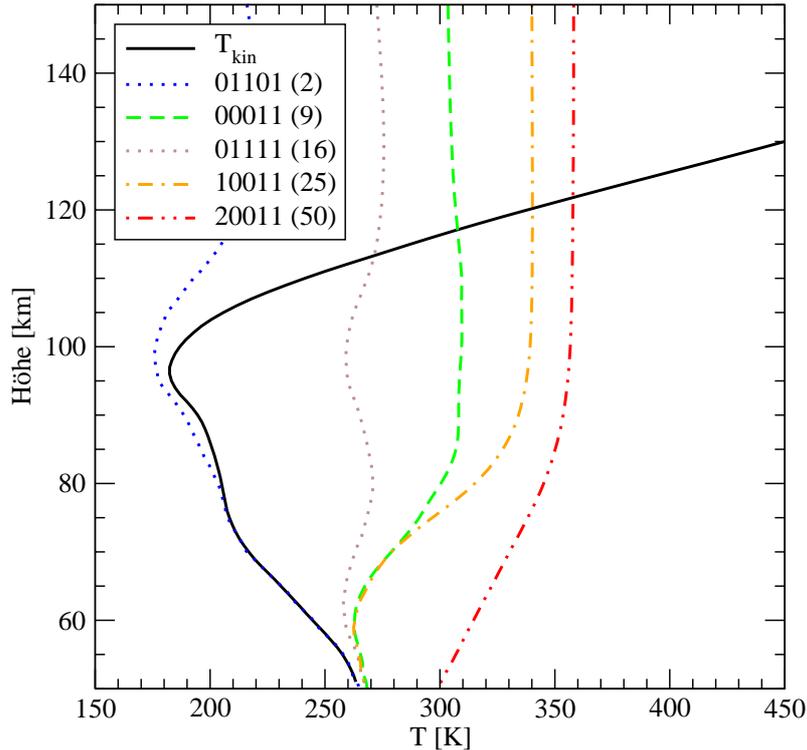


Abbildung 6: Kinetische Temperatur und Vibrationstemperaturen für verschiedene CO_2 -Niveaus. Die Bezeichnung der Niveaus ist in AFGL- und HITRAN-Notation (vgl. Abbildung 5 und *Rothman et al.*, 1981). Die Rechnungen sind für den 8. November 1994, 20°N , 178°O , $\text{SZA}=55^\circ$.

ν_3 -Fundamentalniveau. Zusätzlich kann durch diesen Mechanismus Energie, die elektronisch angeregte $\text{O}(^1\text{D})$ Atome an N_2 abgeben, auf CO_2 übertragen werden [*Nebel et al.*, 1994; *Edwards et al.*, 1996]. Unsicherheiten bei der Stärke dieser Wechselwirkung stellen, wie später gezeigt wird, die wichtigste Fehlerquelle bei der Modellierung der $4,3\ \mu\text{m}$ Niveaus in der Mesosphäre und unteren Thermosphäre dar.

Die Bedeutung der übrigen Anregungsprozesse für $4,3\ \mu\text{m}$ -Niveaus wird in *Kaufmann* [1997] und *Shved et al.* [1998] beschrieben.

Die Modellierung der Vibrationsanregung von CO_2 wird mit dem non-LTE-Modell von *Kutepov et al.* [1998] vorgenommen. Das Modell verwendet die Feautrier-Methode [*Rybicki und Hummer*, 1991] zur Berechnung des Strahlungsfeldes. Die Liniendaten werden der HITRAN-Datenbank entnommen. Der solare Fluss am Rande der Atmosphäre wird durch einen Planckschen Strahler mit einer effektiven Temperatur von 5760 K beschrieben, der in guter Näherung die Emissionen der Photosphäre der Sonne beschreibt. Die Ratenkonstanten für die Stoßprozesse sind *Shved et al.* [1998] entnommen.

2.5 Verfahren zur Ableitung von CO₂

Die Ableitung der CO₂-Dichten (engl. Retrieval) wird iterativ in zwei Schritten durchgeführt: In Schritt eins wird die Vibrationsanregung mit dem non-LTE Vorwärtsmodell unter Vorgabe einer CO₂-Dichte modelliert. In Schritt zwei wird die Strahlungsdichte mit dem Strahlungstransport-Modell unter Verwendung der zuvor berechneten Vibrationstemperaturen simuliert und unter Anpassung der CO₂-Dichte mit der Messung in Übereinstimmung gebracht. Die Anpassung der Rechnung an die Messung wird in der obersten Tangentenhöhe begonnen und dann sukzessive für die unteren Höhen fortgesetzt (sog. Onion-Peeling-Methode).

Nachdem mit der in Schritt 1 berechneten Vibrationsanregung ein komplettes Höhenprofil von CO₂ abgeleitet wurde, wird mit diesem CO₂-Profil die Vibrationsanregung neu berechnet und die ganze Prozedur wiederholt. Dieses Zweischrittverfahren kommt bei CO₂ im Allgemeinen mit weniger als fünf Iterationen aus, da die Anregung der Vibrationsniveaus verhältnismäßig schwach von der CO₂-Dichte abhängt.

2.6 Der CRISTA 4,3 μm Kanal

Der CRISTA 4,3 μm Kanal (SCS-2) deckt den Wellenzahlbereich 2079–2392 cm⁻¹ ab. Die spektrale Auflösung ($\lambda/\Delta\lambda$) beträgt 415. Da die Strahlungsdichten in Abhängigkeit von der Wellenlänge mit einer bestimmten Abtastrate (4,5 ms) ausgelesen werden, liegen die Intensitäten auf sog. Stützstellen vor. Der Wellenlängen-Abstand von zwei aufeinanderfolgenden Stützstellen beträgt bei dem SCS-2 Kanal 1,4 cm⁻¹. Die dem Rauschen entsprechende Strahlungsdichte (engl: Noise Equivalent Spectral Radiance, kurz NESR) ist 2×10^{-10} W/(cm² sr cm⁻¹) für den CRISTA-1 Kanal (Verwendung eines Si:Ga Bulk-Detektors) und $2,7 \times 10^{-11}$ W/(cm² sr cm⁻¹) bei CRISTA-2 (Verwendung eines Si:As BIB Detektors). Ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis ($S/N > 1$) zeigen die spektral integrierten CRISTA-1 Strahlungsdichten bei Tag bis 120 km, bei CRISTA-2 bis 140 km.

Die Tagmessungen zeigen oberhalb von 50 km eine starke Variation mit dem solaren Zenitwinkel (Abbildung 7). Die Profile unterscheiden sich in der unteren Thermosphäre typischerweise 30% und in der Mesosphäre bis zu 50%. Die Intensität der ebenfalls dargestellten Nachtprofile ist oberhalb von 60 km mindestens einen Faktor 10 geringer.

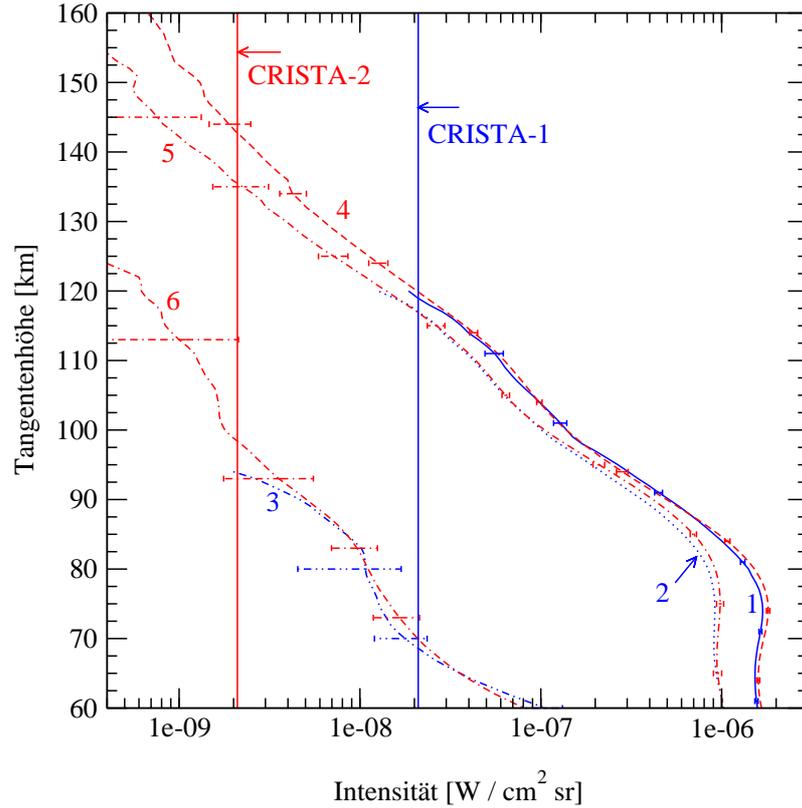


Abbildung 7: Integrierte Strahlungsdichten ($2300\text{--}2390\text{ cm}^{-1}$) für verschiedene Sonnenstände. Die Profile wurden über verschiedene Bereiche des solaren Zenitwinkels gemittelt, wobei für die geographische Länge und Breite und für die Zeit keine Einschränkungen gelten. Die vertikalen Linien geben die NESR für Einzelprofile an. **1:** CRISTA-1, SZA: $48^\circ\text{--}52^\circ$ (Zahl der gemittelten Profile: 14) **2:** CRISTA-1, SZA: $76^\circ\text{--}80^\circ$ (50) **3:** CRISTA-1, SZA $>110^\circ$ (64) **4:** CRISTA-2, SZA: $48^\circ\text{--}52^\circ$ (103) **5:** CRISTA-2, SZA: $76^\circ\text{--}80^\circ$ (163) **6:** CRISTA-2, SZA $>110^\circ$ (250).

Die $4,3\text{ }\mu\text{m}$ -Spektren setzen sich aus Emissionen von CO_2 , CO , O_3 , N_2O und NO^+ zusammen (Abbildung 8). Die Vibrationsanregungen für O_3 , N_2O und CO werden mit den kinetischen Modellen von *Manuilova et al.* [1998], *Shved und Gusev* [1997] und *Kutepov et al.* [1997] berechnet. Die Modellierung von NO^+ ist in Anhang 4.7 beschrieben.

Im kurzwelligen Teil des Spektrums ($2250\text{--}2390\text{ cm}^{-1}$) beobachtet man vor allem CO_2 -Emissionen. In der unteren Thermosphäre sind die CO_2 -Spektren mit NO^+ -Emissionen überlagert; bei 120 km und mittleren Breiten beträgt ihr Anteil am Gesamtsignal 3–4%, bei hohen Breiten 5–10% (vgl. Anhang 4.7). Bei niedrigen Höhen sind die NO^+ -Emissionen nicht weiter von Bedeutung, so dass in der Mesosphäre

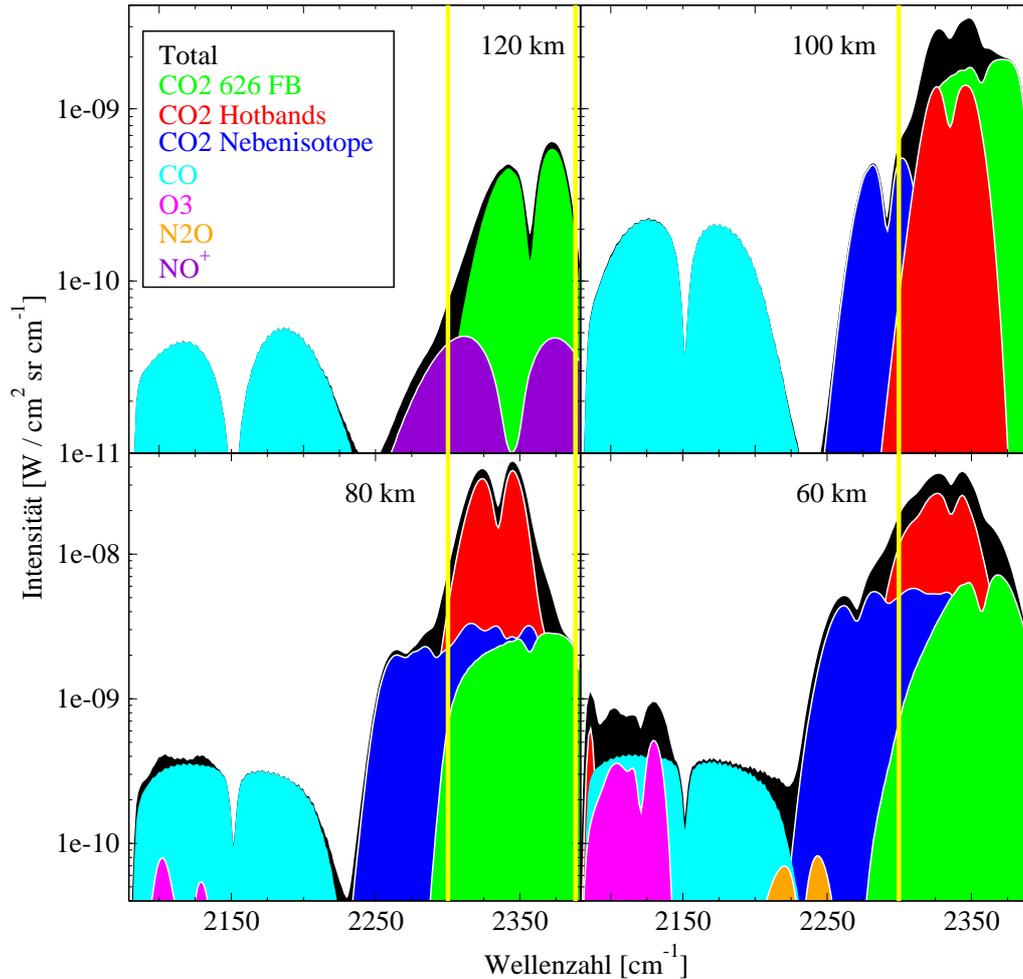


Abbildung 8: Simulierte Limb-Spektren für den CRISTA 4,3 μm Kanal für die angegebenen Tangentenhöhen (120 km, 100 km, 80 km und 60 km) und einen solaren Zenitwinkel von 80° . Die gelben Linien zeigen den für das Retrieval verwendeten Spektralbereich.

im kurzwelligen Teil des 4,3 μm -Spektrums lediglich die verschiedenen CO_2 -Banden emittieren.

Im langwelligen Teil des 4,3 μm -Kanals ($2079\text{--}2180\text{ cm}^{-1}$) bestimmt die Fundamentallbande von CO das Spektrum. In der unteren Mesosphäre sind außerdem die 101–000, 111–010 und 201–100 Banden von Ozon sichtbar. Beiträge von N_2O sind nur in der unteren Mesosphäre sichtbar.

Bei Emissionen, für die die Atmosphäre eine hohe Transmission besitzt, stammt nahezu die Hälfte der Strahlung aus der Tangentenschicht, während in optisch dichten Bereichen ein großer Teil der Strahlung, die in der Tangentenschicht emittiert wird, von den darüberliegenden Schichten reabsorbiert wird. Man bezeichnet eine Atmo-

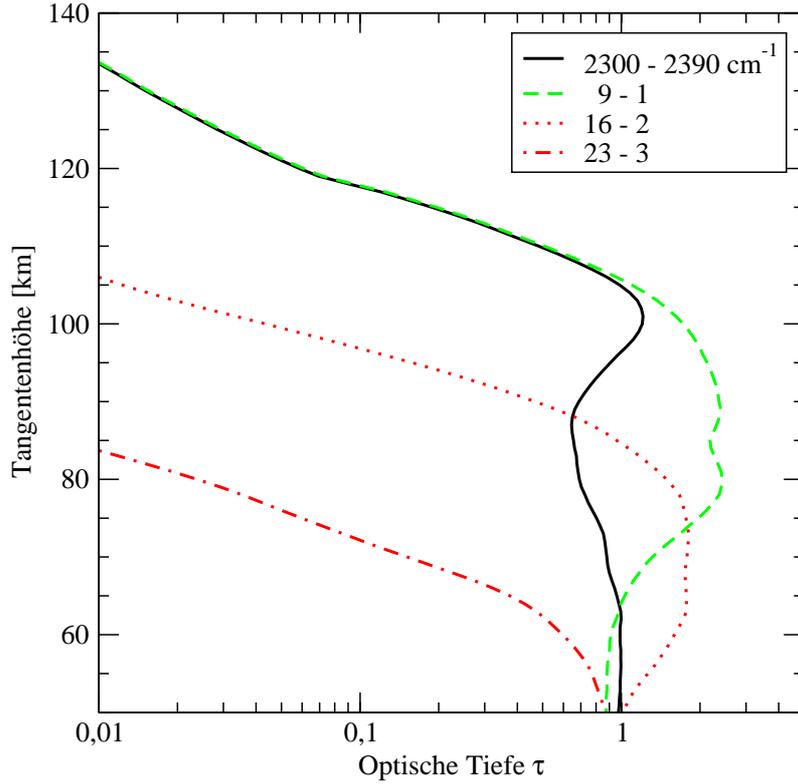


Abbildung 9: Optische Tiefen für 2300–2390 cm^{-1} und verschiedene CO_2 Vibrationsbanden: die $4,3\ \mu\text{m}$ -Fundamentalbande (9–1), das erste Hotband (16–2) und einen Übergang aus Gruppe 1 (23–3). Die Bezeichnung der Übergänge entspricht Abbildung 5.

sphäre als optisch dicht, wenn die optische Tiefe größer eins wird, d.h. wenn mehr als $2/3$ der emittierten Strahlung reabsorbiert wird. Da die optische Tiefe an einer einzelnen Frequenzstützstelle (vgl. Gleichung 7) bei einem verhältnismäßig breitbandig messendem Gerät wie CRISTA nur von beschränkter Bedeutung ist, wird die effektive optische Tiefe $\bar{\tau}$ betrachtet:

$$\bar{\tau} = -\ln \left(\frac{\int_{\nu} J_{\nu} \epsilon_{\nu} \alpha_{\nu} d\nu}{\int_{\nu} J_{\nu} \epsilon_{\nu} d\nu} \right) \quad (14)$$

Abhängig von der Anwendung ist die Frequenzintegration als Faltung über das Linienprofil, die spektrale Filterfunktion des Messgeräts oder einen größeren Wellenlängenbereich auszuführen.

Die effektive optische Tiefe der CO_2 $4,3\ \mu\text{m}$ -Strahlung (Abbildung 9) steigt in der Thermosphäre stark an und wird bereits bei 105 km größer eins. Obwohl die optische Tiefe der Fundamentalbande bis auf zwei weiter anwächst, steigt die optische Tie-

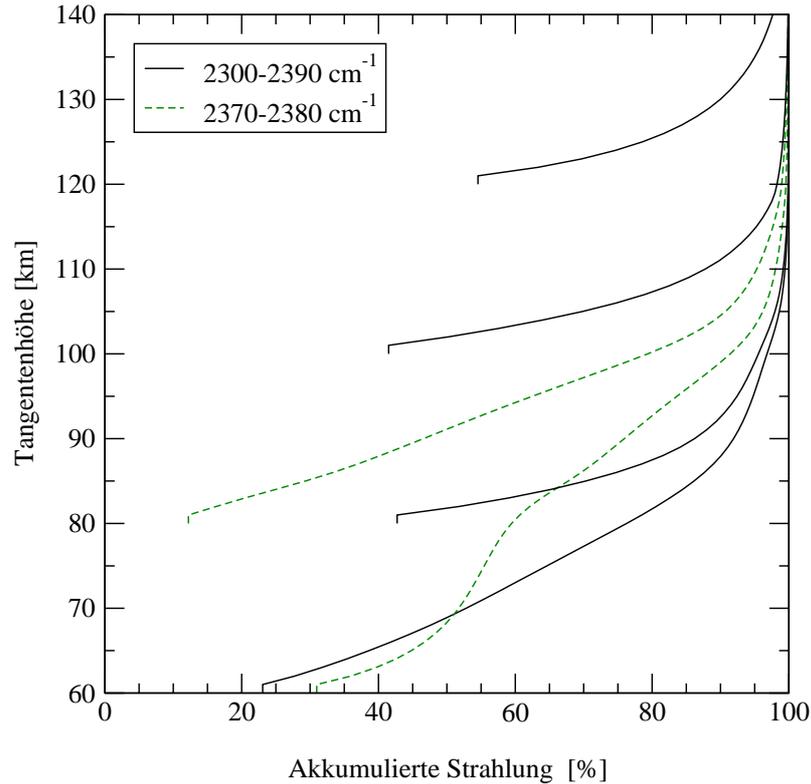


Abbildung 10: Summe der Strahlung, die aus der Tangentenschicht (2 km Dicke, angedeutet durch die vertikalen Kurvenabschnitte) und den darüberliegenden Schichten stammt. Durchgezogene Linien sind für den Bereich $2300\text{--}2390\text{ cm}^{-1}$; die strichlierten Linien sind für den Teil des Spektrums, der von der CO_2 -Fundamentalbande dominiert wird.

fe des gesamten Spektralbereichs durch den Beitrag der optisch dünnen Hotbands nicht weiter an, sondern nimmt sogar wieder ab. Bei 80 km beginnen auch die ersten Hotbands optisch dicht zu werden, während die Fundamentalbande durch die stoßverbreiterten Linienflügel wieder optisch dünner wird. Beide Effekte gleichen sich etwa aus, so dass die optische Tiefe des ganzen Spektralbereichs etwa konstant bei eins bleibt.

Bei 120 km Tangentenhöhe stammen etwa 55% der Strahlung aus der Tangentenschicht (Dicke 2 km) und weitere 35% der Strahlung aus dem Bereich 122,5–130 km (Abbildung 10). Durch den starken Höhengradienten von CO_2 und trotz der hohen optischen Dichte stammen bei 100 km noch 42% der Strahlung aus der Tangentenschicht. Dieser Prozentsatz bleibt dank der optisch dünnen Hotbands bis in die mittlere Mesosphäre erhalten. Für die CO_2 -Fundamentalbande stammen in diesen Höhen weniger als 15% der Strahlung aus der Tangentenschicht.

2.7 Empfindlichkeitsstudie und Fehleranalyse des Retrievals

Die Modellierung der Vibrationsanregung und des Strahlungstransports ist von mehreren atmosphärischen Zustandsgrößen und von einer Vielzahl physikalischer Konstanten, die die Wechselwirkung der Moleküle in der Atmosphäre beschreiben, abhängig. Die Genauigkeit der CO₂-Dichten (Tabelle 2) wird vor allem durch zwei Fehlerquellen bestimmt: Die Unsicherheit des O(¹D) Profils und die Fehler der Ratenkonstanten im non-LTE Modell. Der systematische Fehler beträgt je nach Höhe 15–25%, bei 110 km ist er etwa doppelt so groß. Betrachtet man statt CO₂-Dichten CO₂-Mischungsverhältnisse, verdoppelt sich der systematische Fehler in den großen Höhen durch den Temperaturfehler in der Mesosphäre. Dagegen hat die Annahme eines atomaren Sauerstoff-Profiles einen vergleichsweise geringen Einfluss auf die CO₂-Ableitung [Kaufmann *et al.*, 2002a].

Der statistische Fehler der CO₂-Dichten (Tabelle 3) wird bei CRISTA-1 in allen Höhen durch das Detektorrauschen bestimmt. Er beträgt 15% in der Mesosphäre und 100% bei 110 km. Bei CRISTA-2 ist der statistische Fehler in der Mesosphäre kleiner 10%, bei 100–120 km 20–30% und bei 130 km etwa 80%.

In den folgenden Abschnitten werden die wichtigsten Einflussfaktoren und Fehlerquellen des Retrievals vorgestellt und ihr Einfluss auf die Ableitung von CO₂ untersucht.

2.7.1 Fehler des Messgeräts

Die Eichung der CRISTA 4,3 μm Kanäle unterliegt mehreren Fehlerquellen. Die Wellenlängen- und Absoluteichung sowie Korrekturen an den Rohdaten werden bei Riese *et al.* [1999] beschrieben. Der führende Fehler bei der Absoluteichung ist Streulicht in den Spektrometern. Zur Beseitigung dieses Fehlers wurde ein Streulichtkorrekturmodell entwickelt, das so justiert wurde, dass die Strahlungsdichten bei 60 km Tangentenhöhe einem CO₂-Mischungsverhältnis von 360 ppmv entsprechen. Die Korrekturen des Modells an den ursprünglichen Strahlungsdichten betragen bei CRISTA-1 3±1, 5% (bei 60 km) bis 10±5% (bei 120 km). Für CRISTA-2 sind die

Tabelle 2: Systematische Fehler der CO₂-Dichten

z [km]	O(¹ D) [%]	O(³ P) [%]	T _{KIN}		non-LTE Modell [%]	Retrieval [%]	CRISTA ^a [%]
			bias [%]	Gezeiten ^b [%]			
130	8	3	1	1	9	15 ^d	5
120	10	5	1	2	9	5 ^d	5
115	15	10	2	3	16	3	9
110	-30... + 50	10	3	8	22	4	15
100	15	3	6	10	13	4	9
90	5	1	3 ^c	4	10	4	5
70	-10... + 5	-	1	3		6	4

a CRISTA-1; für CRISTA-2 50-100% größer.

b Die Gezeitenamplituden streuen um einen Faktor zwei oder mehr in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Lokalzeit.

c An der polaren Sommermesopause deutlich höher.

d Durch Vernachlässigung von NO⁺.

Tabelle 3: Statistische Fehler der CO₂-Dichten für CRISTA-1 (CR-1) und CRISTA-2 (CR-2).

z [km]	O(¹ D) [%]	O(³ P) [%]	T _{KIN} [%]	CRISTA		Total	
				[%]		[%]	
				CR-1	CR-2	CR-1	CR-2
130	5	3	1	-	80	-	80 ^a
120	5	5	1	-	30 ^a	-	30
115	10	10	1	>100	20 ^a	>100	25
110	20	10	3	>100	25 ^a	>100	35
100	15	3	5	70	12	70	20
90	3	1	3	15	4	15	6
70	8	-	8	15	-	20	-

a für niedrige solare Zenitwinkel; für niedrige Sonnenstände ca. 50% größer.

Korrekturen erheblich größer und mit einer Unsicherheit von 5–20% behaftet. Da die Chopper-Frequenz und die Ausleseelektronik bei CRISTA nicht synchronisiert sind, kommt es zu langperiodischen Störungen der Strahlungsdichten. Der SCS-2 Kanal bei CRISTA-2 ist hiervon besonders betroffen, so dass in Verbindung mit der hohen optischen Tiefe ein CO₂-Retrieval unterhalb von 80 km bei CRISTA-2 nicht möglich ist.

Eine weitere Fehlerquelle ist das nicht-lineare Relaxationsverhalten der Detektoren [Ern, 2000]. Bei CRISTA-2 werden die Strahlungsdichten in Abhängigkeit von der Detektortemperatur etwa 3% beeinflusst, während dieser Effekt bei CRISTA-1 vernachlässigt werden kann.

Fehler in der Strahlungsdichte, die sich, wie hier, nur schwach mit der Höhe des Tangentenpunkts ändern, können in ihrem Einfluss auf die CO₂-Ableitung häufig pauschal unter Zuhilfenahme des Empfindlichkeitsfaktor k abgeschätzt werden:

$$k = \frac{\Delta[CO_2]/[CO_2]}{\Delta I/I}. \quad (15)$$

I ist die Intensität der Strahlung und $[CO_2]$ die daraus abgeleitete CO₂-Dichte. Der Empfindlichkeitsfaktor k wird für zwei unterschiedliche Szenarien berechnet (Abbildung 11):

a) Strahlungsdichteänderungen auf allen Höhen

Hiermit können beispielsweise Eichfehler abgeschätzt werden. Oberhalb von 120 km ist k etwa eins, wie man es für optisch dünne Bedingungen, wo die Strahlungsdichte linear von der Teilchendichte abhängt, erwartet. Da bei 110 km die CO₂-Fundamentalbande optisch dicht wird, steigt k hier auf etwa drei an. Zwischen 80 und 100 km sinkt die Empfindlichkeit auf 1,5–2, um dann unterhalb von 80 km auf 3–4 stark anzuwachsen. Meist hat eine Verdopplung oder Halbierung der Strahlungsdichteänderung keinen großen Einfluss auf k .

Die Anwendung von k auf die Instrumentenfehler der 4,3 μm-Strahlungsdichten ergibt für die abgeleiteten CO₂-Dichten typische Unsicherheiten von 4–15% bei CRISTA-1 und 10–30% bei CRISTA-2. Die Maximalwerte liegen bei 110 km. Die höhen aufgelösten Fehler können Tabelle 2 entnommen werden.

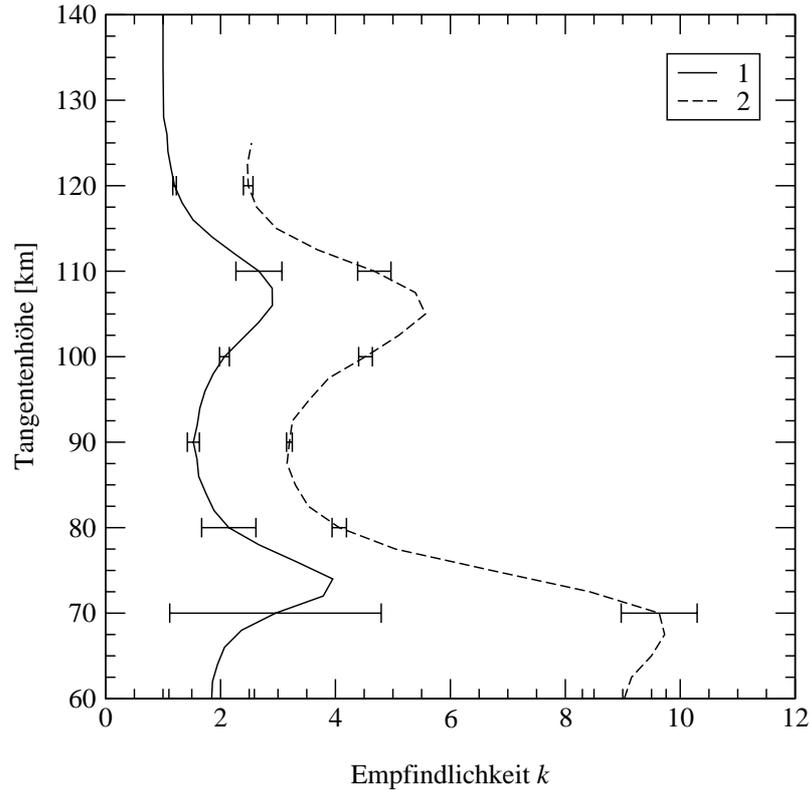


Abbildung 11: Empfindlichkeit der abgeleiteten CO_2 -Dichten auf Variationen des zugrunde liegenden Strahlungsdichteprofiles. **1:** Erhöhung der CO_2 -Dichten bei einer Anhebung der Strahlung um 4% auf allen Höhenstufen. Die Fehlerbalken zeigen die Variation von k bei anderen Strahlungsdichte-Änderungen (2-8%). **2:** Reaktion der CO_2 -Dichten auf Änderungen der Strahlungsdichte (4%) nur am Tangentenpunkt bei einer vertikalen Auflösung von 2,5 km. Die Fehlerbalken deuten 2–8-prozentige Verschiebungen an.

b) Strahlungsdichteänderungen nur in der Tangentenschicht

Dieses Szenarium kann beispielsweise zur Abschätzung des statistischen Fehlers verwendet werden. Die Rechnungen wurden mit einer dem CRISTA-Höhengitter angepassten vertikalen Schrittweite von 2,5 km vorgenommen.

k ist im Vergleich zu dem ersten Fall etwa verdoppelt, da selbst im optisch dünnen Fall nur etwa 50% der Strahlung aus der 2,5 km dicken Tangentenschicht stammen. Weil in der mittleren und unteren Mesosphäre weniger Strahlung direkt aus der Tangentenschicht stammt, ist k hier besonders groß.

Der statistische Fehler der CO_2 -Dichten wird bei CRISTA-1 in allen Höhen durch Detektorrauschen und längerperiodische Störungen dominiert (vgl. Abschnitt 2.7.1). Er wächst von etwa 15% in der Mesosphäre auf über 100% in der unteren Thermosphäre an. Bei CRISTA-2 ist der statistische Fehler durch die Verwendung von rauschärmeren Detektoren deutlich niedriger. Er liegt bis 120 km unter 30%.

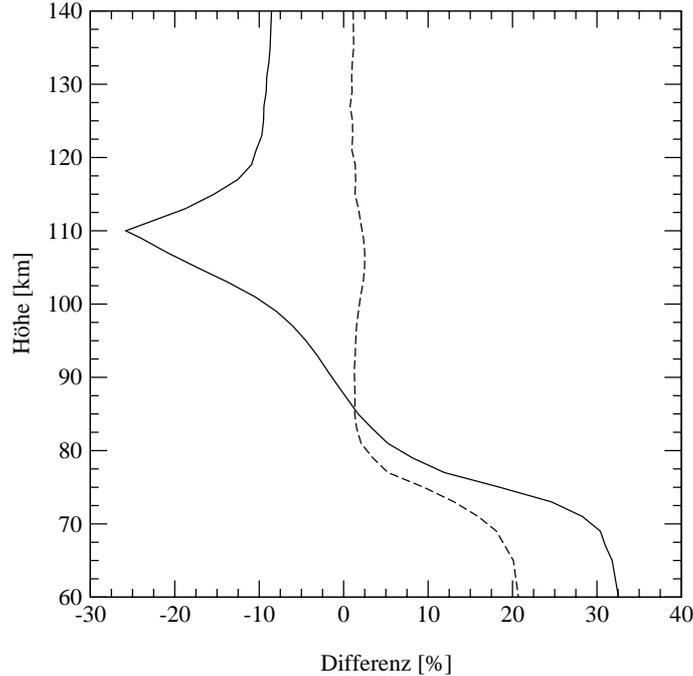


Abbildung 12: Änderung der abgeleiteten CO_2 -Dichten auf eine 50% Erhöhung der Ratenkonstante für die V-V-Wechselwirkung zwischen N_2 und CO_2 (durchgezogene Linie) und die Konstante für intra-molekularen V-V-Transfer, bei der ein ν_3 -Vibrationsquant in 1–4 ν_2 -Quanten umgewandelt wird (strichlierte Kurve).

2.7.2 Einflüsse der non-LTE Modellparameter

Die Anregung der $4,3\ \mu\text{m}$ -Niveaus hängt empfindlich von dem Energietransfer von $\text{O}(^1\text{D})$ nach CO_2 ab. $\text{O}(^1\text{D})$ gibt seine elektronische Energie durch Stoß zunächst an N_2 ab. Die bei diesem Prozess angeregten $4,3\ \mu\text{m}$ -Schwingungen werden durch Stöße an CO_2 übertragen. Die Unsicherheit der V-V-Wechselwirkung zwischen N_2 und CO_2 stellt den bedeutendsten Modellfehler in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre dar. Die Ratenkonstante wurde zuletzt von *Inoue und Tsuchiya* [1975] gemessen und konnte von *Sharma und Brau* [1969] in guter Übereinstimmung mit dieser bzw. früheren Messungen modelliert werden. Die Analyse der SAMS $4,3\ \mu\text{m}$ Messungen war jedoch nur mit einer Verdopplung dieser Ratenkonstante plausibel [*López-Puertas und Taylor*, 1989], so dass für die Fehlerbetrachtung eine 50%-Unsicherheit für diese Rate angenommen wird. Damit ergibt sich für die abgeleiteten CO_2 -Dichten ein systematischer Fehler von 30% bei 60 km, einigen Prozent an der Mesopause, -25% bei 110 km und -10% oberhalb von 120 km (Abbildung 12).

Die zweite wichtige Fehlerquelle des non-LTE Modells ist die Ratenkonstante für den intra-molekularen V-V-Transfer, bei der ein ν_3 Vibrationsquant in 1–4 ν_2 Quanten umgewandelt wird. Dieser Prozess ist sehr wichtig für die Thermalisierung der CO_2 -Niveaus in der unteren und mittleren Thermosphäre. Für diese Konstante wird ebenfalls eine Unsicherheit von 50% angenommen [Clarmann *et al.*, 1998]. Das CO_2 -Retrieval wird durch diese Fehlerquelle nur unterhalb von 80 km beeinflusst, bei 60 km etwa 20% (Abbildung 12).

Eine weitere Fehlerquelle ist die Stoßwechselwirkung von $\text{CO}_2(\nu_3)$ mit atomarem Sauerstoff, deren Rate bisher nicht gemessen werden konnte. In dem vorliegenden Modell wird diese Wechselwirkung nach einer Hypothese von Shved *et al.* [1998] berücksichtigt, die auch mit anderen Studien vereinbar ist [López-Puertas *et al.*, 1998a; Nebel *et al.*, 1994]. Die Unsicherheit dieses Prozesses wird bei der Abschätzung des systematischen Fehlers durch die Wahl des atomaren Sauerstoffprofils berücksichtigt.

Ebenso wird den Unsicherheiten bei der Übertragung von elektronischer Energie aus hoch angeregtem $\text{O}(^1\text{D})$ auf N_2 bei der Abschätzung des Fehlers durch die Wahl des $\text{O}(^1\text{D})$ -Profils Rechnung getragen.

Unsicherheiten bei den spektroskopischen Daten oder der Modellierung des solaren Flusses sind vergleichsweise klein und können meist vernachlässigt werden [Kutepov *et al.*, Manuskript in Vorbereitung, 2001].

2.7.3 Unsicherheiten durch die Modellierung des $\text{O}(^1\text{D})$ -Profils

$\text{O}(^1\text{D})$ wird in der mittleren Mesosphäre vor allem durch Photolyse von Ozon bei Wellenlängen kleiner 310 nm produziert. In der oberen Mesosphäre und in der Thermosphäre ist die Photolyse von O_2 bei Wellenlängen kleiner 176 nm die wichtigste Quelle. In 85 km Höhe werden bereits 30% der $\text{O}(^1\text{D})$ -Moleküle aus O_2 -Photolyse gebildet; bei 95 km können alle übrigen Quellen vernachlässigt werden. Neben der Photolyserate ist das Verzweungsverhältnis, mit dem atomarer Sauerstoff im angeregten Zustand $\text{O}(^1\text{D})$ im Vergleich zum Grundzustand $\text{O}(^3\text{P})$ gebildet wird, ein wichtiger Parameter.

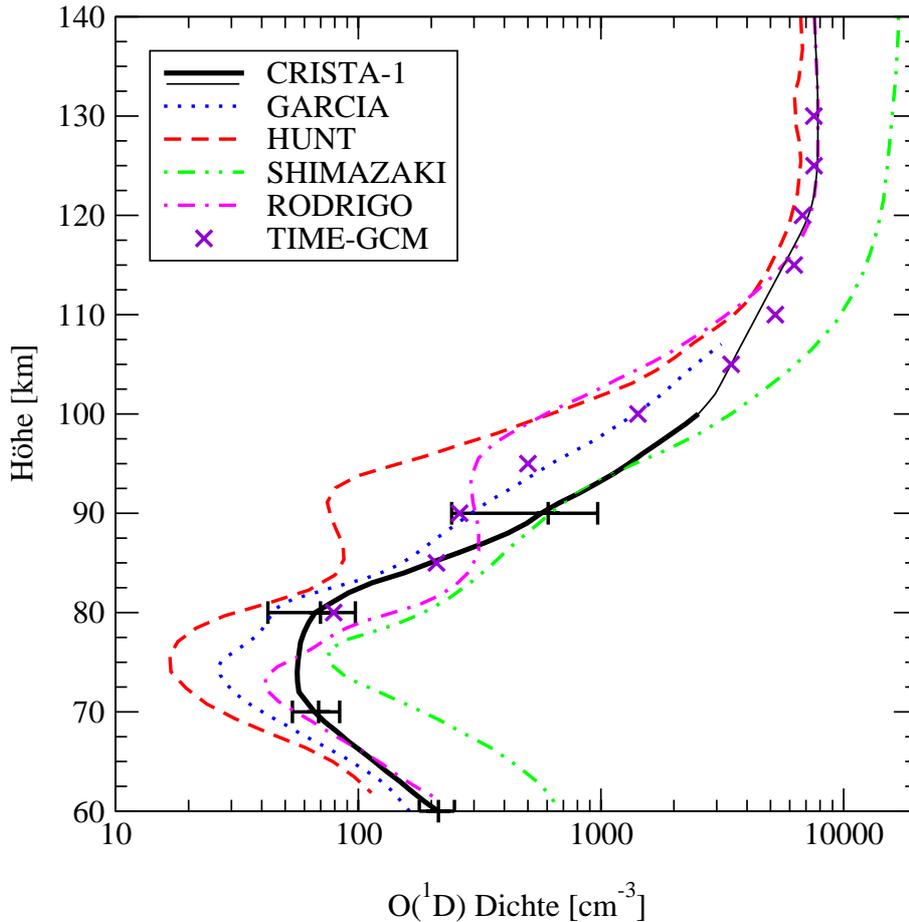


Abbildung 13: Verschiedene $O(^1D)$ -Profile. Die dicke schwarze Kurve zeigt ein mittleres CRISTA-1 $O(^1D)$ -Profil, die Fehlerbalken die Standard-Abweichung. Die dünne schwarze Kurve ist die Fortsetzung des CRISTA-Profiles in die Modellrechnung von *Rodrigo et al.* [1991]. Die übrigen Profile sind von *Hunt* [1971] (für Equinox, Äquator, Mittag); *Shimazaki und Laird* [1970] (für Equinox, Äquator, Mittag und niedrige solare Aktivität), *Rodrigo et al.* [1991] (für Equinox, mittlere Breiten, Mittag und moderate solare Aktivität) und vom TIME-GCM (für die CRISTA-2 Mission, Mittag, $62.5^\circ N$).

Angeregter Sauerstoff kann von CRISTA nicht direkt gemessen werden und muss daher aus anderen Messgrößen abgeleitet bzw. Modellen entnommen werden. Weil diese Modelle sehr verschiedene $O(^1D)$ -Profile voraussagen, stellt die Annahme eines $O(^1D)$ Profils eine bedeutende Unsicherheit des CO_2 -Retrievals dar.

Für das CO_2 -Retrieval wird das mesosphärische $O(^1D)$ unter Annahme von photochemischem Gleichgewicht (vgl. Kapitel 3.3) aus den CRISTA Ozon-Daten abgeleitet. Die Photolyse von Ozon wird mit dem photochemischen Modell von *Lary* [1991] berechnet. Da das Model die photochemische Produktion von $O(^1D)$ aus O_2

nicht berücksichtigt, werden die entsprechenden Raten bis 100 km Höhe *Allen et al.* [1984] entnommen. Oberhalb von 100 km wird das berechnete O(¹D)-Profil glatt in das Modellprofil von *Rodrigo et al.* [1991] fortgesetzt.

Abbildung 13 zeigt einen Vergleich von verschiedenen Modellrechnungen mit dem mittleren O(¹D)-Profil der CRISTA-1 Mission. Obwohl die Modelle für ähnliche Bedingungen gerechnet wurden (12 h Mittag und Equinox), unterscheiden sie sich um einen Faktor 2–5. Das CRISTA-1 Profil liegt in der unteren und mittleren Mesosphäre etwa in der Mitte der Modellrechnungen, während es zwischen 80 km und 100 km eher am oberen Rand der Modellläufe liegt. In der unteren Thermosphäre sind die O(¹D)-Profile mit Ausnahme der Rechnung von *Shimazaki und Laird* [1970] sehr ähnlich.

Die Empfindlichkeit, mit der die Ableitung von CO₂ auf eine Verschiebung des O(¹D) Profils reagiert, hängt stark von der Höhe ab (Abbildung 14). Generell ist die Empfindlichkeit in den Bereichen groß, in denen die Fundamentalbande einen bedeutenden Anteil an der Gesamtintensität hat.

In großen Höhen (>120 km) hängt die CO₂-Ableitung nicht von der lokalen O(¹D)-Dichte ab. Die auftretenden Differenzen werden allein durch die Verschiebung von O(¹D) unterhalb von 100 km und der damit verbundenen Änderung des Strahlungsfeldes verursacht (Abbildung 14b und 14c). Um 110 km ist die Empfindlichkeit besonders hoch (30% bei einer Halbierung von O(¹D))), da in dieser Höhe der solare Fluss, der die 4,3 μm-Fundamentalschwingungen anregt, bereits signifikant in größeren Höhen absorbiert wurde und daher die Wechselwirkung mit O(¹D) wichtig wird. Zwischen 70 km und 95 km ist der Einfluss von O(¹D) wieder kleiner, da die Emissionen der Hotbands wesentlich schwächer von O(¹D) abhängen.

Für die Fehlerabschätzung werden bei 110 km O(¹D)-Unsicherheiten von einem Faktor 0,3–1,5 angenommen, bei 100 km von 0,5–1,5 und in der Mesosphäre von ±30%. Die Annahme einer größeren Unsicherheit zu kleinen Dichten in der Mesopausenregion wird dadurch begründet, dass das verwendete Modellprofil in dieser Höhe für 12 h Mittag berechnet wurde, die CRISTA-Messungen jedoch auch zu anderen Lokalzeiten vorliegen, an denen die Produktion von O(¹D) geringer ist.

Die Breiten- und Lokalzeit-Abhängigkeit von O(¹D) und deren Folgen auf die Breitenabhängigkeit von CO₂ werden in *Kaufmann et al.* [2002a] genauer diskutiert. Im

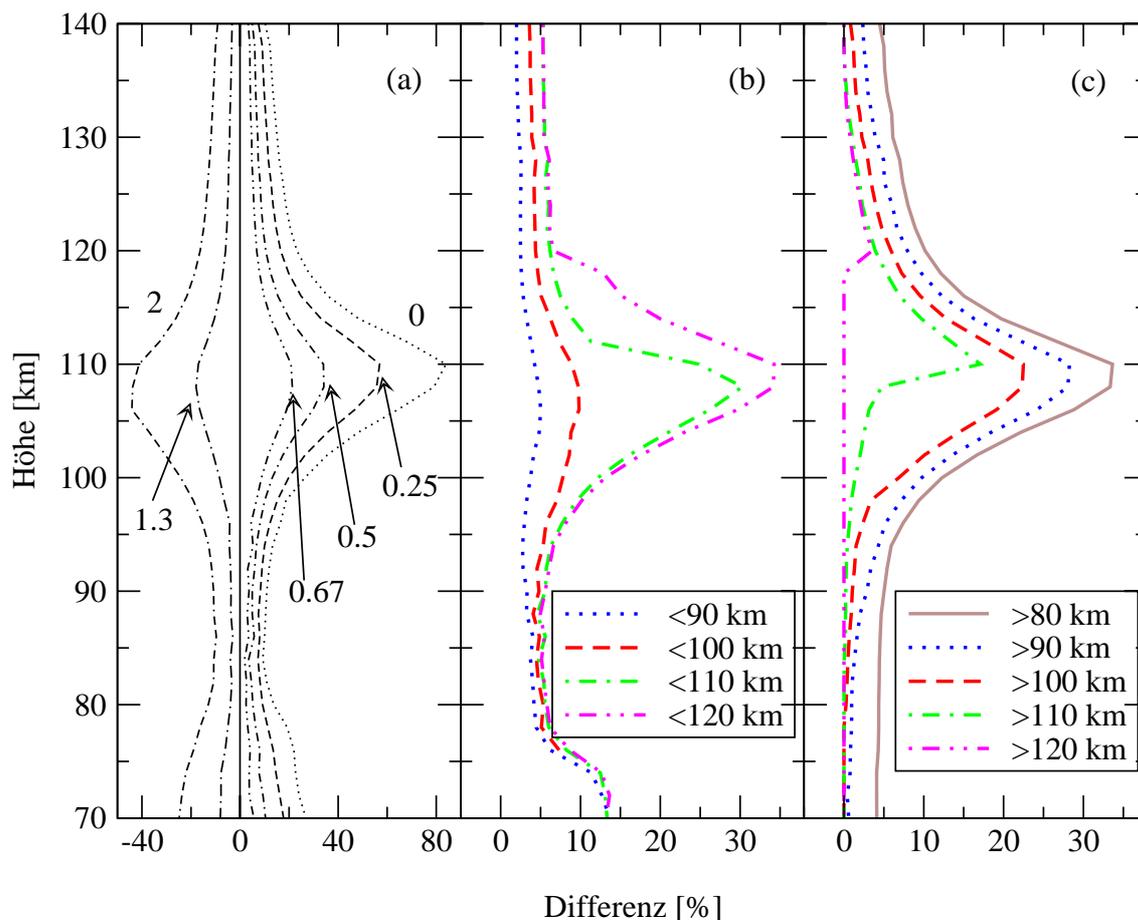


Abbildung 14: Empfindlichkeit der abgeleiteten CO_2 -Dichte auf Verschiebungen des $\text{O}(^1\text{D})$ -Profils. Das Referenzprofil ist *Rodrigo et al.* [1991] entnommen. (a) Das Referenzprofil wurde auf allen Höhen um die angegebenen Faktoren variiert. Bei den übrigen Abbildungen wurde das Referenzprofil unterhalb (b) bzw. oberhalb (c) der angegebenen Höhen halbiert.

Mittel hängen die abgeleiteten CO_2 -Dichten von den $\text{O}(^1\text{D})$ -Fehlern mit 5–10% in der Mesosphäre, 30–50% bei 100 km und 5–15% darüber ab (vgl. Tabelle 2).

Der statistische Fehler der $\text{O}(^1\text{D})$ Modellprofile wird mit 30% abgeschätzt, der sich höhenabhängig mit 5–20% in der abgeleiteten CO_2 -Dichte auswirkt (vgl. Tabelle 3).

2.7.4 Bedeutung der kinetischen Temperatur

Das CO_2 -Retrieval hängt an drei Stellen von der kinetischen Temperatur ab:

- (1) Die Ratenkonstanten sind von der Temperatur abhängig.
- (2) Die Anregung der Vibrationsniveaus und die Limb-Strahlungsdichte hängen von der optischen Tie-

fe und über die Rotationsverteilung und die Linienbreite von der Temperatur ab. (3) Durch den hydrostatischen Aufbau der Atmosphäre wird bei einer Temperaturänderung auch der Druck und die Totdichte bei einer bestimmten geometrischen Höhe verschoben. Wie später gezeigt wird, hängt der Einfluss der Temperatur stark davon ab, ob man CO_2 -Dichten oder Mischungsverhältnisse betrachtet und auf welcher vertikalen Koordinate (geometrische Höhe oder Druck) man zwei Profile miteinander vergleicht.

Abhängig von der Jahreszeit und der geographischen Breite liefert das operationelle CRISTA Temperatur-Retrieval unter der Annahme von LTE verlässliche Daten bis 75–90 km Höhe. Da CRISTA Temperaturen in größeren Höhen für das CO_2 Retrieval noch nicht vorlagen, wurden die LTE-Temperaturen zwischen 75 km und 90 km glatt in die Temperaturen des GRAM-Modells [Justus et al., 1995] überführt. Weil CRISTA-Temperaturen nicht für den Messmodus M/T während CRISTA-1 und nur für 15% der Mesosphären Daten während CRISTA-2 vorlagen, werden in diesen Fällen GRAM-Temperaturen in allen Höhen verwendet. Der Fehler der CRISTA-Temperaturen beträgt 2 K [Riese et al., 1999]. Für die GRAM-Temperaturen in der Mesosphäre wird aus dem Vergleich mit den CRISTA-Daten ein Fehler von 2–6 K angenommen. In der unteren Thermosphäre wird aus der Abweichung der GRAM- und MSIS- [Hedin, 1987] Modelltemperaturen ein Fehler von 20 K abgeschätzt.

Abbildung 15 zeigt die Empfindlichkeit des CO_2 -Retrievals auf Änderungen der kinetischen Temperatur. Die Höhe der Änderungen wird in Anlehnung an die systematischen Fehler der verwendeten Temperaturen gewählt, d.h. es werden Verschiebungen von 2 K, 3 K und 5 K über den gesamten Höhenbereich vorgenommen, und zusätzlich ist ein Temperaturprofil um 20 K nur in den großen Höhen verschoben worden, um in der Thermosphäre den lokalen Einfluss der Temperatur auf das CO_2 Retrieval zu untersuchen. Der atmosphärische Druck wird unter Annahme von hydrostatischem Gleichgewicht für jeden Fall neu berechnet.

Die 2K-Unsicherheit der Mesosphärentemperaturen hat, wenn man CO_2 -Dichten betrachtet, nur einen sehr geringen Einfluss auf die CO_2 -Ableitung: In der Mesosphäre ändern sich die CO_2 -Dichten weniger als 2%, in der unteren Thermosphäre maximal 7% (Abbildung 15b). Von der lokalen Temperatur hängen die CO_2 -Dichten nur in der unteren Mesosphäre ab; in der unteren Thermosphäre haben selbst 20 K-Unsicherheiten bei der Temperatur praktisch keinen Einfluss auf die abgeleiteten CO_2 -Dichten.

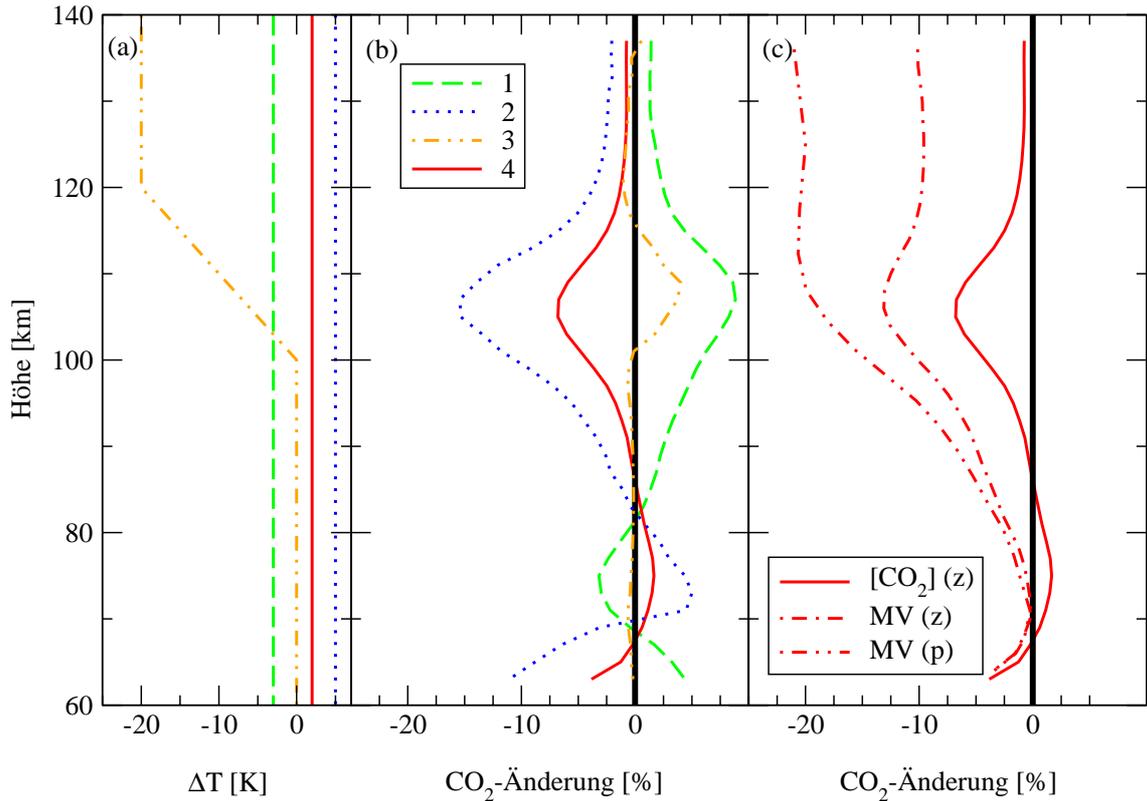


Abbildung 15: Temperaturabhängigkeit des CO₂-Retrievals. **(a)** Größe der Temperaturänderungen. **(b)** Auswirkung auf die abgeleiteten CO₂-Dichten bei Vergleich auf geometrischen Höhen. **(c)** Abhängigkeit der CO₂-Dichte ($[\text{CO}_2]$) und des CO₂-Mischungsverhältnisses (MV) auf geometrischen Höhen z und Isobaren p bei einer konstanten Temperaturänderung von -2 K.

Deutlich stärker wird die Temperaturabhängigkeit, wenn statt CO₂-Dichten CO₂-Mischungsverhältnisse betrachtet werden. Durch das hydrostatische Gleichgewicht bewirkt eine 2 K-Temperaturabnahme in der Mesosphäre eine Druckänderung in der Thermosphäre von 10%. Dies entspricht einer Verschiebung der Isobaren um 2 km. Zusätzlich ändert sich die Totaldichte über das ideale Gasgesetz und damit auch die Mischungsverhältnisse. Am Beispiel der 2 K Temperaturerhöhung (Abbildung 15c) ist der Fehler in den CO₂-Mischungsverhältnissen bei 100 km bereits 2–3 mal höher als in den CO₂-Dichten. Obwohl der Temperaturfehler der CO₂-Dichten oberhalb von 110 km auf Null zurückgeht, bleibt er in den CO₂-Mischungsverhältnissen konstant bei 10–20% durch die Verschiebung der Totaldichten. In dieser Höhe wird zusätzlich die Wahl des vertikalen Koordinatensystems bedeutend, da das CO₂-Mischungsverhältnis hier einen sehr großen Vertikalgradienten hat.

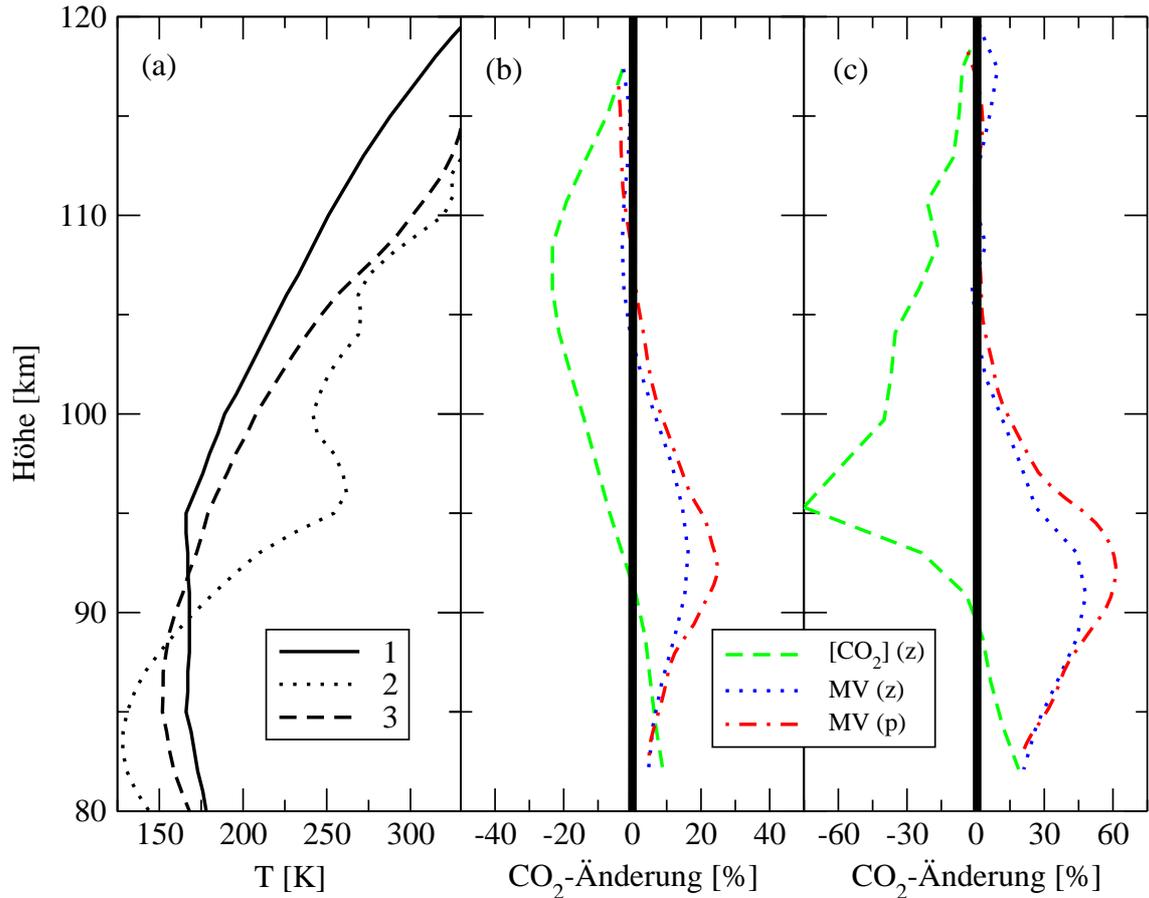


Abbildung 16: Temperaturabhängigkeit des CO_2 -Retrievals im Sommer bei hohen nördlichen Breiten. **(a)** Temperatur für 70°N , 90°W am 14. August 1997 aus GRAM (Kurve 1) und von CRISTA-2 gemessen (Kurve 2). Kurve 3 zeigt ein mittleres CRISTA-2 Profil für hohe nördliche Breiten. **(b)** Änderung der CO_2 -Dichte ($[\text{CO}_2](z)$) und des CO_2 -Mischungsverhältnisses ($\text{MV}(z)$) auf geometrischen Höhen z und auf Isobaren ($\text{MV}(p)$) bei Verwendung von Temperaturprofil 3 **(c)** wie (b), jedoch für Temperaturprofil 2.

Bei extrem niedrigen Temperaturen wie sie z.B. während der zweiten CRISTA Mission bei hohen nördlichen Breiten an der Mesopause geherrscht haben, ist der Temperaturfehler des CO_2 -Retrievals bedeutend höher als bisher diskutiert. Die vorläufigen Ergebnisse des CRISTA-2 non-LTE Temperaturretrievals deuten darauf hin, dass an der polaren Sommermesopause Temperaturen von 125–140 K geherrscht haben. Solche niedrigen Temperaturen werden von GRAM und den meisten anderen Atmosphärenmodellen nicht wiedergegeben. Abbildung 16 zeigt ein mittleres CRISTA-2 Temperatur-Profil für hohe nördliche Breiten, ein einzelnes Temperaturprofil mit extrem niedrigen Temperaturen wie sie in Gegenwart von polaren Mesosphärenwolken auftreten und ein entsprechendes Profil aus dem GRAM-Modell.

Die Mesopause liegt bei den CRISTA-Profilen mindestens 5 km tiefer als in dem GRAM-Modell und die Temperaturen sind 15 K bis 30 K niedriger. Oberhalb der Mesopause sind die gemessenen Temperaturen generell höher als das Modellprofil - im Extremfall bis zu 100 K.

Bei dem Wechsel von dem GRAM-Temperaturprofil auf die gemessenen Temperaturprofile ändert sich die abgeleitete CO₂-Dichte beträchtlich. An der Mesopause beträgt der Unterschied typischerweise 10–20%; in der unteren Thermosphäre wächst die Diskrepanz auf bis zu 20% für das mittlere Profil und auf über 60% für das Profil mit den extrem kalten Temperaturen.

Betrachtet man statt CO₂-Dichten Mischungsverhältnisse, fallen die Unterschiede an der Mesopause größer und in der unteren Thermosphäre kleiner aus.

Die Vernachlässigung von Gezeitenwellen in den Modellprofilen stellt eine weitere Unsicherheit bei der CO₂-Ableitung dar. Gezeiten hängen stark von der geographischen Breite und der Lokalzeit ab. Für die Abschätzung dieser Fehlerquelle werden in der Mesosphäre Modell-Temperaturprofile mit Gezeiten-Amplituden der täglichen und halbtägigen Gezeit aus dem Global Scale Wave Model (GSWM) [*Hagan et al.*, 1999], das für die atmosphärischen Bedingungen der CRISTA-Perioden betrieben wurde [*Oberheide et al.*, 2000], gestört; in der Thermosphäre werden die Amplituden von *Forbes* [1995] verwendet. Die Vernachlässigung der Gezeiten in den Modelltemperaturen beeinflusst die Ableitung der CO₂-Dichten allerdings weniger als 5% (vgl. *Kaufmann et al.*, 2002a).

Der statistische Fehler der Temperaturen wird aus der Korrelation zwischen den GRAM- und CRISTA-Temperaturen bzw. in den großen Höhen zwischen GRAM und MSIS abgeschätzt. Die Korrelation wird bei hohen Breiten durchgeführt, da hier Fluktuationen durch Gezeitenwellen vernachlässigt werden können. Die Streuung der Temperaturen bewegt sich zwischen 1 K bei 70 km und 20 K bei 115 km. Die CO₂-Dichte schwankt hierdurch typischerweise 3%, in den niedrigen Höhen bis zu 8%.

2.8 Ergebnisse des Retrievals

Das CO₂-Retrieval wird bei CRISTA-1 und CRISTA-2 für alle Profile in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre durchgeführt. Der Höhenbereich der abgeleiteten CO₂-Profile umfasst 60–120 km bei CRISTA-1 (etwa 450 Profile) und 80–130 km bei CRISTA-2 (etwa 1800 Profile). Drei Strahlungsdichteprofile und die daraus abgeleiteten CO₂-Dichten sind in Abbildung 17 gezeigt. Das non-LTE-Modell reproduziert mit diesen CO₂-Profilen die Strahlungsdichten besser als 1%.

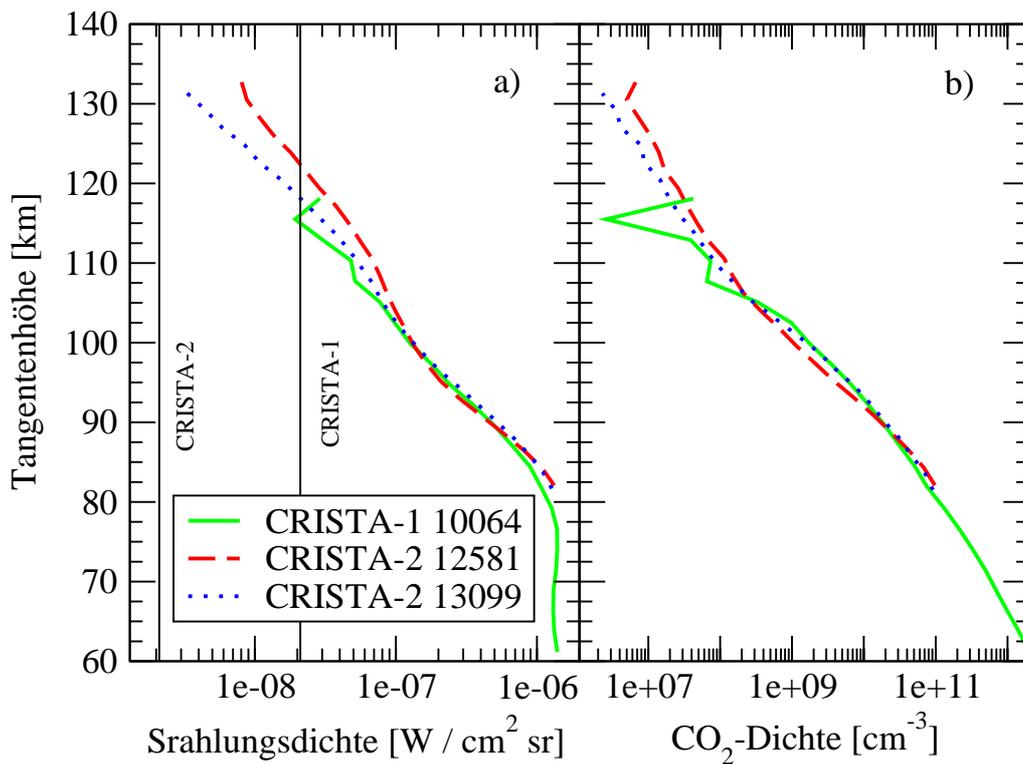


Abbildung 17: a) Integrierte Strahlungsdichten ($2300\text{--}2390\text{ cm}^{-1}$) von CRISTA-1 und CRISTA-2. CRISTA-1 Profil 10064 wurde bei 21°S , 66°O am 9. November 1994 gemessen; CRISTA-2 Profil 12581 bei 63°N , 164°W am 15. August 1997 und CRISTA-2 Profil 13099 bei 30°N , 95°O am 15. August 1997. Der statistische Fehler der Strahlungsdichten wird durch die vertikalen Linien angezeigt. b) Die aus diesen Strahlungsdichten abgeleiteten CO₂-Dichten.

2.8.1 Höhenverlauf der CO₂-Mischungsverhältnisse

Um den Höhenverlauf von CO₂ besser beurteilen zu können, werden die CO₂-Dichten unter Verwendung von CRISTA- und GRAM-Temperaturen in Mischungsverhältnisse umgerechnet. Die individuellen Mischungsverhältnisse und das globale Mittel dieser Daten sind in Abbildung 18 dargestellt. Die Streuung der Einzelprofile beträgt etwa 25% in der Mesosphäre und bis zu 100% in der unteren Thermosphäre und enthält sowohl atmosphärische als auch instrumentelle Beiträge.

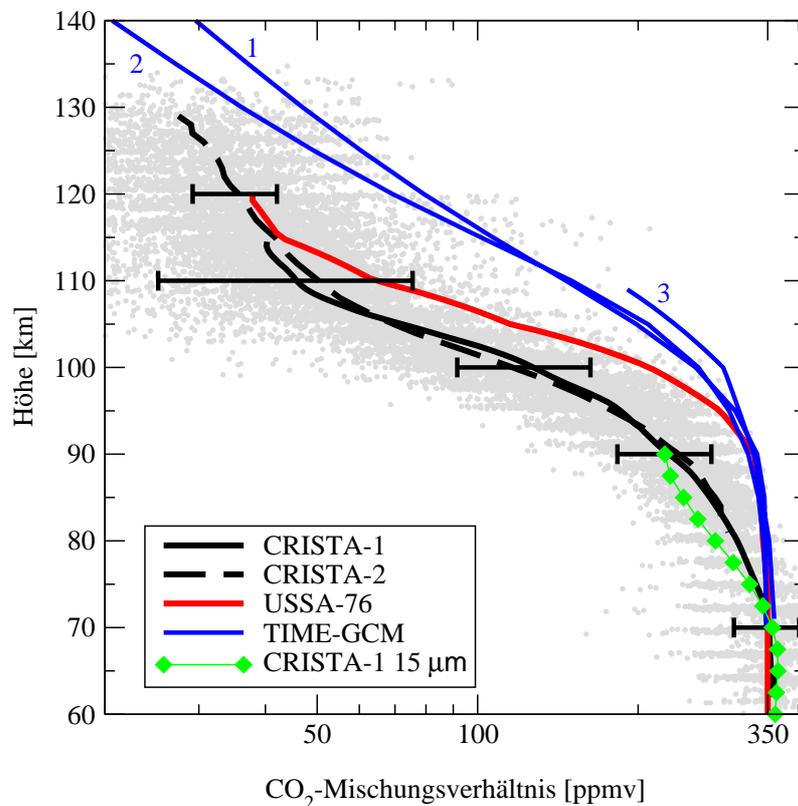


Abbildung 18: CO₂-Mischungsverhältnisse der beiden CRISTA-Missionen im Vergleich mit Atmosphären-Modellen. Die grauen Punkte repräsentieren die einzelnen CRISTA-1 und -2 Messungen; die schwarzen Kurven sind die globalen Mittel dieser Daten. Die rote Kurve zeigt ein CO₂-Profil für mittlere Breiten aus der USSA 76 und die blauen Kurven wurden mit dem TIME-GCM berechnet. Die Kurven 1 und 2 sind den TIME-GCM Modellläufen für die 2. CRISTA Mission entnommen; Kurve 1 ist für die Nord- und Kurve 2 für die Südhemisphäre. Kurve 3 ist aus einer TIME-GCM-Simulation für Equinox. Die grünen Rauten sind ein globales Mittel, das aus den CRISTA 15 µm-Strahlungsdichten von *Kostsov et al.* [Manuskript in Vorbereitung, 2003] abgeleitet wurde.

Die mittleren CO₂-Mischungsverhältnisse der beiden CRISTA Missionen sind in ihrem Überlapp zwischen 80 km und 110 km praktisch identisch. Auffällig ist, dass die ebenfalls in Abbildung 18 dargestellten Modelldaten bis etwa 90 km Höhe ein konstantes Mischungsverhältnis aufweisen, während die CRISTA-Daten zwischen 70 km und 80 km von dem konstanten Wert abweichen. Unter Berücksichtigung des systematischen Fehlers ist die Abweichung bei 80 km signifikant.

Der Vergleich mit CO₂-Mischungsverhältnissen aus der empirischen U.S. Standardatmosphäre (USSA-76) und dem TIME-GCM (Thermosphere- Ionosphere- Mesosphere- Electrodynamics - General Circulation Model, vgl. Kapitel 2.8.5) zeigt, dass die Modellprofile erst 10 km über den CRISTA-Daten abknicken. Die Übereinstimmung der verschiedenen TIME-GCM Läufe (Abbildung 18) deutet darauf hin, dass der Gradient des CO₂-Mischungsverhältnisses nur gering von der Jahreszeit oder der geographischen Breite abhängt.

Dass das frühe Abknicken der CRISTA-Daten nicht an der Retrieval-Methode hängt, zeigt ein Vergleich mit den Ergebnissen von *Kostsov et al.* [Manuskript in Vorbereitung, 2003], dessen CO₂-Mischungsverhältnisse aus CRISTA-1 15 μm -Strahlung abgeleitet wurden. Die Übereinstimmung zwischen den aus 4,3 μm - und 15 μm -Emissionen abgeleiteten Profilen ist in allen Höhen besser als 10% (Abbildung 18). Diese Übereinstimmung ist besonders bemerkenswert, da die 15 μm -Niveaus noch weitestgehend im LTE sind bzw. völlig andere An- und Abregungsmechanismen besitzen als die 4,3 μm -Niveaus. Dies deutet darauf hin, dass der frühe Abfall der CO₂-Mischungsverhältnisse keine Folge einer fehlerhaften Modellierung der Vibrationsanregung ist. Da die 15 μm Strahlung mit einem anderen Spektrometer registriert wird, ist es ebenfalls unwahrscheinlich, dass Fehler bei der Eichung oder andere instrumentelle Effekte den frühen CO₂-Abfall verursachen.

2.8.2 Modellierung des CO₂-Höhengradienten

Die Erdatmosphäre ist bis in die obere Mesosphäre turbulent durchmischt, und Spurengase, die keine signifikanten Quellen oder Senken besitzen, weisen ein mit der Höhe konstantes Mischungsverhältnis auf. Unter dem Einfluss der molekularen Diffusion beginnt sich die Atmosphäre in der oberen Mesosphäre zu entmischen, wobei

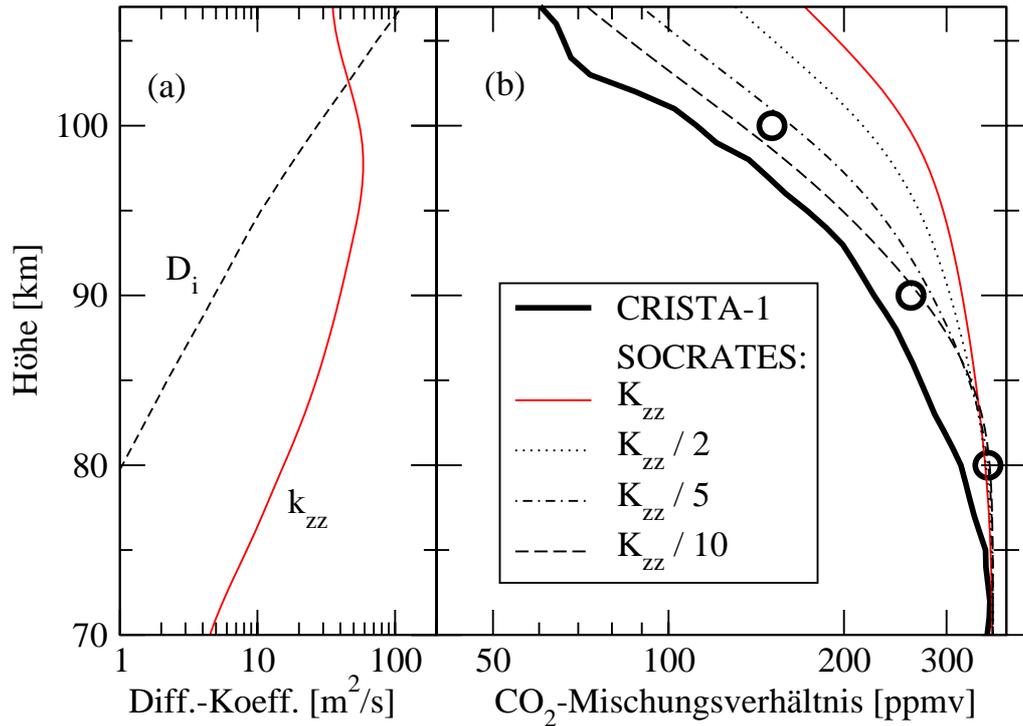


Abbildung 19: (a) Molekularer Diffusionskoeffizient D_i und Eddy-Diffusionskoeffizient k_{zz} für den 7. November, 30°N , berechnet mit dem SOCRATES Modell. (b) Mittleres CRISTA-1 CO_2 -Profil für $30^\circ\text{N} \pm 5^\circ$. Die Kreise stellen auf ausgewählten Höhen die um die systematischen Fehler verschobenen CRISTA-1 Daten dar. Die übrigen Kurven sind SOCRATES-Modellsimulationen, bei denen die turbulente Diffusion um die in der Legende angegebenen Faktoren verringert wurde.

die schweren Bestandteile (z.B. CO_2) stärker mit der Höhe abfallen als die leichten. In der Mesosphäre liefert das Brechen von Schwerewellen den wichtigsten Beitrag zur Turbulenz. Dieser Mechanismus soll im Folgenden mit dem SOCRATES-Modell näher untersucht werden.

SOCRATES (Simulation of Chemistry, Radiation, and Transport of Environmentally important Species) [Brasseur *et al.*, 1990] ist ein 2-dimensionales interaktives Chemie-Dynamik-Strahlungsmodell für die untere und mittlere Atmosphäre. Es deckt den Höhenbereich von 0 bis 120 km mit einer Auflösung von 1 km ab; der Breitenbereich beträgt 85°S bis 85°N mit einer Auflösung von 5° . SOCRATES berücksichtigt u.a. non-LTE Infrarot-Strahlungskühlung, solares Heizen durch Rekombinationsprozesse sowie molekulare und turbulente Diffusion. Das Brechen von Schwerewellen wird mit dem Lindzen-Schema [Lindzen, 1981; Holton, 1982] simuliert und der turbulente Massenstrom in Analogie zur molekularen Diffusion durch Eddy-Diffusionskoeffizienten beschrieben.

Für den 7. November, 30°N ergeben sich mit der Lindzen-Parametrisierung vertikale Diffusionskoeffizienten k_{zz} von 3–30 m²/s in der Mesosphäre und 55 m²/s an der Mesopause (Abbildung 19a). Je nach geographischer Breite oder Jahreszeit können diese Werte bis zu einem Faktor 10 variieren.

Während die Eddy-Diffusionskoeffizienten mit einer verhältnismäßig großen Unsicherheit behaftet sind, kann der molekulare Diffusionskoeffizient D_i durch folgenden Ausdruck relativ exakt beschrieben werden [Chapman und Cowling, 1970]:

$$D_i = \frac{3}{8n\sigma_i^2} \sqrt{\frac{kT(m+m_i)}{2\pi mm_i}} \quad (16)$$

Dabei ist σ_i der Stoßquerschnitt zwischen dem Molekül i und den Hauptbestandteilen der Atmosphäre ($\sigma_i=3,4-3,8 \times 10^{-8}$ cm für Stöße von N₂ mit O₂ oder CO₂ [Chapman und Cowling, 1970]), n die Totaldichte, k der Boltzmannfaktor, T die Temperatur, m die mittlere Molekularmasse und m_i die Molekularmasse des Moleküls i . Der Höhenverlauf von D_i für CO₂ ist in Abbildung 19a ebenfalls gezeigt. Der molekulare Diffusionskoeffizient von CO₂ beträgt bei 80 km nur 1 m²/s, steigt dann aber stark mit der Höhe an. Die Turbopause, an der D_i und k_{zz} gleich groß sind, liegt für die gezeigte Rechnung bei 103 km.

Untersucht man die Wirkung von molekularer und turbulenter Diffusion z.B. als Austauschzeit über eine Skalenhöhe von CO₂, so ergeben sich typische Zeiten von 3 Monaten bei 70 km, 3 Wochen bei 80 km und einigen Tagen an der Turbopause.

Photodissoziation führt ebenfalls zu einem Abfall von CO₂ mit zunehmender Höhe. CO₂ kann bei Wellenlängen kleiner 224 nm gespalten werden [Trinks und Fricke, 1978]. Die durchschnittliche Lebenszeit von CO₂ wird durch Photolyse bei 80 km auf ein Jahr, an der Turbopause auf 1/2 Jahr und bei 120 km auf 2 Monate beschränkt [Chabrillat, 2001]. Oberhalb von 110 km bildet die Reaktion mit O⁺ einen weiteren wichtigen Verlustprozess für CO₂ [Trinks und Fricke, 1978].

Modellrechnungen haben gezeigt, dass der Gradient von CO₂ unterhalb der Turbopause nur sehr gering (<5%) von der Photolyse abhängt [Chabrillat et al., 2002].

Ein weiterer Prozess, der den Höhenverlauf von CO₂ beeinflussen kann, ist Advektion durch die Winde der globalen Zirkulation. Generell beobachtet man in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre auf der Sommerhemisphäre Aufwärts-

transporte und auf der Winterhemisphäre Abwärtstransporte (vgl. Kapitel 2.8.4 und 3.8.3). Diese Zirkulation führt zu einer Erhöhung der CO₂-Mischungsverhältnisse im Sommer; bei 45°N in 100 km Höhe etwa 10% im Vergleich zu den Wintermonaten [Chabrillat *et al.*, 2002]. Bei niedrigen Breiten ist der Einfluss der Zirkulation geringer.

Unter Berücksichtigung aller Mechanismen, die den Abfall des CO₂ Profils mit der Höhe beeinflussen, stellt die turbulente Diffusion den bedeutendsten und mit den größten Unsicherheiten behafteten Prozess dar. Um festzustellen, wie stark die turbulente Diffusion in den Modellen reduziert werden muss, um einen mit CRISTA CO₂-Profilen kompatiblen Abfall des Mischungsverhältnisses modellieren zu können, werden verschiedene Simulationen mit dem SOCRATES-Modell durchgeführt (Abbildung 19b). Die Rechnungen zeigen, dass nur mit einer Reduktion des Eddy-Diffusionskoeffizienten von einem Faktor 5–10 und unter Ausnutzung des systematischen Fehlers der Messdaten das frühe Abknicken der CRISTA CO₂-Profile modelliert werden kann.

2.8.3 Vergleich mit anderen Messungen

CRISTA ist nicht das einzige Experiment, das dieses frühe Abknicken der CO₂-Profile zeigt. In Abbildung 20 werden die CRISTA-Daten mit anderen Experimenten verglichen. Die Daten von SAMS und ISAMS [López-Puertas *et al.*, 1998b] zeigen ein ähnliches Verhalten, wobei der Höhengradient bei CRISTA etwas steiler ist. Die Abweichung zwischen SAMS und CRISTA bei 90 km ist auf die Verwendung unterschiedlicher O(¹D)-Profile zurückzuführen und verschwindet, wenn bei dem CRISTA CO₂-Retrieval das gleiche Profil wie bei SAMS benutzt wird.

Das Aladdin CO₂-Profil [Trinks und Fricke, 1978; Trinks *et al.*, 1978] steht stellvertretend für eine Reihe raketengestützter Massenspektrometer-Messungen, die im Mittel ähnliche Absolutwerte zeigen. Die CO₂-Mischungsverhältnisse aus den Massenspektrometer-Messungen sind 25–50% höher als bei CRISTA. Das Abknicken der CO₂-Profile konnte mit den Massenspektrometern nicht gemessen werden, da diese Geräte erst in der unteren Thermosphäre Messdaten liefern.

Die Infrarot-Absorptionsmessungen von ATMOS auf Spacelab-3 und dem GRILLE-

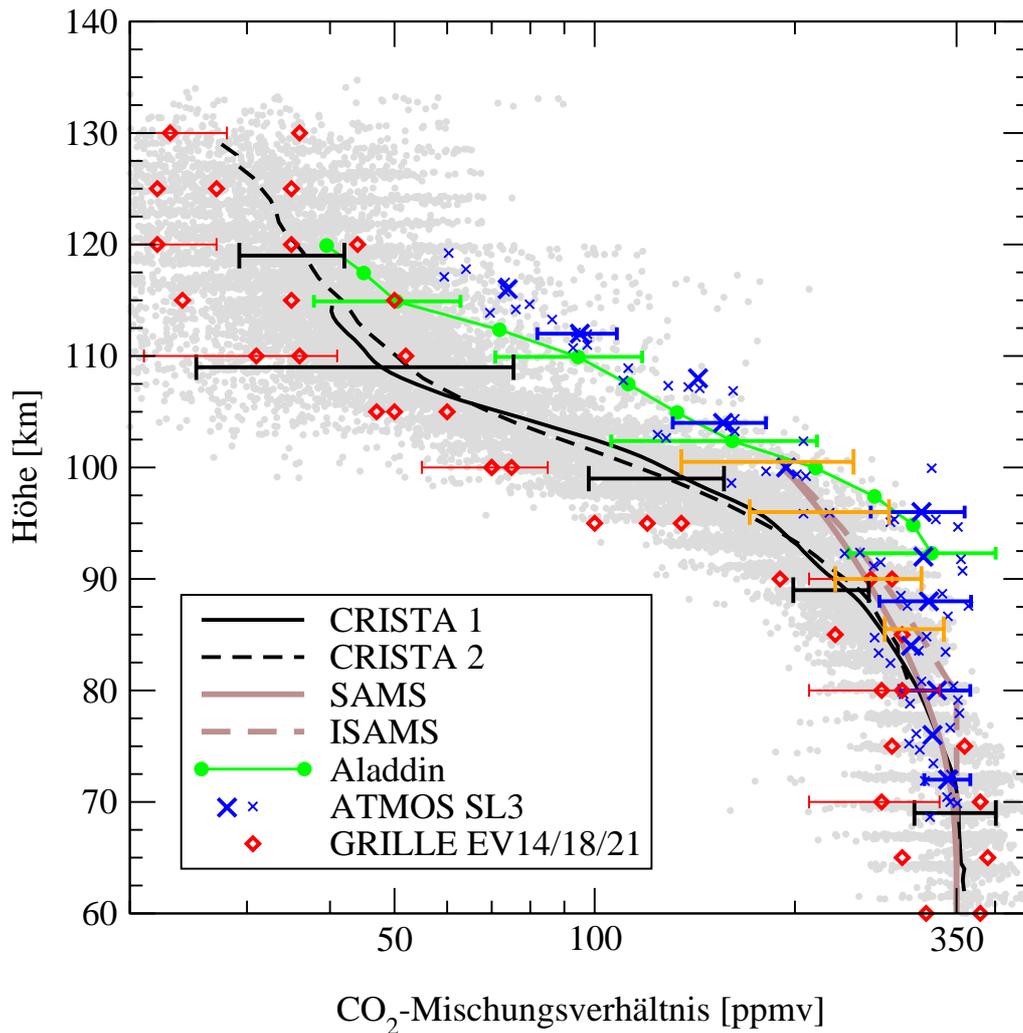


Abbildung 20: Vergleich von CO_2 -Mischungsverhältnissen verschiedener Experimente. Die braunen Kurven sind aus SAMS und ISAMS Messungen abgeleitet; die grüne Kurve stammt von Aladdin 74 Massenspektrometerdaten (Juni 1974, 38°N). Die ATMOS Spacelab-3 Profile wurden im May 1985 bei 26°N – 31°N und 46°S – 49°S gemessen. Die dicken blauen Kreuze zeigen das Mittel der ATMOS Spacelab-3 Daten für die Nordhalbkugel. Die GRILLE-Daten wurden bei 19°N – 23°N im Dezember 1983 gemessen.

Spektrometer zeigen sehr unterschiedliche Ergebnisse. Ein Teil der ATMOS-Daten weist noch bei 100 km ein konstantes Mischungsverhältnis auf, während andere Profile schon bei 80 km abknicken. In der unteren Thermosphäre liegen die ATMOS-Daten zwar deutlich über den CRISTA-Profilen, weisen jedoch einen ähnlichen Höhengradienten auf. Die GRILLE-Daten beginnen bei ähnlichen Höhen wie CRISTA abzuknicken und weisen etwa den gleichen Abfall mit der Höhe auf. Sie sind aber deutlich niedriger als die mittleren CRISTA-Mischungsverhältnisse.

2.8.4 Globale Verteilung der CO₂-Dichten

Für das Studium räumlicher Strukturen ist die Umwandlung der CRISTA CO₂-Dichten in Mischungsverhältnisse unter Verwendung von Temperaturen bzw. Totaldichten aus einer Modellatmosphäre nicht sinnvoll, da räumliche Strukturen stark von der Wahl des Modells beeinflusst werden können. Beispielsweise unterscheiden sich die meridionalen Gradienten der Totaldichte aus GRAM und TIME-GCM um bis zu einen Faktor zwei und sind damit von vergleichbarer Größe wie die Gradienten in der CO₂-Dichte.

Die globale Verteilung der CO₂-Dichten für 85 km, 100 km und 120 km ist in Abbildung 21 gezeigt. Die Fluktuationen der Daten betragen knapp 5% bei 85 km, 10–15% bei 100 km und 15–20% bei 120 km. Auf allen Höhen sind großräumige Strukturen zu erkennen, die deutlich über der Streuung der Messdaten liegen. Auffälligstes Merkmal sind die starken meridionalen Gradienten. Bei 85 km und 120 km ist ein Anstieg der CO₂-Dichten von niedrigen zu hohen Breiten zu beobachten, während die CO₂-Dichten in 100 km Höhe bei hohen Breiten minimal sind. In den großen Höhen weisen die Daten darüber hinaus zonale Asymmetrien auf. Beispielsweise ist bei hohen nördlichen Breiten eine ausgeprägte Erhöhung der CO₂-Dichten bei 180°W–90°W und bei 20°W–30°O erkennbar.

Um in den CO₂-Dichten solche Variationen über einen größeren Höhenbereich darstellen zu können, wird nicht der Absolutbetrag, sondern nur die relative Änderung der Daten entlang eines Breitenkreises dargestellt (Abbildung 22). Die Daten umfassen nur hohe nördliche Breiten (>60°N) und wurden über 20° × 5 km geglättet. Man erkennt, dass die zonalen Asymmetrien, die bei 120 km Höhe als Überlagerung von zwei planetaren Wellen mit den Wellenzahlen eins und zwei beschrieben werden können, sich über einen großen Höhenbereich erstrecken. Die um bis zu 20% erhöhten CO₂-Dichten bei 130°O reichen von 100 km bis 130 km und möglicherweise auch darüber hinaus. Die durch diese Erhöhung beschriebene Welle-1 Struktur ist etwa 60° ostwärts phasenverschoben zu den magnetischen Feldlinien (angedeutet durch den magnetischen Meridian bei 60°N).

Die in den CRISTA-Daten erkennbaren longitudinalen Strukturen sind teilweise auch in der Simulation des TIME-GCM für die zweite CRISTA-Mission vorhanden (Abbildung 22b).

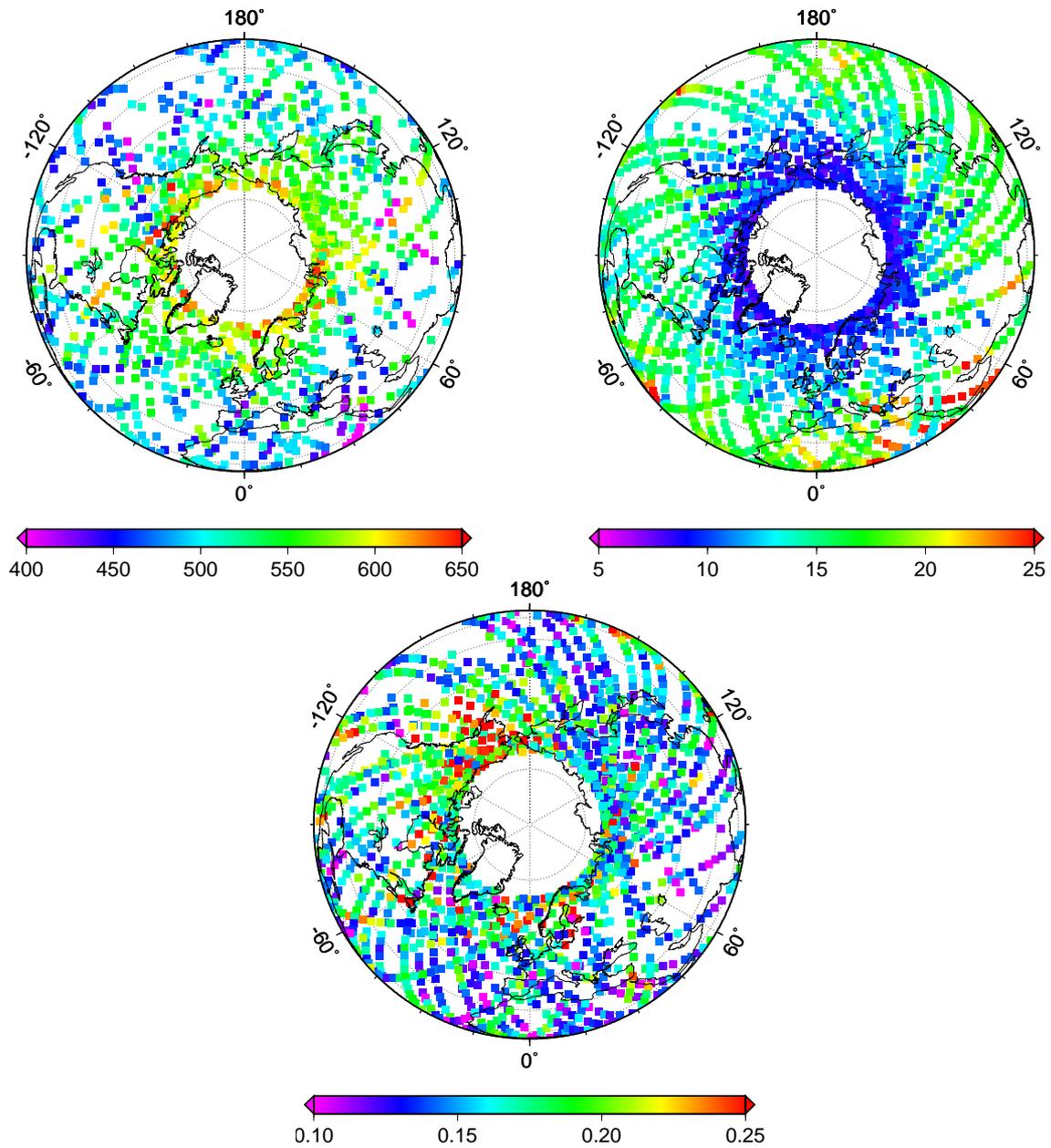


Abbildung 21: Die globale Verteilung der CRISTA-2 CO₂-Dichten ($\times 10^8 \text{ cm}^{-3}$) auf der Nordhemisphäre bei 85 km (oben links), 100 km (oben rechts) und 120 km (unten) für den 8.–15. August 1997.

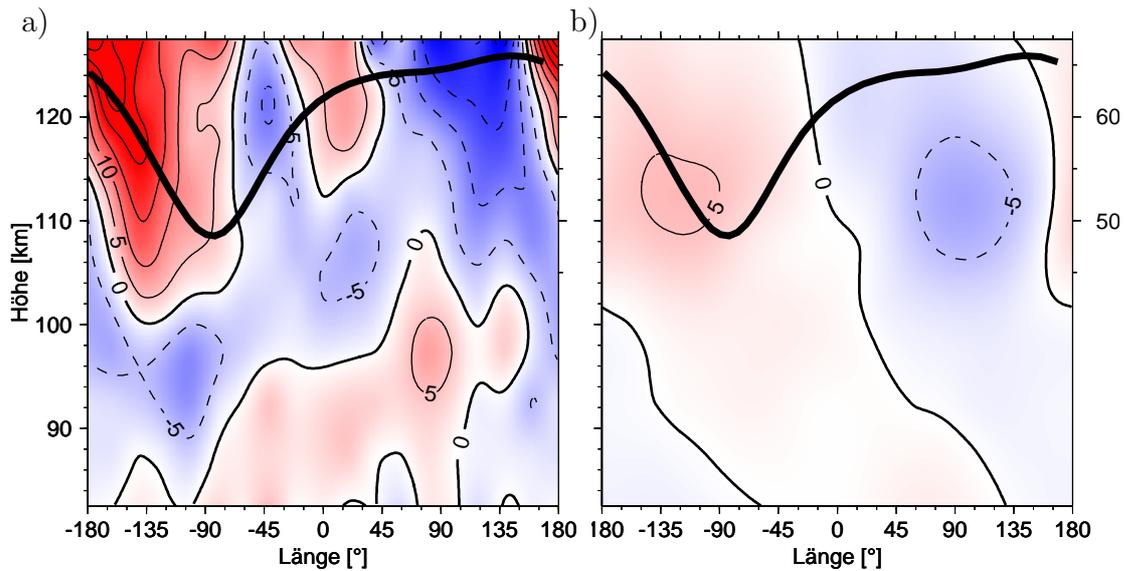


Abbildung 22: Längenschnitt durch die CO_2 -Dichten nördlich 60°N . Auf jeder Höhe ist die relative Abweichung vom zonalen Mittel in Prozent gezeigt. Die schwarzen Kurven beziehen sich auf die rechten Skalen und zeigen den Verlauf von 60°N magnetischer Breite [Bhavnani und Hein, 1994]. a) CRISTA-2 für den 13.–15. August 1997. b) TIME-GCM für den 14. August 1997. Die Modelldaten wurden entlang des CRISTA-Orbits ausgelesen.

2.8.5 Vergleich mit dem TIME-GCM

Das TIME-GCM ist ein selbstkonsistentes 3-dimensionales zeitabhängiges Atmosphärenmodell, das die Zirkulation der Atmosphäre, die Temperatur und die Verteilung der Spurengase zwischen 30 km und 500 km Höhe berechnet. Das Modell arbeitet mit einer horizontalen Auflösung von $5^\circ \times 5^\circ$, zwei Gitterpunkten pro Skalenhöhe in der Vertikalen und 4 Minuten Zeitaufösung. Eine detaillierte Beschreibung des TIME-GCM findet man z.B. bei Roble und Ridley [1994] oder Roble [1995, 1996, 2000]. Das TIME-GCM wurde speziell für die CRISTA-2 Mission unter Vorgabe des zeitabhängigen Strahlungs- und Partikelfelds der Sonne betrieben [Hagan et al., 2002]. Die Dynamik des Modells wird durch Vorgabe von Gezeiten aus dem NCAR-GSWM (Global-Scale Wave Model) [Hagan et al., 1999] und planetarer Wellen aus den NCEP-Daten (National Center for Environmental Predictions) [<http://dss.ucar.edu/pub/reanalysis/>] an der unteren Modellgrenze (10 mb) vorgegeben. Die Modelldaten sind für den 14. August 1997 entlang des CRISTA-Orbits ausgelesen worden, um einen der CRISTA Messung entsprechenden asynoptischen Datensatz zu bekommen.

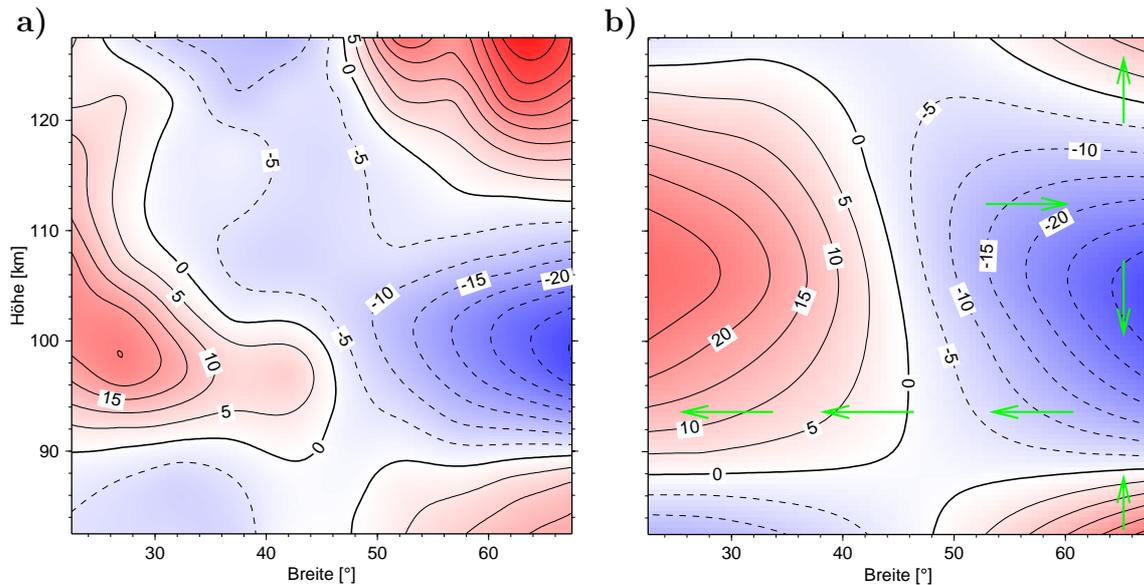


Abbildung 23: Breitengang der CO₂-Dichten. Dargestellt ist die Abweichung (in Prozent) der zonalen Mittel von dem globalen Mittelwert zwischen 20°N und 70°N. Die Daten wurden über 5°×5 km gemittelt. **a)** CRISTA-2 Messung, nur aufsteigende Orbits (13.–15. August 1997). **b)** TIME-GCM Simulation für den 14. August 1997 mit gleicher Abtastung wie die CRISTA-Daten. Die grünen Pfeile skizzieren die Zirkulation.

In den TIME-GCM Daten ist oberhalb von 100 km deutlich eine Welle-1 Signatur zu erkennen (Abbildung 22b), die eine ähnliche Phasenlage wie bei CRISTA aufweist. Ihre Amplitude ist jedoch einen Faktor 4 geringer im Vergleich zu den Messdaten. In den CRISTA-Daten ist oberhalb von 115 km deutlich eine Welle-2 Struktur zu erkennen, die in den Modelldaten nicht existiert.

Betrachtet man die Breitenverteilung der CRISTA CO₂-Dichten (Abbildung 23a) über einen größeren Höhenbereich, so erkennt man drei Bereiche, zwischen denen sich der meridionale CO₂-Gradient jeweils umkehrt. In der oberen Mesosphäre steigen die CO₂-Dichte zu hohen Breiten an. Dann kehrt sich der Gradient um und zwischen 90 km und 110 km ist bei hohen nördlichen Breiten bis zu 50% weniger CO₂ im Vergleich zu niedrigen Breiten. Bei 110 km dreht der Gradient wieder, so dass man bei hohen Breiten wieder erhöhtes CO₂ findet.

Diese Struktur ist grundsätzlich auch in den Daten des TIME-GCM zu finden (Abbildung 23b). Die meridionalen Gradienten stimmen bis 100 km hinauf auch quantitativ gut mit der Messung überein. Darüber ist der Breitengang in den Modelldaten schwächer als in der Messung und die wellenartige Struktur der CRISTA-Daten ist in den Modellergebnissen nicht vorhanden.

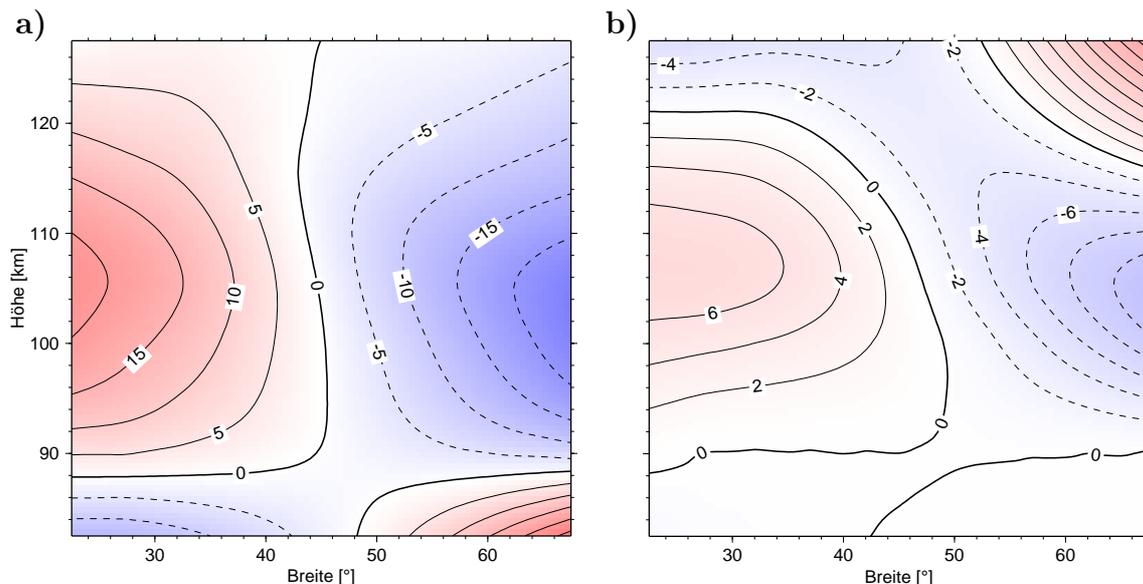


Abbildung 24: Abweichung (in Prozent) **a)** der TIME-GCM CO₂-Mischungsverhältnisse bzw. **b)** der TIME-GCM Totaldichten von dem jeweiligen Mittel des dargestellten Breitenbereichs.

Da es auf der Basis von CRISTA CO₂-Dichten allein nicht möglich ist zu unterscheiden, ob die beobachteten Gradienten nur in dem CO₂-Mischungsverhältnis oder auch in der Totaldichte vorhanden sind, wird diese Untersuchung mit den TIME-GCM Daten vorgenommen (Abbildung 24). Tatsächlich existieren die meridionalen Gradienten bis in die untere Thermosphäre ebenfalls in der Totaldichte, deren Verteilung wiederum eine Folge der großräumigen Zirkulation ist.

Diese Zirkulation wird durch das Brechen von Schwerewellen angetrieben. Schwerewellen werden in der Troposphäre angeregt und breiten sich nach oben aus, sofern ihre Phasengeschwindigkeit größer oder entgegengesetzt zu dem zonalen Grundstrom ist. Da im Sommer in der unteren und mittleren Atmosphäre typische Windgeschwindigkeiten von +20 m/s bis -50 m/s herrschen [Lindzen, 1981], können nur Schwerewellen mit Phasengeschwindigkeiten größer 20 m/s die obere Mesosphäre erreichen. Ohne Dämpfung wächst ihre Amplitude exponentiell mit der Höhe an, bis die Welle instabil wird und bricht. Beim Brechen der Wellen wird ein der Phasengeschwindigkeit entsprechender Impuls an die Atmosphäre übertragen. Dieser bremst in 70–80 km Höhe die Ostwinde der Sommermesosphäre ab und darüber kommt es sogar zu einer Zirkulationsumkehr. Durch diese Abbremsung werden meridionale Winde von Nord nach Süd induziert, die dann aufgrund der Massenerhal-

tung einen Aufwärtstransport bei hohen (nördlichen) Breiten antreiben. Bei diesem Aufwärtstransport kühlen die expandierenden Luftmassen ab, so dass es in den Aufquellgebieten zu sehr kalten Temperaturen (polare Sommermesopause) und damit verbunden zu einer Erhöhung der Dichten kommt. Diese Erhöhung beobachtet man unterhalb von 90 km in den CO₂-Dichten von CRISTA-2 und TIME-GCM.

Durch den Impulsübertrag der brechenden Schwerewellen herrscht zwischen 90 km und 110 km auf der Nordhalbkugel ein starker Westwind, der oberhalb von 110 km wieder abfällt. Entlang dieses Windgradienten beobachtet man erhöhte meridionale Winde, die in diesem Fall polwärts gerichtet sind. Zusammen mit den Polwinden bei 90 km Höhe bildet sich bei mittleren und hohen Breiten eine Strömung, die im Uhrzeigersinn verläuft und einen Abwärtstransport bei hohen nördlichen Breiten zur Folge hat. Dieses Absinken führt zu einer Erwärmung und damit zu einer Verringerung der CO₂- und Totaldichten. Da das CO₂-Mischungsverhältnis in dieser Höhe einen starken negativen Höhengradienten besitzt, beobachtet man hierin ebenfalls eine Abnahme (Abbildung 24b).

Oberhalb von 120 km ist die Verteilung der Totaldichte nicht länger dynamisch kontrolliert. Hier führt die Wechselwirkung der Protonen und Elektronen des Sonnenwindes mit der Atmosphäre bei hohen magnetischen Breiten, wo die Feldlinien des Erdmagnetfeldes etwa senkrecht zur Erdoberfläche stehen (Aurora-Oval), zu einem erhöhten Energieeintrag in die Atmosphäre. In diesen Gebieten entstehen thermische Aufwärtswinde, in Folge derer es zu einer Erhöhung des CO₂-Mischungsverhältnisses kommt (Abbildung 24).

2.9 Zusammenfassung

Mit dem CRISTA-Experiment wurde die globale Verteilung von 4,3 μm -Strahlung gemessen. Die Quellen dieser Strahlung sind CO₂($\Delta\nu_3=1$)-Vibrationsübergänge. Die entsprechenden Vibrationsniveaus sind bei Tag durch die Absorption von Sonnenstrahlung so stark angeregt, dass ihre Emissionen mit CRISTA bis in die Thermosphäre beobachtet werden können.

Die Simulation der gemessenen Strahlungsdichten wird in zwei Teilen vorgenommen:

In Teil eins wird mit einem non-LTE-Modell die Vibrations-Rotations-Anregung der CO₂-Moleküle berechnet. In Teil zwei wird mit einem Strahlungstransportprogramm für Limbgeometrie die Wechselwirkung der Strahlung zwischen ihrem Emissionsort und dem Messgerät simuliert. In einem iterativen Verfahren werden die gerechneten Strahlungsdichten unter Anpassung der CO₂-Dichten mit den Messdaten in Übereinstimmung gebracht.

Die wichtigste Fehlerquelle bei der Modellierung der Vibrationsanregung von CO₂ ist die Wechselwirkung mit O(¹D). Die Unsicherheiten bei diesem Mechanismus beeinträchtigen die Genauigkeit der abgeleiteten CO₂-Dichten mit 10–20%. Andere systematische Fehlerquellen sind selten größer als 10%. Der statistische Fehler der CO₂-Dichten wird in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre durch instrumentelle Effekte bestimmt und beträgt für CRISTA-2 z.B. 30% bei 120 km.

Die CRISTA-Daten stellen den ersten globalen Datensatz von CO₂-Dichten in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre dar. Auffälligstes Merkmal der Daten ist, dass die CO₂-Mischungsverhältnisse in deutlich niedrigeren Höhen (75–80 km statt 90 km) von dem konstanten Wert (≈ 360 ppmv) der unteren Atmosphäre abfallen, als dies verschiedene Atmosphärenmodelle voraussagen. Die Modelle können mit den CRISTA-Messungen in Übereinstimmung gebracht werden, wenn die turbulenten Mischungsvorgänge einen Faktor 5–10 verringert werden.

In den CRISTA-2 Daten sind ausgeprägte zonale Asymmetrien zu erkennen, die Welle-1 und Welle-2 Strukturen mit Amplituden von über 15% gegenüber dem ungestörten Zustand erkennen lassen. In meridionaler Richtung erkennt man drei Höhenbereiche, in denen sich der Breitengang von CO₂ jeweils umkehrt. Dieses Muster konnte mit dem TIME-GCM nachgestellt werden und spiegelt im Wesentlichen die Zirkulation bei hohen nördlichen Breiten im Nordsommer wider.

Die Ableitung der CO₂-Dichten stellt den ersten Schritt in dem CRISTA non-LTE Retrieval dar. Die CO₂-Dichten werden im Weiteren für die Ableitung der Ozondichten aus 9,6 μ m-Strahlung bei Tag (vgl. das folgende Kapitel) und für die Ableitung der kinetischen Temperatur aus 15 μ m-Strahlungsdichten benötigt.

3 Ozon

3.1 Ozonchemie in der Mesosphäre

Ozon bildet zusammen mit atomarem Sauerstoff ($O(^3P)$) die reaktive Sauerstofffamilie O_x . Die Mitglieder dieser Familie sind durch chemische Reaktionen eng gekoppelt und können sich sehr schnell ineinander umwandeln.

In der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre besteht die reaktive Sauerstofffamilie zu über 99% aus atomarem Sauerstoff (Abbildung 25). In der mittleren und unteren Mesosphäre hängt die Zusammensetzung der Familie deutlich von der Tageszeit ab: Durch die Photodissoziation von Ozon ist $O(^3P)$ bei Tag in der mittleren und oberen Mesosphäre der Hauptbestandteil von O_x ; bei 60 km liegen etwa gleich viele $O(^3P)$ - und O_3 -Moleküle vor. Bei Nacht rekombiniert nahezu der gesamte atomare Sauerstoff zu O_3 , so dass in der mittleren und unteren Mesosphäre praktisch keine $O(^3P)$ -Moleküle mehr vorhanden sind.

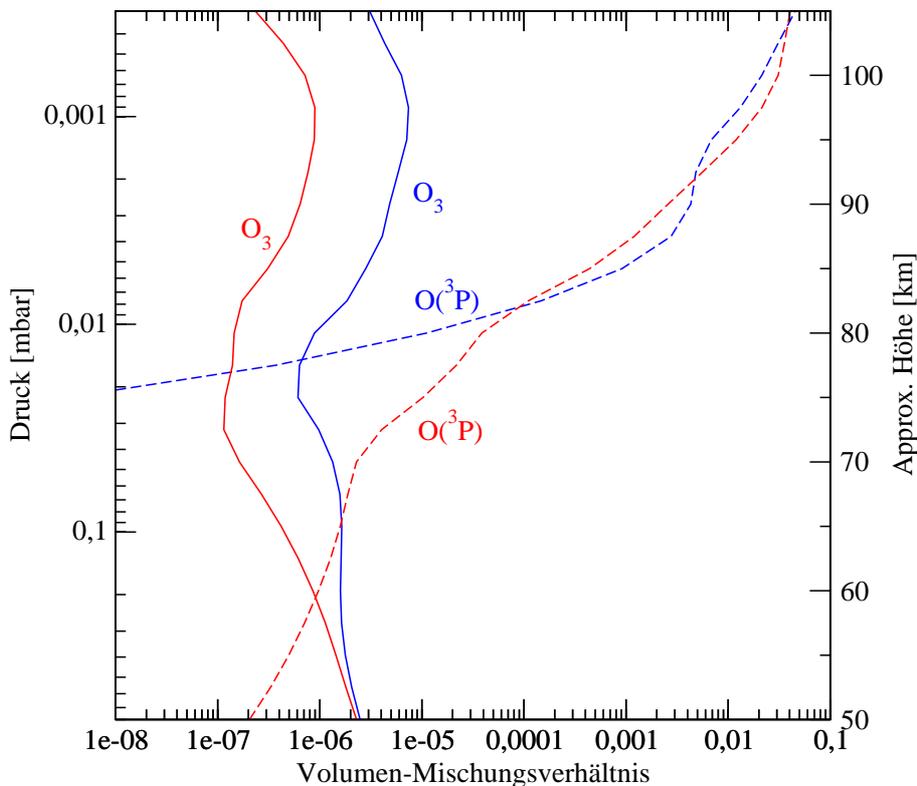


Abbildung 25: Atomarer Sauerstoff und Ozon bei Mitternacht (blau) und Mittag (rot), berechnet mit dem ROSE-2 Modell (vgl. Kapitel 3.8.2) für den 4. November 1994, $22^\circ N$.

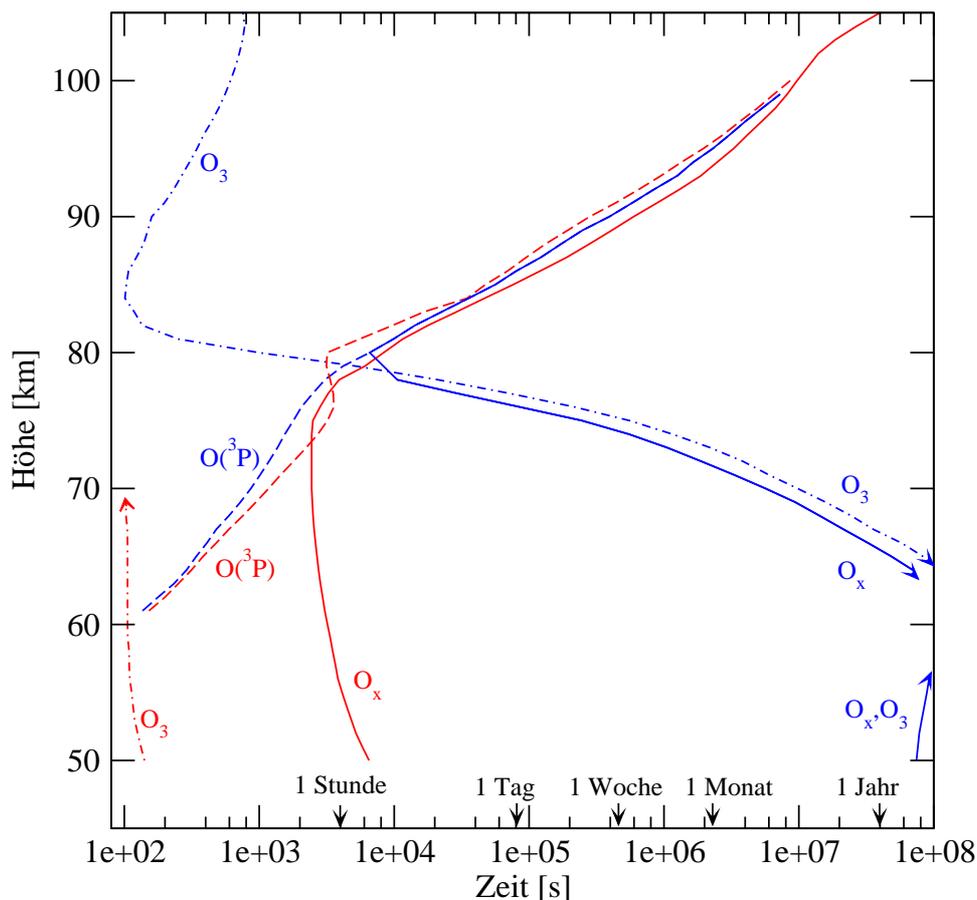


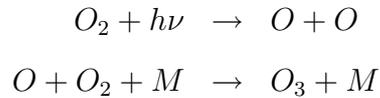
Abbildung 26: Chemische Lebensdauer von reaktivem Sauerstoff bei Mittag (rot) und Mitternacht (blau). Quelle: *Allen et al.* [1984]

Die Lebensdauer von reaktivem Sauerstoff (Abbildung 26) beträgt einige Wochen oder Monate in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre. Die Halbwertszeit von Ozon ist in diesem Höhenbereich nur einige Sekunden oder Minuten.

In der mittleren und unteren Mesosphäre hängt die Lebenszeit von Ozon stark von der Tageszeit ab. Sie beträgt einige Minuten bei Tag und Wochen bis Jahre bei Nacht, während $O(^3P)$ bei Tag und Nacht etwa die gleiche Lebenszeit von wenigen Minuten bis maximal 1 h hat. Die Lebenszeit der gesamten O_x -Familie beträgt etwa 1 h bei Tag und einige Wochen bis Jahre in der Nacht.

Das typische Vertikalprofil von Ozon zeigt zwei ausgeprägte Maxima: das erste in der Stratosphäre und das zweite in der oberen Mesosphäre bzw. unteren Thermosphäre. Typische Mischungsverhältnisse von Ozon sind 1–2 ppmv an der Stratopause und 0,5 ppmv in der mittleren Mesosphäre. Am zweiten Ozonmaximum beträgt das Mischungsverhältnis etwa 1 ppmv bei Tag bzw. 10 ppmv bei Nacht.

Das stratosphärische Maximum wurde erstmals von *Chapman* [1930] unter Annahme eines einfachen photochemischen Schemas postuliert:



Je tiefer die Sonnenstrahlung ($h\nu$) in die Atmosphäre eindringt, desto stärker wird sie abgeschwächt. Gleichzeitig nimmt die Dichte von Sauerstoff zu. Wo das Produkt der beiden Größen maximal wird, kommt es zu der Ausbildung eines Ozonmaximums. Dieses simple Schema ist allerdings nur in einer reinen Sauerstoff-Atmosphäre gültig; in der Erdatmosphäre müssen für die Ozon-Bilanz noch weitere Reaktionen mit Wasserstoff-, Stickstoff-, und Chlorverbindungen berücksichtigt werden [*Crutzen*, 1970; *Johnston*, 1971]. Für die Bildung des zweiten Ozonmaximums ist das Zusammenspiel von turbulentem und molekularem Massentransport und chemischen Reaktionen unter Beteiligung von reaktivem Wasserstoff von zentraler Bedeutung [*Shimazaki und Laird*, 1970; *Keneshea et al.*, 1979; *Shimazaki*, 1985].

3.2 Verschiedene Methoden zur Messung von Ozon in der Mesosphäre

Die ersten Ozonmessungen in der oberen Atmosphäre wurden mittels UV-Stern-Okkultationen vorgenommen [*Johnson et al.*, 1951]. Mit den Stern-Okkultationsmessungen des Orbiting Astronomical Observatory [*Hays und Roble*, 1973; *Roble und Hays*, 1974; *Riegler et al.*, 1976] wurde erstmals das zweite Ozonmaximum nachgewiesen. Jüngere Experimente, die diese Messmethode verwenden, sind das Midcourse Space Experiment (MSX) [*Mill et al.*, 1994] und das Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars (GOMOS) Experiment [*Bertaux et al.*, 1991]. Mit der Sonne als UV-Strahlungsquelle wurden Absorptionsmessungen während des Aladdin-74 Programms [*Weeks et al.*, 1978] und mit dem satellitengestützten Occultation Radiometer (ORA) [*Fussen et al.*, 2000] durchgeführt.

Eine andere Methode zur Ableitung von Ozon in der mittleren Atmosphäre ist die Messung des Tagleuchtens (engl.: dayglow) von molekularem Sauerstoff. Hierbei

wird einer der folgenden Übergänge beobachtet: die $O_2(^1\Sigma \rightarrow ^3\Sigma)$ (0,0) Bande bei 762 nm, die (0,1) Bande bei 864 nm oder die $O_2(^1\Delta \rightarrow ^3\Sigma)$ Bande bei 1,27 μm . Da die angeregten Sauerstoffatome ein Folgeprodukt der O_3 -Photolyse sind, kann aus diesen Messungen unter Verwendung eines photochemischen Modells auf die Ozon-dichte rückgeschlossen werden.

Aus Dayglow-Messungen bei 762 nm leiteten *López-González et al.* [1992c] und *Mlynczak et al.* [2001] einzelne Ozonprofile ab. Die Ableitung einer globalen Verteilung von Ozon (60–100 km) aus 762 nm Emissionen wurde erstmals von *Marsh et al.* [2002] mit den Daten des UARS High Resolution Doppler Imager (HRDI) vorgenommen.

Aus den 1,27 μm Emission von $O_2(^1\Delta)$ wurden einzelne Ozonprofile von *Llewellyn und Witt* [1977], *Weeks et al.* [1978], *Evans et al.* [1988] und *Mlynczak et al.* [2001] abgeleitet. Die erste globale Ozon-Verteilung im Höhenbereich 50–90 km auf Basis von 1,27 μm -Emissionen wurde mittels des Solar Mesosphere Explorer (SME) Satelliten vermessen [*Thomas et al.*, 1984].

Während die Airglow Emissionen bei 762 nm und 1,27 μm nur in situ oder vom Weltraum gemessen werden können, kann aus 864 nm-Strahlung auch vom Erdboden mesosphärisches Ozon (70–110 km) abgeleitet werden [*Noxon*, 1975].

Ozon-Emissionen im Mikrowellenbereich werden vom Erdboden, von Flugzeugen und aus dem Weltraum beobachtet. Satellitengestützte Mikrowellenmessungen wurden mit dem UARS Microwave Limb Sounder (MLS) [*Froidevaux et al.*, 1996; *Livesey et al.*, 2002] und dem ATLAS Millimeter-wave Atmospheric Sounder (MAS) [*Bevilacqua et al.*, 1996] vorgenommen. Aus den Daten dieser Experimente wurde die globale Ozon-Verteilung bei Tag und Nacht bis etwa 85 km Höhe abgeleitet.

Flugzeuggestützte Messungen von Ozon wurden u.a. von *Lobsiger, Künzi und Dütsch* [1984] während der MAP/WINE-Kampagne [*v. Zahn*, 1987] unternommen.

Bodengebundene Mikrowellen-Messungen wurden von *Wilson und Schwartz* [1981], *Zommerfelds et al.* [1989] und *Connor et al.* [1994] durchgeführt. Passive, bodengebundene Messungen haben eine schlechte Höhenauflösung (15–20 km), da die Höheninformation nur indirekt über die optischen Tiefen der Linienprofile gewonnen werden kann. Dafür können mit dieser Methode verhältnismäßig gut zeitliche Variabilitäten auf saisonalen bis täglichen Skalen untersucht werden.

Das ATMOS-Experiment und das UARS HALogen Occultation Experiment (HALOE) [Brühl *et al.*, 1996] verwenden Infrarot-Absorptionsmessungen zur Bestimmung von Ozon, wobei die Sonne als Infrarot-Strahlungsquelle genutzt wird. Wie auch bei CO₂ ist der Vorteil dieser Methode, dass die Ableitung der Teilchendichten verhältnismäßig einfach und präzise ist und hohe Intensitäten detektiert werden. Nachteilig ist, dass die Daten in räumlicher und zeitlicher Auflösung sehr beschränkt sind. Satellitengestützte Messungen von Ozon-Infrarotemissionen liefern eine deutlich höhere Datendichte und Lokalzeitüberdeckung als die Absorptionsmessungen und eine deutlich bessere Höhengauflösung im Vergleich zu den Mikrowellenexperimenten. Diese Messmethode wurde in der unteren und mittleren Mesosphäre von dem Limb Infrared Monitor of the Stratosphere (LIMS) [Remsberg *et al.*, 1984; Solomon *et al.*, 1986] und UARS ISAMS [Koutoulaki, 1998] angewandt. Bis in die untere Thermosphäre erstrecken sich die Ozondaten des Cryogenic Infrared Radiance Instrumentation for Shuttle (CIRRIS-1A) [Zhou *et al.*, 1998].

Raketengestützte Infrarot-Emissions-Messungen wurden u.a. mit dem High-Resolution Interferometer Spectrometer (HIRIS) [Rawlins *et al.*, 1985], mit dem Spectral Infrared Rocket Experiment (SPIRE) [Green *et al.*, 1986], den Spatial Infrared Imaging Telescopes (SPIRIT) [Adler-Golden *et al.*, 1990], mit mehreren Nutzlasten während der MAP/WINE-Kampagne [Grossmann *et al.*, 1987] und mit den SISSI-Experimenten [Grossmann *et al.*, 1994; Grossmann und Vollmann, 1997] durchgeführt. Ein Überblick über weitere Raketenexperimente ist in López-Puertas und Taylor [2001] veröffentlicht.

3.3 Modellierung der Infrarot-Emissionen

Ozon ist ein gewinkeltes Molekül mit einem permanenten Dipolmoment. Es besitzt drei Grundschwingungen: die symmetrische Streckschwingung (ν_1) bei 9 μm , die Biegeschwingung (ν_2) bei 14,5 μm und die asymmetrische Streckschwingung (ν_3) bei 9,6 μm .

Da der $\Delta\nu_3=1$ -Übergang einen hohen Einsteinkoeffizienten besitzt und nicht durch Emissionen anderer Gase überdeckt wird, eignet er sich besonders gut zur Ableitung von Ozondichten in der Mesosphäre. Zur Modellierung der 9,6 μm -Strahlung werden Vibrationsniveaus mit Energien bis zu 3290 cm^{-1} berücksichtigt; die Auswahl

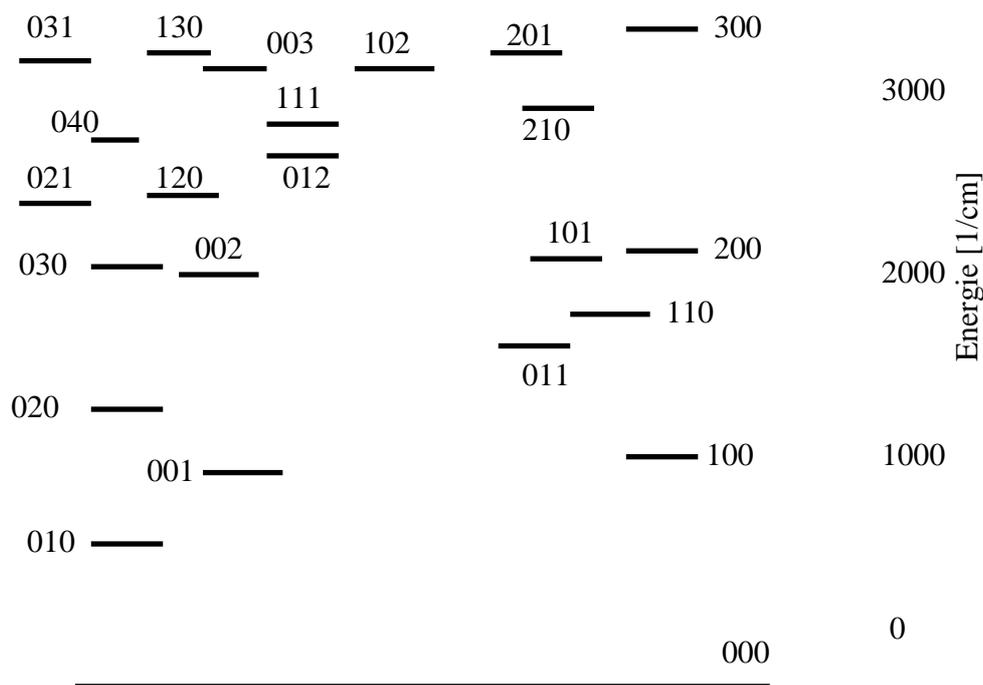


Abbildung 27: Vibrationszustände des O_3 Hauptisotops mit ihren Quantenzahlen: Die erste Stelle des Codes gibt die Zahl der ν_1 -Grundswingungsquanten an, die 2. Stelle die der ν_2 -Quanten, usw..

der Vibrationszustände (Abbildung 27) entspricht dem Modell von *Manuilova et al.* [1998].

Die Fundamentalniveaus von Ozon beginnen bei etwa 60 km vom lokalen thermodynamischen Gleichgewicht abzuweichen [*Solomon et al.*, 1986]. Das hat im Wesentlichen zwei Ursachen: die Absorption von Strahlung aus der unteren, wärmeren Atmosphäre und die Erzeugung stark vibrationsangeregter Ozonmoleküle bei der Rekombination von molekularem und atomarem Sauerstoff. Es gibt verschiedene Vorstellungen, wie die bei der Rekombination freiwerdende Energie auf die verschiedenen Vibrationsniveaus von Ozon verteilt wird:

1. In den ersten, detaillierteren Modellen von Ozon wurde angenommen, dass nur die asymmetrische Streckschwingung (ν_3) erzeugt wird, und der Grad der Anregung mit zunehmender Energie des Vibrationsniveaus abnimmt. In dem ursprünglichen Modell von *Rawlins et al.* [1985] findet die Thermalisierung dieser Zustände nur innerhalb der ν_3 -Moden statt. Es gibt modifizierte Versio-

nen dieses Modells, die auch Relaxation in andere Schwingungsmoden gestatten [Mlynczak und Drayson, 1990a (Simple Single Model); Fichet et al., 1992; Vollmann, 1996 und Zhou et al., 1998].

2. Da bei jüngeren Laborexperimenten [Rawlins und Armstrong, 1987; Rawlins et al., 1987] nach der Rekombination auch andere, hoch angeregte Schwingungsmoden beobachtet wurden, ist folgendes Bild des Rekombinationsprozesses entworfen worden: Zunächst wird Ozon am Dissoziationslimit (8457 cm^{-1}) erzeugt und thermalisiert dann sehr schnell auf Energien von etwa 5000 cm^{-1} . Diese Energie wird auf die verschiedenen Streck- und Biegeschwingungen verteilt und relaxiert über alle Vibrationszustände. Dieses Modell wurde in den Arbeiten von Adler-Golden und Smith [1990], Mlynczak und Drayson [1990a] ("energy gap" und "Adler-Golden" Modelle), Fichet et al. [1992] und Manuilova et al. [1998] verwendet.
3. Zwei weniger verbreitete Modelle nehmen an, dass die Vibrationszustände nach der Rekombination unabhängig von ihrer Energie mit gleicher Wahrscheinlichkeit besetzt werden [Pemberton, 1993] oder
4. dass bei der Besetzung der Energieniveaus energieärmere Zustände bevorzugt werden ('inverse Rawlins-Verteilung', Martín-Torres et al., persönliche Mitteilung, 2002)

Für die Modellierung der Ozondichten im Rahmen dieser Arbeit wird das zweite Schema verwendet, d.h. bei der Rekombination wird Ozon in den Vibrationsniveaus der Gruppe VI (vgl. Abbildung 27) produziert. Die Niveaus relaxieren dann durch spontane Emission von Strahlung, durch Stöße, oder sie werden durch chemische Reaktionen abgebaut.

Die Wahl des Rekombinations-Schemas beeinflusst vor allem die höher angeregten Zustände. Die Vibrationstemperaturen der Fundamentalniveaus sind verhältnismäßig unabhängig von dieser Wahl: Selbst bei völliger Vernachlässigung der Rekombinationsreaktion (Abbildung 28) ändern sich die Vibrationstemperaturen von $\text{O}_3(001)$ nur um 2 K bei 70 km, 8 K bei 85 km und 6 K bei 95 km. Bei Nacht ist dieser Anregungsmechanismus durch das Fehlen von atomarem Sauerstoff sogar erst oberhalb von 75 km sichtbar.

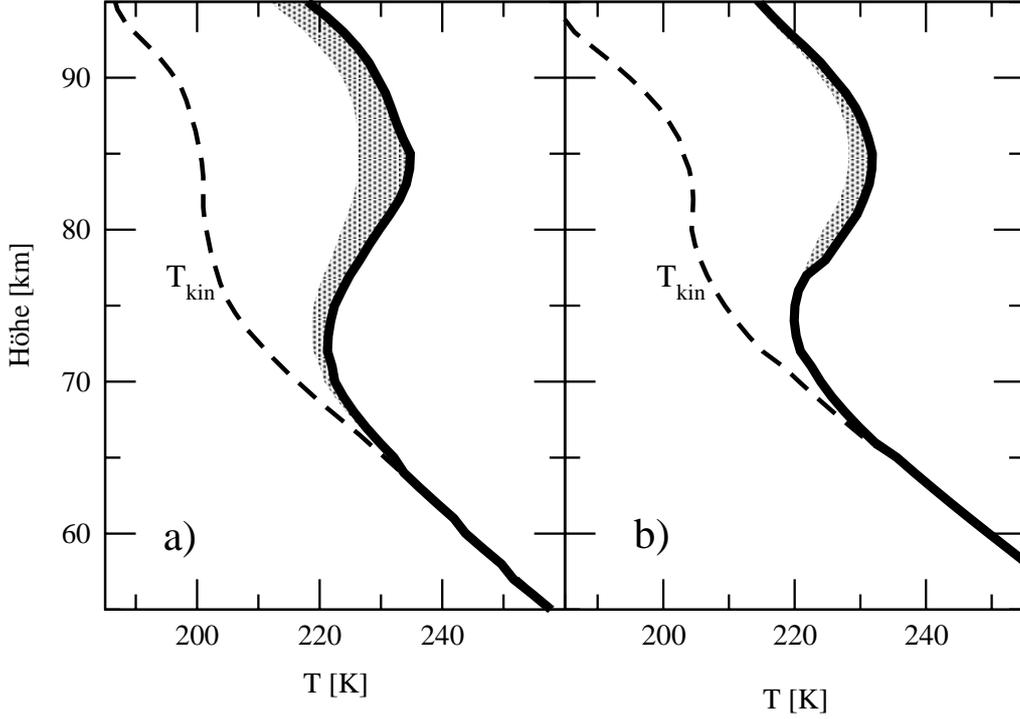


Abbildung 28: Änderung der Vibrationstemperaturen (schraffierter Bereich) bei Vernachlässigung der Rekombinationsreaktion für **a)** Tag- (21°S, 66°W, 9.11.1994) und **b)** Nacht-Bedingungen (51°S, 14°O, 9.11.1994).

Allgemein kann die Besetzung n_i eines Ozon-Vibrationszustandes i aus dem Verhältnis der spezifischen Produktions- und Verlustprozesse berechnet werden:

$$n_i = \frac{P_i[\text{O}][\text{O}_2][\rho] + [\text{O}_3] \left(\sum_j (A_{ij} + B_{ij}I_\nu)n_j + \sum_j k_{ij}^{\text{M}}n_j[\text{M}] + \sum_j k_{ij}^{\text{O}}n_j[\text{O}] \right)}{[\text{O}_3] \left(L_i[\text{O}] + \sum_j (A_{ji} + B_{ji}I_\nu) + \sum_j k_{ji}^{\text{M}}[\text{M}] + \sum_j k_{ji}^{\text{O}}[\text{O}] \right)} \quad (17)$$

n_i beschreibt die relativen Besetzungszahlen ($\sum_i n_i = 1$), P_i die Rate der in der Rekombinationsreaktion erzeugten O_3 Moleküle im Vibrationszustand i , ρ die Totdichte und L_i die Rate der chemisch abgebauten Vibrationszustände. Alle anderen Symbole entsprechen der Nomenklatur des CO_2 -Kapitels. Strahlungswechselwirkungen werden für alle in der HITRAN-Datenbasis enthaltenen Banden sowie 11 weitere Übergänge [vgl. *Manuilova et al.*, 1998] berücksichtigt. Stoßwechselwirkungen werden ebenfalls nach dem Schema von *Manuilova et al.* [1998] (Modell-1) behandelt.

Die Abregung durch Stöße ist für die Streckschwingungen (ν_1 und ν_3) vergleichsweise gering, da es für diese Zustände keine V-T-Wechselwirkung mit dem Grund-

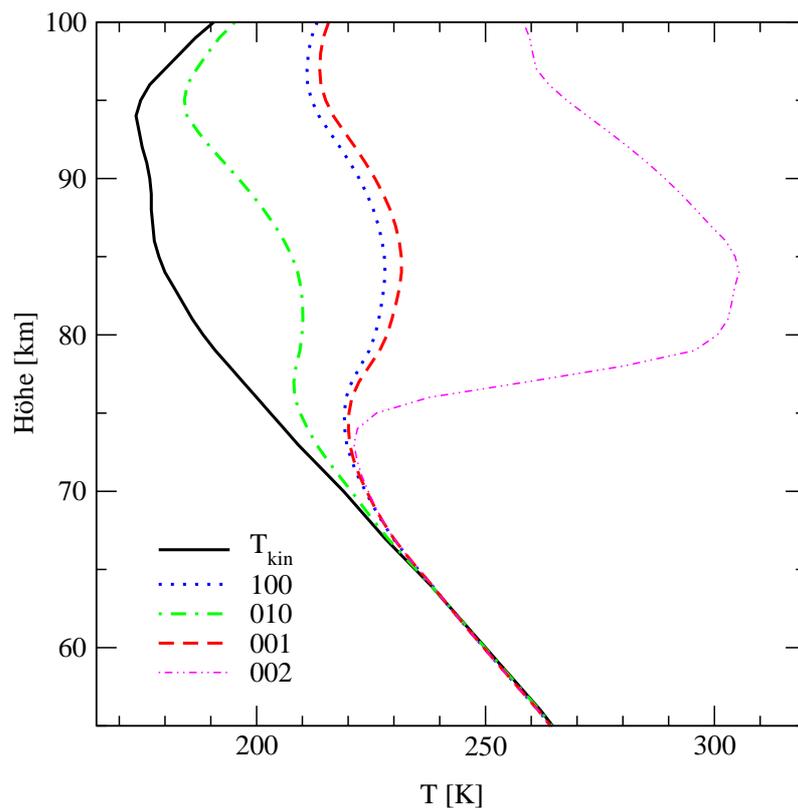
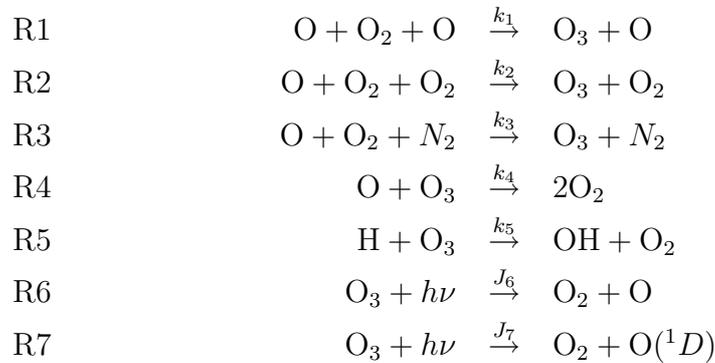


Abbildung 29: Kinetische Temperatur und Vibrationstemperaturen von Ozon bei Nacht für den 9. November 1994, 51°S, 14°O.

zustand gibt. Stattdessen müssen diese Zustände zunächst durch intramolekularen V-V-Transfer in ν_2 Zustände überführt werden, um dann durch V-T-Wechselwirkung zu thermalisieren. Da die V-V-Wechselwirkung verhältnismäßig langsam ist, zeigen die Streckschwingungen bedeutend höhere Vibrationstemperaturen als die Biegeschwingungen. Die Differenz zwischen kinetischer Temperatur und den Vibrationstemperaturen (Abbildung 29) beträgt für die Fundamentalniveaus der Streckschwingungen (001 und 100) 5 K bei 70 km, 40 K bei 80 km und bis zu 50 K bei 85 km. Die Vibrationstemperaturen des ν_2 -Fundamentalniveaus weichen bedeutend weniger von der kinetischen Temperatur ab.

3.4 Produktions- und Verlustmechanismen von Ozon

Ozon unterliegt in der Mesosphäre folgenden Produktions- und Verlustreaktionen [Allen *et al.*, 1984]:



Die Produktion von Ozon findet ausschließlich durch Rekombination von molekularem und atomarem Sauerstoff unter Beteiligung eines weiteren Stoßpartners statt (R1–R3). Die Zerstörung von Ozon geschieht bei Tag vor allem durch Photolyse (R6+R7, vgl. auch Abbildung 30). Die Bedeutung der Verlustreaktion mit atomarem Wasserstoff (R5) ist bei 85 km, wo die Wasserstoffdichte maximal ist, mit knapp 20% Anteil an der Gesamtverlustrate am höchsten. Die Reaktion $O+O_3$ (R4) kann bei Tag in der Mesosphäre vernachlässigt werden.

Da die Umwandlung von Ozon in atomaren Sauerstoff sehr schnell ist im Vergleich zu den typischen Zeitskalen für mesosphärische Transportvorgänge, sind Ozon und atomarer Sauerstoff im photochemischen Gleichgewicht und können mit R1–R7 folgendermaßen ineinander umgerechnet werden:

$$[O_3] = \frac{[O][O_2] (k_1[O] + k_2[O_2] + k_3[N_2])}{J_6 + J_7 + k_5[H] + k_4[O]} \quad (18)$$

Mit dieser Beziehung kann die atomare Sauerstoffdichte in Gleichung 17 durch die Ozondichte substituiert werden. Unter den folgenden Annahmen hängt dann die Besetzung der Vibrationszustände weder von der Ozon- noch von der Sauerstoffdichte ab:

1. Die Atmosphäre ist optisch dünn für die bei den Vibrationsübergängen entstehende Strahlung.

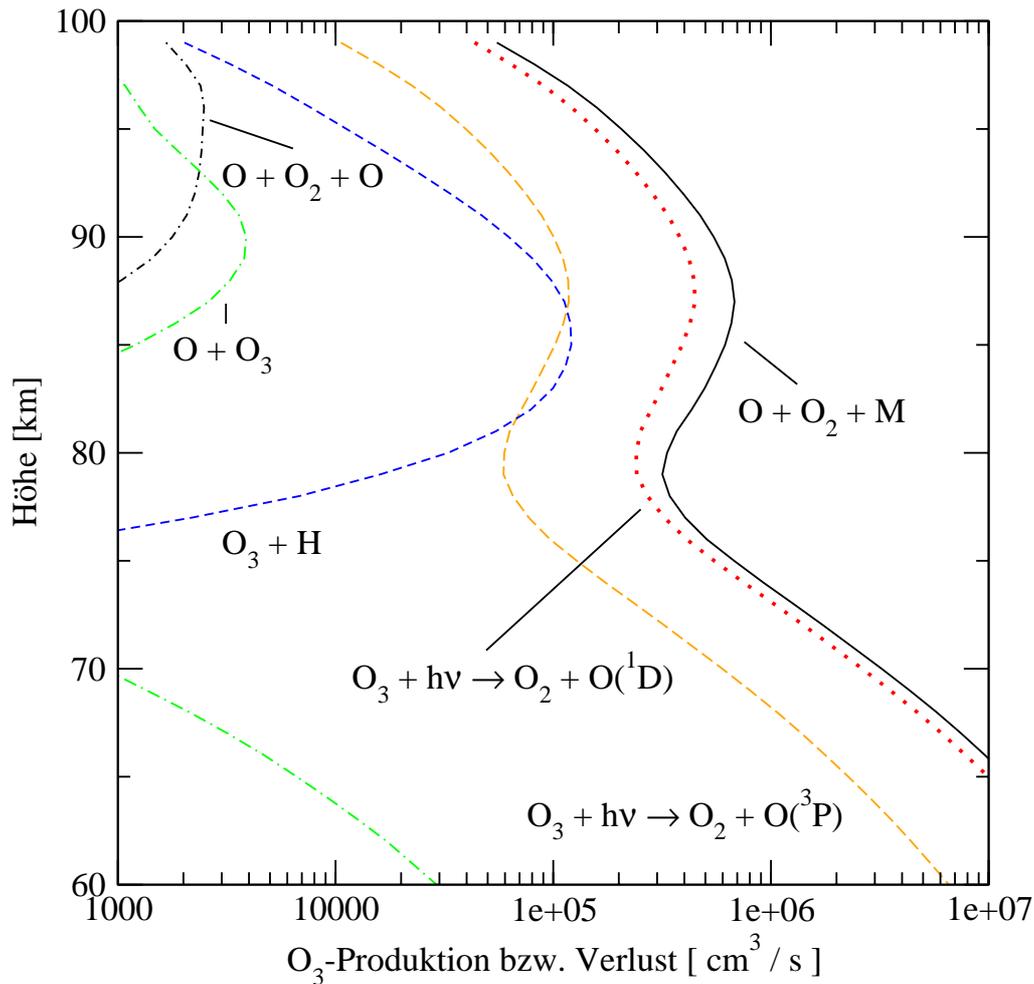


Abbildung 30: Produktion und Verlust von Ozon bei Tag (SZA=67°, 21°S, 66°W, 9. November 1994) unter Annahme von photochemischem Gleichgewicht. Die Photolyseraten sind mit dem photochemischen Modell von *Lary* [1991] berechnet, die Ratenkonstanten *Allen et al.* [1984] entnommen.

2. Die Reaktionen R1 und R4 werden vernachlässigt, so dass die Dichten von O₃ und O(³P) direkt proportional sind (Gleichung 18).
3. Die Abregung oder Zerstörung von vibrationsangeregtem Ozon unter Beteiligung von atomarem Sauerstoff wird nicht berücksichtigt.

Die Annahmen 1 und 2 sind in der Mesosphäre in guter Näherung erfüllt. Annahme 3 kann jedoch in der oberen Mesosphäre zu einer stark überhöhten O₃-Vibrationsanregung, insbesondere auch des 9,6 μm-Fundamentalniveaus, führen (vgl. Kapitel 3.7.3). Für die Modellierung der CRISTA Strahlungsdichten wird die Umrechnung von Ozon in atomarem Sauerstoff ohne diese Näherungen vorgenommen.

3.5 Verfahren zur Ableitung von Ozon

Das non-LTE Modell, das Strahlungstransport-Vorwärtsmodell und der Inversionsprozess sind identisch mit dem Schema, das auch für die Ableitung der CO₂-Dichten verwendet wurde. Wegen der verhältnismäßig geringen optischen Dichte der Atmosphäre für 9,6 μm -Strahlung muss das Überlappen der Spektrallinien bei Ozon nicht berücksichtigt werden [Mlynczak und Drayson, 1990b].

Neben den Ozondichten wird zwischen 50 km und 90 km unter Annahme von photochemischem Gleichgewicht auch atomarer Sauerstoff abgeleitet.

3.6 Die CRISTA 9,6 μm -Kanäle

Die CRISTA 9,6 μm -Kanäle decken den Wellenzahlbereich 979–1122 cm^{-1} ab. Die spektrale Auflösung ($\lambda/\Delta\lambda$) beträgt 390 und das Wellenzahl-Inkrement zwischen zwei aufeinander folgenden spektralen Stützstellen ist 0,67 cm^{-1} . Die NESR beträgt etwa $1,5 \cdot 10^{-10} \text{ W}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$ für alle in dem Retrieval verwendeten 9,6 μm -Kanäle. Typische Signal-zu-Rausch-Verhältnisse der zwischen 1010–1065 cm^{-1} integrierten Strahlungsdichten sind 1 bzw. 8 für Tagmessungen sowie 10 bzw. 60 für Nachtmessungen bei 100 km bzw. 90 km.

9,6 μm -Höhenprofile werden je nach Messmode (vgl. Tabelle 1) mit einer vertikalen Schrittweite von 1–2,7 km und einem vertikalen Gesichtsfeld von 1,5 km aufgenommen. Der horizontale Abstand von zwei aufeinander folgenden Höhenprofilen liegt bei 360–1850 km. Während CRISTA-1 wurde 9,6 μm Strahlung nur in dem zentralen Teleskop (Detektor SCS-3) gemessen, während dieser Kanal bei CRISTA-2 in allen drei kurzwelligen Spektrometern (SL-3, SCS-3, SR-3) und dem langwelligen Spektrometer (SCL-1) vorhanden ist.

Oberhalb von 55 km zeigen die 9,6 μm Strahlungsdichten einen ausgeprägten Tagesgang [Solomon *et al.*, 1986]. Abbildung 31 vergleicht Strahlungsdichteprofile bei Tag und Nacht für zwei verschiedene Breiten. In der unteren Mesosphäre stimmen die Profile innerhalb von 30% überein. Bei 70 km sind die Nacht-Daten bereits einen Faktor zwei höher, und dieser Unterschied wächst breitenabhängig mit zunehmender Höhe bis auf einen Faktor neun bei 90 km an. Der Tag/Nacht-Unterschied bei

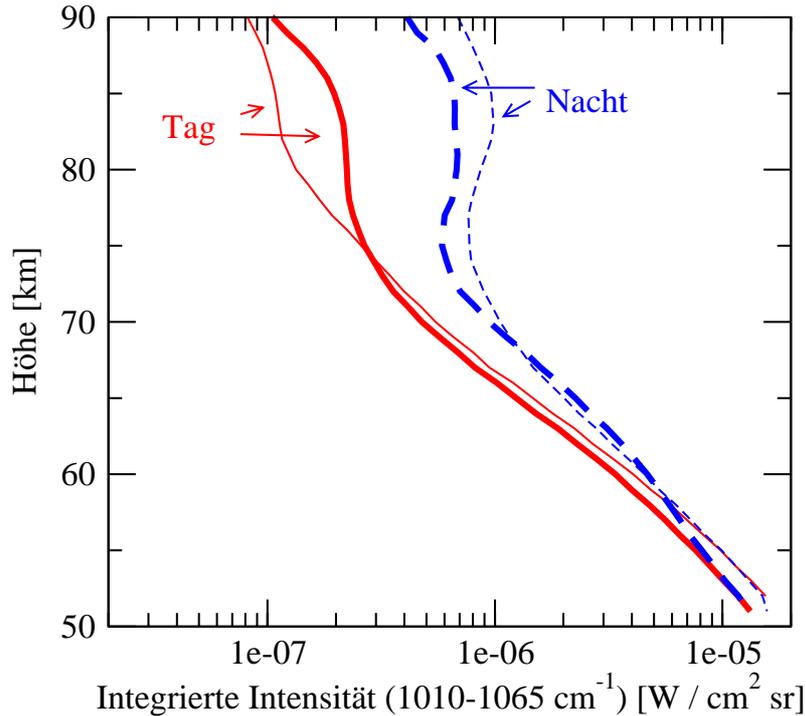


Abbildung 31: Gemittelte 9,6 μm -Strahlungsdichten von CRISTA-2 (8.–16. August 1997) bei $0^\circ \pm 5^\circ$ Breite (dünne Linien) und $50^\circ \pm 5^\circ \text{N}$ (dicke Linien). Die mittlere Lokalzeit für die Tagprofile ist 8 h/11 h (dünne/dicke Kurve) und 21 h/18 h für die Nachtprofile.

den Strahlungsdichten hängt in erster Linie vom Tagesgang der Ozonkonzentration und nur in geringem Maße von Tag/Nacht-Unterschieden bei den Anregungsmechanismen ab.

Limb-Spektren im Wellenlängenbereich von $979\text{--}1120\text{ cm}^{-1}$ setzen sich aus den Emissionen verschiedener Ozon- und CO_2 -Banden zusammen. Spektren für verschiedene Tangentenhöhen nach Faltung mit der CRISTA-Instrumentenfunktion sind in Abbildung 32 gezeigt. Bei allen Höhen stammen die primären spektralen Signaturen von der Fundamentalbande des Ozon-Hauptisotops, die zwischen 1000 cm^{-1} und 1065 cm^{-1} emittiert. Von den Ozon-Hotbands sind die 002-001 und 011-010 Übergänge im langwelligen Bereich der Spektren sichtbar. Ihr Beitrag ist jedoch nur 10% oder weniger für Wellenzahlen größer 1010 cm^{-1} . Bei Tag ist zusätzlich die sonnenangeregte CO_2 (00011-10002)-Bande sichtbar und trägt im Spektralbereich $1035\text{--}1065\text{ cm}^{-1}$ an manchen Stützstellen bis zu 40% zur Gesamtintensität bei.

Die effektive optische Tiefe der Atmosphäre für $9,6\text{ }\mu\text{m}$ Limb-Strahlung ist sehr ge-

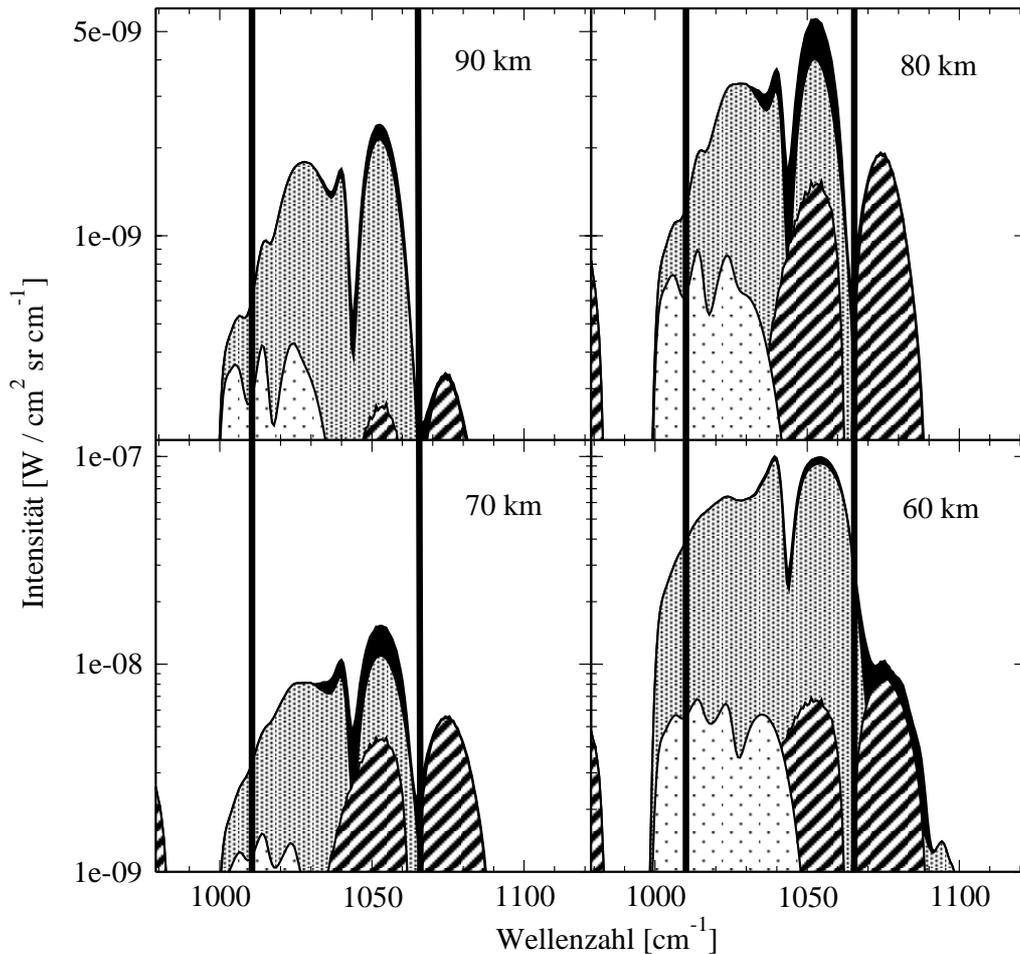


Abbildung 32: Simulierte Limb-Spektren bei Tag für die CRISTA $9,6 \mu\text{m}$ -Kanäle unter Verwendung eines mittleren CRISTA-1 Tag-Ozonprofils und einer Hintergrundatmosphäre aus dem GRAM-Modell (21°S , 66°W , 9. November 1994). Die Tangentenhöhen (90, 80, 70 und 60 km) sind in den Abbildungen angegeben; schwarz: gesamte Strahlungsdichte, grau: gesamte Ozon-Strahlung, punktiert: Ozon-Hotbands, schraffiert: CO_2 . Die vertikalen Linien geben den im Retrieval verwendeten Spektralbereich an.

ring im Vergleich zu den CO_2 $4,3 \mu\text{m}$ -Emissionen. Sie beträgt 0,01 bei 95 km, 0,1 bei 80 km und wächst an der Stratopause bis auf eins an (Abbildung 33a).

Der Anteil der Strahlung, der aus der Tangentenschicht stammt, ändert sich durch die steilen Gradienten der O_3 -Mischungsverhältnisse stark mit der Höhe (Abbildung 33b). Bei 90 km Tangentenhöhe stammen etwa 65% der Strahlung ($1010\text{--}1065 \text{ cm}^{-1}$) aus einer 2 km dicken Schicht oberhalb des Tangentenpunktes. Wegen des starken Abfalls des Ozon-Mischungsverhältnisses sinkt dieser Anteil auf 25% bei 80 km Tangentenhöhe. Darunter steigt der Beitrag der Tangentenschicht wieder, da sich der Höhengradient von Ozon umgekehrt hat.

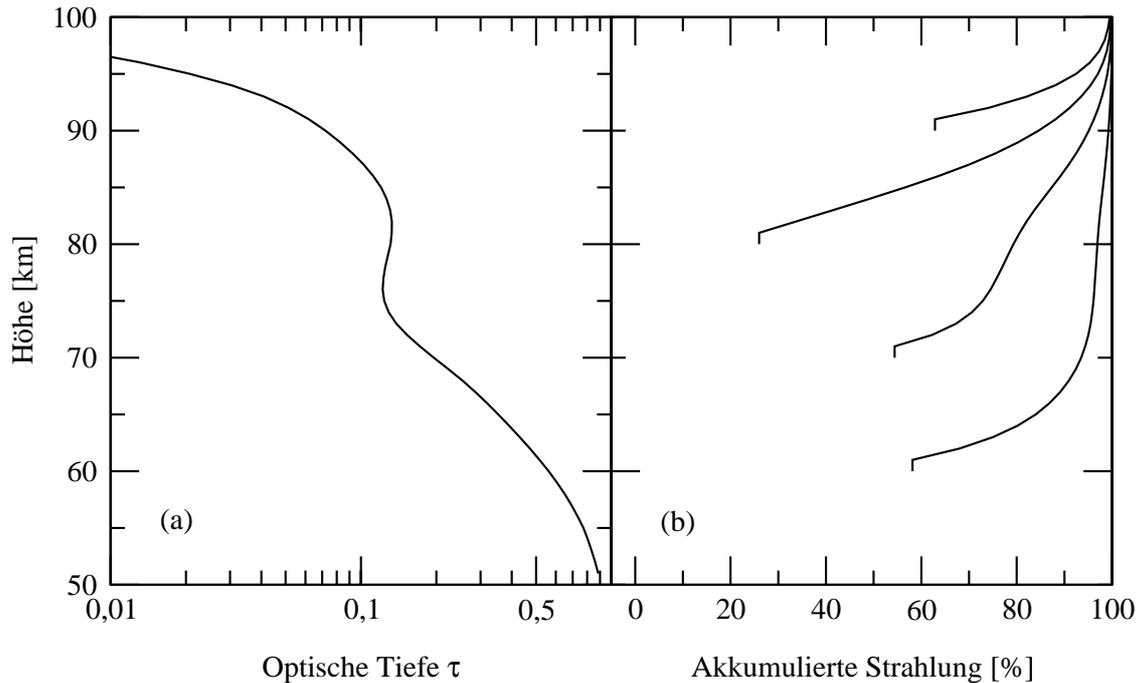


Abbildung 33: (a) Effektive optische Tiefe bei $1010\text{--}1065\text{ cm}^{-1}$ (50°S , 149°E , nachts, 9. November 1994). (b) Summe der Strahlung ($1010\text{--}1065\text{ cm}^{-1}$), die aus der Tangentenschicht und den darüberliegenden Schichten stammt (2 km Dicke, angedeutet durch die vertikalen Kurvenabschnitte).

3.7 Empfindlichkeitsstudie und Fehleranalyse

Die Genauigkeit der Ozondichten (Tabelle 4) hängt von dem non-LTE Modell, den spektroskopischen Daten, der kinetischen Temperatur und dem atomaren Sauerstoffprofil ab. In der unteren Mesosphäre beträgt der systematische Fehler der Ozondichten etwa 25%. Unsicherheiten der kinetischen Temperatur sowie Instrumenteneffekte sind die wichtigsten Fehlerquellen. In der oberen Mesosphäre weisen die O_3 -Daten eine Unsicherheit von 30–40% auf; es dominieren non-LTE Modellfehler sowie instrumentelle Effekte. Bei Nacht ist zusätzlich der Fehler des Sauerstoffprofils wichtig.

Die statistischen Fehler der Ozondichten werden durch instrumentelle Fehlerquellen bestimmt. Sie betragen ca. 2% in der unteren Mesosphäre und 30% bzw. 10% in der oberen Mesosphäre bei Tag bzw. Nacht. In der Nacht setzt sich der Fehler zu etwa gleichen Teilen aus dem Instrumentenrauschen und dem statistischen Fehler des Sauerstoffprofils zusammen.

In den folgenden Abschnitten werden die wichtigsten Fehlerquellen des Retrievals vorgestellt und ihr Einfluss auf die Ableitung von Ozon untersucht.

3.7.1 Instrumentenfehler

Die systematischen und statistischen Fehler der gemessenen Strahlungsdichten bilden die größte Fehlerquelle bei der Ozonableitung. Wegen der geringen Signale existieren auch in den 9,6 μm -Kanälen Streulichtprobleme, so dass die Genauigkeit der Strahlungsdichten auf 2% (2%) unterhalb von 70 km, 6% (10%) bei 85 km und 16% (11%) bei 95 km für Tag- (Nacht-)Messungen begrenzt ist. Relaxationseffekte in den Detektoren erhöhen diese Fehler um 4% [Ern, 2000].

Die Ozondichten werden durch diese Fehler in der unteren und mittleren Mesosphäre bis zu 10% beeinflusst; darüber 20–25% bei Tag und 12–18% bei Nacht.

Da die Ozon-Mischungsverhältnisse einen sehr steilen Höhengradienten aufweisen, stellt die Genauigkeit, mit der die Höhe des Tangentenpunkts bestimmbar ist, eine weitere Fehlerquelle dar. Bei CRISTA ist die geometrische Höhe des Tangentenpunkts mit einem systematischen Fehler von 300 m behaftet, wodurch die Ozondichten etwa 10% beeinträchtigt werden.

Der statistische Fehler der Strahlungsdichten wird durch Detektorrauschen, längerperiodische Fluktuationen der Strahlungsdichten und Ungenauigkeiten bei der Tangentenhöhe bestimmt. Der Einfluss dieser Fehlerquellen wurde mit Monte-Carlo-

Tabelle 4: Systematische Fehler der Ozondichten in Prozent. Zwei Werte werden angegeben, wenn sich die Fehler für Tag- und Nachtbedingungen deutlich unterscheiden. Der Fehler des non-LTE Modells 'ohne O(³P)' enthält die Unsicherheiten des non-LTE Modells ohne Berücksichtigung der Verlustprozesse unter Beteiligung von atomarem Sauerstoff, die separat angegeben werden (nur O(³P)).

z [km]	CO ₂	T _{KIN} ^a	O(³ P)		CRISTA	non-LTE Modell	
						ohne O(³ P)	'nur O(³ P)'
50		15			15	13	
60		10			14	13	
70	2 ^d	5			13	7	
85	1.5 ^d	3	5 ⁿ	5 ^d	18	31	15
90	2 ^d	4	15 ⁿ	4 ^d	18	25	15
95	2 ^d	4	25 ⁿ	4 ^d	24	21	12

^a bedeutend höher an der polaren Sommermesopause, ^d tags, ⁿ nachts.

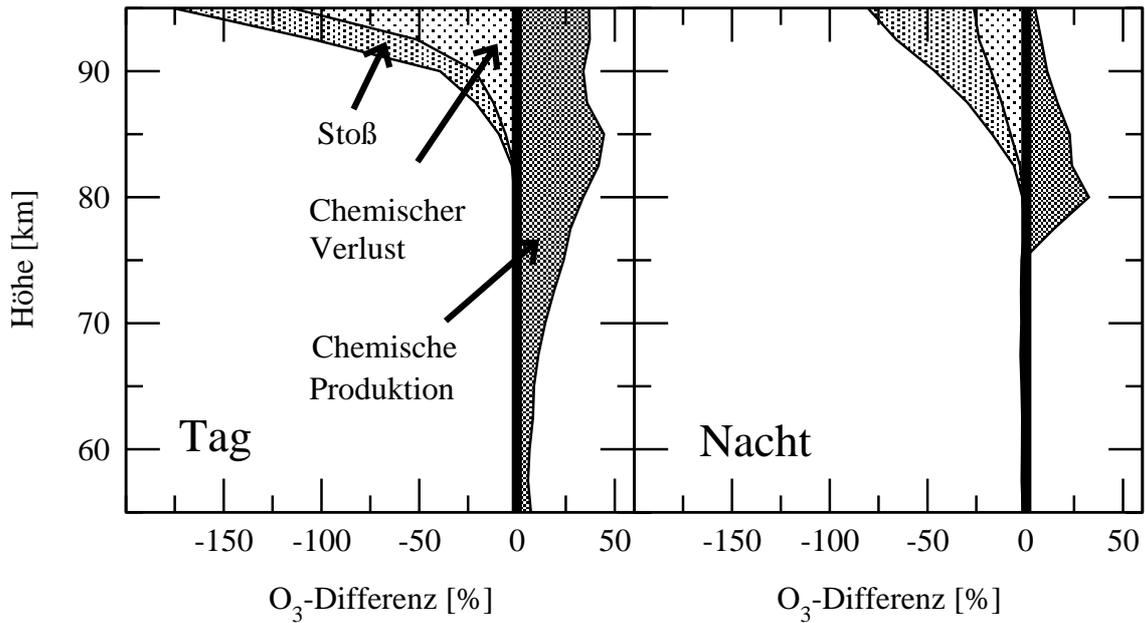


Abbildung 34: Die Auswirkung der Wechselwirkung von Ozon und atomarem Sauerstoff durch Stöße und chemische Produktion bzw. Verlust auf die abgeleiteten Ozondichten für Tag- und Nachtbedingungen.

Simulationen untersucht und ergibt für die abgeleiteten Ozondichten bei Tag (Nacht) einen Fehler von 2% (2%) bei 60 km, 6% (3%) bei 70 km, 30–50% (10–20%) am Ozonminimum um 78 km, 20–30% (6–7%) bei 85 km und 100% (15%) bei 95 km.

3.7.2 Fehler durch die non-LTE Modellparameter

Für die Berechnung der Vibrationsanregung von Ozon werden Annahmen über die Verteilung der Rekombinationsenergie, die Ratenkonstanten der Stoßwechselwirkungen, die spektroskopischen Daten und über die Hintergrundatmosphäre gemacht.

Zur Abschätzung des Fehlers durch die Wahl des Rekombinationsschemas wird das O₃-Retrieval auch mit den Modellen durchgeführt, die besonders stark von dem verwendeten Schema (Schema 2, Seite 55) abweichen: der *Rawlins*-Verteilung (Schema 1) und der inversen *Rawlins*-Verteilung (Schema 4). Bei dem Wechsel der Modelle ändern sich die Ozondichten typischerweise um 20% [Martín-Torres et al., persönliche Mitteilung, 2002]. Der Fehler durch die Ratenkonstanten für Stöße mit N₂ und O₂ [Menard et al., 1992; Doyennette et al., 1992] beträgt in den abgeleiteten Ozondichten etwa 10–15% (vgl. Tabelle 4), für die Wechselwirkung mit atomarem Sauerstoff [West et al., 1976, 1978] ca. 12–15%.

In einigen non-LTE Modellen [z.B. *Mlynczak und Drayson, 1990a*] wird die Abregung von Ozon durch Stoß oder chemische Reaktion mit atomarem Sauerstoff komplett vernachlässigt. Dies hat einen großen Einfluss auf die abgeleiteten Ozondichten (Abbildung 34), welche sich dann um 10% (17%) bei 85 km, 40% (45%) bei 90 km und 175% (80%) bei 95 km für Tag- (Nacht-) Bedingungen erhöhen.

Eine weitere, nicht zu vernachlässigende Fehlerquelle im Ozonretrieval sind die Einsteinkoeffizienten. Ihr Fehler beträgt 5% für die ν_3 -Fundamentalbande und bis zu 200% für die Hotbands [*J.M. Flaud, private Mitteilung, 1998*]. Sie stellen unterhalb von 70 km mit 7–13% die größte Fehlerquelle im Retrieval dar.

Insgesamt beträgt der durch das non-LTE-Modell bestimmte O_3 -Fehler etwa 10% in der unteren und 30% in der oberen Mesosphäre (vgl. Tabelle 4).

3.7.3 Unsicherheiten durch atomaren Sauerstoff

Die Wechselwirkung von Ozon mit atomarem Sauerstoff wirft in der oberen Mesosphäre folgendes Problem auf: Durch die CRISTA-Messung ist das Strahlungsfeld von Ozon vorgegeben und damit auch die Zahl der angeregten Ozonmoleküle festgelegt. Eine Verringerung der Vibrationstemperatur muss daher im Retrieval durch eine Erhöhung der Ozon-Teilchendichte kompensiert werden. Da über das photochemische Gleichgewicht die atomare Sauerstoffdichte ebenfalls angehoben wird, kommt es zu einem positiven Rückkopplungseffekt.

Um dies zu vermeiden, wird als zusätzliche Randbedingung die Dichte der reaktiven Sauerstofffamilie begrenzt bzw. fixiert. Da reaktiver Sauerstoff oberhalb von 90 km zu über 99% aus atomarem Sauerstoff besteht, ist diese Bedingung äquivalent mit der Vorgabe eines atomaren Sauerstoffprofils.

Der Einfluss dieser Randbedingung auf die Ableitung der Ozondichten wird quantitativ durch den Empfindlichkeits-Faktor k untersucht:

$$k = \frac{[\Delta O_3]/[O_3]}{[\Delta O(^3P)]/[O(^3P)]} \quad (19)$$

Photochemisches Gleichgewicht zwischen O_3 und $O(^3P)$ wird für die Berechnung von k zunächst nicht berücksichtigt (Abbildung 35). Bei Tag fällt k von $-0,1$ bei 60 km auf $-0,7$ bei 85 km ab, wächst dann aber wieder schnell an, wechselt bei 90 km das Vorzeichen und erreicht bei 95 km einen Wert von $0,3$. Bei Nacht ist der Höhenverlauf

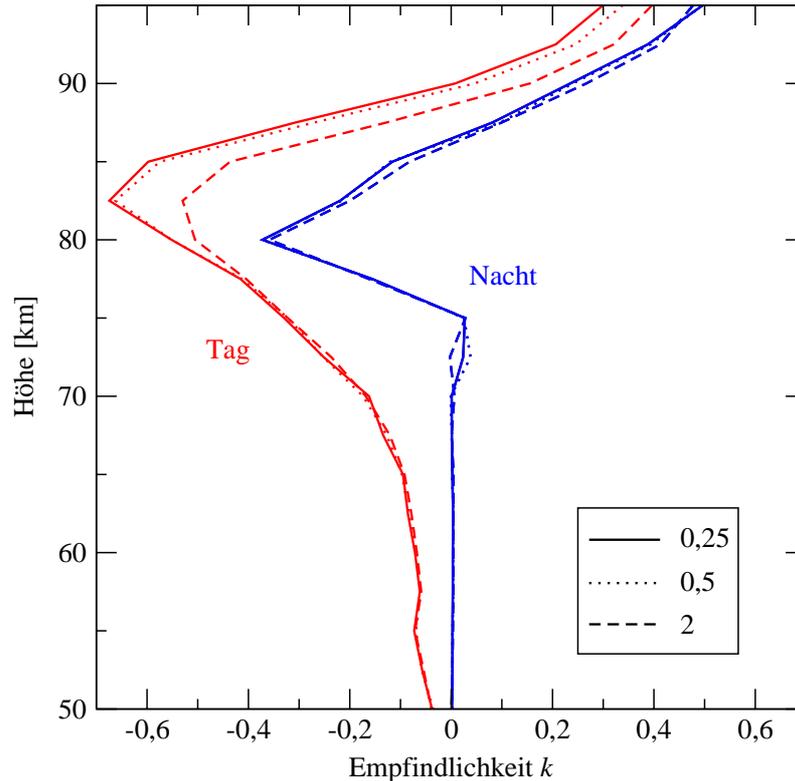


Abbildung 35: Empfindlichkeit k des Ozon-Retrievals bei Änderung des vorgegebenen Sauerstoffprofils. Das Standard-Profil wurde um die in der Legende vorgegebenen Faktoren variiert.

ähnlich, allerdings ist k insgesamt kleiner und wechselt schon bei 85 km das Vorzeichen. Da die Ozondichte nahezu proportional zu der Sauerstoffdichte ist, hängt k praktisch nicht von der Größe der Sauerstoffänderung ab. Außerdem ändert sich k nicht, wenn die Sauerstoffdichte auf allen Höhen gleichzeitig oder nur auf einer bestimmten Höhe verschoben wird, d.h. die Abhängigkeit von $O(^3P)$ ist rein lokal.

Bei Annahme eines systematischen und statistischen Fehlers von 50% für die Sauerstoffdichten kann man aus Abbildung 35 für Ozon bei Nacht einen Fehler von 15% bei 80 km, 5% bei 85 km, 15% bei 90 km und 25% bei 95 km ablesen.

Da es bei Tag erst oberhalb von 90 km zu der positiven Rückkopplung zwischen O_3 und $O(^3P)$ kommt, kann atomarer Sauerstoff bis zu dieser Höhe aus Ozon unter Annahme von photochemischem Gleichgewicht abgeleitet werden. Die Genauigkeit der abgeleiteten $O(^3P)$ -Dichten hängt u.a. von der Unsicherheit der Photolyseraten in den Hartley-Banden ab, in denen etwa 80% der Ozonmoleküle abgebaut werden. Eine 15%-Unsicherheit in den Photolyseraten beeinträchtigt die abgeleiteten

Ozondichten um 2–4% [Mlynczak und Zhou, 1998]. Die Annahme eines klimatologischen Wasserstoffprofils bei der Berechnung des photochemischen Gleichgewichts (Gleichung 18) stellt eine weitere Fehlerquelle dar. Eine 50%-Unsicherheit in atomarem Wasserstoff [vgl. Thomas, 1990] beeinflusst die Ozondichten maximal 6%. Da die Wechselwirkung von O₃ mit H aber nur bei 85 km wichtig ist, werden die abgeleiteten Ozondichten in der Regel weniger als 5% beeinträchtigt.

3.7.4 Empfindlichkeit des Retrievals auf die kinetische Temperatur

Die kinetische Temperatur ist eine wichtige Größe bei der Ableitung von Ozondichten aus 9,6 μm Strahlung, weil die Anregung von Ozon stark durch aufquellende Strahlung bestimmt wird, die wiederum von der Temperatur in der unteren Mesosphäre abhängt.

Um diese Abhängigkeit quantitativ zu untersuchen, werden Temperaturen in begrenzten Höhenbereichen verschoben. Ein sinnvoller Wert für die Verschiebung ist 2 K, da dies der systematische Fehler der CRISTA-Temperaturen ist. Druck und Totaldichte werden über das hydrostatische Gleichgewicht und das ideale Gasgesetz angepasst.

Eine Temperaturverringering von 2 K angewandt auf alle Höhen unterhalb von 50 km, der unteren Grenze des Retrievals, simuliert die Empfindlichkeit der Ozondichten auf Ungenauigkeiten der stratosphärischen Temperaturen (Abbildung 36). Die Ozonableitung in der unteren Mesosphäre ist von dieser Verschiebung unbeeinflusst, da die Ozon-Fundamentalniveaus hier im LTE sind. In der oberen Mesosphäre ist die Situation anders, da die stratosphärische Temperaturänderung das Strahlungsfeld verringert, so dass sich die abgeleiteten Ozondichten hier um 2–4% erhöhen.

Wesentlich empfindlicher reagiert das Retrieval auf Temperaturänderungen in der unteren Mesosphäre. Eine 2 K-Absenkung der kinetischen Temperatur hat bei 50–60 km eine 10–12% verringerte Anregung von Ozon zur Folge und wird im Retrieval durch eine entsprechende Anhebung der Ozondichten kompensiert. Da sich hierdurch auch der Strahlungsfluss in die obere Atmosphäre ändert, sind die Ozondichten in der Mesosphäre um einige Prozent verschoben.

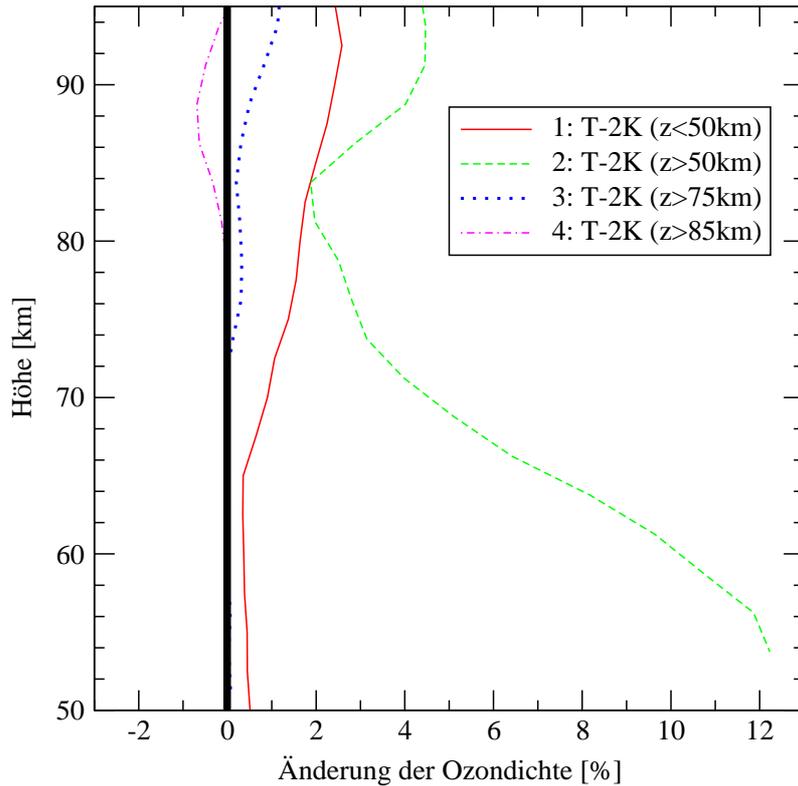


Abbildung 36: Empfindlichkeit des Ozonretrievals bei Tag auf verschiedene Temperaturänderungen. **1:** T-2 K für Höhen $z < 50$ km; **2:** T-2 K für $z > 50$ km; **3:** T-2 K für $z > 75$ km; **4:** T-2 K für $z > 85$ km.

Von der lokalen Temperatur hängen die Ozondichten in der oberen Mesosphäre kaum ab. Eine 20 K-Temperaturänderung in diesem Höhenbereich beeinflusst die O_3 -Dichten um weniger als 1%.

Für das Ozon-Retrieval werden die operationellen CRISTA-Temperaturen, die bis 90 km ohne Berücksichtigung von non-LTE Effekten abgeleitet wurden, verwendet. Zwischen 75 km und 90 km werden diese glatt in die Temperaturen des GRAM-Modells fortgesetzt. Der Vergleich der so konstruierten Temperaturprofile mit den vorläufigen Temperaturdaten des non-LTE Retrievals [Grossmann *et al.*, 2002] zeigt im globalen Mittel eine Übereinstimmung innerhalb von 5 K (Abbildung 37). Für hohe nördliche Breiten während CRISTA-2 sind die non-LTE Temperaturen an der Mesopause im Mittel etwa 15 K kälter. Da diese Temperaturen gut mit in-situ Messungen übereinstimmen [Grossmann *et al.*, 2002], wird diese Abweichung als Maß für den Fehler bei hohen nördlichen Breiten betrachtet.

Der starke Anstieg der non-LTE Temperaturen in der unteren Thermosphäre hängt stark von der atomaren Sauerstoffdichte und der Stärke der Wechselwirkung mit

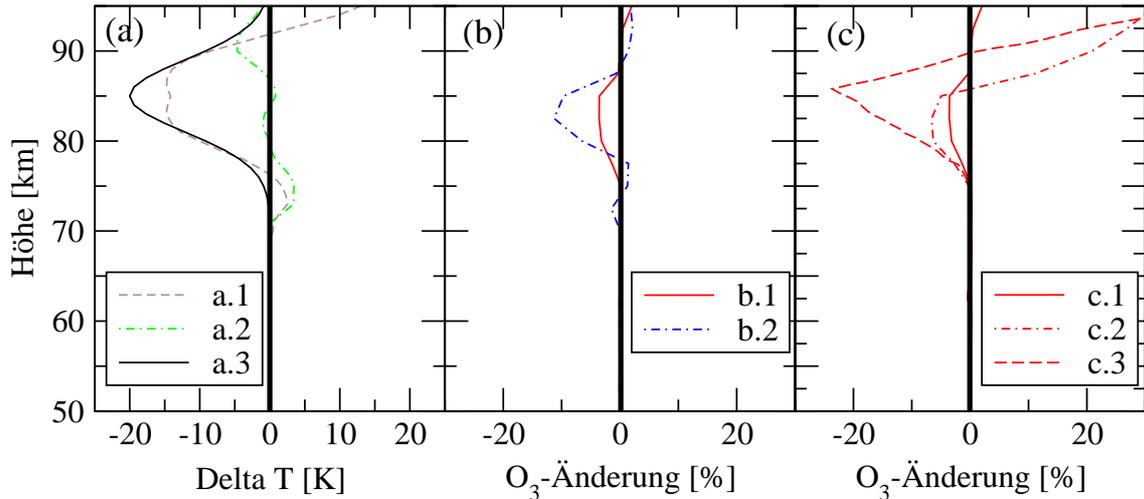


Abbildung 37: Empfindlichkeit der Ozonableitung auf die Temperaturabnahme an der kalten polaren Sommermesopause. **(a)** Differenz der Temperaturprofile zwischen dem GRAM-Modell und den vorläufigen CRISTA-2 Temperaturen für hohe nördliche Breiten ($>65^\circ\text{N}$, Kurve a.1) und alle übrigen Breiten (Kurve a.2). Kurve a.3 ist ein Gauss-Fit an Kurve a.1. **(b)** Änderung der Ozondichte für Tag- (b.1) und Nacht-Bedingungen (b.2) auf eine Temperaturänderung gemäß Kurve a.3. **(c)** Abhängigkeit des Ozonretrievals bei Tag auf die Wahl des vertikalen Koordinatensystems. Kurve c.1: Ozondichten verglichen auf geometrischen Höhen z (vgl Kurve b.1); Kurve c.2: Ozon-Mischungsverhältnisse verglichen auf z ; Kurve c.3: Ozon-Mischungsverhältnisse verglichen auf Druckniveaus.

CO_2 ab. Um hiervon unabhängig nur den Effekt der kalten Sommermesopause zu untersuchen, wird die Temperaturabnahme durch eine Gaussfunktion (Abbildung 37, Kurve a.3) gefittet und für die weitere Analyse verwendet. Der Einfluss dieser Temperaturabnahme auf das Ozonretrieval hängt stark von der Wahl des vertikalen Koordinatensystems (geometrische Höhe oder Druckniveaus) und der betrachteten Größe (Mischungsverhältnis oder Teilchendichte) ab.

Wenn Ozondichten auf geometrischen Höhen verglichen werden (Abbildung 37b), ist der Einfluss kleiner als 5%. Vergleicht man stattdessen Ozon-Mischungsverhältnisse auf geometrischen Höhen, so wird die Änderung des hydrostatischen Drucks (13% bei 85 km, 22% bei 90 km) durch die explizite Temperaturabhängigkeit der Totaldichte (ideales Gasgesetz) zumindest teilweise kompensiert. Die Totaldichte ist an der kalten Sommermesopause etwa 4% verringert und bei 90 km 17% erhöht. Daher sind die Abweichungen der Ozon-Mischungsverhältnisse den Abweichungen der Ozondichten bis in die obere Mesosphäre sehr ähnlich; erst in der unteren Thermosphäre steigen die Unterschiede auf über 20% stark an (Abbildung 37c, Kurve c.2).

Vergleicht man Ozon-Mischungsverhältnisse auf Druckniveaus, werden die Abweichungen durch den starken Höhengradienten von Ozon (+10%/ km < 70 km, – 30%/km bei 85 km) bedeutend größer. Bei 5×10^{-3} mBar (etwa 85 km) verschieben sich die Isobaren als Folge der Temperaturänderung um etwa 350 m, dies entspricht einer Änderung des Ozon-Mischungsverhältnisses von 10%. Insgesamt beträgt die Änderung der Ozon-Mischungsverhältnisse auf Druckniveaus etwa -22% an der Mesopause.

3.8 Ergebnisse des Retrievals

Das Ozon-Retrieval wird für Messmode-1 ('High-Altitude-Scans', vgl. Tabelle 1) bei CRISTA-1 sowie für Messmode-M ('Extended-Spectral-Scans') bei CRISTA-2 durchgeführt; bei CRISTA-1 für den Detektor SCS-3 und bei CRISTA-2 für SL-3, SCS-3 und SR-3. Drei $9,6\ \mu\text{m}$ Strahlungsdichteprofile und die hieraus abgeleiteten Ozonprofile sind in Abbildung 38 gezeigt. Die Profile stammen von beiden CRISTA-Missionen und wurden bei Tag und Nacht gemessen. Die Modellrechnungen reproduzieren die gemessenen Strahlungsdichten innerhalb von 1,5% unter Verwendung der gezeigten Ozondichten. Der spektrale Verlauf der gemessenen Intensitäten (Abbildung 39) wird durch die Rechnung auf allen Höhen gut wiedergegeben.

An der Stratopause zeigen die Ozon-Profile Mischungsverhältnisse von 1–2 ppmv, die dann mit steigender Höhe abfallen und bei 75–80 km ein ausgeprägtes Minimum von 0,05–0,5 ppmv zeigen. Darüber steigen die Mischungsverhältnisse wieder an und

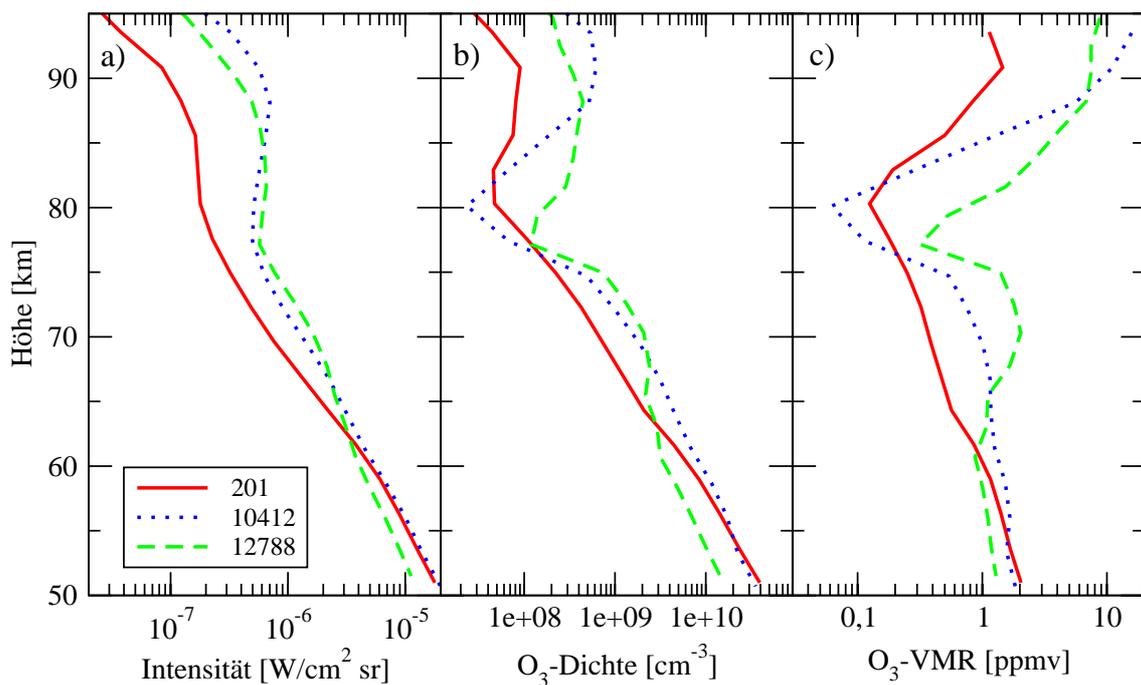


Abbildung 38: a) Spektral integrierte Strahlungsdichten ($1010\text{--}1065\ \text{cm}^{-1}$) von CRISTA-1 and -2. b) Die aus diesen Profilen abgeleiteten Ozondichten und c) Ozon-Mischungsverhältnisse (VMR). Kurve 1 zeigt das CRISTA-1 Tagprofil #201 bei 39°S , 123°E vom 4. November 1994; Kurve 2 ist das CRISTA-1 Nachtprofil #10412 bei 51° , 109°W vom 9. November 1994 und Kurve 3 wurde nachts bei 70°S , 73°W am 15. August 1997 während CRISTA-2 (Profil #12788) gemessen.

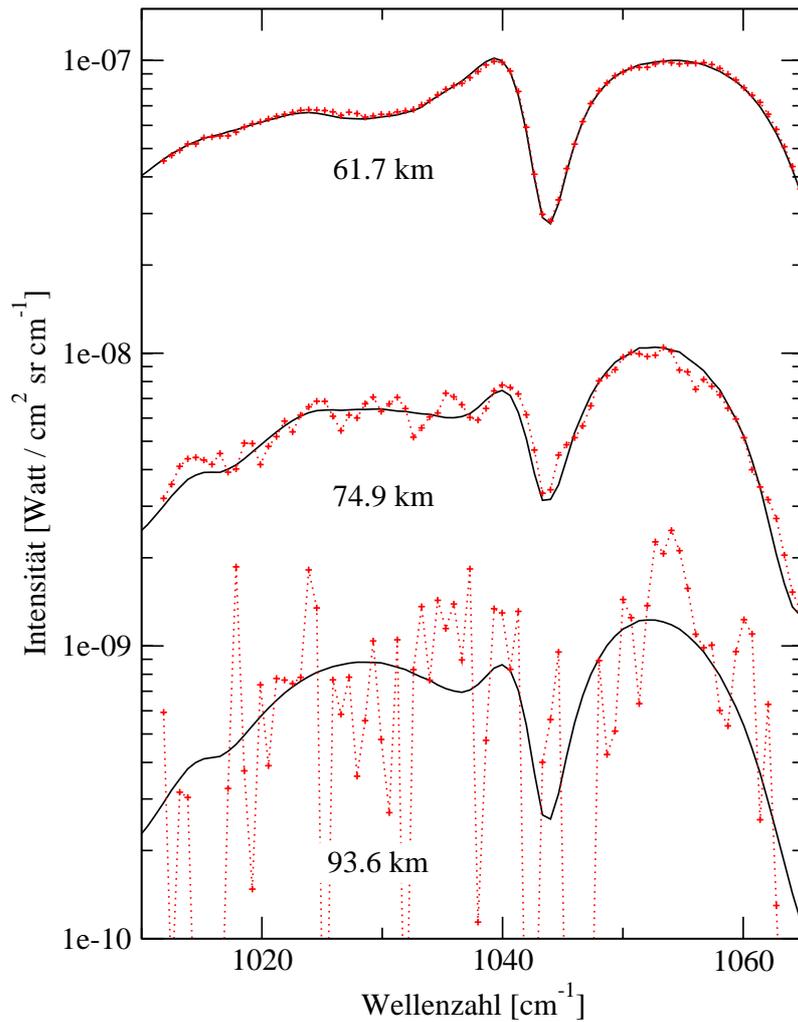


Abbildung 39: Vergleich zwischen gemessenen (Kreuze) und gerechneten Spektren (durchgezogene Linien) für das CRISTA-1 Tagprofil #201 (vgl. Abbildung 38) für 61,7 km, 74,9 km and 93,6 km Tangentenhöhe.

erreichen an der Mesopause 1,5 ppmv bei Tag und 8–12 ppmv bei Nacht. Das zweite Ozonmaximum ist nur in den O_3 -Dichten bei etwa 90 km Höhe sichtbar. Das Ozonprofil bei hohen südlichen Breiten (Profil #12788 in Abbildung 38) weist bei etwa 72 km ein lokales Maximum auf, dessen Auftreten typisch ist für Profile bei diesen Breiten.

Ozondichten in der Mesosphäre hängen von der Jahreszeit, der Lokalzeit und der geographischen Breite ab. Eine Korrelation mit dem solaren Zyklus ist ebenfalls vorhanden, jedoch ist die Änderung der Ozondichten mit typischerweise 10% vergleichsweise gering [Chabrillat, 2001]. Die Abhängigkeit von der Jahreszeit ist bei

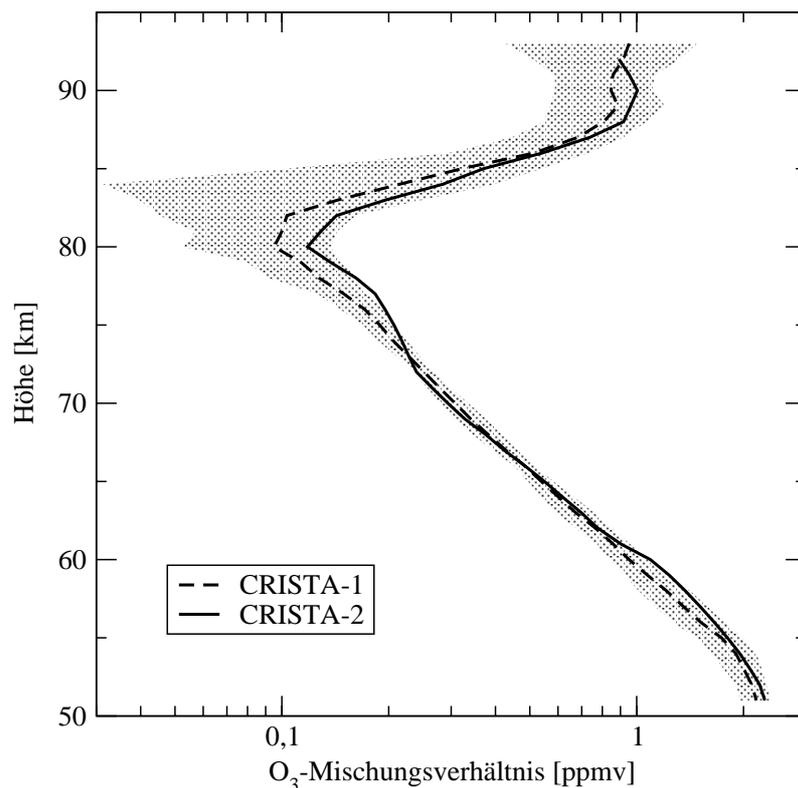


Abbildung 40: CRISTA Ozon-Mischungsverhältnisse bei Tag (15–30°N). Die CRISTA-1 Daten decken einen Lokalzeitbereich von 8,1–9,6 h ab und sind ein Mittel aus 39 Einzelprofilen; die CRISTA-2 Daten sind für 7,5–8,5 h und ein Mittel aus 21 Profilen. Der schattierte Bereich zeigt die Variabilität der einzelnen CRISTA-1 Profile um das mittlere Profil.

hohen Breiten ausgeprägter und kann an der Mesopause bis zu einen Faktor 2 betragen [Marsh, 1999]. Ähnlich groß ist auch der Einfluss von Gezeiten am Äquator.

Da die Ozondaten verschiedener Experimente häufig nicht unter den exakt gleichen geophysikalischen Bedingungen gemessen wurden, ist die Übereinstimmung bzw. die Wahl einer geeigneten geographischen Breite und Lokalzeit von großer Bedeutung für den Vergleich der verschiedenen Messungen.

Die Ozondaten der beiden CRISTA Missionen werden bei 15°N–30°N verglichen (Abbildung 40), da hier sowohl die Gezeitenamplituden [Oberheide et al., 2000] als auch der Jahresgang verhältnismäßig gering sind. Die Orbits der beiden CRISTA-Missionen überlappen in diesem Breitenbereich zwischen 7 h und 10 h Lokalzeit, wobei die CRISTA-2 Daten bei dieser Breite im Mittel 1 h früher gemessen wurden. Durch diese Zeitdifferenz können sich die Ozondichten auf manchen Höhen bis zu 30% unterscheiden (Abbildung 41). Unterschiede, die durch das Messen bei

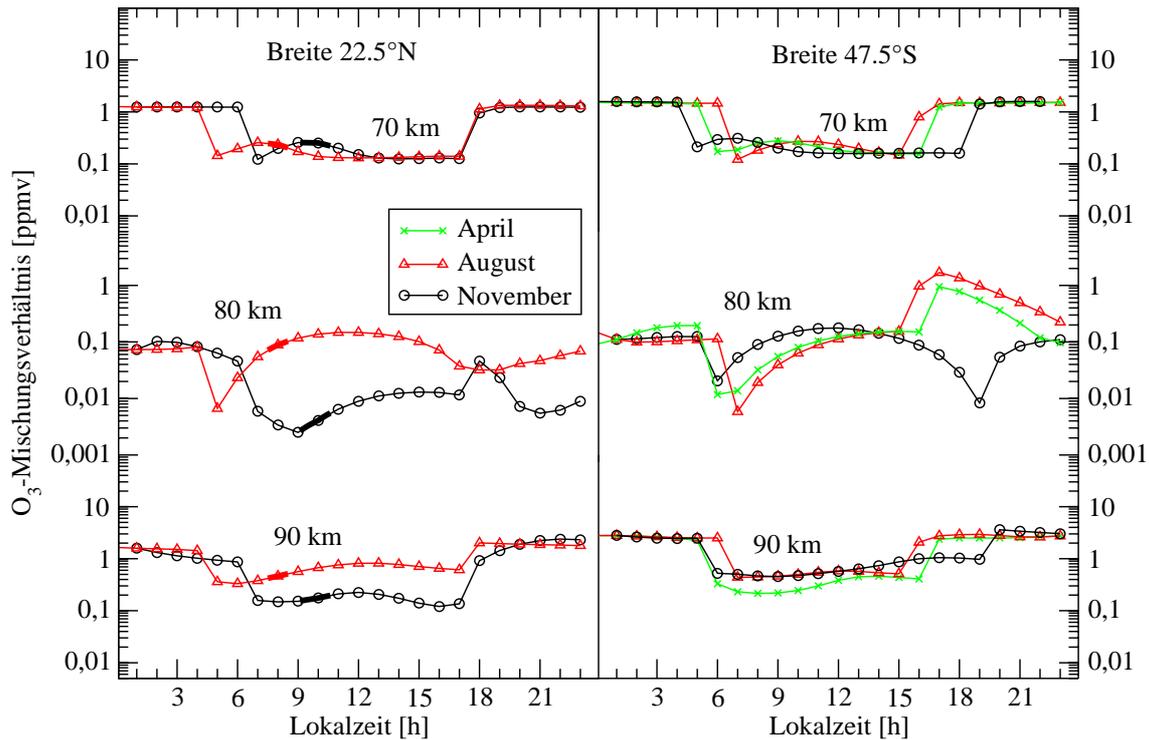


Abbildung 41: Tagesgänge von Ozon aus Simulationen mit dem ROSE-2 Modell (vgl. Kapitel 3.8.2) für verschiedene Höhen bei 22,5°N und 47°S für den 10. April, 8. August und 5. November 1994. Die Kurven wurden jeweils um 1 h Lokalzeit aufeinander normiert. Bei 22,5°N sind die Lokalzeiten fett hervorgehoben, die für den Vergleich der CRISTA-Profile in Abbildung 40 herangezogen werden.

verschiedenen Jahreszeiten während CRISTA-1 und CRISTA-2 zustande kommen, werden aus dem Jahresgang der HRDI-Daten abgeschätzt: Bei 22°N sind die Ozon-Mischungsverhältnisse im August 0–30% niedriger als im November.

Unter diesen Umständen ist die Übereinstimmung der Ozondichten von den beiden CRISTA-Missionen (Abbildung 40) im Rahmen von 10–20% als angemessen anzusehen.

3.8.1 Vergleich mit anderen Experimenten

Tagmessungen

Der Vergleich der CRISTA-Daten mit den Ozonmessungen des HRDI-Experiments wird mit Rücksicht auf dessen Messüberdeckung bei höheren Breiten durchgeführt. Um auch hier möglichst gering von Gezeiten beeinflusst zu sein, wird der Breitenbereich 50°N–55°N gewählt. Im August 1997 liegen bei dieser Breite um 14–18 h

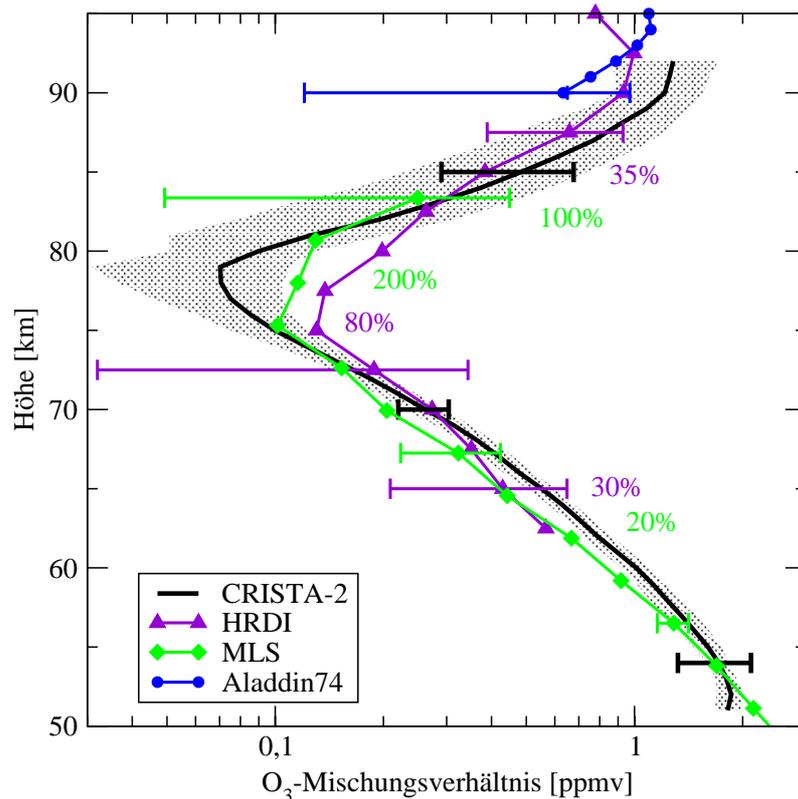


Abbildung 42: Ozon-Mischungsverhältnisse bei Tag von CRISTA-2 und anderen Experimenten. Die CRISTA-2 Kurve ist ein Mittel von 35 Profilen für 50–55°N, 15–18 h Lokalzeit für den 8.–15. August 1997. Die Fehlerbalken repräsentieren die systematischen Fehler und der schattierte Bereich die Variabilität der Einzelprofile um das mittlere Profil. Die HRDI-Daten sind ein Monatsmittel für August 1997, 50–60°N, 15 h. Die MLS-Daten (183 GHz, Version 5, ein Mittel über 128 Profile) sind für den 3.–8. August 1992, 50–55°N, 14–16 h. Die violetten und grünen Zahlen zeigen bei bestimmten Höhen die Variabilität der HRDI- und MLS-Daten an. Die blaue Kurve repräsentiert die Massenspektrometer-Messung von *Trinks* [1975] bei 38°N, 75°W am 29.6.1974, 15:14 Lokalzeit.

Lokalzeit sowohl CRISTA-2 als auch HRDI-Daten [Marsh *et al.*, 2002] vor. Bei MLS muss auf Ozon-Daten der ersten Augushälfte des Jahres 1992 zurückgegriffen werden, weil der MLS-Ozonkanal für die mittlere und oberer Mesosphäre (183 GHz) im April 1993 ausfiel.

Die Übereinstimmung der Ozondaten zwischen den verschiedenen Experimenten und Messtechniken ist bei den meisten Höhen sehr gut (Abbildung 42). Die Messungen weichen selten mehr als 25% voneinander ab und liegen damit meist innerhalb der einfachen Fehlerbalken. Die etwas größeren Abweichungen bei 75–80 km sind unter Berücksichtigung der systematischen Fehler nicht signifikant. Auch der Vergleich der

CRISTA-2 Daten mit der Massenspektrometer-Messung von *Trinks* [1975] zeigt eine gute Übereinstimmung.

Auffällig ist, dass die Variabilität der Ozon-Profile teilweise sehr unterschiedlich ist. Sie beträgt bei dem CRISTA-Profil 10% in der unteren und etwa 30% in der oberen Mesosphäre. Die Variabilität des HRDI-Monatsmittels ist 30% sowohl in der unteren als auch oberen Mesosphäre. Möglicherweise ist die erhöhte Schwankung der HRDI-Daten in der unteren Mesosphäre auf den fast 4-fach längeren Messzeitraum zurückzuführen. Bei beiden Experimenten liegen die Variabilitäten deutlich über den statistischen Fehlern. Die extrem hohe Variabilität (>100%) der MLS-Daten in der mittleren und oberen Mesosphäre ist bislang unverstanden.

Nachtmessungen

Nachtmessungen von mesosphärischem Ozon wurden im Vergleich zu Tagmessungen selten durchgeführt. Bisher existiert in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre kein globaler Ozon-Datensatz, der sich über einen längeren Zeitraum erstreckt. Es ist daher meist nicht möglich, CRISTA-Daten mit Messungen anderer Experimente zu vergleichen, die in der Jahreszeit, der geographischen Breite und der Lokalzeit übereinstimmen.

Bei der Suche nach einem größeren Lokalzeitintervall für den Vergleich der Messungen fällt die Wahl auf die zweite Nachthälfte, da Ozon in der mittleren Mesosphäre häufig erst einige Stunden nach Sonnenuntergang ins Gleichgewicht kommt (Abbildung 41). Unter Berücksichtigung der Breiten- und Lokalzeitüberdeckung bei CRISTA und den anderen Experimenten sowie zur Vermeidung von Störungen durch Gezeiten werden geographische Breiten südlich von 40°S ausgewählt.

Die Ozondaten der beiden CRISTA-Missionen stimmen in der unteren Mesosphäre bei 23–3 h Lokalzeit, 40–50°S bis auf wenige Prozent überein (Abbildung 43). Bei 80 km sind die CRISTA-2 Daten im Vergleich zu CRISTA-1 einen Faktor 2–3 kleiner. In der Nähe des zweiten Ozonmaximums zeigen beide CRISTA-Profile ähnliche Mischungsverhältnisse von 7–9 ppmv.

MLS-Daten stehen im August 1992 für die gleiche geographische Breite und das gleiche Lokalzeitintervall zur Verfügung und stimmen bis 75 km gut mit den CRISTA Profilen überein (Abbildung 43a). Wie auch bei Tag ist das Ozonminimum in den MLS-Daten deutlich schwächer ausgeprägt. Dies könnte eine Folge der groben

Höhenauflösung (5–8 km) der MLS-Daten sein.

Ozondichten von CIRRIS-1A [Zhou *et al.*, 1998] und MAS [Bevilacqua *et al.*, 1996] für April/May 1991 bzw. April 1993 stimmen meist innerhalb von 30% mit den CRISTA-Daten überein (Abbildung 43b). Mit Ausnahme des Ozon-Minimums ist kein systematischer Unterschied zwischen den Daten zu erkennen.

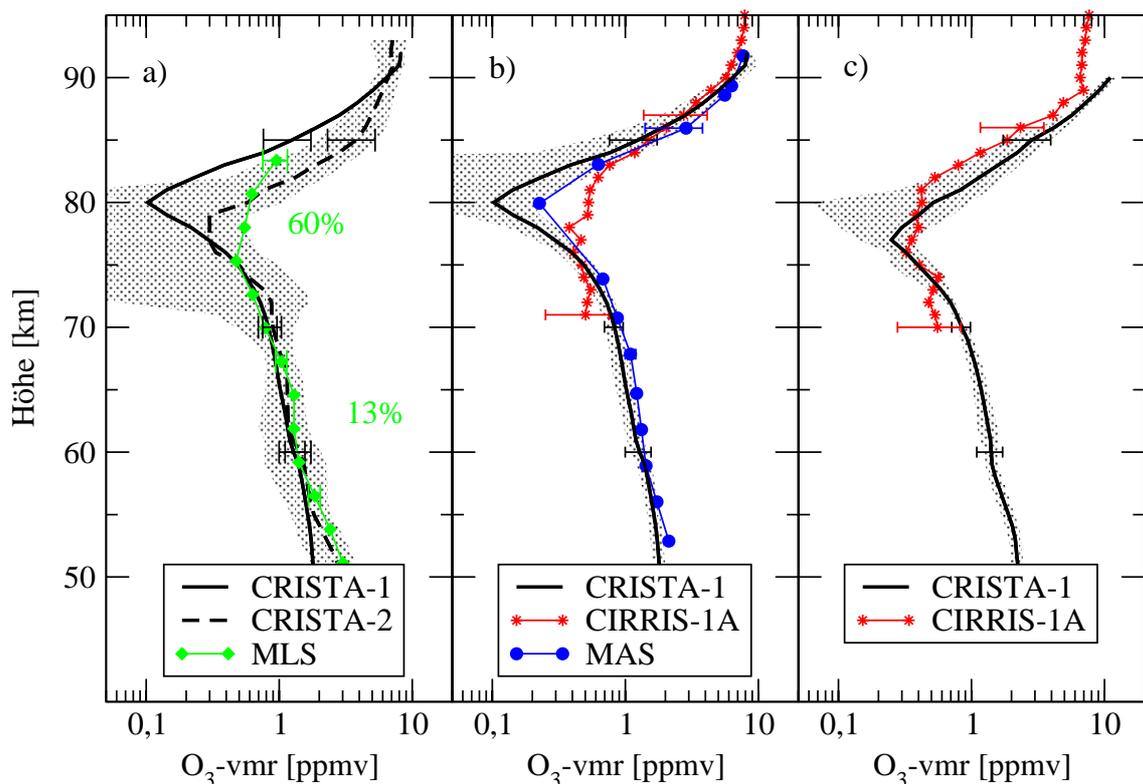


Abbildung 43: a) Ozon-Mischungsverhältnisse (vmr) bei Nacht von CRISTA und anderen Experimenten bei 40–55°S, 23–3 h Lokalzeit. Die CRISTA-1 Kurve (4.–12. November 1994) ist ein Mittel aus 120 Einzelprofilen und die CRISTA-2 Kurve (8.–15. August 1997) wurde aus 17 Einzelprofilen gebildet. Die Fehlerbalken repräsentieren die systematischen Fehler und der schattierte Bereich die Variabilität des CRISTA-2 Profils. Die MLS-Daten sind für den 13.–19. August 1992. Die grünen Zahlen zeigen die Variabilität der MLS-Daten bei bestimmten Höhen an. (b) Das CRISTA-1 Profil aus Abbildung a) mit seiner Variabilität. Das CIRRIS-1A Profil ist für 44°S, 22:49 h Lokalzeit (April/May 1991) und wurde mit dem MSIS-Modell in Mischungsverhältnisse umgerechnet. Das MAS-Profil ist für 55°S, SZA>110°, 8.–15. April 1993. (c) Ein mittleres CRISTA-1 Profil (Mittel aus 11 Einzelprofilen) mit seiner Variabilität für 25–35°N, 20–21 h und ein CIRRIS-1A Profil für 28°S, 1:42 h, April/May 1991.

Die gute Übereinstimmung der CRISTA-Daten mit den Ergebnissen der anderen Messmethoden ist ein starkes Indiz dafür, dass die Modellierung der Ozon-Infrarot-Emissionen unter Berücksichtigung von non-LTE keine gravierenden Fehlerquellen enthält und insbesondere die zahlreichen Ratenkonstanten und spektroskopischen Daten, die meist im Labor gemessen wurden, gut auf die Situation in der oberen Erdatmosphäre anzuwenden sind.

3.8.2 Das dritte Ozonmaximum

Das auffälligste Merkmal in den Ozondaten von CRISTA-2 ist die Existenz eines Ozonmaximums in der mittleren Mesosphäre bei hohen südlichen Breiten in der Nacht (Abbildung 38, Kurve 3 und Abbildung 44d). Das Maximum weist etwa 50% mehr Ozon in der Vertikalen und einen Faktor 3–4 erhöhtes Ozon in der Horizontalen auf. Diese Erhöhung ist oberhalb der Variabilität und des systematischen Fehlers der Ozondaten. Ein drittes Ozonmaximum ist auch in MLS-Daten bei hohen nördlichen oder südlichen Breiten in der Nähe des polaren Nacht-Terminators zu beobachten (Abbildung 45).

Das Auftreten dieses Maximums während der zweiten CRISTA-Mission kann mit dem ROSE-2 Modell nachgestellt werden (Abbildung 46). ROSE-2 [Rose und Brasseur, 1989; Smith, 1989, 1992] ist ein globales, 3-dimensionales, mechanistisches Modell zur Berechnung der Dynamik, des Strahlungshaushalts und der Chemie der mittleren Atmosphäre. Das Modell kann die Verteilung und Chemie von insgesamt 27 Molekülen berechnen. ROSE-2 arbeitet mit einer horizontalen Auflösung von 5° in der Breite und 11.5° in der Länge. Vertikal wird auf Druckniveaus bzw. sogenannten Druck-Höhen mit einem Inkrement von 2,5 km gerechnet. Obere und untere Grenzen des Modells sind 17,5 km bzw. 120 km. Die Zeitauflösung beträgt 7,5 min. Die unteren Randbedingungen werden durch Vorgabe von zonal gemittelten Feldern aus den NCEP-Daten und von Strukturen quasi-stationärer planetarer Wellen für die geopotentielle Höhe, die Temperatur und die horizontalen Winde vorgegeben [Randel, 1987]. Zusätzlich werden diese Felder mit den Gezeitenamplituden der täglichen und halbtägigen wandernden Gezeiten aus dem Global Scale Wave Model [Hagan et al., 1999] moduliert. Das ROSE-2 Modell erzeugt weiterhin eigene Gezeiten, die

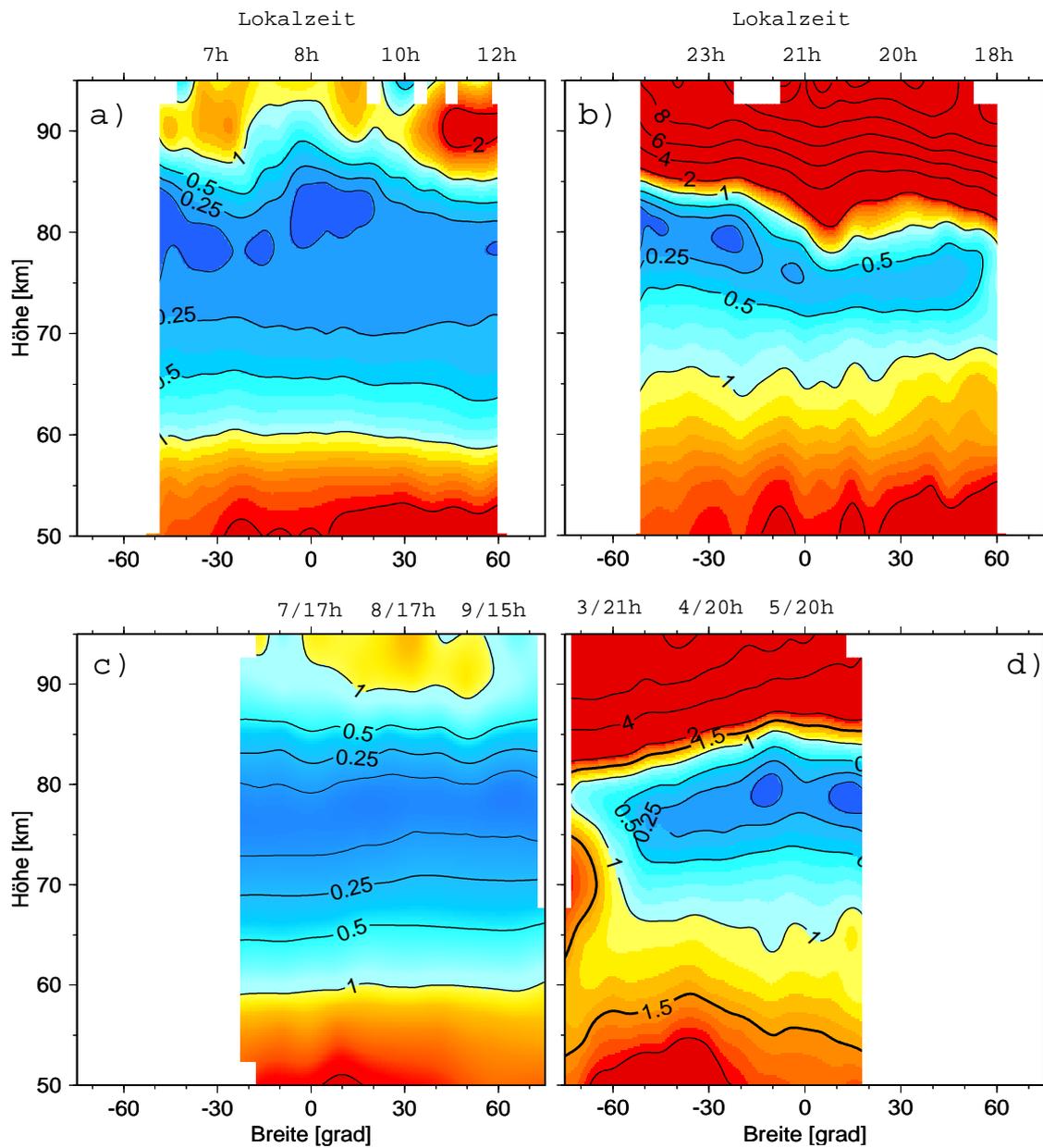


Abbildung 44: Breitenschnitte durch die Ozon-Mischungsverhältnisse beider CRISTA-Missionen. Auf den horizontalen Achsen sind die geographische Breite und die ungefähren Lokalzeiten angegeben, bei CRISTA-2 für die auf- und absteigenden Orbitäste getrennt. Die Daten wurden mit einem $5^\circ \times 5$ km Blockmittel geglättet. Konturlinien sind bei 0,125, 0,25, 0,5, 1, 2, 4, 6... ppmv gezeichnet. a) CRISTA-1 Tag, b) CRISTA-1 Nacht, c) CRISTA-2 Tag, d) CRISTA-2 Nacht.

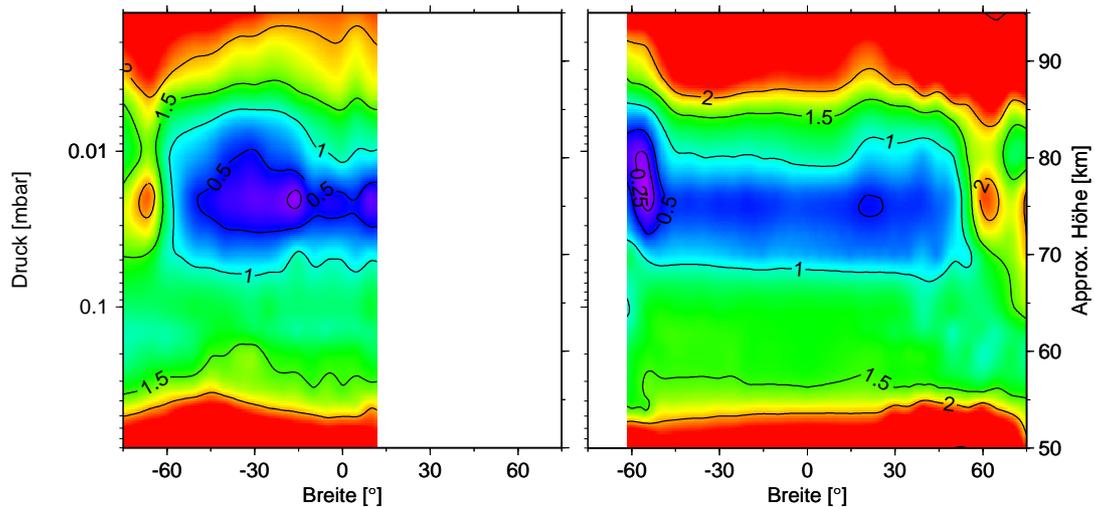


Abbildung 45: Breitenschnitte durch MLS 183-GHz Ozon für den 16. August und 29. November 1992 (22–2 h Lokalzeit).

durch den Tagesgang der diabatischen Heizung hervorgerufen werden. Die Heizungs-raten werden dabei unter Vorgabe von klimatologischen Ozon- [Keating und Pitts, 1987] und H_2O -Dichten [Brasseur et al., 2000] bestimmt. Die intern erzeugten Wel-len wechselwirken in dem Modell sowohl untereinander als auch mit den an den Rändern vorgegebenen Strukturen.

Da die Abhängigkeit der Ozondichte vom solaren Zyklus gering ist und Simulationen mit dem SOCRATES-Modell zeigen, dass sich die Breitenverteilung von mesosphärischem Ozon über mehrere Jahre nur unwesentlich ändert, werden aus technischen Gründen ROSE-2 Simulationen für die zweite CRISTA-Mission für das Jahr 1994 statt für 1997 vorgenommen.

In den Simulationen des ROSE-2 Modells tritt das dritte Ozonmaximum ebenfalls auf. Sein Zentrum liegt in 73 km Höhe und es erstreckt sich über einen Höhenbereich von 60 km bis etwa 80 km. Die Ozondichten betragen bei 70°S bis zu 4 ppmv und sind im Vergleich zu den CRISTA-Daten etwa verdoppelt. Dieser Wert hängt jedoch stark von der Wahl des UV-Strahlungsmodells ab. Für die in dieser Arbeit gezeigten Simulationen wurde das Modell von Madronich und Flocke [1998] verwendet.

Da bei Nacht in der unteren und mittleren Mesosphäre nahezu die gesamte re-aktive Sauerstofffamilie aus Ozon besteht, ist die Existenz des 3. Ozonmaximums äquivalent zu einer entsprechenden Erhöhung von O_x . Bei Nacht existieren in die-sem Höhenbereich keine bedeutenden Quellen und Senken von O_x . Daher muss diese

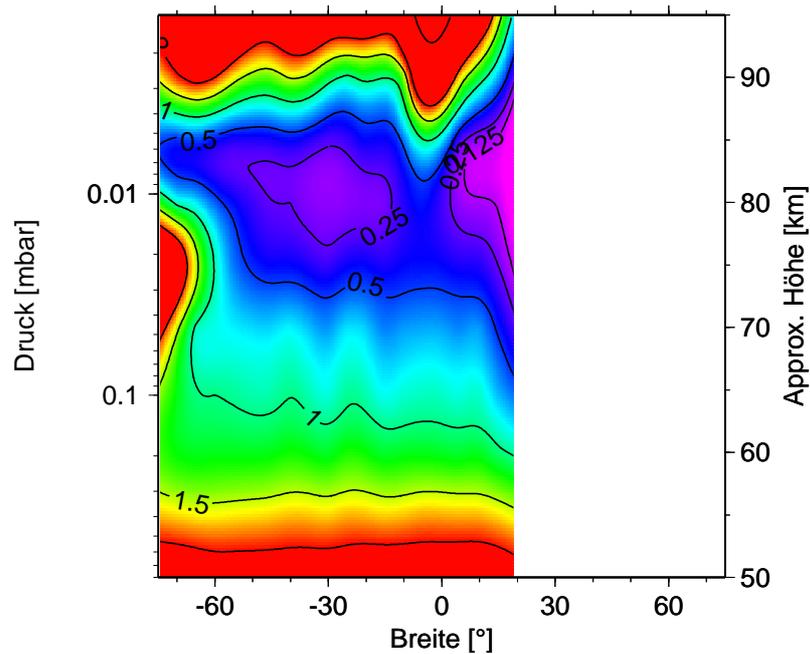


Abbildung 46: ROSE-2 Simulation für Nacht-Ozon im August 1994. Die Modelldaten wurden entlang der Orte und Lokalzeiten der CRISTA-2 Daten ausgelesen.

Erhöhung bereits am Abend des Vortages vorhanden gewesen sein und sich aufgrund der langen Lebensdauer von O_x bei Nacht (einige Wochen in dieser Höhe) bis zum darauffolgenden Tag erhalten haben. Dieses Verhalten wird in den ROSE-2 Simulationen des Tagesgangs von O_x bei verschiedenen Breiten und Höhen auch tatsächlich beobachtet (Abbildung 47).

Ursache für diese Erhöhung ist ein Ungleichgewicht zwischen den Produktions- und Verlustprozessen von O_x bei Tag:

Gebildet wird O_x in diesen Höhen durch Photolyse von O_2 in den Schumann-Runge Banden und dem Herzberg Kontinuum. Bei 72 km hängt das Verhältnis der entsprechenden Photolyseraten deutlich vom solaren Zenitwinkel ab (Abbildung 48), da Strahlung aus den Schumann-Runge Banden schon in großen Höhen signifikant absorbiert und entsprechend abgeschwächt wird. Für Strahlung aus dem Herzberg Kontinuum ist die Atmosphäre dagegen bis an die Stratopause optisch dünn. Bei hohen Sonnenständen werden 75% der O_2 -Moleküle in den Schumann-Runge Banden dissoziiert, bei niedrigen Sonnenständen sinkt dieser Teil auf weniger als 50%. Abgebaut wird O_x durch die katalytische Reaktion mit Hydroxyl (OH), das Teil der reaktiven Wasserstofffamilie HO_x ($H+OH+HO_2$) ist:

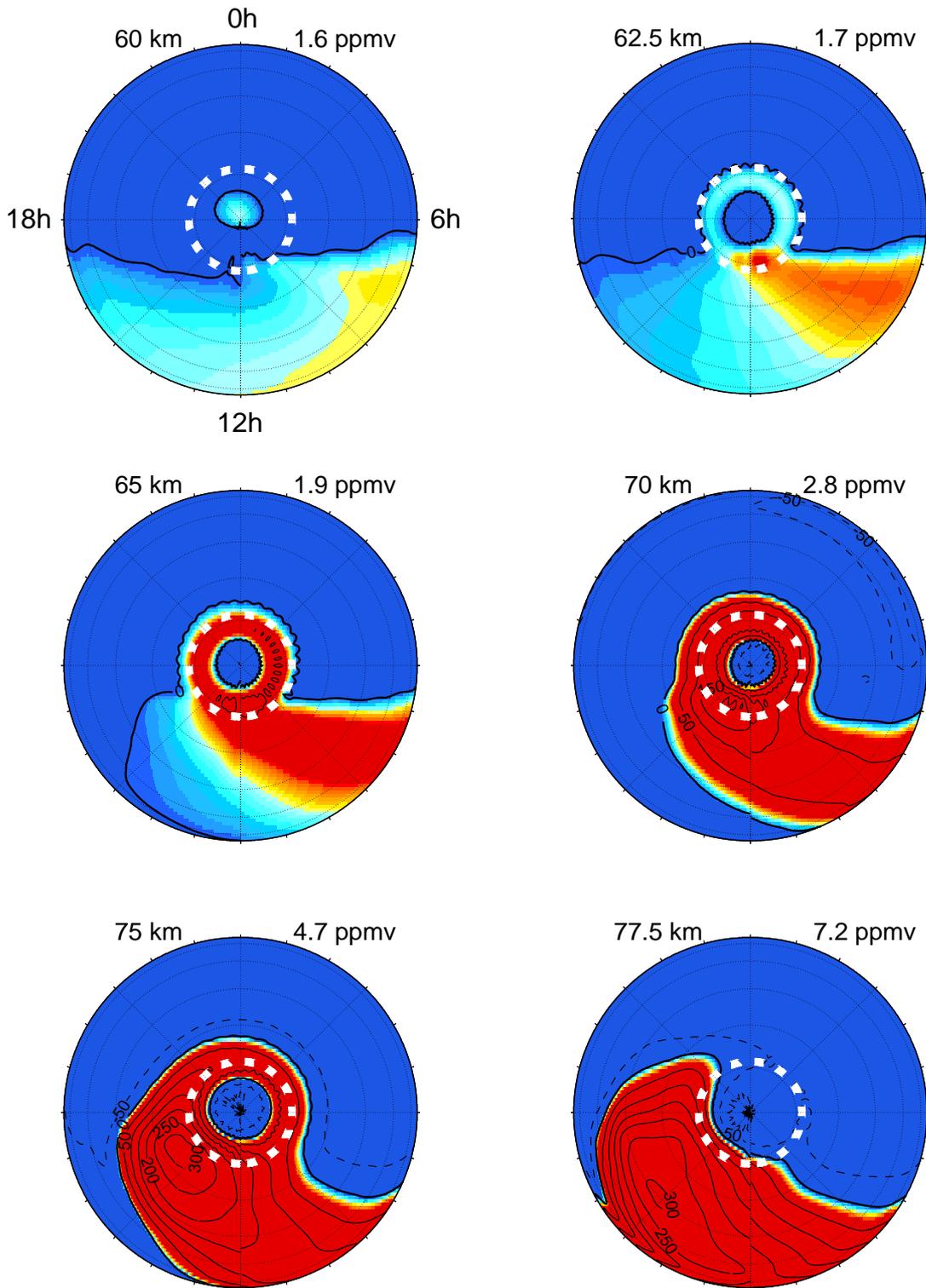
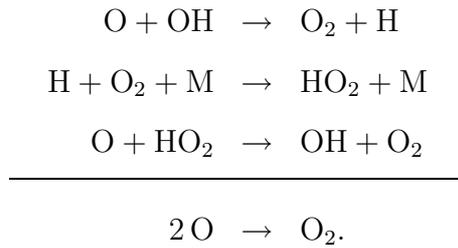


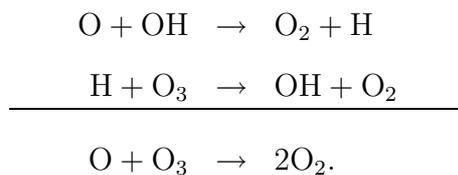
Abbildung 47: ROSE-2 Simulation von reaktivem Sauerstoff für August 1994 auf der Südhemisphäre (0°S – 90°S) für verschiedene Höhen. Die Karten zeigen zonale Mittel für 0h Universalzeit; in azimuthaler Richtung ändert sich die Lokalzeit im Uhrzeigersinn (vgl. die Abbildung für 60 km). Dargestellt sind prozentuale Abweichungen (Abstand der Konturlinien 50%) bezogen auf die in den Überschriften angegebenen Mischungsverhältnisse. Die weißen Rechtecke markieren die ungefähre Lage des Terminators.



Das für die Reaktion benötigte Hydroxyl wird in diesen Höhen durch die Photolyse von Wasser durch Lyman- α und in den Schumann-Runge-Banden gebildet (Abbildung 48). Lyman- α Strahlung wird in größeren Höhen ebenfalls deutlich absorbiert. Da Strahlung aus dem Herzberg-Kontinuum hier unbedeutend ist, hängt die H_2O -Photolyse wesentlich stärker vom solaren Zenitwinkel ab als bei O_2 . Eine Änderung des solaren Zenitwinkels von 20° auf 82° verringert die O_x -Produktion um 60%, die HO_x -Produktion um 95%. Durch dieses Ungleichgewicht steigt die Photolyse von H_2O bei Sonnenaufgang langsamer an als bei O_2 , und es kommt erst einige Stunden nach Sonnenaufgang zu einem Ausgleich zwischen O_x -Produktion und -Verlust. Bis zu diesem Zeitpunkt wächst die Dichte von O_x an und bildet bei Gleichheit von Produktion und Verlust ein lokales Maximum aus.

Weil der solare Zenitwinkel zu den Polen hin im Tagesmittel abnimmt, verschiebt sich dieses Maximum von den Morgenstunden in den Nachmittag (vgl. Abbildung 47). Da die Lebensdauer von reaktivem Sauerstoff bei 80 km auch tagsüber bereits mehrere Stunden beträgt, können die hohen O_x -Dichten sogar bis einige Stunden in die Nacht erhalten bleiben. An dem polaren Nacht-Terminator ist die HO_x -Produktion schließlich so stark abgeschwächt, dass sich eine im Vergleich zu mittleren Breiten bedeutend höhere O_x -Dichte einstellt, die dann über Nacht in Form von O_3 erhalten bleibt und das dritte Ozonmaximum ausbildet.

Die nächtliche Speicherung der hohen O_x -Dichten funktioniert jedoch bereits in 76 km Höhe nicht mehr, da Ozon in großen Höhen bei Nacht durch folgende katalytische Reaktion abgebaut wird:



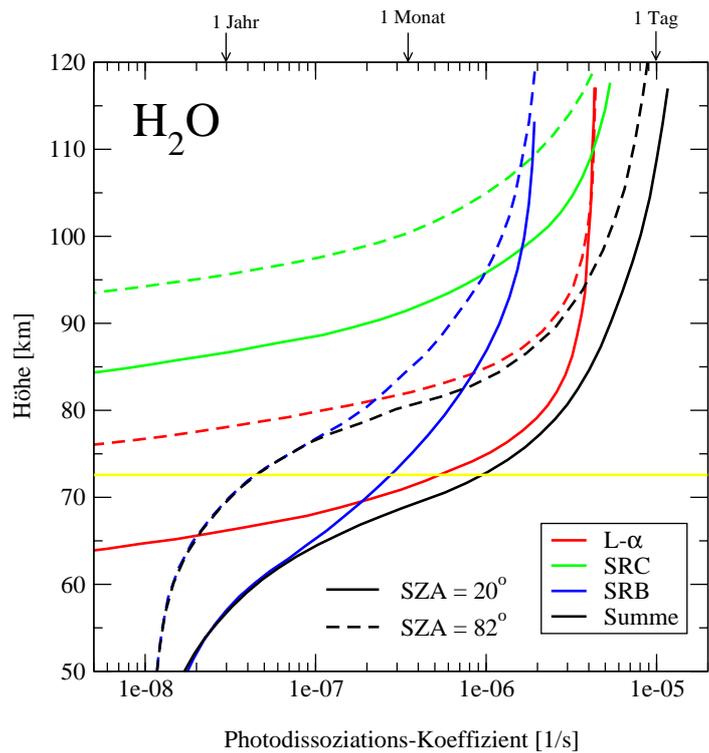
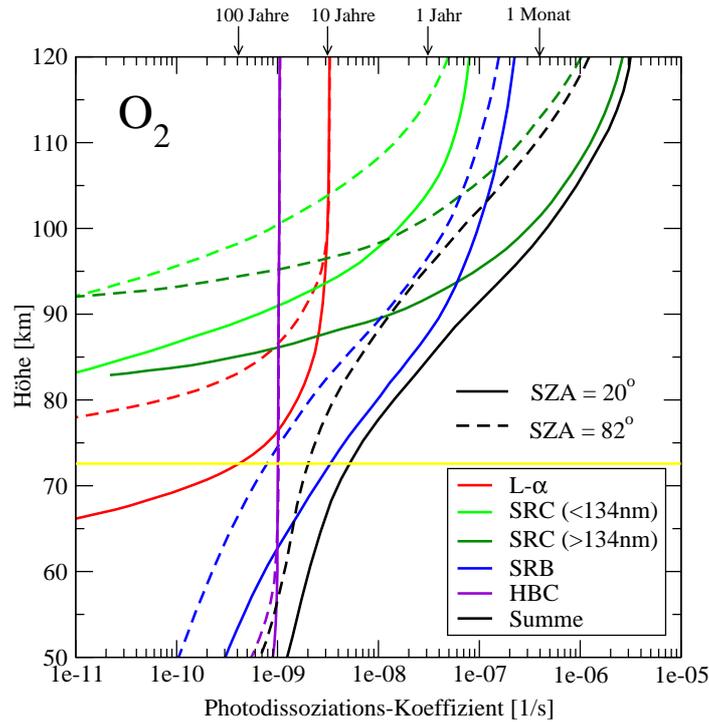


Abbildung 48: Photodissoziations-Koeffizienten von O_2 und H_2O nach *Moreels et al.* [1977]. Die durchgezogenen Linien sind für einen solaren Zenitwinkel (SZA) von 20° , die gestrichelten Kurven für 82° . Die farbigen Kurven repräsentieren die einzelnen Wellenlängenbereiche: Lyman- α (L- α), Schumann-Runge Kontinuum (SRC), Schumann-Runge Banden (SRB) und Herzberg-Kontinuum (HBC). Die gelbe, horizontale Linie markiert die Höhe des 3. Ozonmaximums.

Auch unterhalb von 60 km tritt das dritte Ozonmaximum nicht auf, weil HO_x in diesen Höhen durch die Reaktion von H_2O mit $\text{O}(^1\text{D})$ und O_x durch Ozon-Photolyse in den Huggins Banden gebildet wird. Da die Atmosphäre optisch dünn für diese Strahlung ist, variiert O_x bei Tag kaum.

Das dritte Ozonmaximum wird in dem ROSE-2 Modell auch dann ausgebildet, wenn der Wasserdampf ein mit der Höhe konstantes Mischungsverhältnis aufweist, so dass eine (indirekte) dynamische Ursache ausgeschlossen werden kann (vgl. auch das folgende Kapitel).

3.8.3 Strukturen der globalen Zirkulation

Neben der Existenz des dritten Ozonmaximums zeigen die CRISTA-2 Ozondaten bei Nacht einen ausgeprägten Breitengang mit ansteigendem Ozon zu hohen südlichen Breiten (Abbildung 44d). Bei polaren Breiten ist das Ozon-Mischungsverhältnis im Vergleich zu niedrigen Breiten um einen Faktor 5–10 bei 80 km, einen Faktor 3 bei 85 km und einen Faktor 2 bei 90 km angehoben.

Auch bei CRISTA-1 ist dieser Breitengang vorhanden (Abbildung 44b), allerdings mit ansteigendem Ozon zu hohen nördlichen Breiten: Zwischen 50°S und 60°N ändert sich das Ozon-Mischungsverhältnis auf einer festen geometrischen Höhe um einen Faktor 5–10 bei 80 km, einen Faktor 6 bei 85 km und einen Faktor 2 bei 90 km. Auf konstanten Druckniveaus verringert sich dieser Gradient auf etwa einen Faktor zwei und dieser ändert sich dann kaum mit der Höhe.

Die Breiten-Gradienten in den O_3 -Mischungsverhältnissen sind eine Folge der großräumigen Zirkulation in der Mesosphäre (Abbildung 49): In der Stratosphäre wird diese Zirkulation vor allem durch das Brechen von planetaren Wellen bei mittleren Breiten angetrieben [z.B. *Holton und Alexander, 2000*]. Hierbei werden polwärts gerichtete Strömungen erzeugt, die am Äquator Luft aus niedrigen Höhen ansaugen. Diesen Mechanismus bezeichnet man als 'Downward Control Principle'. Besonders ausgeprägt ist diese Zirkulation im Nord-Winter. In der Mesosphäre findet ein ähnlicher Prozess statt. Treibender Mechanismus ist hier das Brechen von Schwerkwellen in der Sommer-Mesosphäre (vgl. Kapitel 2.8.4), durch den eine Strömung von der Sommer- zur Winterhemisphäre angetrieben wird mit aufsteigenden Luft-

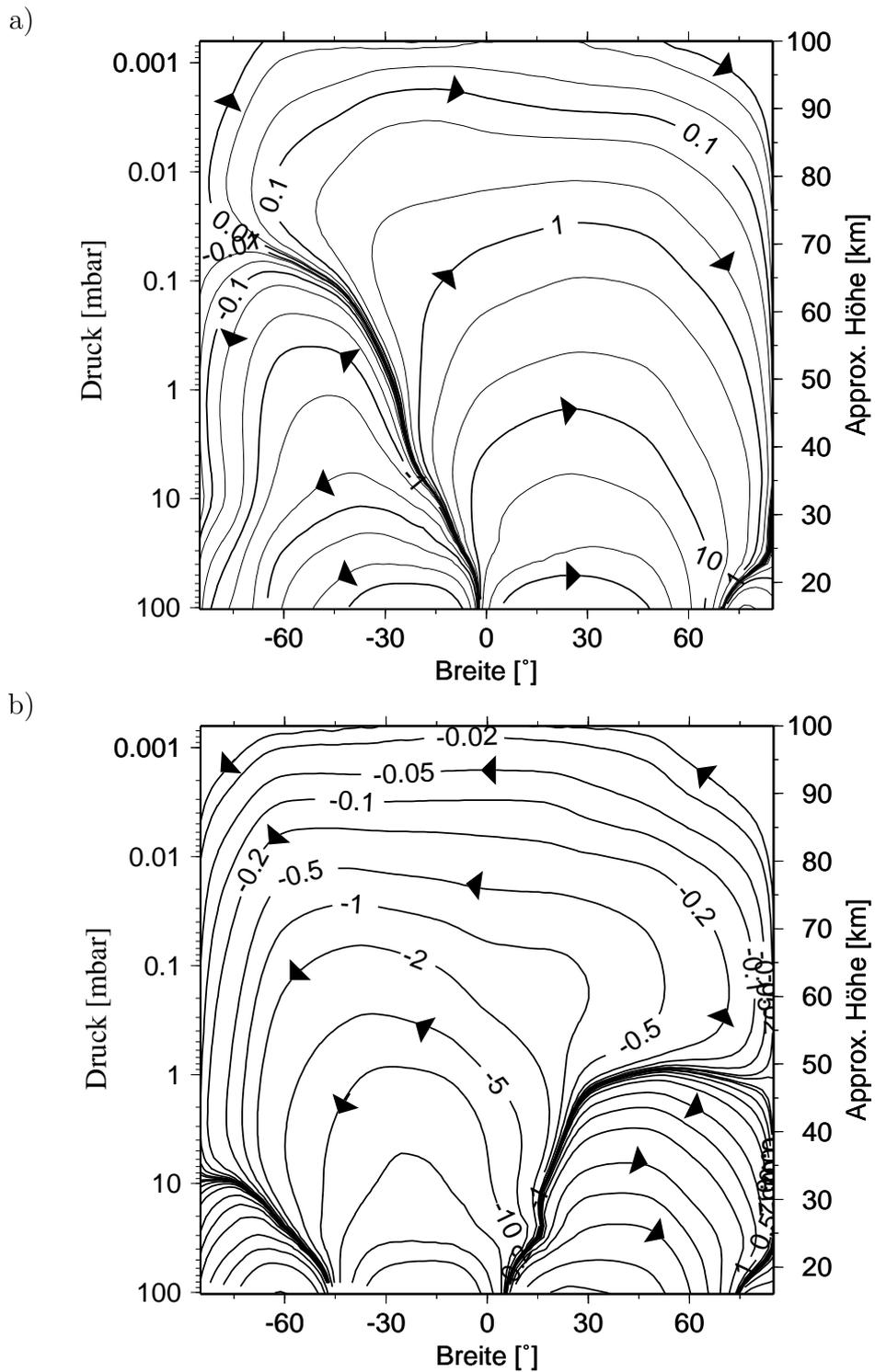


Abbildung 49: Meridionale Stromfunktion in $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ berechnet mit dem SOCRATES-Modell a) für den 7. November 2002 und b) den 14. August 2001.

massen über dem Sommerpol und Absinken über dem Winterpol. Diese Zirkulation ist besonders stark im Nord-Sommer.

Anfang November (Abbildung 49a) kombinieren diese beiden Zirkulationsmuster derart, dass in der unteren Stratosphäre zwei etwa symmetrische Zirkulationszellen entstehen mit einem Aufwärtstransport von Luftmassen über dem Äquator, die sich polwärts bewegen und bei mittleren Breiten abwärts strömen. In der mittleren und oberen Stratosphäre driften die aufsteigenden Luftmassen zunächst einige tausend km südwärts, bevor sie zu nördlichen Breiten strömen. In der mittleren Mesosphäre wird dieses Muster abgelöst durch die interhemisphärische Zirkulation mit aufsteigenden Luftmassen bei hohen südlichen Breiten, dem Transport über den Äquator hinweg Richtung Norden und absteigender Luft bei hohen nördlichen Breiten.

Bei CRISTA-2 (Abbildung 49b) verläuft die Zirkulation mit vertauschten Hemisphären ähnlich. Der Abwärtstransport bei hohen nördlichen Breiten kommt jedoch schon in der oberen Stratosphäre zum Erliegen und wird abgelöst durch die interhemisphärische Zirkulation mit aufsteigenden Luftmassen über dem Sommerpol und absinkender Luft auf der Winterhalbkugel.

Transporte durch die vertikalen Winde der globalen Zirkulation sind erheblich langsamer als die photochemische Lebensdauer von Ozon bzw. reaktivem Sauerstoff und haben somit keinen direkten Einfluss auf die Breitenverteilung von Ozon. Indirekt können die Ozondichten über die Reservoiregase O_2 (O_x -Produktion) und H_2O (O_x -Zerstörung) dennoch beeinflusst werden. Da der Gradient von molekularem Sauerstoff in der Mesosphäre nahezu Null ist, wird seine Verteilung durch die globale Zirkulation nicht beeinflusst.

Wasserdampf fällt in diesem Höhenbereich jedoch stark mit der Höhe ab. Seine photochemische Lebenszeit ist in der mittleren Mesosphäre deutlich länger als bei O_x und beträgt etwa 4 Monate bei 60 km, 1 Monat bei 70 km und 9 Tage bei 80 km [Brasseur und Solomon, 1986]. Sie ist damit von ähnlicher Länge wie die Transportzeiten durch die Winde der residualen Zirkulation. Da H_2O in diesem Höhenbereich einen negativen Höhengradienten besitzt, spiegeln sich Auf- bzw. Abwärtstransporte in erhöhten bzw. verringerten Wasserdampf-Mischungsverhältnissen wider. Dieses Verhalten ist deutlich im Wasserdampf bei CRISTA-2 zu beobachten [Knieling, persönliche Mitteilung, 2002]: Die Mischungsverhältnisse von H_2O weisen bis 75 km

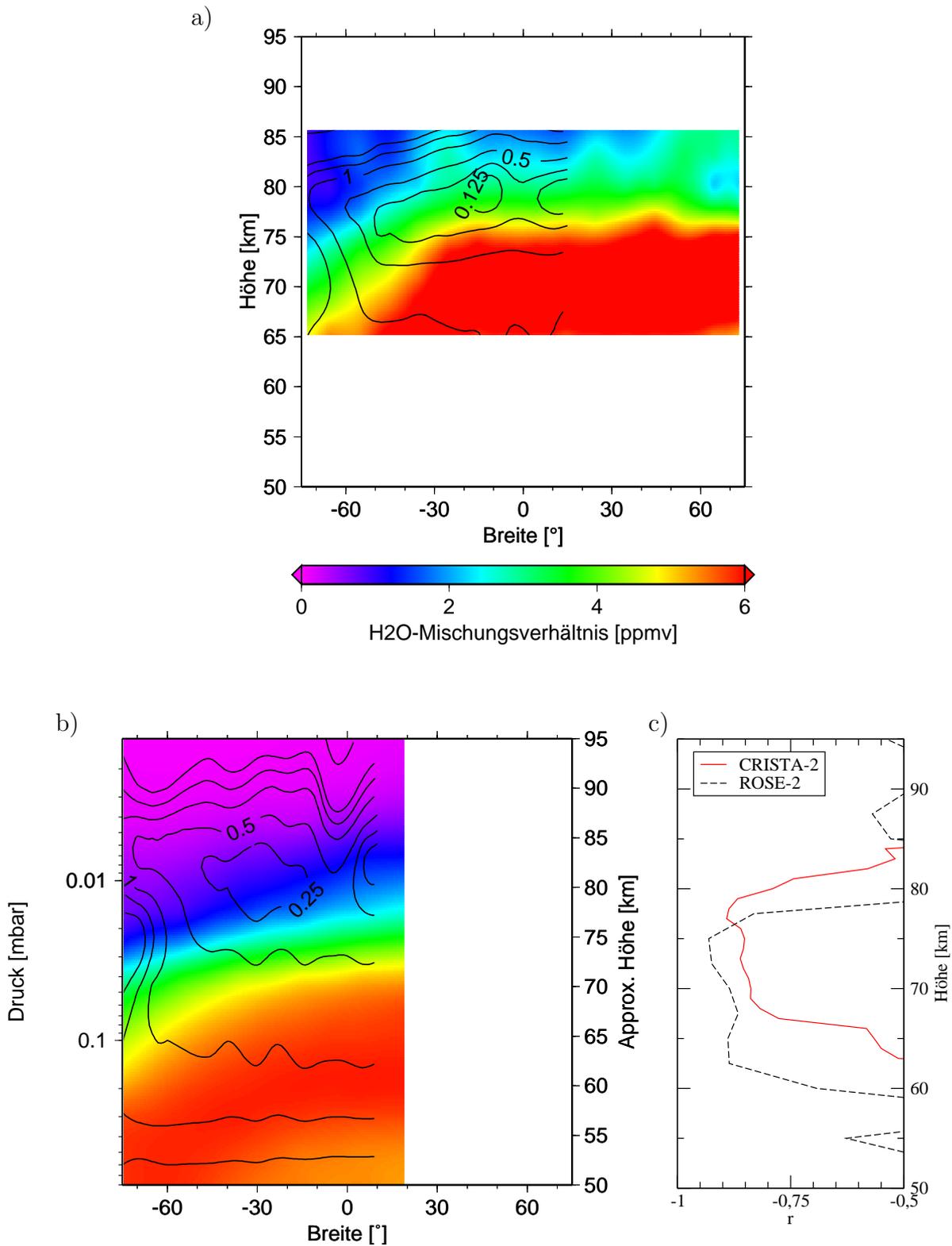


Abbildung 50: Wasserdampf- und Ozon-Mischungsverhältnisse von a) CRISTA-2 und b) ROSE-2. Die Konturflächen repräsentieren Wasserdampf, die Konturlinien Ozon. Ozon-Konturen sind bei 0,125, 0,25, 0,5, 1, 1,5, 2, 4, 6... ppmv gezeichnet. Die ROSE-2 Daten wurden entlang des CRISTA-2 Orbits ausgelesen. Abbildung c) zeigt den Korrelationskoeffizienten r zwischen O_3 und H_2O für Breiten $<30^\circ S$.

Höhe in der Regel einen konstanten Wert von 5–6 ppmv auf und nehmen dann stark mit der Höhe ab (Abbildung 50a). Bei hohen südlichen Breiten ($<30^\circ\text{S}$) sinken die Mischungsverhältnisse erwartungsgemäß schon bei deutlich geringeren Höhen. Damit ist auch die Dichte der ozonzerstörenden HO_x -Radikale deutlich niedriger, so dass sich eine höhere Ozondichte bei diesen Breiten einstellen kann. Dementsprechend ist eine deutliche Antikorrelation zwischen den H_2O - und O_3 -Mischungsverhältnissen sowohl in den CRISTA-Messdaten als auch in der ROSE-2 Simulation zu beobachten (Abbildung 50c).

3.8.4 Gezeitensignaturen am Äquator

Solare Gezeiten gehören zu den wichtigsten dynamischen Prozessen in der Mesosphäre. Die mit den Gezeiten verbundenen Vertikaltransporte haben einen deutlichen Einfluss auf die Verteilung von Spurengasen. Atomarer Sauerstoff wird in der oberen Mesosphäre durch seinen extrem steilen Gradienten und seine hinreichend lange Lebenszeit (einige Stunden) besonders stark durch Gezeiten beeinflusst. Die Lebensdauer von Ozon beträgt bei Nacht oberhalb von 80 km nur 1 h oder deutlich weniger und ist damit kurz genug, um einen Abwärtstransport von atomarem Sauerstoff in erhöhten Ozon-Mischungsverhältnissen widerzuspiegeln. Dementsprechend zeigen die ROSE-2 Simulationen für CRISTA-1 (Abbildung 51) eine deutliche Lokalzeitabhängigkeit von Ozon oberhalb von 80 km; beispielsweise mehr als eine Größenordnung bei 85 km. Liest man die Modelldaten entlang des CRISTA-1 Orbits aus, bleibt die äquatoriale Erhöhung auf die obere Mesosphäre beschränkt, da der Äquator gegen 21 h, wenn die O_3 -Mischungsverhältnisse in der mittleren Mesosphäre kaum erhöht sind, überflogen wird.

Die CRISTA-Daten zeigen jedoch eine geringe Erhöhung von Ozon am Äquator (Abbildung 44b). Dass diese in den Mess- und nicht in den Modelldaten sichtbar sind, könnte darin begründet sein, dass in dem ROSE-2 Modelllauf eine Gezeiten-Klimatologie ohne spezielle Anpassung an die Bedingungen während der ersten CRISTA-Mission verwendet wurde oder die Gezeiten im ROSE-2 Modell unzureichend modelliert werden. Weitere Modellstudien zu dem Einfluss von Gezeiten auf die Ozonverteilung in der Mesosphäre sind geplant.

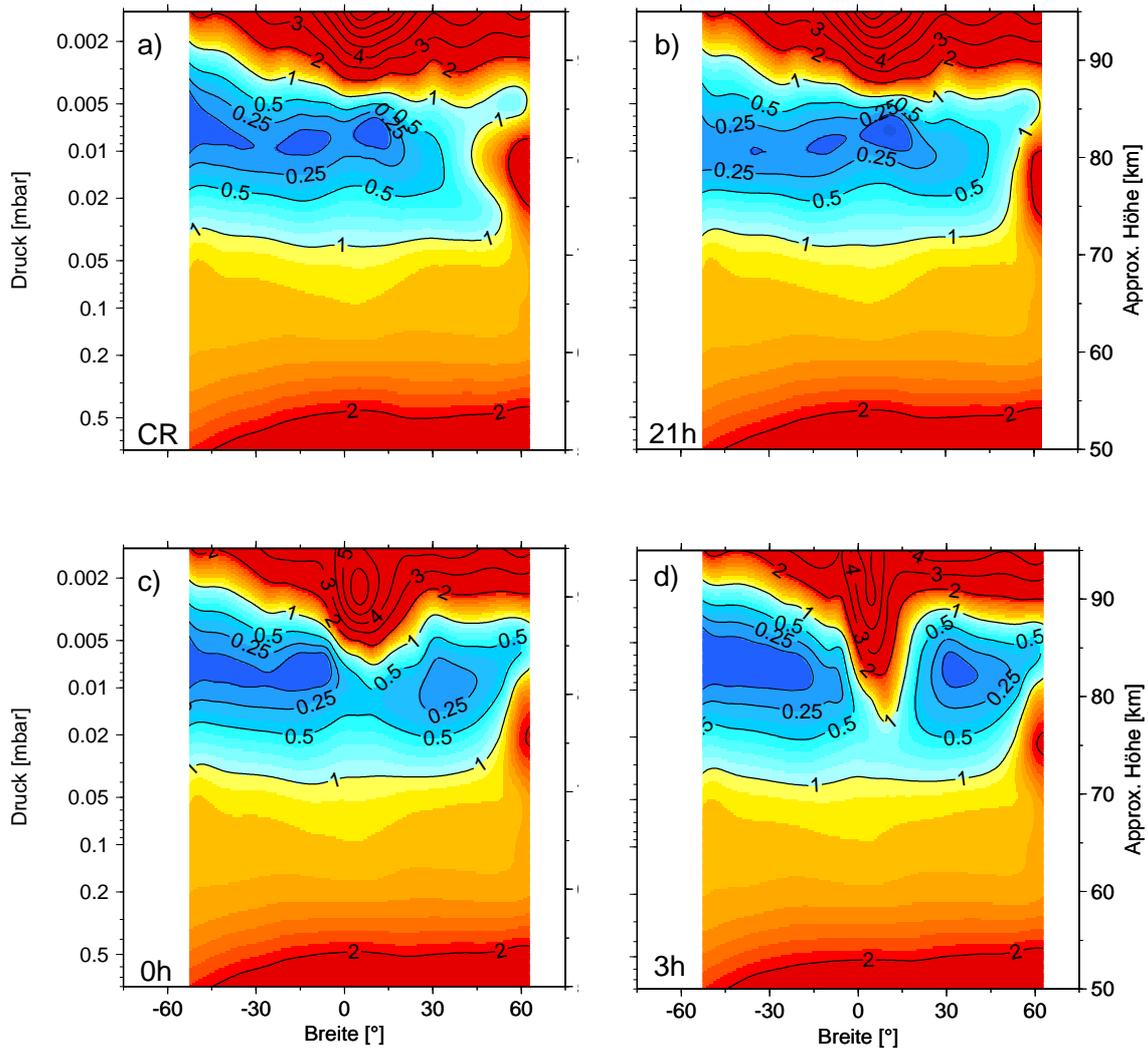


Abbildung 51: ROSE-2 Simulation für Nacht-Ozon für den 4. November 1994. a) Die Modelldaten wurden an den gleichen Orten und Lokalzeiten wie die CRISTA-1 Nachtmessungen ausgelesen. b) ROSE-2 Modelldaten für 21 h Lokalzeit. c) 0 h Lokalzeit. d) 3 h Lokalzeit. Konturlinien sind bei 0,125, 0,25, 0,5, 1, 2, 4, 6... ppmv gezeichnet.

3.9 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde erstmalig ein massives Retrieval von Ozondichten in der oberen Mesosphäre und unteren Thermosphäre auf der Basis von Infrarot-Emissions-Messungen bei $9,6\ \mu\text{m}$ durchgeführt. Bei $9,6\ \mu\text{m}$ dominieren Emissionen des Ozon($\nu_3=1$)-Vibrationszustandes, dessen Anregung durch die Absorption von Strahlung aus der Stratopausenregion verhältnismäßig hoch ist. Die Rekombinati-

onsreaktion $O+O_2 \rightarrow O_3^*$ sowie die Wechselwirkung zwischen Ozon und atomarem Sauerstoff sind weitere wichtige Prozesse bei der Modellierung der Vibrationsanregung.

Die wichtigsten Fehlerquellen des Ozonretrievals sind in der unteren Mesosphäre die Einsteinkoeffizienten, die kinetische Temperatur und instrumentelle Fehler. In der oberen Mesosphäre dominieren Unsicherheiten bei den non-LTE Modellparametern und bei der Instrumenteneichung. Der systematische Fehler der Ozondichten beträgt etwa 25% in der unteren und 30–40% in der oberen Mesosphäre.

Die abgeleiteten Ozondaten zeigen Mischungsverhältnisse von 1–2 ppmv an der Stratosopause, weniger als 0,5 ppmv bei 80 km und etwa 1 ppmv bei Tag bzw. 10 ppmv bei Nacht in der Umgebung des zweiten Ozonmaximums. Sie stimmen sehr gut mit den Tag-Messungen von HRDI und MLS und den Nacht-Messungen von CIRRI-1A und MAS überein.

Die globale Verteilung der Nachtdaten zeigt einige interessante Strukturen, die mit dem 3-dimensionalen ROSE-2 Modell nachgestellt und erklärt werden konnten:

Am Rand der Polarnacht bei hohen südlichen Breiten tritt ein drittes Ozonmaximum auf, dessen Existenz auf die Verschiebung des Gleichgewichts zwischen Ozonbildenden und zerstörenden Prozessen in Folge des tiefen Sonnenstandes bei diesen Breiten zurückzuführen ist.

Ein anderes Phänomen ist das Ansteigen der Ozondaten zu hohen südlichen Breiten. Dieser Anstieg ist auf den simultanen Abfall des Wasserdampfes bei diesen Breiten zurückzuführen, der die Quelle der ozonzerstörenden HO_x -Radikale ist und dessen Verteilung wiederum eine Folge der großräumigen Zirkulation in der Mesosphäre ist. Erhöhte Ozonwerte in der äquatorialen oberen Mesosphäre sind auf den Abwärts-transport von $O(^3P)$ -reicher Luft durch Gezeiten zurückzuführen.

4 Atomarer Sauerstoff

4.1 Bedeutung von atomarem Sauerstoff in der oberen Atmosphäre

Atomarer Sauerstoff ist von großer Bedeutung für die Energiebilanz und die Chemie der oberen Atmosphäre und ein ausgezeichneter Tracer für groß- und kleinskalige Transportvorgänge. Daher ist die genaue Kenntnis der Absolutdichte, der Verteilung und der Variabilität dieses Gases von großem Nutzen für das Verständnis der oberen Erdatmosphäre.

Die Quelle von atomarem Sauerstoff ist die O₂-Photolyse bei Wellenlängen kleiner 240 nm. Die bei der Photolyse absorbierte Sonnenenergie wird primär im chemischen Potential von atomarem Sauerstoff gespeichert und nur ein geringer Teil geht in die Anregung der Reaktionsprodukte O(¹D) und O(¹S) oder die lokale Erwärmung der Atmosphäre. Da die Lebensdauer der Sauerstoffatome in der Thermosphäre viele Jahre ist, können durch atomaren Sauerstoff große Energiemengen über planetare Distanzen transportiert werden. Eine wichtige Senke ist der Abwärtstransport in die Mesosphäre, wo der atomare Sauerstoff zu Ozon bzw. molekularem Sauerstoff rekombiniert. Diese Reaktionen bilden die wichtigste Energiequelle in der oberen Mesosphäre.

Atomarer Sauerstoff ist aber nicht nur an nahezu allen wichtigen Heizungsmechanismen der oberen Atmosphäre beteiligt, sondern nimmt auch eine Schlüsselrolle bei der Kühlung der Atmosphäre ein. Er überträgt durch Stoßwechselwirkung kinetische Energie an CO₂ und NO und regt diese Moleküle zu Schwingungen an. Diese emittieren dann einen Teil der aufgenommenen Energie als Infrarotstrahlung in den Weltraum und kühlen so die Atmosphäre. Außerdem können thermisch angeregte Sauerstoffatome Infrarotstrahlung bei 63 μm emittieren und tragen damit zu einer weiteren Kühlung der Atmosphäre bei [*Bates, 1951; Craig und Gille, 1969; Kockarts und Peetermans, 1970*].

Das Mischungsverhältnis von atomarem Sauerstoff steigt mit der Höhe kontinuierlich an: von einigen ppm in der Mesosphäre auf einige Prozent an der Mesopause. Oberhalb von 170 km ist atomarer Sauerstoff der Hauptbestandteil der Atmosphäre.

4.2 Messungen von atomarem Sauerstoff in der Thermosphäre

Ein Überblick über die verschiedenen in-situ Messungen von atomarem Sauerstoff und ihre Fehlerquellen wird von *Offermann et al.* [1981], *Llewellyn und McDade* [1996] und *Gumbel* [1997] gegeben und wird daher hier nur kurz skizziert.

Die gebräuchlichste Messmethode in den 60er und frühen 70er Jahren ist die Verwendung von Massenspektrometern. Neben deren Einsatz auf Forschungsraketen [z.B. *Offermann et al.*, 1981] wurden Massenspektrometer auch auf verschiedenen Satelliten (z.B. OGO, San Marcos-3, Aeros-A, AE-C, AE-D, AE-E, ESRO-4, DE-B, vgl. *Hedin*, 1974) verwendet. Die Wechselwirkung der Sauerstoffatome mit den Wänden der Instrumente kann diese Messungen stark beeinträchtigen. Erst mit dem Bau von kryogenen Systemen [*Offermann und Trinks*, 1971] konnte dieses Problem vermieden werden. Diese Massenspektrometer konnten sich wegen ihres hohen experimentellen Aufwands jedoch nicht durchsetzen.

Eine andere in-situ Methode zur Ableitung von atomarem Sauerstoff ist die Messung der Resonanz-Fluoreszenz oder -Absorption des Übergangs $O(^3S) \rightarrow O(^3P)$ bei 130 nm [*Dickinson et al.*, 1974; *Thomas et al.*, 1979; *Thomas und Young*, 1981; *Howlett et al.*, 1980; *Sharp*, 1980]. Eine besondere Schwierigkeit bei dieser Messmethode stellt die Eichung der Geräte und das Messen an der Schockfront der Rakete dar [*Bird*, 1988].

Eine häufig verwendete Methode in der Fernerkundung von atomarem Sauerstoff ist die Messung des Tag- oder Nachtleuchtens [*Wasser und Donahue*, 1979; *Thomas und Young*, 1981; *McDade et al.*, 1986; *Siskind und Sharp*, 1991; *López-González et al.*, 1992b; *Melo et al.*, 1996]. Die Ableitung von atomarem Sauerstoff aus diesen Emissionen erfordert den Einsatz eines photochemischen Modells. Die Präzision der abgeleiteten Sauerstoffprofile wird durch die beschränkte Kenntnis der verwendeten Ratenkonstanten stark limitiert.

Eine Technik zur Ableitung von atomarem Sauerstoff während einer Aurora ist die Messung der Verdán-Kaplan-Banden von Stickstoff [*Strickland et al.* 1989; *Meier et al.*, 1989; *Hecht et al.*, 1989].

Die einzige Fernerkundungsmethode, die ohne eine aufwendige Modellierung der Anregungszustände auskommt, ist die Messung des $63 \mu\text{m}$ Feinstruktur-Übergangs von

atomarem Sauerstoff. Thermosphärischer Sauerstoff wurde mit dieser Methode von einem Ballon [Lin et al., 1987] und von mehreren Forschungsraketen gemessen: mit dem Instrument von Feldman und McNutt [1969] (März 1969; 33°N, 106°W), mit der AB-3 Nutzlast [Grossmann und Offermann, 1978; Offermann und Grossmann, 1978] (März 1977; 69°N, 16°W), dem EW-11 Spektrometer [Grossmann et al., 1983] (Dezember 1981, 68°N, 21°W) und mit den SISSI-2–4 Nutzlasten [Grossmann und Vollmann, 1997] (Juli 1990, August 1990, April 1991; 68°N, 21°W). Die erste globale Messung der 63 μm -Emissionen wurde mit dem CRISTA-Experiment durchgeführt [Grossmann et al., 2000].

4.3 Modellierung des Feinstruktur-Übergangs

Neutraler atomarer Sauerstoff $\text{OI}(1s^22s^22p^4)$ kann in der Atmosphäre in den Zuständen $^1\text{S}_0$, $^1\text{D}_2$, und $^3\text{P}_{0,1,2}$ vorliegen (Abbildung 52). Die Übergänge zwischen $^1\text{S}_0$ und $^1\text{D}_2$ bei 558 nm bzw. zwischen $^1\text{D}_2$ und $^3\text{P}_{0,1,2}$ bei 630 nm stellen die stärksten Emissionen im sichtbaren Teil des Nachtleuchtens dar. Darüber hinaus strahlen auch die

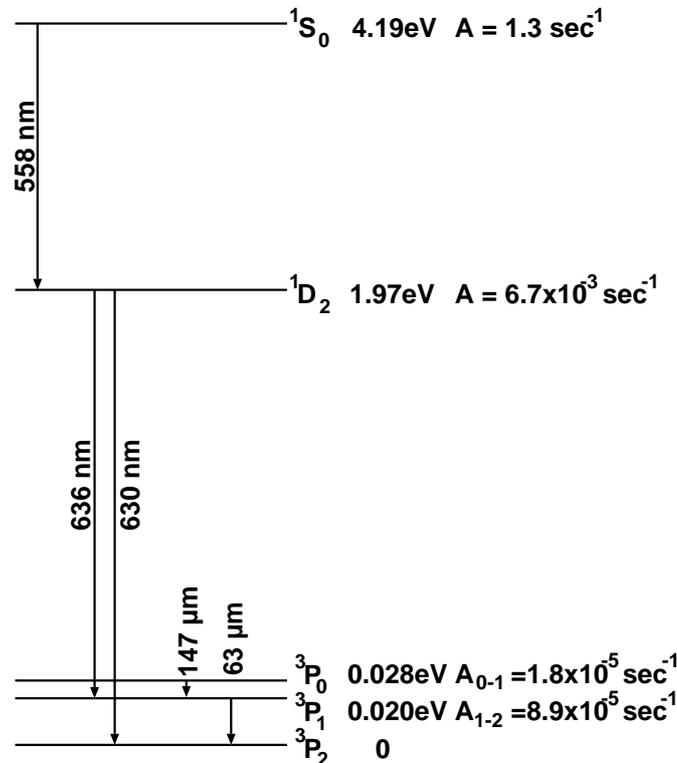


Abbildung 52: Termschema von $\text{OI}(1s^22s^22p^4)$.

Feinstruktur-Übergänge ${}^3P_0 \rightarrow {}^3P_1$ bei $147 \mu\text{m}$ bzw. ${}^3P_1 \rightarrow {}^3P_2$ bei $63 \mu\text{m}$. Die Einsteinkoeffizienten für diese Übergänge sind extrem klein und entsprechen einer Lebensdauer von etwa 16 h für 3P_0 und 3 h für 3P_1 [Fischer und Saha, 1983]. Da die Stoßfrequenz dieser Zustände bis in die mittlere Thermosphäre einige Größenordnungen über den Einsteinkoeffizienten liegt [Allison und Burke, 1969; Zygelman et al., 1994a,b], und die Anregung durch Photonen oder Photoelektronen vernachlässigt werden kann [Meier und Lee, 1982], befinden sich die Triplett-Zustände 3P_0 und 3P_1 bis über 350 km Höhe im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht [Sharma et al., 1994]. Die Anregung dieser Zustände kann somit durch die Planckfunktion unter Verwendung der lokalen kinetischen Temperatur berechnet werden.

4.4 Die CRISTA 63 μm -Kanäle

Die Kanäle SCL-3 bei CRISTA-1 sowie SCL-3 und SCL-5 bei CRISTA-2 decken den Wellenzahlbereich von $151\text{--}169 \text{ cm}^{-1}$ ab. Die spektrale Auflösung ($\lambda/\Delta\lambda$) beträgt etwa 450 und das Wellenzahl-Inkrement zwischen zwei aufeinander folgenden spektralen Stützstellen ist je nach Messmode $0,035 \text{ cm}^{-1}$ oder $0,07 \text{ cm}^{-1}$. Das typi-

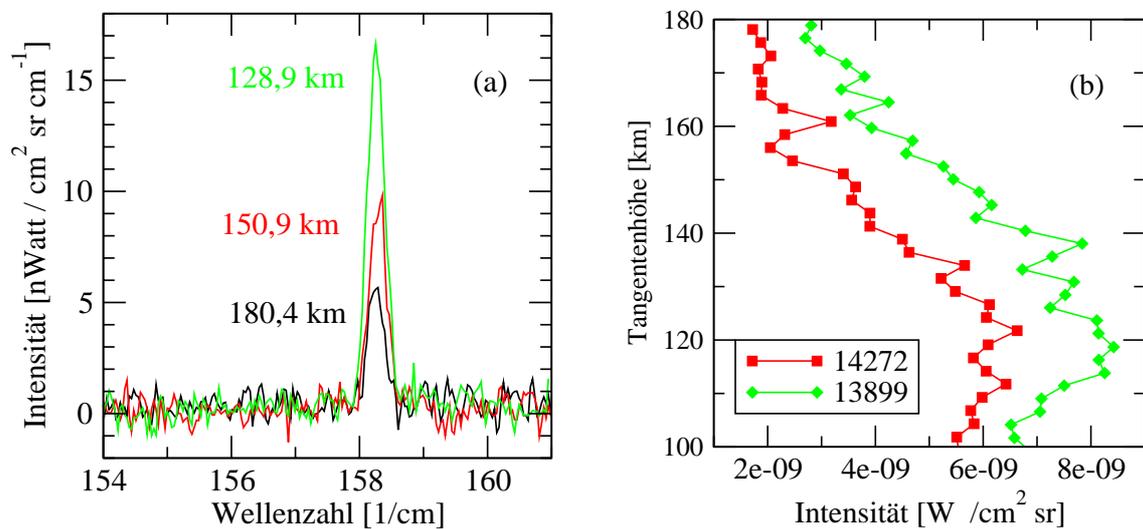


Abbildung 53: (a) CRISTA-2 SCL-5 Spektren (Profil 14272) vom 16. August 1997 bei 66°S , 171°O in 180,4 km, 150,9 km und 128,9 km Höhe. (b) Integrierte $63 \mu\text{m}$ -Strahlungsdichten (CRISTA-2, SCL-5, $157,24\text{--}159,4 \text{ cm}^{-1}$) nach Abzug des Untergrundes ($156,2\text{--}157,2 \text{ cm}^{-1}$ und $159,4\text{--}160,5 \text{ cm}^{-1}$). Profil 13899 wurde am 15. August 1997 bei 19°S , 66°O gemessen.

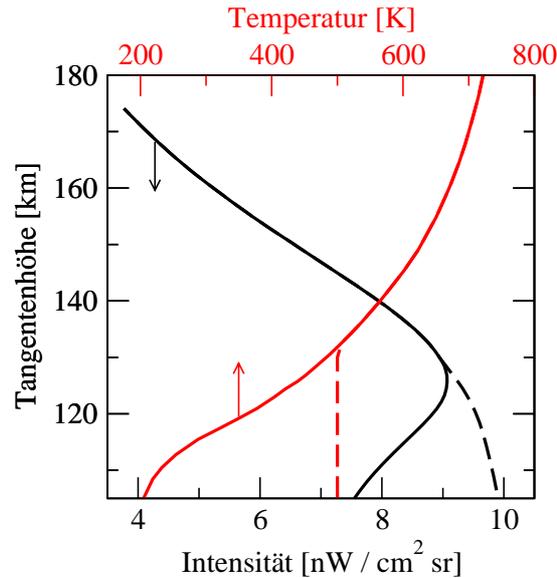


Abbildung 54: Temperaturabhängigkeit des Strahlungsdichte-Maximums bei 130 km. Das Referenz-Profil (durchgezogene schwarze Kurve) wurde mit dem dargestellten Temperaturprofil (durchgezogene rote Kurve) berechnet. Für die Vergleichsrechnung (strichlierte Kurve) wurde das Temperaturprofil unterhalb von 130 km auf konstant 500 K gesetzt.

sche Signal-zu-Rausch-Verhältnis beträgt etwa 10 in dem SCL-5 Kanal und eins bei SCL-3. Höhenprofile werden in der Thermosphäre mit einer vertikalen Schrittweite von 2,1–2,7 km und einem vertikalen Gesichtsfeld von 1,5 km aufgenommen. Der horizontale Abstand zwischen zwei aufeinander folgenden Höhenprofilen ist typischerweise 400 km. Die maximale Höhe, bis zu der 63 μm -Emissionen gemessen werden, hängt vom Messmode ab (vgl. Tabelle 1). Bei CRISTA-2 wurden etwa 1500 Profile bis zu einer Höhe von 180 km und weitere 3000 Profile bis 150 km gemessen. Wegen des besseren Signal/Rausch-Verhältnisses und der wesentlich höheren Zahl von Messungen werden zunächst nur CRISTA-2 SCL-5 Daten ausgewertet.

In der Thermosphäre ist die Sauerstofflinie bei $158,29 \text{ cm}^{-1}$ die einzige spektrale Signatur in diesem Wellenlängenbereich (Abbildung 53a). Form und Breite der Linie sind durch die Spektrometerfunktion von CRISTA vorgegeben. Das Integral über die Linie ($157,2 \text{ cm}^{-1}$ – $159,4 \text{ cm}^{-1}$) (Abbildung 53b) steigt zunächst von 2–3 $\text{nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr})$ bei 180 km auf 5–8 $\text{nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr})$ bei 140 km an, bildet bei etwa 120 km ein Maximum aus und nimmt dann wieder ab. Ursache für den Anstieg der Strahlungsdichte mit abnehmender Höhe ist das Anwachsen der atomaren Sauerstoffdichte. Dass die Strahlungsdichte bei 130 km nicht weiter zunimmt, sondern sich sogar verringert, ist

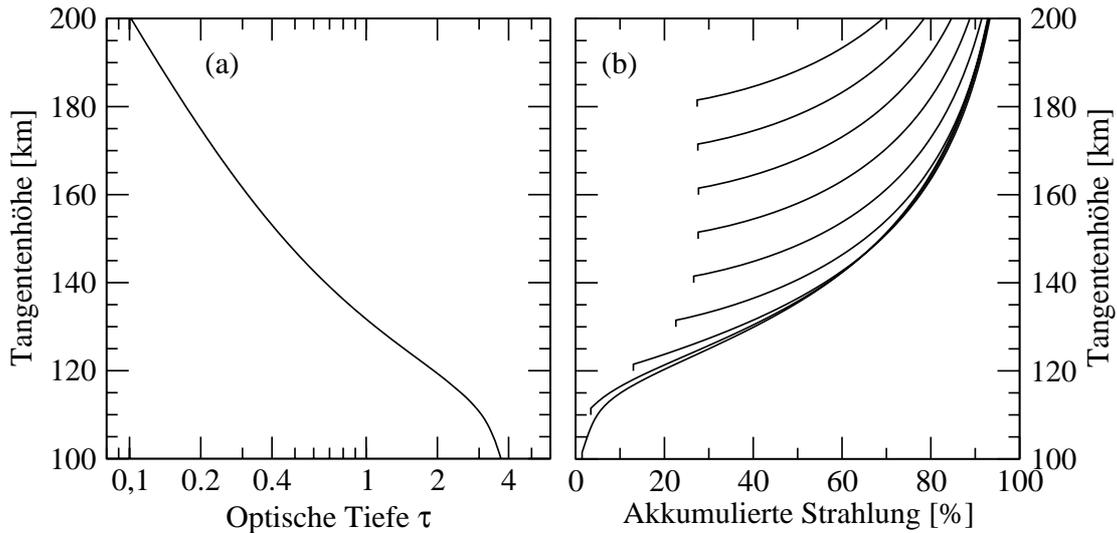


Abbildung 55: (a) Effektive optische Tiefe τ der $63\ \mu\text{m}$ -Linie von atomarem Sauerstoff. (b) Herkunft der $63\ \mu\text{m}$ -Strahlung (2,5 km Dicke, angedeutet durch die vertikalen Kurvenabschnitte).

eine Folge der starken Temperaturabnahme in Verbindung mit der großen optischen Tiefe der Sauerstofflinie in diesen Höhen. Modellrechnungen zeigen (Abbildung 54), dass die Strahlungsdichte kein Maximum ausbildet, wenn die Anregung der Sauerstoffatome durch Konstanthalten der Temperatur eingefroren wird.

Die optische Tiefe der Atmosphäre ist in den großen Höhen für $63\ \mu\text{m}$ -Limb-Strahlung gering (Abbildung 55a). Etwa 33% der Strahlung stammen hier direkt aus der 2,5 km-dicken Tangentenschicht (Abbildung 55b). Die optische Tiefe steigt mit fallender Höhe jedoch stark an und erreicht schon bei 130 km Werte von eins. Da gleichzeitig die Skalenhöhe von atomarem Sauerstoff abnimmt, bleibt der Strahlungsbeitrag der Tangentenschicht bis zu dieser Höhe etwa konstant. Erst bei 120 km sinkt er deutlich unter 20%, bei 100 km stammen schließlich weniger als 2% der Strahlung aus der Tangentenschicht.

4.5 Ableitung der Sauerstoffdichten

Bei Horizontsondierung erfordert die Ableitung von atomarem Sauerstoff aus $63\ \mu\text{m}$ -Strahlung ein extrem gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis [Zachor und Sharma, 1989]. Selbst gering verrauschte Strahlungsdichten können aufgrund der hohen optischen Tiefe in den niedrigen Höhen häufig nicht mehr invertiert werden. Besonders pro-

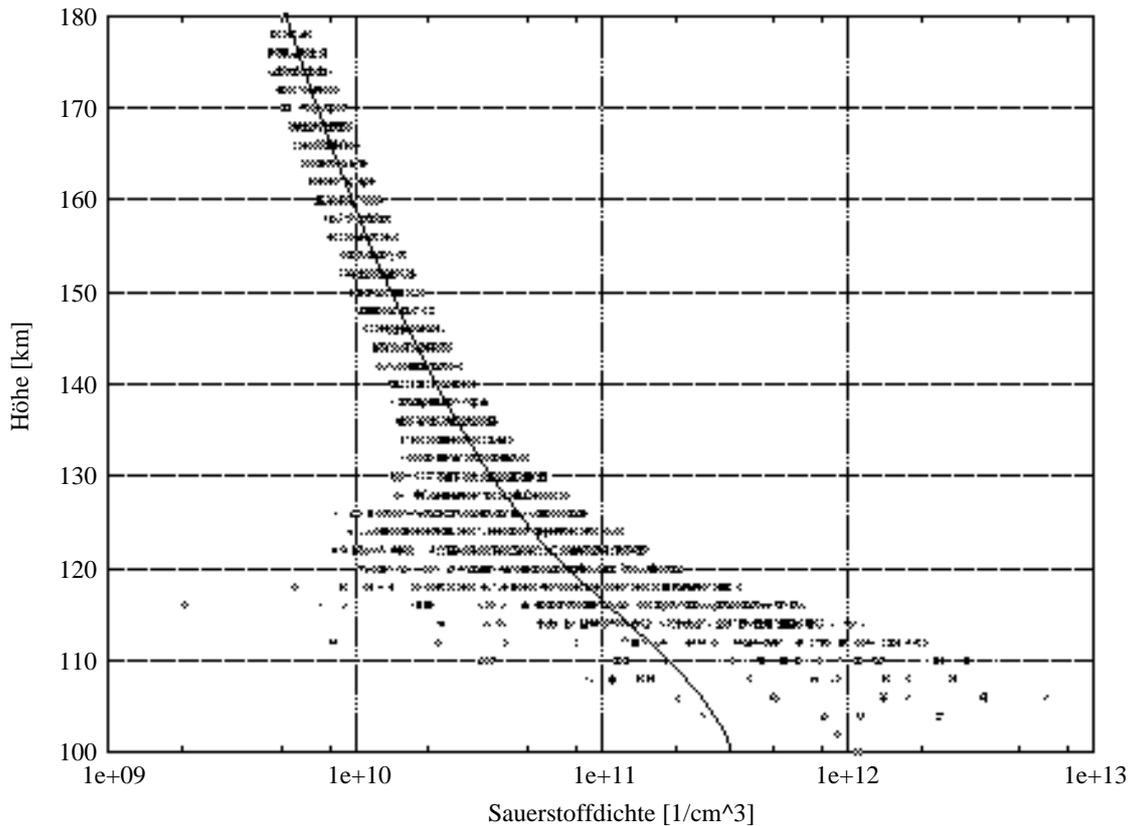


Abbildung 56: Sauerstoffdichten abgeleitet aus 400 simulierten Strahlungsdichte-Profilen, denen ein Rauschen von 2,5% überlagert wurde.

blematisch sind solche Profile, die einen besonders starken Abfall der Intensität zwischen zwei aufeinanderfolgenden Tangentenhöhen aufweisen. Bei einem Signal/Rausch-Verhältnis von 40 (Abbildung 56) bricht das Retrieval in etwa 25% der Fälle zwischen 120 km und 125 km und in 50% der Fälle zwischen 115 km und 120 km ab. Daher beobachtet man bei den verbliebenen Sauerstoffdichten bei niedrigen Tangentenhöhen einen positiven Bias. Bei einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von etwa 10, wie es die CRISTA-Strahlungsdichten aufweisen, kommt es schon in größeren Höhen zu einem Abbruch des Retrievals, so dass eine Glättung der Profile unumgänglich ist.

Da der Vertrauensbereich der SCL-5 Intensitäten kaum um mehr als einen Faktor 5 reduziert werden kann, stellt der Höhenbereich um 125 km somit eine untere Grenze für das Sauerstoffretrieval dar. Es genügt daher, sich bei der Suche nach einer geeigneten Glättungsmethode auf Höhen oberhalb des Strahlungsdichte-Maximums zu beschränken.

4.5.1 Glättung der Strahlungsdichten

Eine Methode zur Glättung der Strahlungsdichten ist die Verwendung von laufenden Mitteln. Eine Reduktion des Rauschens um einen Faktor 3 würde aber zu dem Verlust der großen Höhen zwischen 160 km und 180 km führen und ein Retrieval in den Mesosphärenmoden (max. Höhe 150 km) unmöglich machen. Daher scheidet diese Methode zur Glättung einzelner Höhenprofile aus.

Laufende Mittel können auch entlang des Orbits angewandt werden. Die Verwendung von 10 Messungen entspricht einer räumlichen Mittelung von etwa 4.000 km Länge. Da gleichgewichtete Mittel bei diesen Distanzen zu einer unakzeptablen Verschmierung der Strukturen entlang des Orbits führen, wurde als alternatives Verfahren die Mittelwertbildung nach *Savitzky und Golay* [1964] vorgenommen. Obwohl die horizontalen Strukturen bei Gebrauch des Savitzky-Golay-Filters verhältnismäßig gut erhalten werden, bleiben die Fluktuation der Einzelprofile deutlich über den geforderten 2,5% [*Gerstner und Kaufmann, 1999*]. Da eine weitere Vergrößerung des Mittelungs-Fensters wegen des Verwischens von horizontalen Strukturen wenig sinnvoll ist, wird die Anwendung von laufenden Mitteln entlang des CRISTA-Orbits ebenfalls verworfen.

Eine andere Möglichkeit zur Glättung der Höhenprofile ist deren Beschreibung durch analytische Funktionensysteme. Die Beschreibung der Daten durch Polynome ist methodisch einfach, schnell und sehr robust. An jedes gemessene Höhenprofil werden rationale Polynome vom Grad 3–8 gefittet. Aus diesem Satz wird dann das Polynom ausgewählt, dessen mittlere quadratische Abweichung zur Messung minimal ist. In 50% der Fälle ist dies ein Polynom 8. Grades, in 25% der Fälle ein Polynom 7. Grades und in je 6% der Fälle ein Polynom des Grades 3–6. Abbildung 57 zeigt, dass der individuelle Höhenverlauf der gemessenen Strahlungsdichten sehr gut durch diese Polynomfits wiedergegeben wird. Betrachtet man die Abweichung zwischen der Messung und den Polynomfits im Mittel über mehrere Orbits (Abbildung 58), so erkennt man, dass Polynomfit und Messung oberhalb von 130 km besser als 1,5% übereinstimmen, darunter besser als 3%.

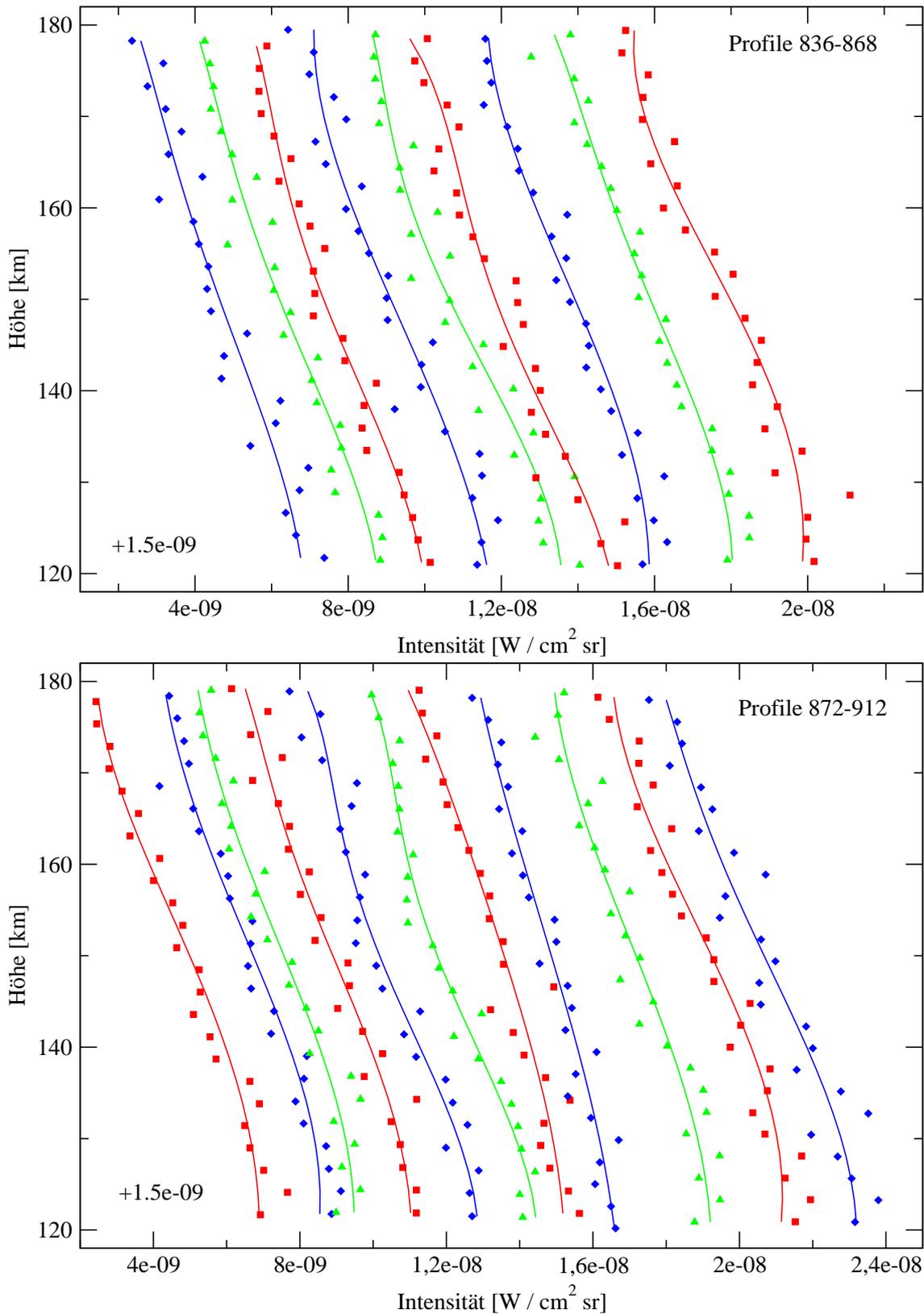


Abbildung 57: CRISTA-2 SCL-5 Strahlungsdichteprofile (Profile 836–912) mit ihren Polynomfits. Jedes 4. Profil ist dargestellt und um $1,5 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr})$ gegenüber dem Vorprofil verschoben.

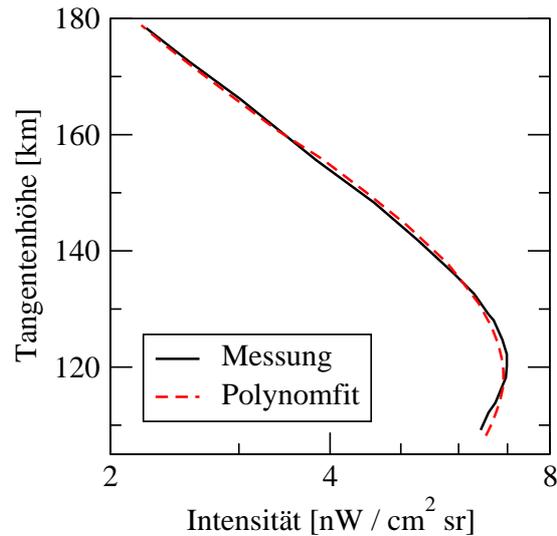


Abbildung 58: Vergleich eines mittleren CRISTA-2 SCL-5 Strahlungsdichteprofiles (4 Orbits, d.h. etwa 360 Einzelprofile, 'Messung') mit dem Mittelwert der einzelnen Polynomfits

4.5.2 Effizienz und Fehler der Glättung

Zur Abschätzung der Rauschunterdrückung und des systematischen Fehlers der Polynomfits werden 10 global verteilte Temperatur- und Sauerstoffprofile aus dem MSIS-Modell für August 1997 ausgewählt und unter Berücksichtigung der CRISTA-Ergebnisse (vgl. Kapitel 4.6) mit einem Faktor 0,6 multipliziert. Mit diesen Sauerstoffdichten werden $63\ \mu\text{m}$ -Intensitäten berechnet und mit 10% Rauschen überlagert. Die so gewonnenen Strahlungsdichten (1000 Stück pro Modellprofil) werden dann durch Polynome geglättet und aus diesen atomarer Sauerstoff abgeleitet.

Die Abweichung der Polynomfits von den unverrauschten Strahlungsdichten ist gaussverteilt, ebenso die Abweichung zwischen den mit diesen Polynomfits abgeleiteten Sauerstoffdichten und den ursprünglichen MSIS-Daten. Unterhalb von 130 km wird die Verteilung positiv schief. Der Mittelwert der Verteilungen (Abbildung 59a) kann bei den Strahlungsdichten 2–3% und bei den abgeleiteten Sauerstoffdichten bis zu 10% verschoben sein.

Die Standardabweichung der Polynome (Abbildung 59b) beträgt typischerweise 3%, d.h. der statistische Fehler der Strahlungsdichten konnte durch Verwendung der Polynomfits um einen Faktor drei reduziert werden. Die abgeleiteten Sauerstoffdichten streuen typischerweise 5–10%, am oberen Rand des Retrievals bis zu 15%.

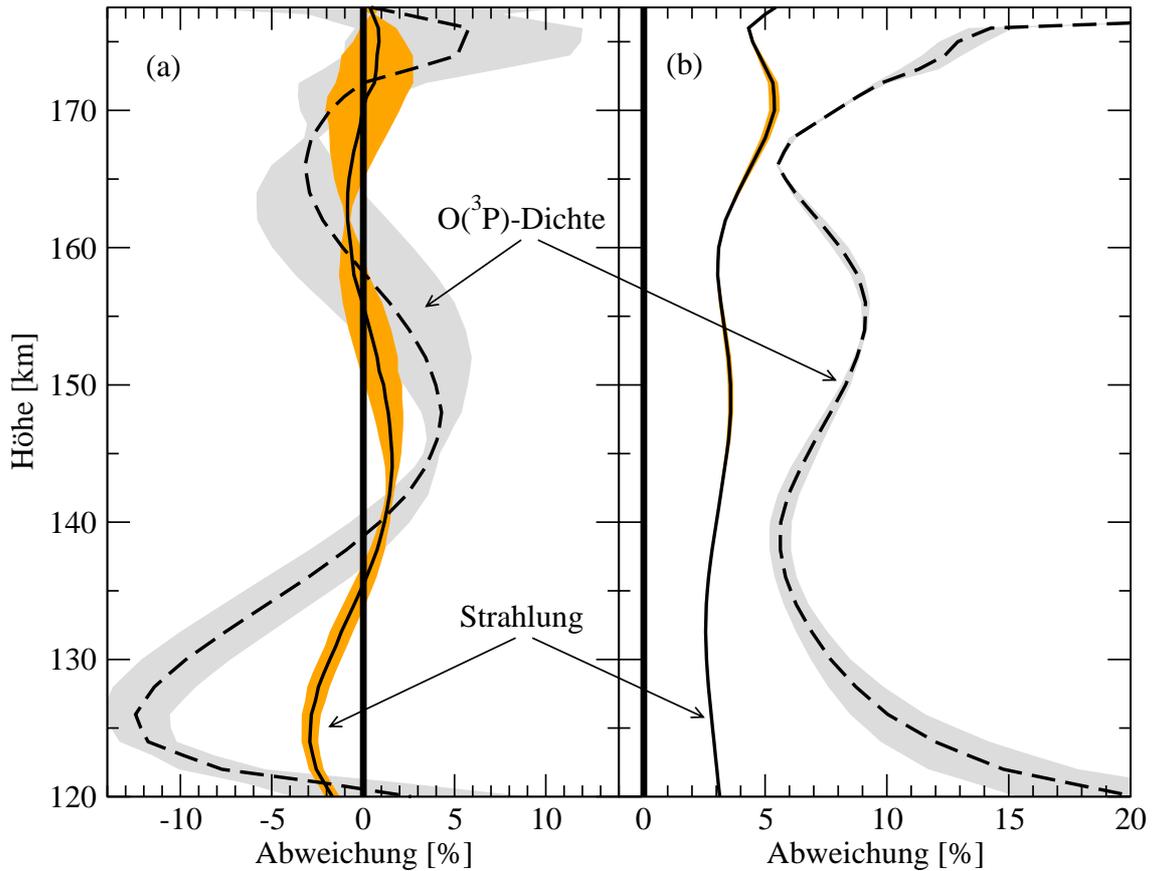


Abbildung 59: (a) Mittlere Abweichung zwischen den Polynomfits und den unverrauschten Strahlungsdichten (durchgezogene Kurven) und zwischen den mit den Polynomfits abgeleiteten Sauerstoffdichten und den ursprünglichen MSIS-Daten (strichlierte Kurven). (b) Standardabweichung der entsprechenden Größen. Die farbigen Flächen geben die Schwankungsbreite der Kurven für die 10 Testfälle an.

4.5.3 Weitere systematische Fehler

Der systematische Fehler der atomaren Sauerstoffdichten setzt sich im Wesentlichen aus drei Komponenten zusammen: (1) dem Verfahrensfehler, vor allem durch die Glättung der Strahlungsdichten, (2) dem Fehler durch Verwendung eines klimatologischen Temperaturprofils in dem Retrieval und (3) Unsicherheiten bei der Eichung des $63\ \mu\text{m}$ -Kanals und andere Instrumenteneffekte. Eine Zusammenfassung dieser und aller übrigen Fehler zeigt Tabelle 5.

Der Retrieval-Verfahrensfehler wurde in Kapitel 4.5.2 untersucht und beträgt im Mittel 10%. Für das Retrieval von atomarem Sauerstoff wird auf Temperaturdaten aus dem MSIS-Modell zurückgegriffen. Zur Abschätzung des systematischen Feh-

Tabelle 5: Systematische Fehler der Sauerstoffdichten in Prozent.

z [km]	Glättung	Temperatur	Eichung
170	-10/+6	-4/+9	-25/+20
160	-10/+8	-5/+10	-27/+20
150	-5/+13	-7/+11	-33/+20
140	-5/+7	-9/+15	-40/+28
130	-23/+3	-13/+25	-53/+50

lers dieser Temperaturen wird die Schwankung der MSIS-Temperaturen entlang des CRISTA-Orbits über einen Zeitraum von 6 Stunden herangezogen. Dies führt zu einem Temperaturfehler von etwa 80 K bei 180 km, 50 K bei 150 km und 25 K bei 130 km. Der atomare Sauerstoff reagiert darauf verhältnismäßig gering: etwa 6% bei 180 km, 9% bei 150 km und 20% bei 130 km.

Der instrumentelle Fehler der 63 μm -Strahlungsdichten unter Berücksichtigung von Eichfehlern, Relaxationen und Streulicht wurde von *Grossmann* [persönliche Mitteilung, 1999] auf -24%/+10% abgeschätzt. Dieser Fehler pflanzt sich in die abgeleiteten Sauerstoffdichten zu -25%/+20% bei 170 km, -33%/+20% bei 150 km und etwa $\pm 50\%$ bei 130 km fort.

Somit wird der Fehler der abgeleiteten Sauerstoffdichten vor allem durch das Instrument bestimmt und beträgt insgesamt etwa 25% in den großen und 50–60% in den niedrigen Höhen.

4.6 Ergebnisse des Retrievals

In Abbildung 60 sind $63\ \mu\text{m}$ -Strahlungsdichten mit ihren Glättungsfunktionen und den hieraus abgeleiteten Sauerstoffdichten dargestellt. Die Messdaten stammen aus zwei Gebieten, in denen sich die Strahlungsdichten besonders stark unterscheiden. Die Intensitäten differieren je nach Höhe um 20–50%, die abgeleiteten Sauerstoffdichten um 35–50%.

4.6.1 Vergleich mit dem MSIS-Modell

Auffällig ist, dass die Messdaten zwischen 20% und 50% unter den Sauerstoffdichten aus dem MSIS-Modell liegen. Im globalen Mittel beträgt die Differenz etwa 35%. Je nach Höhe und geographischer Breite kann dieser Wert um 10% variieren (Abbil-

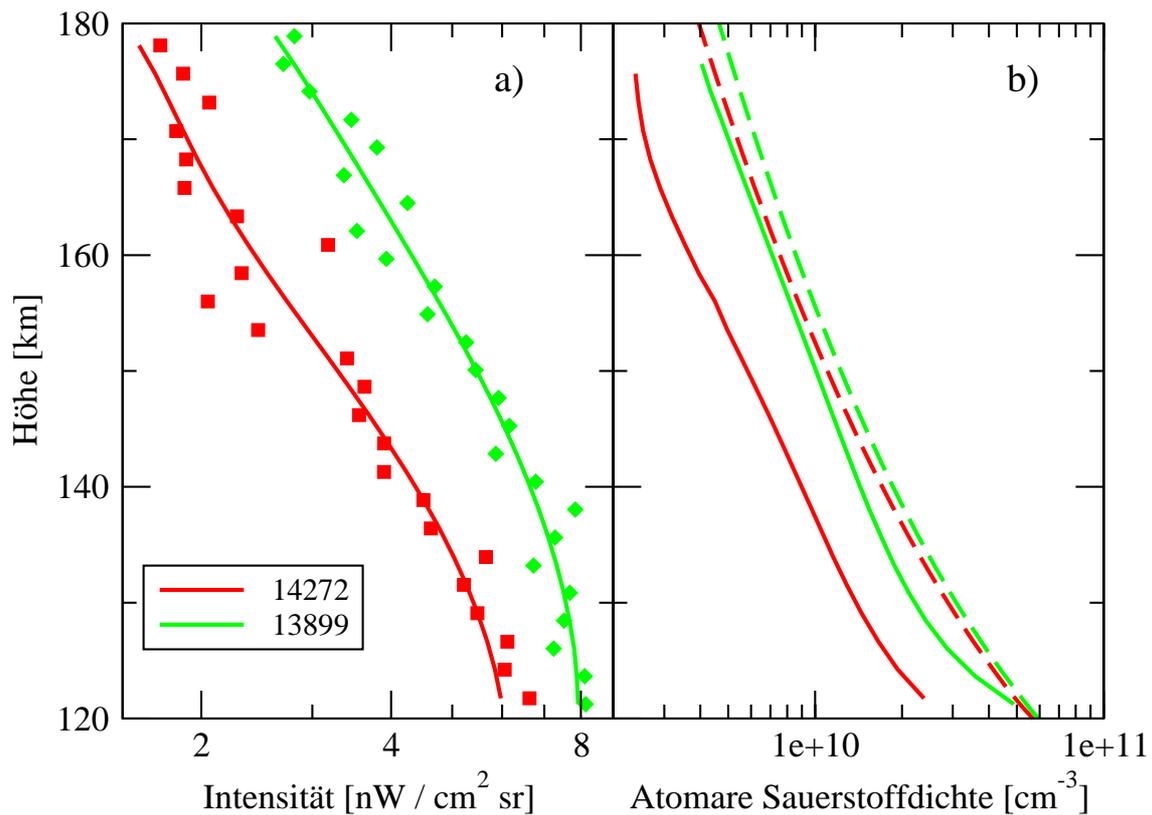


Abbildung 60: a) Integrierte $63\ \mu\text{m}$ -Strahlungsdichten (vgl. Abbildung 53b) mit den entsprechenden Polynomfits. b) Hieraus abgeleitete Sauerstoffdichten (durchgezogene Linien) und die entsprechenden Profile aus dem MSIS-Modell (strichliert). Messorte/Zeiten: Profil 14272: 66°S , 171°O , 16. August 1997; Profil 13899: 19°S , 66°O , 15. August 1997.

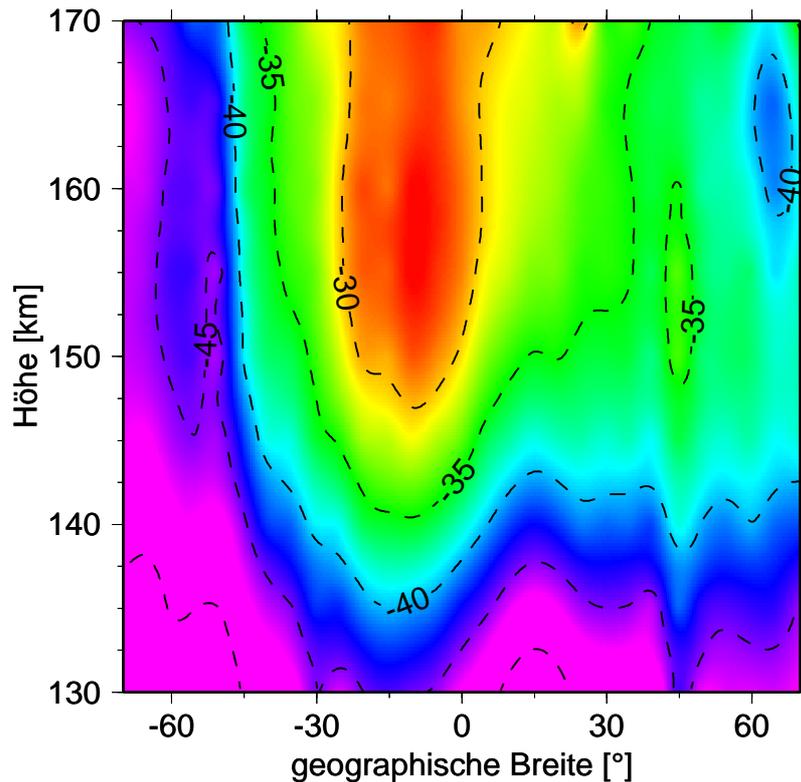


Abbildung 61: Prozentuale Abweichung der CRISTA-2 O(³P)-Dichten von den MSIS O(³P)-Dichten an den jeweils gleichen Orten und Zeiten.

dung 61). Bei 30°S ist die Differenz mit 30% am geringsten und bei hohen südlichen Breiten mit über 45% am größten. Die Ursache für diese Breitenabhängigkeit ist ein Unterschied in der globalen Verteilung von atomarem Sauerstoff, der in Kapitel 4.6.2 näher diskutiert wird.

Die Messung solch niedriger Sauerstoffdichten stellte zunächst ein sehr unerwartetes Resultat dar. Es gibt jedoch einige Hinweise, die dieses Ergebnis stützen:

(1) Die Höhe des 63 μm -Strahlungsdichtemaximums

Die Höhe dieses Maximums ist ein Indikator für die Absolutdichte von atomarem Sauerstoff. Abbildung 62 zeigt eine Reihe von Strahlungsdichte-Profilen, die unter Annahme verschiedener Sauerstoffdichten und Temperaturen modelliert wurden. Als Referenz dienten 378 Sauerstoff- und Temperaturprofile aus dem MSIS-Modell entlang des CRISTA-2 Orbits, die unabhängig von der Höhe um einen konstanten Faktor umskaliert bzw. verschoben wurden. Die Simulationen zeigen, dass die Lage des Strahlungsdichte-Maximums von der absoluten Sauerstoffdichte und etwas schwächer auch von der absoluten Temperatur abhängt. Eine Halbierung bzw. Ver-

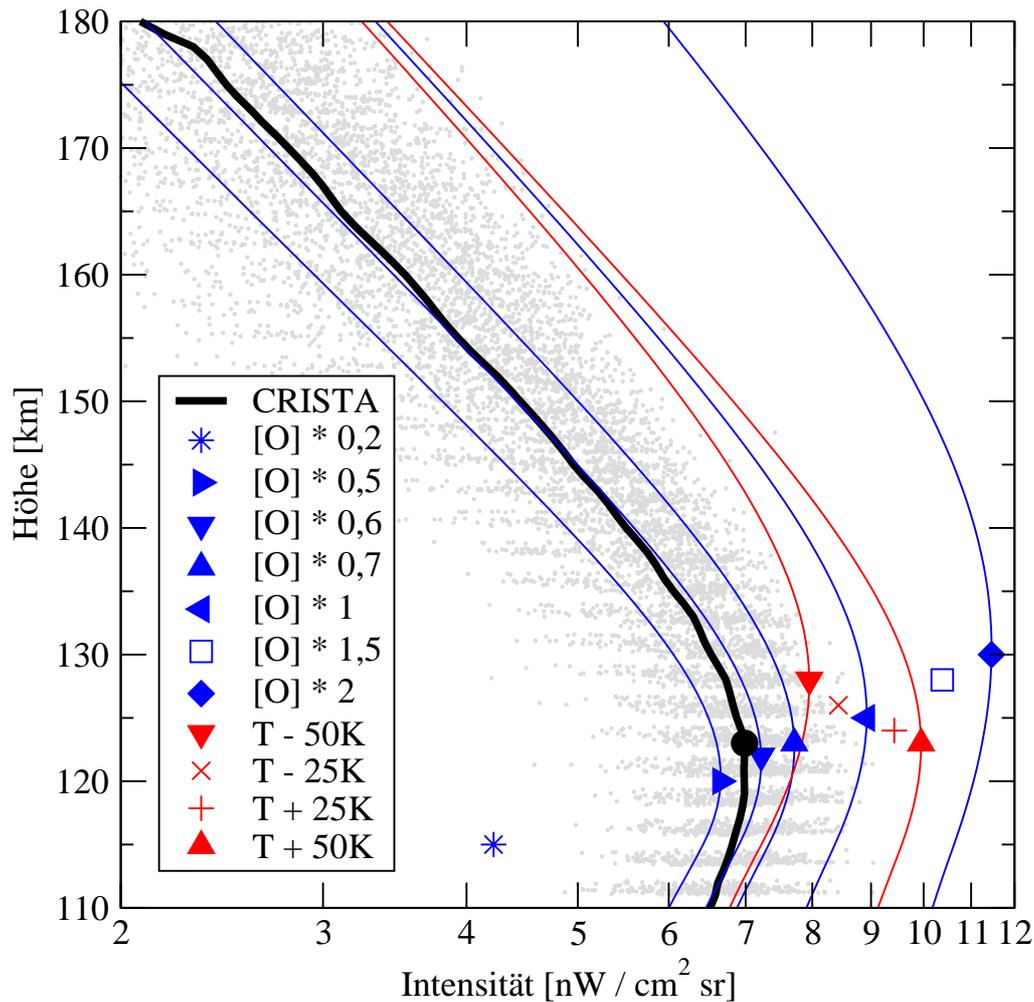


Abbildung 62: Höhe des $63\ \mu\text{m}$ -Strahlungsdichte-Maximums in Abhängigkeit von der $\text{O}(^3\text{P})$ -Dichte $[\text{O}]$ und dem Temperaturprofil. Als Referenz dienen 378 Sauerstoff- und Temperaturprofile aus dem MSIS-Modell entlang des CRISTA-2 Orbits. Die Sauerstoffdichten bzw. Temperaturen wurden um die in der Legende angegebenen Faktoren geändert. Die Symbole zeigen die mittlere Lage der Maxima. Für ausgewählte Fälle ist das gesamte Höhenprofil aufgetragen.

dopplung der Sauerstoffdichte verschiebt das Maximum um etwa 5 km nach unten bzw. oben. Änderungen der Temperatur verschieben das Maximum hierzu vergleichsweise gering: um etwa 1 km bei einer Temperaturänderung von 25 K und um 2–3 km bei 50 K.

Die Höhe des Strahlungsdichte-Maximums in den CRISTA-Daten stimmt gut mit den Vorwärtsrechnungen unter Verwendung von 30% reduzierten MSIS-Sauerstoffdichten überein; die absoluten Werte passen zu den Rechnungen mit 40% verringertem MSIS-Sauerstoff.

(2) Mesosphärische Wasserdampfemissionen

Einen weiteren Hinweis, dass die Eichung des $63\ \mu\text{m}$ -Kanals korrekt ist, geben die mesosphärischen Wasserdampfemissionen in dem gleichen Kanal. Die unter Verwendung von H_2O -Dichten des HALOE-Experiments modellierten Wasserdampfemissionen sind etwa 15% größer als die Signale in SCL-5 [Oberheide, persönliche Mitteilung, 1999]. Dies passt gut zu den Ergebnissen, die aus der Analyse des Strahlungsdichte-Maximums in der unteren Thermosphäre gewonnen wurden.

(3) Abhängigkeit der Sauerstoffdichte vom solaren Zyklus

Über eine unabhängige Beobachtung zur Existenz von so niedrigen Sauerstoffdichten, wie sie von CRISTA gemessen wurden, berichten *Schoendorf und Oliver* [1998]. Mit dem inkohärenten Rückstreu-Radar EISCAT (European Incoherent SCATter) beobachten sie seit 1984 in Nordskandinavien in der F-Schicht (etwa 250 km Höhe) eine ausgeprägte Abhängigkeit der Sauerstoffdichte von der solaren Aktivität. Beide CRISTA-Missionen fanden im Minimum der solaren Aktivität am Ende des 22. solaren Zyklus statt. Von EISCAT liegen Messungen im solaren Minimum am Ende des 21. (1986) und 22. (1997) solaren Zyklus vor. Für das Jahr 1997, in dem der $10,7\ \text{cm}$ -Fluss mit 81 im Mittel den gleichen Wert aufweist wie während CRISTA-2, registrierte EISCAT 40% reduzierte Sauerstoffdichten.

Vermutlich ist die Diskrepanz zwischen den CRISTA- bzw. EISCAT-Daten und dem MSIS-Modell darauf zurückzuführen, dass in das MSIS-Modell nur sehr wenige Daten eingegangen sind, die bei geringer solarer Aktivität gemessen wurden.

4.6.2 Die globale Verteilung der Sauerstoffdichten

Die globale Verteilung der abgeleiteten Sauerstoffdichten zeigt ausgeprägte longitudinale und meridionale Strukturen. Bei 140 km (Abbildung 63a) findet man die niedrigsten Sauerstoffdichten bei hohen nördlichen und südlichen Breiten. Sie sind etwa 40% niedriger im Vergleich zu den höchsten Dichten am südlichen Rand der Tropen. Die höchsten Dichten findet man bei etwa 40°S , 60°O ; dieses lokale Maximum ist wegen der geringen Messdichte in dieser Region jedoch nicht signifikant. Bei hohen Breiten beobachtet man eine ausgeprägte zonale Asymmetrie mit besonders niedrigen Dichten an der Datumsgrenze. Diese Gebiete liegen bei hohen magne-

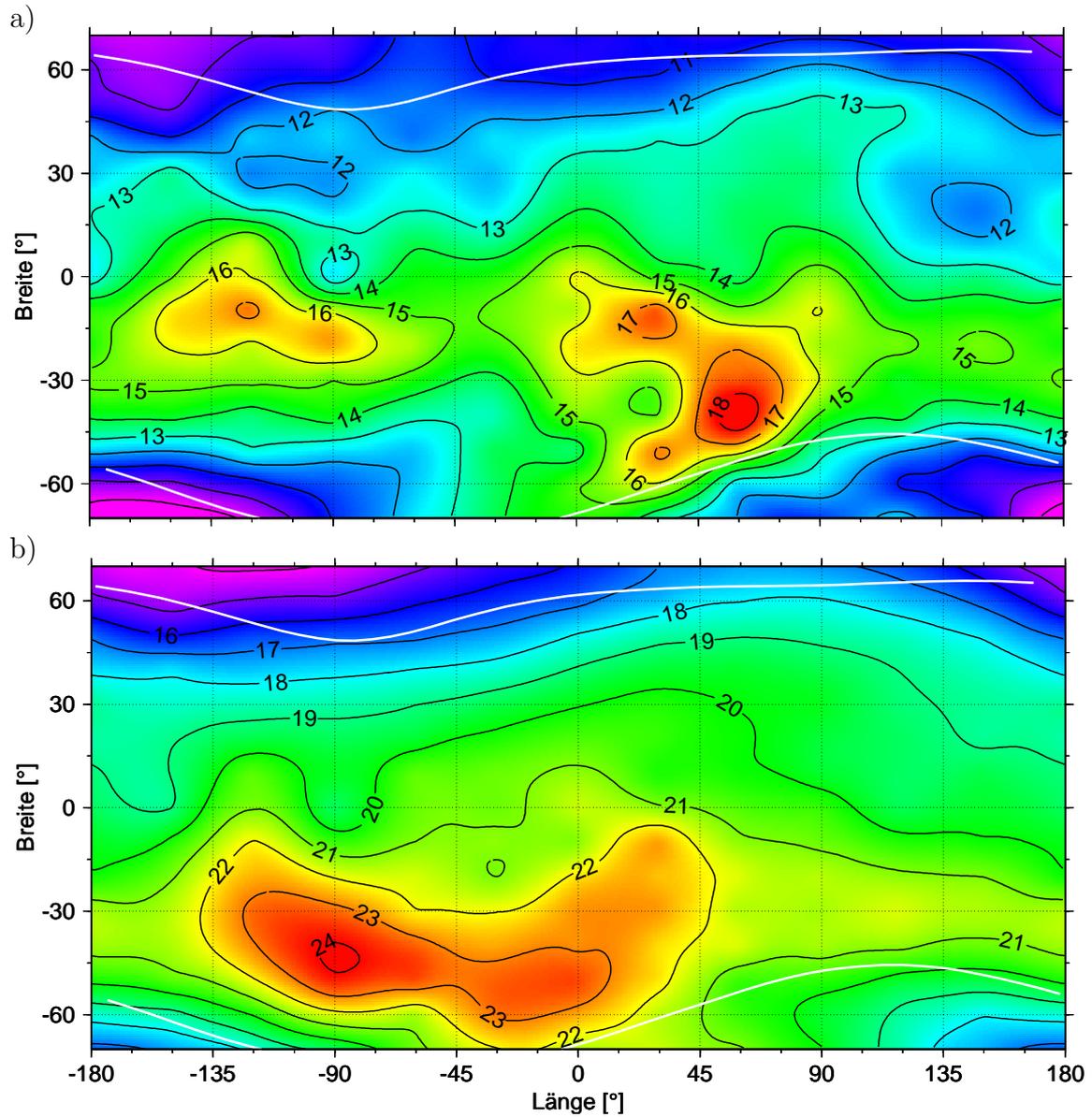


Abbildung 63: Atomare Sauerstoffdichten [$\times 10^9 \text{ cm}^{-3}$] bei 140 km abgeleitet aus CRISTA-2 63 μm -Strahlungsdichten (a) und für die gleichen Orte und Zeiten aus dem MSIS-Modell (b). Die Daten wurden mit einem Blockmittel von $30^\circ \times 10^\circ$ geglättet. Die weißen Kurven zeigen den Verlauf des 60. magnetischen Breitengrades.

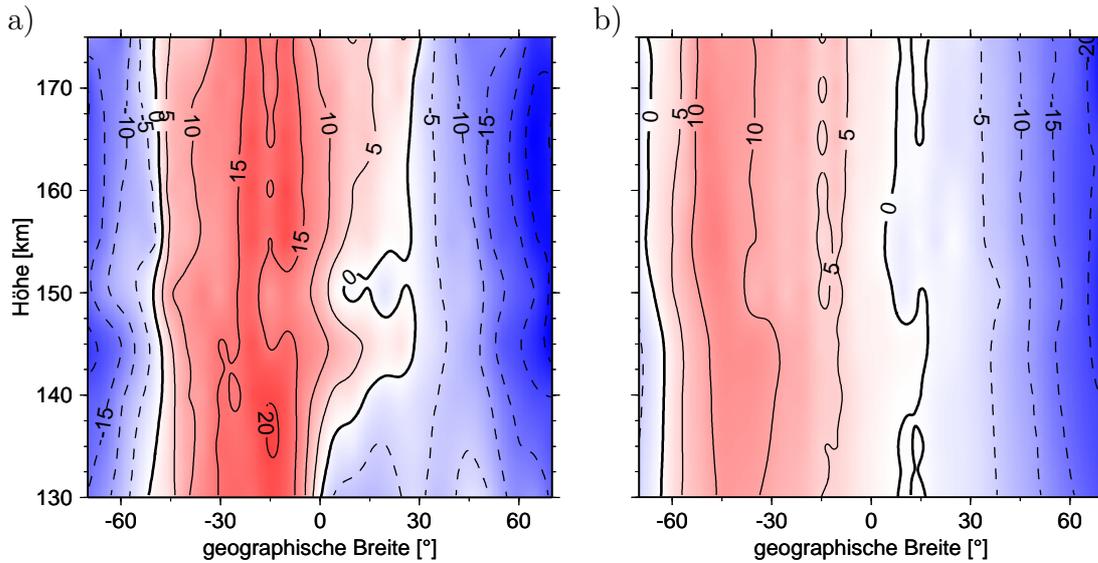


Abbildung 64: Breitenverteilung der atomaren Sauerstoffdichten. Für jede Höhe ist die prozentuale Abweichung der zonal gemittelten Sauerstoffdichte von dem globalen Mittelwert auf dieser Höhe dargestellt. **a)** CRISTA-2 O(³P)-Dichten. **b)** MSIS O(³P)-Dichten für die gleichen Orte und Zeiten. Die Daten wurden mit einem Blockmittel von 30° × 5 km geglättet.

tischen Breiten, sind jedoch im Norden etwa 60° ostwärts und im Süden etwa 75° westwärts gegenüber den magnetischen Polen¹ verschoben. Die Sauerstoffdichten aus dem MSIS-Modell für die CRISTA-2 Messorte und -Zeiten zeigen bei hohen Breiten eine sehr ähnliche Struktur (Abbildung 63b); auch hier sind die Konturlinien von atomarem Sauerstoff und die magnetischen Feldlinien phasenverschoben. Auffällig ist, dass die MSIS-Sauerstoffdichten bei hohen südlichen Breiten deutlich niedriger sind als bei hohen nördlichen Breiten. Außerdem ist das Sauerstoffmaximum um 30° Richtung Süden verschoben. Diese Verschiebung beobachtet man im gesamten Höhenbereich von 130–175 km (Abbildung 64). Bei CRISTA-2 ist der atomare Sauerstoff bei 15°S maximal und bei hohen nördlichen und südlichen Breiten sind die Dichten etwa 40% und 30% niedriger. Bei den MSIS-Daten liegt das Maximum bei 45°S. Bei hohen nördlichen Breiten sind die Sauerstoffdichten etwa 30% niedriger, bei hohen südlichen Breiten sogar nur knapp 15%.

¹Die magnetischen Pole (81,0°N, 81,5°W bzw. 74,0°S, 126°O) beziehen sich auf das Dipolfeld der Erde und sind etwa 15° gegenüber den 'Dip-Polen' (78°N, 104°W bzw. 65°S, 139°O), an denen das magnetische Feld der Erde senkrecht zur Erdoberfläche steht, verschoben.

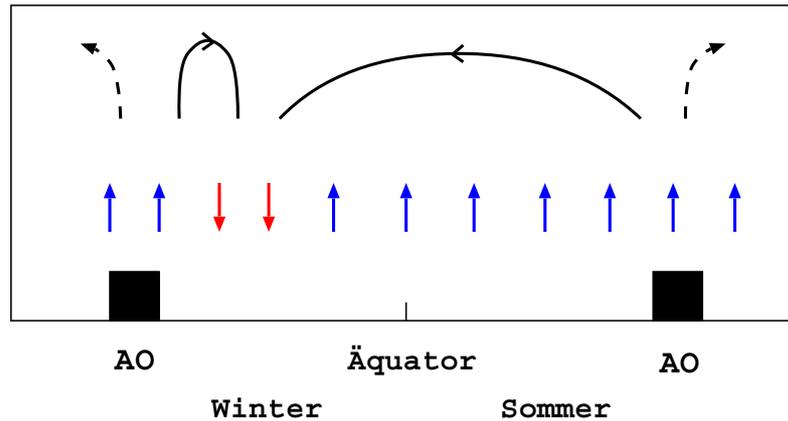


Abbildung 65: Meridionale Zirkulation in der Thermosphäre im Nordsommer. Die schwarzen Quadrate markieren die Aurora-Ovale. Die vertikalen Pfeile deuten auf- und absteigende Luftmassen an, die schwarzen Linien skizzieren die globale Zirkulation.

Dieser meridionale Gradient ist eine Folge der großräumigen Zirkulation in der Thermosphäre (Abbildung 65). Deren Hauptmerkmale sind Aufquellgebiete auf der Sommerhemisphäre, ein Fluss von der Sommer- zur Winterhemisphäre und absinkende Luftmassen bei mittleren südlichen Breiten. Angetrieben wird diese Zirkulation durch die Absorption von solarer UV-Strahlung, deren Intensität auf der Sommerhemisphäre deutlich höher ist. Zusätzlich werden bei hohen Breiten die geladenen Teilchen des Sonnenwindes absorbiert und bewirken über beiden Polen ein Aufsteigen der Luft.

Da das Mischungsverhältnis von atomarem Sauerstoff mit der Höhe zunimmt, bewirkt der Aufwärtstransport bei hohen Breiten eine Verringerung der Sauerstoffdichten. Die Strömung von der Sommer- zur Winterhemisphäre trifft bei mittleren südlichen Breiten auf eine entgegengesetzte Strömung als Folge des Aufquellens über dem südlichen Aurora-Oval. Hier kommt es zu einem Abwärtstransport und damit zu einer Erhöhung des atomaren Sauerstoffs. In den CRISTA-Daten liegt diese Region bei etwa 15°S , in den MSIS-Daten bei 45°S . Diese Diskrepanz deutet darauf hin, dass die Lokalzeitabhängigkeit oder die großräumige Zirkulation in dem MSIS-Modell nicht korrekt wiedergegeben wird.

Die, wenn auch phasenverschobene, Korrelation zwischen dem Magnetfeld der Erde und atomarem Sauerstoff induziert eine Welle-1 Struktur in der $\text{O}(^3\text{P})$ -Dichte (Abbildung 66). Die Phase dieser Welle, d.h. die Verschiebung zwischen den Isolinen von $\text{O}(^3\text{P})$ und den magnetischen Feldlinien, ändert sich mit der Höhe nicht.

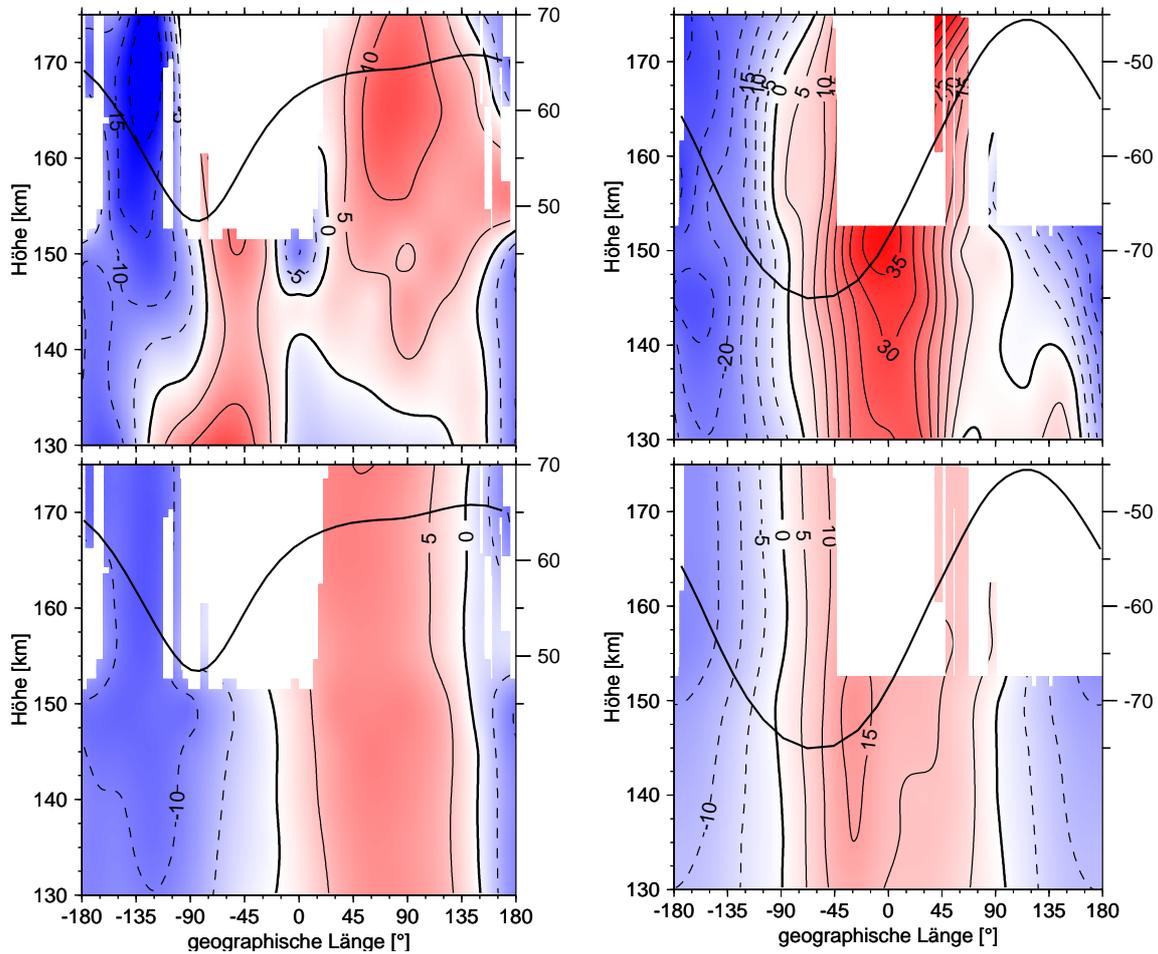


Abbildung 66: Höhen-Längenschnitte von atomaren Sauerstoffdichten. Dargestellt ist für jede Höhe die prozentuale Abweichung der zonal gemittelten Sauerstoffdichten von dem Mittelwert nördlich von 60°N (links) bzw. südlich von 60°S (rechts). Die schwarzen Kurven beziehen sich auf die rechten Skalen und zeigen den Verlauf von 60°N bzw. 60°S magnetischer Breite an. Oben: CRISTA-2 O(³P)-Dichten, unten: MSIS O(³P)-Dichten für die gleichen Orte und Zeiten. Die Daten wurden mit einem Blockmittel von 30°×5 km geglättet. Die freien Flächen markieren Datenlücken.

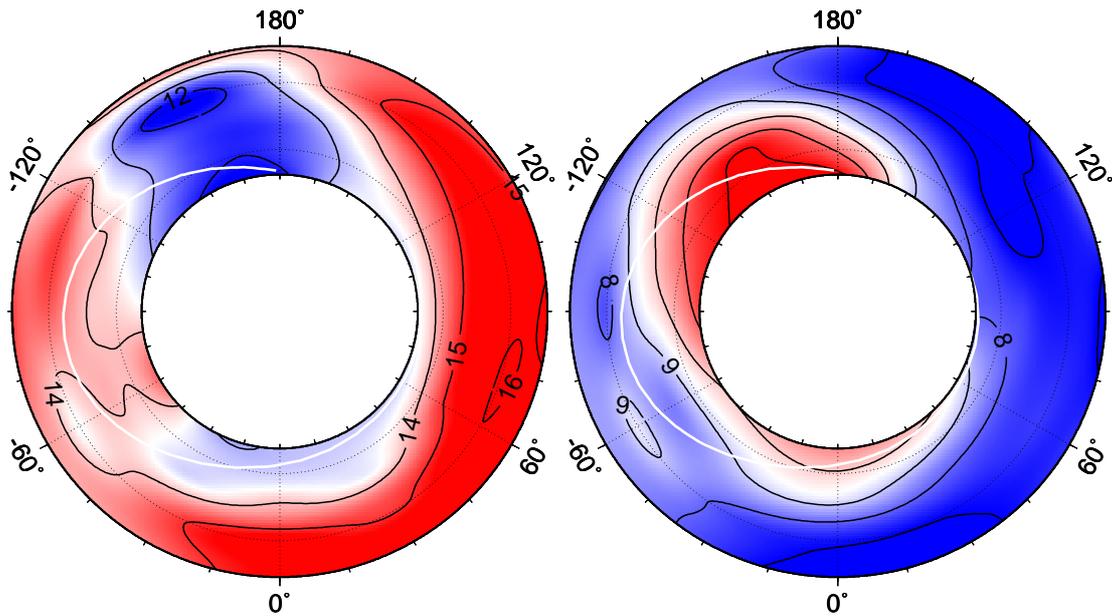


Abbildung 67: Antikorrelation von atomarer Sauerstoffdichte (135 km, 10^9 cm^{-3} , linke Abbildung) und CO_2 -Dichte (125 km, 10^6 cm^{-3} , rechte Abbildung) auf der Nordhemisphäre (35°N – 65°N). Die Daten wurden mit einem $30^\circ \times 10^\circ$ -Blockmittel geglättet und umfassen die gesamte CRISTA-2 Mission.

Bei hohen südlichen Breiten ist neben der Welle-1 keine weitere zonale Asymmetrie zu erkennen. Bei hohen nördlichen Breiten existiert in den niedrigen Höhen zusätzlich eine Welle-2 mit einem Maximum bei 60°W und einem Minimum bei etwa 30°O . Diese Welle existiert nicht in den MSIS-Daten. Interessant ist, dass die simultan abgeleiteten CO_2 -Dichten eine ganz ähnliche, antikorrelierte Struktur aufweisen. (Abbildung 67).

4.7 Zusammenfassung

Mit dem CRISTA-Experiment wurde erstmals die globale Verteilung von $63 \mu\text{m}$ -Strahlung von atomarem Sauerstoff gemessen. Die beteiligten Zustände befinden sich bis in die mittlere Thermosphäre im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht. Der Höhenbereich, in dem aus diesen Daten Sauerstoffdichten gewonnen werden können, ist durch die starke Temperaturabnahme und die extrem hohe optische Tiefe in der unteren Thermosphäre auf 130–175 km limitiert. Die Genauigkeit der abgeleiteten Sauerstoffdichten beträgt bei den großen Höhen etwa 25% und in den niedrigen Höhen 50–60%.

Die räumliche Verteilung der CRISTA-Sauerstoffdichten zeigt ausgeprägte Strukturen, die durch die globale Zirkulation hervorgerufen werden: Bei hohen nördlichen und südlichen Breiten beobachtet man durch Aufwärtstransporte niedrige Sauerstoffdichten. Bei mittleren südlichen Breiten, wo sich die beiden Zirkulationssysteme treffen und die Luft abwärts transportieren, findet man die höchsten Sauerstoffdichten. In meridionaler Richtung beobachtet man eine, allerdings phasenverschobene, Korrelation mit dem Erdmagnetfeld.

Besonders interessant ist, dass die Sauerstoffdichten, die aus den CRISTA-Messungen abgeleitet wurden, 30–40% unter den entsprechenden Daten des MSIS-Modells liegen. Mehrere Konsistenzuntersuchungen haben die Signifikanz dieses Ergebnisses bestätigt. Vermutlich korrelieren die Sauerstoffdichten deutlich stärker mit dem solaren Zyklus als dies in dem MSIS-Modell berücksichtigt ist. Die Messungen des EISCAT-Radars, das in einem anderen Höhenbereich ähnlich niedrige Sauerstoffdichten wie CRISTA gemessen hat, stützen diese Vermutung.

Resümee

Das Satellitenexperiment CRISTA hat während seiner beiden Missionen im November 1994 und August 1997 Infrarotemissionen von Spurengasen gemessen. Die erlangten Daten zeichnen sich durch eine bisher unerreicht hohe räumliche Auflösung in allen drei Dimensionen und ihre große vertikale Überdeckung (10–180 km) aus. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis der Strahlungsdichten ist durch die Helium-Kühlung der Detektoren besonders hoch, so dass die Daten auch in großen Höhen eine außerordentlich gute Qualität haben.

In der Mesosphäre und unteren Thermosphäre kann CRISTA neben einigen anderen Spurengasen auch die Emissionen von CO₂, Ozon und atomarem Sauerstoff messen. Diese drei Spurengase sind von zentraler Bedeutung für die Energiebilanz der oberen Atmosphäre.

CO₂-Dichten werden aus 4,3 μm -Strahlung abgeleitet und liegen in dem Höhenbereich von 60 km bis 130 km vor. Die emittierenden Vibrationsniveaus werden durch die Sonne stark angeregt und befinden sich daher nicht im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht ('non-LTE') mit dem Rest der Atmosphäre. Mit einem non-LTE Modell, das die Anregung der Moleküle durch Stöße, Strahlung und Photochemie im Einzelnen berücksichtigt, wird die Besetzung der Vibrationszustände berechnet. Wenn die Anregung der Moleküle bekannt ist, wird die Infrarotstrahlung für die Messgeometrie von CRISTA simuliert und unter Anpassung der CO₂-Dichten mit den gemessenen Daten in Übereinstimmung gebracht. Die Modellierung hängt neben atmosphärischen Zustandsgrößen auch von zahlreichen physikalischen Konstanten ab, die die Wechselwirkung der Moleküle in der Atmosphäre beschreiben. Diese Größen bestimmen neben den instrumentellen Effekten den Fehler der abgeleiteten CO₂-Dichten, der typischerweise 20% beträgt.

Das auffälligste Ergebnis des CO₂-Retrievals ist der Abfall der CO₂-Mischungsverhältnisse bei 70–80 km, also etwa 10 km tiefer als es aktuelle Atmosphärenmodelle simulieren. Ursache für diesen Abfall ist molekulare Diffusion, die in diesem Höhenbereich von gleicher Größenordnung wie turbulente Diffusion ist. Atmosphärenmodelle können die CRISTA-Messungen nur dann reproduzieren, wenn in den Modellen der Eddy-Diffusionskoeffizient um einen Faktor 5–10 reduziert wird.

Ein weiteres wichtiges Spurengas, das von CRISTA gemessen wurde, ist Ozon. Das Retrieval von mesosphärischem Ozon wurde auf Basis von $9,6 \mu\text{m}$ -Strahlungsdichten vorgenommen und erstreckt sich über den Höhenbereich von 50 km bis 90 km. Die emittierenden Vibrationszustände befinden sich ebenfalls im non-LTE, diesmal vor allem durch aufquellende Infrarotstrahlung aus der Stratopausenregion. Im Gegensatz zu CO_2 kann Ozon auch bei Nacht abgeleitet werden. Die Nachtdaten sind der erste globale Datensatz von Ozon in der oberen Mesosphäre. Der systematische Fehler der Ozondichten beträgt etwa 25% in der unteren und 30–40% in der oberen Mesosphäre.

Auffälligstes Merkmal der Ozondaten ist die Existenz eines dritten Ozonmaximums bei hohen südlichen Breiten. Dieses Maximum tritt am Rand der Polarnacht in etwa 72 km Höhe auf. Es konnte mit dem Atmosphärenmodell ROSE-2 nachgestellt werden und hat eine rein photochemische Ursache. Diese beruht auf einer Verschiebung des Gleichgewichts zwischen ozonbildenden und ozonzerstörenden Prozessen in Folge des tiefen Sonnenstandes bei diesen Breiten.

Der Anstieg der Ozon-Mischungsverhältnisse zu hohen südlichen Breiten bei CRISTA-2 antikorreliert mit dem ebenfalls gemessenen Wasserdampf. Wasserdampf ist in der mittleren Mesosphäre im Gegensatz zu Ozon ein langlebiges ('träges') Spurengas und nimmt bei hohen südlichen Breiten durch die Abwärtswinde der globalen Zirkulation deutlich ab. Damit stehen bei diesen Breiten auch weniger ozonzerstörende HO_x -Radikale zur Verfügung, so dass sich eine höhere Ozondichte einstellen kann.

Der Höhenbereich, in dem CRISTA Daten liefert, konnte durch die Messung von atomarem Sauerstoff bei $63 \mu\text{m}$ bis tief in die Thermosphäre (etwa 180 km) ausgedehnt werden. CRISTA ist das erste Satellitenexperiment, das diese Emissionen global gemessen hat.

Überraschenderweise zeigen die CRISTA-Daten etwa 40% niedrigere Sauerstoffdichten als das MSIS-Modell. Radarmessungen in deutlich größerer Höhe liefern ein ähnliches Ergebnis und deuten darauf hin, dass atomarer Sauerstoff wesentlich stärker vom solaren Zyklus abhängt als dies bisher berücksichtigt wurde.

Die globale Verteilung der Sauerstoffdichten stimmt prinzipiell mit den Daten des MSIS-Modells überein. Im Detail beobachtet man jedoch eine Verschiebung der meridionalen Verteilung, die darauf hindeutet, dass die globale Zirkulation in den Modelldaten nicht korrekt wiedergegeben wird.

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. K. U. Grossmann für die Betreuung dieser Arbeit sowie viele hilfreiche Anregungen und Diskussionen. Ebenso danke ich Herrn Prof. Dr. D. Offermann für die gewährte Unterstützung.

Ferner gilt mein besonderer Dank Herrn O. Gusev für die Überlassung seines non-LTE Codes, für die wertvollen Diskussionen und die unkomplizierte Zusammenarbeit. Ebenfalls bin ich Herrn M. Riese für seine hilfreichen Anregungen dankbar.

Herrn A. A. Kutepov (Univ. München) danke ich für die Überlassung des non-LTE Modells und die Diskussionen zur Modellierung von CO₂.

Die TIME-GCM Rechnungen wurden von Frau M. E. Hagan und Herrn R. G. Roble (NCAR, HAO) durchgeführt.

Das ROSE-2 Modell stammt von Frau A. K. Smith und Herrn D. R. Marsh (NCAR, ACD), die mich auch im Umgang mit dem Modell unterstützt haben.

Für seine Beiträge zur Fehlerabschätzung bei der Ozon-Modellierung danke ich Herrn F. J. Martín-Torres (NASA).

Schließlich bedanke ich mich bei allen Mitarbeitern der CRISTA-Arbeitsgruppe für ihre Unterstützung und die gute Zusammenarbeit, insbesondere bei den Herren L. Hoffmann, E. Gerstner, P. Knieling und B. Bardak.

Literaturverzeichnis

- Adler-Golden, S. M., M. W. Matthew, D. R. Smith und A. J. Ratkowski, The 9- to 12 μm atmospheric ozone emission observed in the SPIRIT 1 experiment, *J. Geophys. Res.*, *95*, 15,243–15,250, 1990.
- Adler-Golden, S. M. und D. R. Smith, Identification of 4- to 7-quantum ν_3 bands in the atmospheric recombination spectrum of ozone, *Planet. Space Sci.*, *38*, 1121–1132, 1990.
- Allen, M., J. I. Lunine und Y. L. Yung, The vertical distribution of ozone in the mesosphere and lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, *89*, 4841–4872, 1984.
- Allison, D. C. S. und P. G. Burke, Inelastic collisions of slow atoms, *J. Phys.*, *2*, 941, 1969.
- Bates, D. R., The temperature of the upper atmosphere, *Proc. Phys. Soc.*, *64*, 805, 1951.
- Bertaux, J. L., G. Megie, T. Widemann, E. Chassefiere, R. Pellinen, E. Kyrölä, S. Korpela und P. Simon, Monitoring of ozone trend by stellar occultations: The GOMOS instrument, *Adv. Space Res.*, *11*, 237–242, 1991.
- Bevilacqua, R. M., D. L. Kriebel, T. A. Pauls, C. P. Aellig, D. E. Siskind, M. Daehler, J. J. Olivero, S. E. Puliafito, G. K. Hartmann, N. Kampfer, A. Berg und C. L. Croskey, MAS measurements of the latitudinal distribution of water vapor and ozone in the mesosphere and lower thermosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 2317–2320, 1996.
- Bhavnani, K. H. und C. A. Hein, An improved algorithm for computing altitude dependent corrected geomagnetic coordinates, *Scientific Report PL-TR-94-2310*, Phillips Laboratory, 29 Randolph Road, Hanscom AFB, MA 01731-3010, USA, 1994.
- Bird, G. A., Aerodynamic effects on atmospheric composition measurements from rocket vehicles in the thermosphere, *Planet. Space Sci.*, *36*, 921, 1988.
- Bischof, W., R. Borchers, P. Fabian und B. C. Krüger, Increased concentration and vertical distribution of carbon dioxide in the stratosphere, *Nature*, *316*, 708–710, 1985.
- Brasseur, G. P. und S. Solomon, Aeronomy of the middle atmosphere: chemistry and physics in the stratosphere and mesosphere, *D. Reidel, Dordrecht, Holland*, 1986.
- Brasseur, G. P., M. H. Hitchman, S. Walters, M. Dymek, E. Falise und M. Pirre, An interactive chemical dynamical radiative two-dimensional model of the middle atmosphere, *J. Geophys. Res.*, *95*, 5639–5655, 1990.

- Brasseur, G. P., et al., Chapter 5 in *Atmospheric chemistry and global change*, G. P. Brasseur, J. J. Orlando und G. S. Tyndall, eds., Oxford University Press, New York, 1999.
- Brasseur, G. P., A. K. Smith, R. Khosravi, T. Huang, S. Walter, S. Chabrillat, and G. Kokkarts, Natural and human-induced perturbations in the middle atmosphere: A short tutorial, *Atmospheric Science Across the Stratopause*, 7, 2000.
- Brühl, C., S. R. Drayson, J. M. Russel III, P. J. Crutzen, J. M. McInerney, P. N. Purcell, H. Claude, H. Gernandt, T. J. McGee, I. S. McDermid und M. R. Gunson, Halogen occultation experiment ozone channel validation, *J. Geophys. Res.*, 101, 10,217–10,240, 1996.
- Caledonia, G. E., R. E. Murphy, R. M. Nadile und A. J. Ratkowski, Analysis of auroral infrared emissions observed during the ELIAS experiment, *Ann. Geophysicae*, 13, 247–252, 1995.
- Chabrillat, S., Modélisation du changement global dans l’atmosphère moyenne, PhD, Université Libre De Bruxelles, 2001.
- Chabrillat, S., G. Kockarts, D. Fonteyn und G. P. Brasseur, Impact of molecular diffusion on the CO₂ distribution and the temperature in the mesosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1–4, doi:10.1029/2002GL015309, 2002.
- Chapman, S., On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere, *Phil. Mag. S.*, 7, 369–383, 1930.
- Chapman, F. R. S. und T. G. Cowling, The mathematical theory of non-uniform gases, An account of the kinetic theory of viscosity, thermal conduction and diffusion in gases, University Press, Cambridge, 1970.
- Clarmann, A. Dudhia, G. Echle, J.-M. Flaud, C. Harrold, B. Kerridge, K. Koutoulaki, A. Linden, M. López-Puertas, M. Á. López-Valverde, F. J. Martín-Torres, J. Reburn, J. Remedios, C. D. Rodgers, R. Siddans, R. J. Wells und G. Zaragoza, Study on the simulation of atmospheric infrared spectra, *ESA Final Report, ESA CR 12054/96/NL/CN*, 1998.
- Connor, B. J., D. E. Siskind, J. J. Tsou, A. Parrish und E. E. Remsberg, Ground-based microwave observations of ozone in the upper stratosphere and mesosphere, *J. Geophys. Res.*, 99, 16,757–16,770, 1994.

- Craig, R. A. und J. C. Cille, Cooling of the thermosphere by atomic oxygen, *J. Atmos. Sci.*, *26*, 205–209, 1969.
- Crutzen, P. J., The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* *96*, 320–325, 1970.
- Crutzen, R., Mesospheric mysteries, *Science*, *5334*, 1951–1952, 1997.
- Dickinson, P. H. G., R. C. Bolden und R. A. Young, Measurement of atomic oxygen in the lower ionosphere using a rocket-borne resonance lamp, *Nature*, *252*, 289–291, 1974.
- Dothe, H., F. von Esse und R. D. Sharma, Rotational temperatures and production mechanisms of some infrared radiators in the daylit terrestrial thermosphere, *J. Geophys. Res.*, *101*, 19,715–19,721, 1996.
- Doyennette, L., C. Boursier, J. Menard und F. Menard-Bourcin, v_1 to or from v_3 , coriolis assisted intermode transfers in O_3 -M gas mixtures (M= O_2 and N_2) in the temperature range 200–300K from IR double-resonance measurements, *J. Chem. Phys.* *197*, 157–160, 1992.
- Edwards, D. P., GENLN2: A general line-by-line atmospheric transmittance and radiance model, version 3.0, Description and users guide, *Rep. NCAR/TN-367+STR*, NCAR, Boulder, Colorado, 1992.
- Edwards, D. P., J. B. Kumer, M. López-Puertas, M. G. Mlynczak, A. Gopalan, J. C. Gille und A. Roche, Non-local thermodynamic equilibrium limb radiance near $10\ \mu\text{m}$ as measured by UARS CLAES, *J. Geophys. Res.*, *101*, 26,577–26,588, 1996.
- Ern, M., Relaxationseffekte der CRISTA-Infrarotdetektoren und ihre Korrektur, PhD, Bergische Universität–Gesamthochschule Wuppertal, 2000.
- Evans, W. F. J., E. C. McDade, J. Yuen und E. J. Llewellyn, A rocket measurement of the O_2 infrared atmospheric (0–0) band emission in the dayglow and a determination of the mesospheric ozone and atomic oxygen densities, *Can. J. Phys.*, *66*, 941–946, 1988.
- Feldman, P. D. und D. P. McNutt, Far infrared nightglow emission from atomic oxygen, *J. Geophys. Res.*, *74*, 4791, 1969.
- Fichet, P., J. R. Jevais, C. Camy-Peyret und J. M. Fraud, NLTE processes in ozone: importance of O and O_3 densities near the mesopause, *Planet. Space Sci.*, *40*, 989–1009, 1992.

- Fischer, C. F. und H. P. Saha, Multiconfigurational Hartree-Fock results with Breit-Pauli corrections for forbidden transitions in the 2_p^4 configuration, *Phys. Rev. A*, *28*, 3169, 1983.
- Forbes, J. M., Tidal and planetary waves, *Geophysical Monograph 87*, American Geophysical Union, 67–87, 1995.
- Froidevaux, L., W. G. Read, T. A. Lungu, R. E. Cofield, E. F. Fishbein, D. A. Flower, R. F. Jarnot, B. P. Ridenoure, Z. Shippony, J. W. Waters, J. J. Margitan, I. S. McDermid, R. A. Stachnik, G. E. Peckham, G. Braathen, T. Deshler, J. Fishman, D. J. Hofmann und S. J. Oltmans, Validation of UARS Microwave Limb Sounder ozone measurements, *J. Geophys. Res.*, *101*, 10,017–10,060, 1996.
- Fussen, D., F. Vanhellemont und C. Bingen, Ozone profiles from 30 to 110 km measured by the Occultation RAdiometer instrument during the period Aug 1992–Apr 1993, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 3449–3452, 2000.
- Gerstner, E. und M. Kaufmann, Glättung von SCL5-Höhenprofilen, CRISTA Engineering Report vom 03.05.1999, Bergische Universität–Gesamthochschule Wuppertal, 1999.
- Girard, A., J. Besson, D. Brard, J. Laurent, M. P. Lemaitre, C. Lippens, C. Muller, J. Vercheval und M. Ackerman, Global results of GRILLE spectrometer experiment on board Spacelab 1, *Planet. Space Sci.*, *36*, 291–300, 1988.
- Green, B. D., W. T. Rawlins und R. M. Nadile, Diurnal variability of vibrationally excited mesospheric ozone as observed during the SPIRE mission, *J. Geophys. Res.*, *91*, 311–320, 1986.
- Grossmann, K. U. und D. Offermann, Atomic oxygen emission at $63\ \mu\text{m}$ as a cooling mechanism in the thermosphere and ionosphere, *Nature*, *276*, 594–595, 1978.
- Grossmann, K. U., P. Barthol, W. Frings, R. Henning und D. Offermann, A new spectrometric measurement of atmospheric $63\ \mu\text{m}$ emission, *Adv. Space Res.*, *2*, 111–114, 1983.
- Grossmann, K. U., D. Homann und J. Schulz, Lower thermospheric IR emissions from minor species during high-latitude twilight– A. Experimental results, *J. Atmos. Terr. Phys.*, *56*, 1885–1897, 1994.
- Grossmann, K. U. und K. Vollmann, Thermal infrared measurements in the middle and upper atmosphere, *Adv. Space Res.*, *19*, 631–638, 1997.

- Grossmann, K. U., M. Kaufmann und E. Gerstner, A global measurement of lower thermosphere atomic oxygen densities, *Geophys. Res. Lett.*, m 1387-1390, 2000.
- Grossmann, K. U., D. Offermann, O. Gusev, J. Oberheide, M. Riese und R. Spang, The CRISTA-2 mission, *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1029/2001JD000667, 2002.
- Gumbel, J., Rocket-borne optical measurements of minor constituents in the middle atmosphere, *PhD, Akademitryck AB*, Edsbruk, 1997.
- Hagan, M. E., R. G. Roble, C. Hartsough, J. Oberheide und M. Jarisch, GSWM-98: Results for migrating solar tides, *J. Geophys. Res.*, 104, 6813–6827, 1999.
- Hagan, M. E., R. G. Roble und C. Hartsough, The dynamics of the middle atmosphere during CRISTA-2 as simulated by the NCAR TIME-GCM, *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1029/2001JD000679, 2002.
- Hays, P. B. und R. G. Roble, Observation of mesospheric ozone at low latitudes, *Planet. Space Sci.*, 21, 273–279, 1973.
- Hecht, J. H., A. B. Christensen, D. J. Strickland und R. R. Meier, Deducing composition and incident electron spectra from ground-based auroral optical measurements: Variations in oxygen density, *J. Geophys. Res.*, 94, 13,553, 1989.
- Hedin, A. E., H. G. Mayr, C. A. Reber, N. W. Spencer und G. R. Carignan, Empirical model of global thermospheric temperature and composition based on data from the OGO 6 quadrupole mass spectrometer, *J. Geophys. Res.*, 79, 215, 1974.
- Hedin, A. E., MSIS-86 thermospheric model, *J. Geophys. Res.*, 92, 4649, 1987.
- Holton, J. R., The role of gravity wave induced drag and diffusion in the momentum budget of the mesosphere, *American Meteorological Society*, 791, 1982.
- Holton, J. R. und M. J. Alexander, The role of waves in the transport circulation of the middle atmosphere, *Atmospheric Science Across the Stratopause*, Geophysical Monograph 123, AGU, 21, 2000.
- Howlett, L. C., K. D. Baker, L. R. Megill, A. W. Shaw, W. R. Pendleton und J. C. Ulwick, Measurement of a structured profile of atomic oxygen in the mesosphere and lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, 85, 1291–1296, 1980.
- Hunt, B. G., A diffusive-photochemical study of the mesosphere and lower thermosphere and the associated conservation mechanisms, *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.*, 33, 1869–1892, 1971.

- Inoue, G. und S. Tsuchiya, Vibration-toVibration energy transfer of $CO_2(00^0_1)$ with N_2 and CO at low temperatures, *J. of the Phys. Soc. of Japan*, 39, 479, 1975.
- Johnson, F. S., J. D. Purcell, und R. Tousey, Measurements of the vertical distribution of atmospheric ozone from rockets, *J. Geophys. Res.*, 56, 583, 1951.
- Johnston, H. S., Reduction of stratospheric ozone by nitrogen oxide catalyst from SST exhaust, *Science*, 1, 517–522, 1971.
- Justus, C. G., W. R. Jeffries III, S. P. Yung und D. L. Johnson, The NASA/MSFC Global Reference Atmospheric Model-1995 Version (GRAM-95), *NASA Technical Memorandum 4715*, 1995
- Kaufmann, M., Ein Modell zur Berechnung von CO_2 -Spektren bei Horizontsondierung unter der Bedingung des Nicht-Lokalen-Thermodynamischen-Gleichgewichts, Diplomarbeit WU D 97–10, Bergische Universität-Gesamthochschule Wuppertal, 1997.
- Kaufmann, M., O. A. Gusev, K. U. Grossmann, R. Roble, M. Hagan, C. Hartsough und A. A. Kutepov, The vertical and horizontal distribution of CO_2 densities in the upper mesosphere and lower thermosphere as measured by CRISTA, *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1029/2001JD000704, 2002a.
- Kaufmann, M., O. A. Gusev, K. U. Grossmann, F. J. Martín-Torres, D. R. Marsh, A. A. Kutepov, satellite observations of day- and nighttime ozone in the mesosphere and lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, accepted for publication, 2002b.
- Kaye, J. A. und T. L. Miller, The ATLAS series of shuttle missions, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2285–2288, 1996.
- Keating, G. M und M. C. Pitts, Proposed reference models for ozone, *Adv. Space Res.*, 7, 937–947, 1987.
- Keneshea, T. J., S. P. Zimmerman und C. R. Philbrick, A dynamic model of the mesosphere and lower thermosphere, *Planet. Space Sci.*, 27, 385–401, 1979.
- Killeen, T. L. und R. g. Roble, Thermospheric dynamics: contributions from the first five years of the *Dynamics Explorer* Program, *Rev. Geophys.*, 26, 329, 1988.
- Kockarts, G. und W. Peetermans, Atomic oxygen infrared emission in the earth's upper atmosphere, *Planet. Space Sci.*, 18, 271–285, 1970.

- Koutoulaki, A., Study of ozone non-thermal IR emission using ISAMS observations, *PhD, Atmosph., Oceanic and Planetary Physics*, Trinity Term, 1998.
- Kutepov, A. A., H. Oelhaf und H. Fischer, Non-LTE radiative transfer in the 4.7 and 2.3 μm bands of CO: vibration-rotational non-LTE and its effects on limb radiances, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 57, 317–339, 1997.
- Kutepov, A. A., O. A. Gusev und V. P. Ogibalov, Solution of the non-LTE problem for molecular gas in planetary atmospheres: superiority of accelerated lambda iteration, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 60, 199–220, 1998.
- Lary, D. J., Photochemical studies with a 3D model of the atmosphere, *PhD., Cambridge University*, 1991.
- Lin, F. J., V. C. Kelly und A. T. Wesley, Atomic oxygen in the lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, 92, 4325–4336, 1987.
- Lindzen, R. S., Turbulence and stress owing to gravity wave and tidal breakdown, *J. Geophys. Res.*, 86, 9707–9714, 1981.
- Livesey, N. J., W. G. Read, L. Froidevaux, J. W. Waters, H. C. Pumphrey, D. L. Wu, M. L. Santee, Z. Shippony und R. F. Jarnot, The UARS Microwave Limb Sounder version 5 dataset: Theory, characterization and validation, *J. Geophys. Res.*, in press, 2002.
- Llewellyn, E. J. und G. Witt, The measurement of ozone concentrations at high latitudes during the twilight, *Planet. Space Sci.*, 25, 165, 1977.
- Llewellyn, E. J. und I. C. McDade, A reference model for atomic oxygen in the terrestrial atmosphere, *Adv. Space Res.*, 18, 209–226, 1996.
- Lobsiger, E., K. F. Künzi, und H. U. Dütsch, Comparison of stratospheric ozone profiles retrieved from microwave-radiometer and Dobson-spectrometer data, *J. Atmos. Terr. Phys.*, 46, 799–806, 1984.
- López-González M. J., J. J. López-Moreno und R. Rodrigo, Altitude profiles of the atmospheric system of O₂ and of the green line emission, *Planet. Space Sci.*, 40, 783–795, 1992a.
- López-González, M. J., J. J. López-Moreno und R. Rodrigo, Atomic oxygen concentrations from airglow measurements of atomic and molecular oxygen emissions in the nightglow, *Planet. Space Sci.*, 40, 929–940, 1992b.

- López-González M. J., J. J. López-Moreno und R. Rodrigo, The altitude profile of the infrared atmospheric system of O₂ in twilight and early night: derivation of ozone abundances, *Planet. Space Sci.*, *40*, 1391–1397, 1992c.
- López-Puertas M. und F. W. Taylor, Carbon dioxide 4.3 μm emission in the Earth's atmosphere: A comparison between NIMBUS 7 SAMS measurements and non-local thermodynamic equilibrium radiative transfer calculations, *J. Geophys. Res.*, *94*, 13,045–13,068, 1989.
- López-Puertas M., G. Zaragoza, M. Á. López-Valverde und F. W. Taylor, Non local thermodynamic equilibrium (LTE) atmospheric limb emission at 4.6 μm. 1. An update of the CO₂ non-LTE radiative transfer model, *J. Geophys. Res.*, *103*, 8499–8513, 1998a.
- López-Puertas M., G. Zaragoza und M. Á. López-Valverde, Non local thermodynamic equilibrium (LTE) atmospheric limb emission at 4.6 μm. 2. An analysis of the daytime wideband radiances as measured by UARS improved stratospheric and mesospheric sounder, *J. Geophys. Res.*, *103*, 8515–8530, 1998b.
- López-Puertas M. und F. W. Taylor, Non-LTE Radiative Transfer in the Atmosphere, *Series on atmospheric, oceanic and planetary Physics*, *3*, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd, Singapore, 2001.
- Madronich, S. und S. Flocke, The role of solar radiation in atmospheric chemistry, in *Handbook of Environmental Chemistry* (P. Boule, ed.), Springer-Verlag, Heidelberg, 1–26, 1998.
- Manuilova R. O. und G. M. Shved, The 4.8 and 9.6 μm O₃ band emissions in the middle atmosphere, *J. Atmos. Terr. Phys.*, *54*, 1149–1168, 1992.
- Manuilova, R. O., O. A. Gusev, A. A. Kutepov, T. v. Clarmann, H. Oelhaf, G. P. Stiller, A. Wegner, M. López-Puertas, F. J. Martin-Torres, G. Zaragoza und J.-M. Flaud, Modeling of non-LTE limb spectra of IR ozone bands for the MIPAS space experiment, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, *59*, 405–422, 1998.
- Marsh, D. R., Satellite observations of mesospheric ozone, *PhD, University of Michigan*, 1999.
- Marsh, D. R., W. R. Skinner, A. R. Marshall, P. B. Hays, D. A. Ortland und J. -H. Yee, High Resolution Doppler Imager observations of ozone in the mesosphere and lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, *107(D19)*, 4390, doi: 10.1029/2001JD001505, 2002.

- McDade, I. C., D. P. Murtagh, R. G. H. Greer, P. H. G. Dickinson, G. Witt, J. Stegman, E. J. Llewellyn, L. Thomas und D. B. Jenkins, ETON 2: Quenching parameters for the proposed precursors of $O_2(b^1 \sum g^+)$ and $O(^1S)$ 557.7 nm in the terrestrial nightglow, *Planet. Space Sci.*, 34, 789–800, 1986.
- Meier, R. R. und J.-S. Lee, An analysis of the OI 1304 Å dayglow using a Monte Carlo resonant scattering model with partial frequency redistribution, *Planet. Space Sci.*, 30, 439, 1982.
- Meier, R. R., D. J. Strickland, J. H. Hecht und A. B. Christensen, Deducing composition and incident electron spectra from ground-based auroral optical measurements: A study of auroral red line processes, *J. Geophys. Res.*, 94, 13,541, 1989.
- Melo, S. M. L., H. Takahashi, B. R. Clemesha, P. P. Batista und D. M. Simonich, Atomic oxygen concentrations from rocket airglow observations in the equatorial region, *J. Atmos. Terr. Phys.*, 58, 1935–1942, 1996.
- Menard, J., L. Doyennette und F. Menard-Bourcin, Vibrational relaxation in O_3 , O_2 and O_2-N_2 gas mixtures from infrared double-resonance measurements in the 200–300K temperature range, *J. Chem. Phys.* 96, 15,773–15,780, 1992.
- Mill, J. D., R. R. O’Neill, S. Price, G. J. Romick, O. M. Uy, E. M. Gaposchkin, G. C. Light, W. W. Moore, Jr., T. L. Murdock und A. T. Stairs, Jr., Midcourse Space Experiment: Introduction to the spacecraft, instruments, and scientific objectives, *Spacecraft*, 31(5), 900–907, 1994.
- Mlynczak, M. G. und S. R. Drayson, Calculation of infrared limb emission by ozone in the terrestrial middle atmosphere, 1. Source function, *J. Geophys. Res.*, 95, 16,497–16,511, 1990a.
- Mlynczak, M. G. und S. R. Drayson, Calculation of infrared limb emission by ozone in the terrestrial middle atmosphere, 2. Emission Calculations, *J. Geophys. Res.*, 95, 16,513–16,521, 1990b.
- Mlynczak, M. G. und D. K. Zhou, Kinetic and spectroscopic requirements for the measurement of mesospheric ozone at $9.6 \mu\text{m}$ under non-LTE conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 639–642, 1998.
- Mlynczak M. G., F. Morgan und J.-H. Yee, Simultaneous measurements of the $O_2(^1\Delta)$ and $O_2(^1\Sigma)$ airglows and ozone in the daytime mesosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 999–1002, 2001.

- Moreels, G., G. Megie, A. Vallance Jones und R. L. Gattinger, An oxygen-hydrogen atmospheric model and its application to the OH emission problem, *J. Atmos. Terr. Phys.*, *39*, 551–570, 1977.
- Nebel, H., P. P. Wintersteiner, R. H. Picard, J. R. Winick und R. D. Sharma, CO₂ non-local thermodynamic equilibrium radiative excitation and infrared dayglow at 4.3 μm : Application to spectral infrared rocket experiment data, *J. Geophys. Res.*, *99*, 10,409–10,419, 1994.
- Nier, A. E., W. E. Potter, D. R. Hickman und D. Mauersberger, The open-source mass spectrometer on *Atmospheric Explorer-C, -D, and -E*, *Radio Sci.*, *8*, 271, 1973.
- Noxon, J. F., Twilight enhancement in O₂($b^1\Sigma_g$) airglow emission, *J. Geophys. Res.*, *80*, 1370–1373, 1975.
- Oberheide, J., M. E. Hagan, W. E. Ward, M. Riese und D. Offermann, Modeling the diurnal tide for the cryogenic infrared spectrometers and telescopes for the atmosphere (CRISTA) 1 time period, *J. Geophys. Res.*, *105*, 24,917–24,929, 2000.
- Offermann, D. und H. Trinks, A rocket borne mass spectrometer with helium cooled ion source, *Rev. Sci. Instr.*, *42*, 1836–1843, 1971.
- Offermann, D. und K. U. Grossmann, Thermospheric density and compositions as determined by a mass spectrometer with cryo ion source, *J. Geophys. Res.*, *78*, 8296–8304, 1973.
- Offermann, D. und K. U. Grossmann, Spectrometric measurement of atomic oxygen 63 μm emission in the thermosphere, *Geophys. Res. Lett.*, *5*, 387, 1978.
- Offermann, D., V. Friedrich, P. Ross und U. v. Zahn, Neutral gas composition measurements between 80 and 120 km, *Planet. Space Sci.*, *29*, 747–764, 1981.
- Offermann, D., K. U. Grossmann, P. Barthol, P. Knieling, M. Riese und R. Trant, Cryogenic infrared spectrometers and telescopes for the atmosphere (CRISTA) experiment and middle atmosphere variability, *J. Geophys. Res.*, *104*, 16311–16325, 1999.
- Ogibalov, V. P., A. A. Kutepov und G. M. Shved, Non-local thermodynamic equilibrium in CO₂ in the middle atmosphere. II. Populations in the $\nu_1\nu_2$ mode manifold states, *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.*, *60*, 315–329, 1998.
- Pemberton, D.N.C., Radiative emission from O₃ and HNO₃ in the middle atmosphere, PhD, University of Oxford, Oxford, 1993.

- Philbrick, C. R., G. A. Faucher und E. Trzcinski, Rocket measurements of mesospheric and lower thermospheric composition, *Space Research*, 13, 255–260, 1973.
- Preusse, P., Vorbereitung der Eichung der CRISTA-Spektrometer, Diplomarbeit WU D 94–45, Bergische Universität-Gesamthochschule Wuppertal, 1995.
- Randel, W. J., Global atmospheric circulation statistics, *NCAR Tech. Note NCAR/TN-295+STR*, 245, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, 1987.
- Rawlins, W. T., G. E. Caledonia, J. J. Gibson und A. T. Stair, Jr., HIRIS Rocketborne spectra of infrared fluorescence in the O₃ (ν₃) band near 100 km, *J. Geophys. Res.*, 85, 2896–2904, 1985.
- Rawlins, W. T. und R. A. Armstrong, Dynamics of vibrationally excited ozone formed by three-body recombination. I. Spectroscopy, *J. Chem. Phys.*, 87, 5202–5208, 1987
- Rawlins, W. T., G. E. Caledonia und R. A. Armstrong, Dynamics of vibrationally excited ozone formed by three-body recombination reaction. II. Kinetics and mechanism, *J. Chem. Phys.*, 87, 5209–5221, 1987.
- Remsberg, E. E., J. M. Russel III, J. C. Gille, L. L. Gordley, P. L. Bailey, W. G. Planet und J. E. Harris, The validation of NIMBUS 7 LIMS measurements of ozone, *J. Geophys. Res.*, 89, 5161–5178, 1984.
- Riegler, G. R., J. F. Drake, S. C. Liu und R. J. Cicerone, Stellar occultation measurements of atmospheric ozone and chlorine from OAO 3, *J. Geophys. Res.*, 81, 4997–5001, 1976.
- Riese, M., R. Spang, P. Preusse, M. Ern, M. Jarisch, D. Offermann und K. U. Grossmann, Cryogenic infrared spectrometers and telescopes for the atmosphere (CRISTA) data processing and atmospheric temperature and trace gas retrieval, *J. Geophys. Res.*, 104, 16,349–16,367, 1999.
- Rinsland, C., M. R. Gunson, R. Zander und M. López-Puertas, Middle and upper atmosphere pressure-temperature profiles and the abundances of CO₂ and CO in the upper atmosphere from ATMOS/Spacelab 3 observations, *J. Geophys. Res.*, 97, 20,479–20,495, 1992.
- Roble, R. G. und P. B. Hays, On determining the ozone number density distribution from OAO-2 stellar occultation measurements, *Planet. Space Sci.*, 22, 1338–1340, 1974.

- Roble, R. G. und R. E. Dickinson, How will changes in carbon dioxide and methane modify the mean structure of the mesosphere and thermosphere?, *Geophys. Res. Lett.*, *16*, 1441–1444, 1989.
- Roble, R. G. und E. C. Ridley, A thermosphere-ionosphere-mesosphere-electrodynamics general circulation model (TIME-GCM): Equinox solar cycle minimum simulations (30-500 km), *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 417–420, 1994.
- Roble, R. G., Energetics of the mesosphere and thermosphere, *The Upper Mesosphere and Lower Thermosphere: A Review of Experiment and Theory*, AGU Monograph 87, 1995.
- Roble, R. G., The NCAR Thermosphere-Ionosphere-Mesosphere-Electrodynamics General Circulation Model (TIME-GCM), Ionosphere Models, *STEP Handbook on Ionospheric Models*, R. W. Schunk (Ed.), UTAH State University, 1996.
- Roble, R. G., On the feasibility of developing a global atmospheric model extending from the ground to the exosphere., *Atmospheric Science across the Stratopause*, Geophysical Monograph 123, American Geophysical Union, 2000.
- Rodrigo, R., M. J. López-Gonzalez und J. J. López-Moreno, Variability of the neutral mesospheric and lower thermospheric composition in the diurnal cycle, *Planet. Space Sci.*, *39*, 803–820, 1991.
- Rose, K. und G. Brasseur, A three-dimensional model of chemically active trace species in the middle atmosphere during disturbed winter conditions, *J. Geophys. Res.*, *94*, 16,387–16,403, 1989.
- Rothman, L. S., C. P. Rinsland, A. Goldman, S. T. Massie, D. P. Edwards, J.-M. Flaud, A. Perrin, C. Camy-Peyret, V. Dana, J. Y. Mandin, J. Schroeder, A. Mccann, R. R. Gamache, R. B. Wattson, K. Yoshino, K. V. Chance, K. W. Juks, L. R. Brown, V. Nemtchinov und P. Varanasi, The HITRAN molecular spectroscopic database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 edition, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, *60*, 665–710, 1998.
- Rybicki, G. B. und D. G. Hummer, An accelerated lambda iteration method for multilevel radiative transfer. I. Non-overlapping lines with background continuum, *Astron. Astrophys.*, *245*, 171–181, 1991.
- Savitsky, A. und M. J. E. Golay, Smoothing and differentiation of data by simplified least squares procedures, *Analytical Chemistry*, *v36*, 1627–1639, 1964.

- Schoendorf, J. und W. L. Oliver, A comparison of thermospheric [O] derived at EISCAT with [O] predicted by MSIS, *Geophys. Res. Lett.*, *25*, 2119–2122, 1998.
- Sharma, R. D. und C. A. Brau, Energy transfer in near-resonant molecular collisions due to long-range forces with application to transfer of vibrational energy from ν_3 mode of CO₂ to N₂^{*}, *J. of Chem. Phys.*, *50*, No. 2, 924, 1969.
- Sharma, R. D., B. Zygelman, F. v. Esse und A. Dalgarno, On the relationship between the population of the fine structure levels of the ground electronic state of atomic oxygen and the translational temperature, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1731–1734, 1994.
- Sharp, W. E., Absolute concentrations of O(³P) in the lower thermosphere at night, *Geophys. Res. Lett.*, *7*, 485–488, 1980.
- Shimazaki, T. und A. R. Laird, A model calculation of the diurnal variation in minor neutral constituents in the mesosphere and lower thermosphere including transport effects, *J. Geophys. Res.*, *75*, 3221–3235, 1970.
- Shimazaki, T., Minor constituents in the middle atmosphere, *Terra Scientific Publishing company*, Tokyo, 1985.
- Shved, G. M. und O. A. Gusev, Non-local thermodynamic equilibrium in N₂O, CH₄, and HNO₃ in the middle atmosphere, *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.*, *59*, 2167–2176, 1997.
- Shved, G. M., A. A. Kutepov und V. P. Ogibalov, Non-local thermodynamic equilibrium in CO₂ in the middle atmosphere. I. Input data and populations of the ν_3 mode manifold states, *J. Atmos. Sol. Terr. Phys.*, *60*, 289–314, 1998.
- Siskind, D. E. und W. E. Sharp, A comparison of measurements of the oxygen nightglow and atomic oxygen in the lower thermosphere, *Planet. Space Sci.*, *39*, 627–639, 1991.
- Smith, A. K., An investigation of resonant waves in a numerical model of an observed sudden stratospheric warming, *J. Atmos. Sci.*, *46*, 3038–3054, 1989.
- Smith, A. K., Preconditioning for sudden stratospheric warmings: Sensitivity studies with a numerical model, *J. Atmos. Sci.*, *49*, 1003–1019, 1992.
- Solomon, S., J. T. Kiehl, B. J. Kerridge, E. E. Remsberg und J. M. Russel III, Evidence for nonlocal thermodynamic equilibrium in the ν_3 mode of mesospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, *91*, 9865–9876, 1986.

- Stair, A. T., Jr., J. C. Ulwick, K. D. Baker und D. J. Baker, Rocketborne observations of atmospheric infrared emissions in the auroral region, in: Atmospheres of Earth and the planets, B. M. McCormac (Ed.), Reidel, Publ. Comp., Dordrecht, 1975.
- Strickland, D. J., R. R. Meier, J. H. Hecht und A. B. Christensen, Deducing composition and incident electron spectra from ground-based auroral optical measurements: Theory and model results, *J. Geophys. Res.*, *94*, 13,527, 1989.
- Thomas, L., R. G. H. Greer und P. H. G. Dickinson, The excitation of the 557.7-nm line and Herzberg bands in the nightglow, *Planet. Space Sci.*, *27*, 925–931, 1979.
- Thomas, R. J. und R. A. Young, Measurement of atomic oxygen and related airglows in the lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, *86*, 7389–7393, 1981.
- Thomas, R. J., C. A. Barth, D. W. Rusch und R. W. Sanders, Solar mesosphere explorer near-infrared spectrometer: Measurements of 1.27- μm radiances and the inference of mesospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, *89*, 9569–9580, 1984.
- Thomas, R. J., Atomic hydrogen and atomic oxygen density in the mesopause region: Global and seasonal variations deduced from solar mesosphere explorer near-infrared emissions, *J. Geophys. Res.*, *95*, 16,457–16,476, 1990.
- Torkar, K. M. und M. Friedrich, Tests of an ion chemical model of the D- and lower E-region, *J. Atmos. Terr. Phys.*, *45*, 369–385, 1983.
- Trinks, H., Ozone measurements between 90 and 110 km altitude by mass spectrometer, *Geophys. Res. Lett.*, *2*, 99–102, 1975.
- Trinks, H., D. Offermann, R. v. Zahn und C. Steinhauer, Neutral composition measurements between 90 and 220 km altitude by rocket-borne mass spectrometer, *J. Geophys. Res.*, *83*, 2169–2176, 1978.
- Trinks, H. und K. H. Fricke, Carbon dioxide concentrations in the lower thermosphere, *J. Geophys. Res.*, *83*, 3883–3886, 1978.
- Vollmann, K., Messungen und Modellierungen von Infrarotemissionen der Spurengase Kohlendioxid und Ozon unter der Bedingung des Nicht-Lokalen-Thermodynamischen-Gleichgewichts, PhD, Bergische Universität - Gesamthochschule Wuppertal, 1996.
- Vollmann, K. und K. U. Grossmann, Excitation of 4.3 μm CO₂ emission by O(¹D) during twilight, *Adv. Space Res.*, *20*, 1185–1189, 1997.

- Wasser, B. und T. M. Donahue, Atomic oxygen between 80 and 120 km: evidence for a latitudinal variation in vertical transport near the mesopause, *J. Geophys. Res.*, *84*, 1243, 1979.
- Wattenbach, R. und K. Moritz, Astronomical Shuttle Pallet Satellite (ASTRO-SPAS), *Acta Astronautica*, *40*, 723–732, 1997.
- Weeks, L. H., R. E. Good, J. S. Randhawa und H. Trinks, Ozone measurements in the stratosphere, mesosphere, and lower thermosphere during Aladdin 74, *J. Geophys. Res.*, *83*, 978–982, 1978.
- West, G. A., R. E. Weston, Jr. und G. W. Flynn, Deactivation of vibrationally excited ozone by O(³P) atoms, *Chem. Phys. Lett.*, *42*, 488, 1976.
- West, G. A., R. E. Weston Jr. und G. W. Flynn, The influence of reactant vibrational excitation on the O(³P)+O₃ bimolecular reaction rate, *Chem. Phys. Lett.*, *56*, 429–433, 1978.
- Wilson, W. J. und P. R. Schwartz, Diurnal variations of mesospheric ozone using millimeter-wave measurements, *J. Geophys. Res.*, *86*, 7385–7388, 1981.
- Winick, J. R., R. H. Picard, R. D. Sharma, R. A. Joseph und P. P. Wintersteiner, Radiative transfer effects on aurora enhanced 4.3 micron emission, *Adv. Space Res.*, *7*, No. 10, (10)17–(10)21, 1987.
- Wintersteiner, P. P., R. H. Picard, R. D. Sharma, J. R. Winick und R. A. Joseph, Line-by-line radiative excitation model for the non-equilibrium atmosphere: Application to CO₂ 15 μm emission, *J. Geophys. Res.*, *97*, 18,083–18,117, 1992.
- Zachor, S. A. und R. D. Sharma, Retrieval of atomic oxygen and temperature in the thermosphere. I– Feasibility of an experiment based on the spectrally resolved 147 μm limb emission, *Planet. Space. Sci.*, *37*, 1333–1346, 1989.
- von Zahn, U., The project MAP/WINE: an overview, *J. Atmos. Terr. Phys.*, *49*, 607–620, 1987.
- Zaragoza, G., M. López-Puertas, M. A. López-Valverde und F. W. Taylor, Global distribution of CO₂ in the upper mesosphere as derived from UARS/ISAMS measurements, *J. Geophys. Res.*, *105*, 19,829–19,839, 2000.

- Zhou, D. K., M. G. Mlynczak, G. E. Bingham, J. O. Wise und R. M. Nadile, CIRRIS-1A limb spectral measurements of mesospheric $9.6\ \mu\text{m}$ airglow and ozone, *Geophys. Res. Lett.*, *25*, 643–646, 1998.
- Zommerfelds, W. C., K. F. Kunzi, M. E. Summers, R. M. Bevilacqua, D. F. Strobel, M. Allen und W. J. Sawchuck, Diurnal variations of mesospheric ozone obtained by ground-based microwave radiometry, *J. Geophys. Res.*, *94*, 12,819–12,832, 1989.
- Zygelman, B., A. Dalgarno und R. D. Sharma, Molecular theory of collision induced fine structure transitions in atomic oxygen. I. Formulation, *Phys. Rev. A*, *49*, 2587, 1994a.
- Zygelman, B., A. Dalgarno und R. D. Sharma, Excitation of $^3P_{J=0,1,2}$ fine structure levels of atomic oxygen in collisions with oxygen atoms, *Phys. Rev. A*, *50*, 3920–3928, 1994b.

Anhang

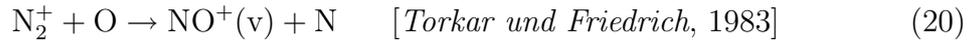
Messmoden und Messzeiten

Tabelle 6: Chronologische Übersicht der Mesosphären- und Thermosphären-Messmoden für CRISTA-1 (1994) und CRISTA-2 (1997). Der Messzeitraum ist in Universalzeit angegeben. Messlücken innerhalb der Messblöcke, die kürzer als eine Stunde sind, werden nicht extra ausgewiesen.

Mission	Messmode	Profilnummern	Messzeitraum	
			Julian. Tag - h:min	Tag.Monat.h:min
1	1	1-61	308-16:42-308-17:35	04.11.16:42-04.11.17:35
1	1	62-1385	308-20:54-309-16:33	04.11.20:54-05.11.16:33
1	M/T	9359-9653	312-14:01-312-17:59	08.11.14:01-08.11.17:59
1	1	9657-11655	312-20:35-314-03:31	08.11.20:35-10.11.03:31
1	1	16592-16821	315-21:03-316-00:44	11.11.21:03-12.11.00:44
2	M	1-664	220-05:25-220-17:46	08.08.05:25-08.08.17:46
2	M	712-831	220-19:18-220-21:24	08.08.19:18-08.08.21:24
2	T	832-1344	221-04:37-221-12:10	09.08.04:37-09.08.12:10
2	M	10756-11442	225-14:21-226-02:30	13.08.14:21-14.08.02:30
2	M	11490-11940	226-04:02-226-12:00	14.08.04:02-14.08.12:00
2	M	12011-13131	226-14:41-227-10:34	14.08.14:41-15.08.10:34
2	M	13202-13385	227-11:26-227-14:41	15.08.11:26-15.08.14:41
2	T	13386-14394	227-14:42-228-09:16	15.08.14:42-16.08.09:16

Abschätzung der NO^+ Limb Strahlungsdichten

NO^+ ist das häufigste positive Ion in der D- und E-Schicht der Erdatmosphäre. In der Thermosphäre ionisieren hochenergetische Elektronen die Neutralgasatmosphäre und produzieren N_2^+ , O_2^+ , O^+ und N^+ Ionen. Diese Ionen reagieren in der unteren Thermosphäre innerhalb einer Sekunde mit neutralen Molekülen und produzieren NO^+ [Winnick *et al.*, 1987]. Die Reaktion



ist oberhalb von 140 km die wichtigste Quelle von NO^+ , während unterhalb von 130 km der Ladungsaustausch zwischen O_2^+ und NO vorherrscht:



Die Produktion des $\text{NO}^+(v=1)$ Fundamentalniveaus ist dabei etwa einen Faktor 10 wahrscheinlicher als die von $\text{NO}^+(v=2)$ [Caledonia *et al.*, 1995]. Auch durch die Absorption von Sonnenstrahlung werden die $\text{NO}^+(v=2)$ nicht besonders stark angeregt, wie aus dem Vergleich mit CO , einem Molekül mit sehr ähnlicher Struktur, rückgeschlossen wird. Daher kann man sich für die Modellierung der NO^+ -Strahlungsdichten bei $4,3 \mu\text{m}$ mit einer Genauigkeit von etwa 20% auf das Fundamentalniveau beschränken.

Für die Abschätzung des Einflusses der NO^+ Emissionen auf die CRISTA Strahlungsdichten werden die Modellrechnungen für das CIRRIS-1A Experiment verwendet. Da CIRRIS-1A die gleiche Messgeometrie wie das CRISTA Instrument verwendet, können die mit dem Strategic High Altitude Radiance Code für CIRRIS-1A (58°N , 72°W , 13 h LT, Tag 120, 1991) berechneten und entlang des Limb-Sehstrahls aufintegrierten Intensitäten [Dothe *et al.*, 1996] direkt für CRISTA verwendet werden. Weil diese Rechnung jedoch für mittlere bis hohe solare Aktivität vorgenommen wurde ($F_{10,7}=161,7$; $AP=34$), werden Simulationen des TIME-GCM (vgl. Abbildung 68) für verschiedene geomagnetische Aktivitäten zur Anpassung an die solare Aktivität während der CRISTA-Flüge verwendet. Bei 60°N und 120 km Höhe verringert sich die NO^+ -Dichte etwa einen Faktor zwei bei einem Abfall des 10,7 cm-Flusses von 150 auf 70.

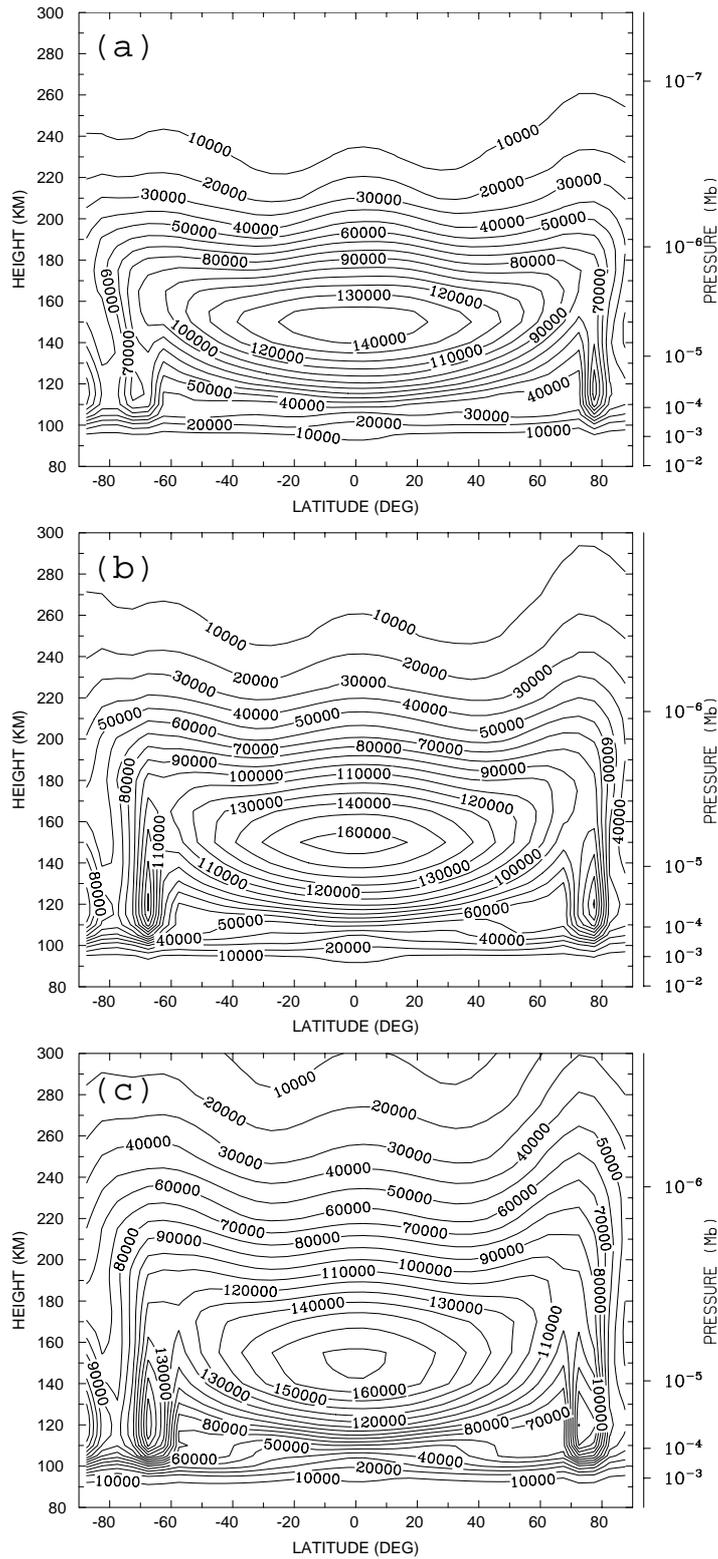


Abbildung 68: NO⁺ Dichten (cm⁻³), modelliert mit dem TIME-GCM für Equinox, 12h LT. (a):Solares Minimum (F10,7=70), (b) Mittlere solare Aktivität (F10,7=150) und (c) hohe solare Aktivität (F10,7=230).

Da die Produktion von NO^+ bei hohen magnetischen Breiten besonders hoch ist, nimmt die NO^+ -Dichte zu den Polen stark zu; sie ist in 120 km Höhe bei 70°N nahezu verdoppelt im Vergleich zu niedrigen Breiten (Abbildung 68).