

Untersuchung von Transport, Mischung und
Ozonverlust in der arktischen Polarregion im
Winter 2009/2010 basierend auf
flugzeuggestützten in-situ Messungen

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt der

Bergischen Universität Wuppertal

Fachbereich C: Mathematik und Naturwissenschaften

von

Maria Elisabeth Hösen

Wuppertal, 2013

Die Dissertation kann wie folgt zitiert werden:

urn:nbn:de:hbz:468-20130815-121322-5

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=urn%3Anbn%3Ade%3Ahbz%3A468-20130815-121322-5>]

Abstract

Transport and mixing processes across the arctic polar vortex edge may influence the climate relevant ozone layer both inside the vortex and at mid-latitudes. In-mixing of mid-latitude air into the vortex may have impact on the chemistry and the resulting polar ozone loss. Mixing of depleted vortex air masses into the mid-latitudes may reduce the ozone layer at mid-latitudes. The knowledge of transport and mixing processes is thus important for reliable predictions of the future evolution of the ozone layer.

In this thesis I present an index (vortex index) derived from in-situ N_2O measurements. This vortex index provides information on the characteristic origin of an air mass and enables transport analyses independent of the absolute values of trace gas mixing ratios. Moreover, the vortex index is a good proxy for the fraction of vortex air in an observed air mass.

Mixing between air masses of different origin is evaluated by an analysis of the F11- N_2O correlation. The vortex index allows mixed and unmixed air masses to be distinguished in this analysis.

The trace gases CFC-11 and N_2O , along with CFC-12, H-1211, CH_4 , SF_6 , H_2 and CO_2 , were measured by the High Altitude Gas Analyzer (HAGAR) during the RECONCILE aircraft campaign (Reconciliation of essential process parameters for an enhanced predictability of Arctic stratospheric ozone loss and its climate interactions) between mid January and mid March 2010.

The winter 2009/2010 was dynamically very active. This allows different processes like intrusions of mid-latitude air into the vortex and an extrusion of vortex air into the mid-latitudes to be investigated. The transport barrier between the surf zone and the vortex is identified as a region of weak and small-scale mixing. A further transport and mixing event outside the vortex was associated with a tropical streamer transported and mixed into high latitudes.

These single events were also evaluated by simulations of the Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS). The results of the simulations were compared with the observations. Single transport events are represented well in the model. However, mixing between transported air masses and surrounding air appears to be stronger in the simulations than observed. This may be due to the limited horizontal resolution of the model.

The simulated meridional transport as a whole was assessed using the calculated vortex index, which allows the validation of the isentropic model transport independent of model initialisation and the vertical transport in the model.

The chemical ozone loss between mid January and mid March was derived from the evolution of the observed $\text{O}_3\text{-N}_2\text{O}$ correlation. The vortex index facilitates this analysis by identifying unmixed air masses. Taking into account mixing and transport is essential to avoid an underestimation of ozone loss. In this case the omission of mixing leads to an underestimation of about 35%. The maximal value of 1.4 ± 0.5 ppm ozone loss was derived for mid March at a potential temperature of 490K. The CLaMS model tends to an underestimation of ozone loss, but its results agree with the observations within the error bars.

Zusammenfassung

Transport- und Mischungsprozesse über die Polarwirbelgrenze hinweg können große Auswirkungen auf die klimarelevante Ozonschicht, sowohl im Polarwirbel als auch in mittleren Breiten haben. Durch Einmischung von Luft aus mittleren Breiten in den Polarwirbel kann dort die Chemie und der daraus resultierende Ozonverlust beeinflusst werden. Durch größere Einmischung abgereicherter Luft aus dem Polarwirbel in mittlere Breiten kann dort die Ozonschicht spürbar verringert werden. Die Kenntnisse über solche Transport- und Mischungsprozesse sind für zuverlässige Vorhersagen über die Entwicklung der Ozonschicht auch im Hinblick auf klimabedingte Änderungen notwendig.

In dieser Arbeit wurde aus hochaufgelösten N_2O -Messungen ein Index berechnet, der eine höhenunabhängige Auskunft über die charakteristische Luftmassenherkunft gibt. Somit ermöglicht er die Durchführung einer Transportanalyse, die unabhängig von den Absolutwerten der Spurengasmischungsverhältnisse ist. Zugleich dient der Vortexindex als Proxy für den Anteil an Polarwirbelluft in den vermessenen Luftmassen. Die Analyse von Mischung erfolgt hauptsächlich durch eine Korrelationsanalyse der F11- N_2O -Korrelation. In dieser Korrelationsanalyse wurde der Vortexindex wiederum zur Differenzierung zwischen vermischten und unvermischten Luftmassen eingesetzt.

Die Spurengase F11 und N_2O wurden, neben F12, H-1211, CH_4 , SF_6 , H_2 und CO_2 , mit dem High Altitude Gas Analyzer (HAGAR) während der RECONCILE-Kampagne (Reconciliation of essential process parameters for an enhanced predictability of Arctic stratospheric ozone loss and its climate interactions) im Winter 2009/2010 gemessen.

Der dynamisch sehr aktive Winter 2009/2010 bot die Möglichkeit unterschiedliche Prozesse zu untersuchen. Es konnten sowohl Intrusionen in den Wirbel hinein und ihre Vermischung mit der umgebenden Wirbelluft untersucht werden, sowie auch eine Extrusion aus dem Wirbel heraus in die „surf zone“. Die Transportbarriere zwischen Polarwirbel und „surf zone“ konnte als eine Region von langsamer, kleinskaliger Mischung identifiziert werden. Ein weiteres Transport- und Mischungsereignis außerhalb des Wirbels konnte einem Streamer aus den Tropen zugeordnet werden, der in hohe Breiten transportiert wurde.

Diese einzelnen Ereignisse wurden jeweils auch mit Simulationen durch das CLaMS Modell untersucht und die Ergebnisse mit den Beobachtungen verglichen. Die einzelnen Transporte werden durch das Modell in der Regel gut wiedergegeben. Die Vermischung zwischen den transportierten Luftmassen und den umgebenden Luftmassen erscheint im Modell jedoch stärker zu sein als in den Beobachtungen.

Mit Hilfe des Vortexindex konnte der im Modell simulierte Meridionaltransport im Kam-

pagnenzeitraum auch in seiner Gesamtheit untersucht werden. Der Vortexindex erlaubt dabei die Validierung des isentropen Transportes im Modell weitgehend unabhängig von der Modellinitialisierung und dem Vertikaltransport im Modell.

Aus der Entwicklung der $\text{O}_3\text{-N}_2\text{O}$ -Korrelation konnte schließlich der chemische Ozonverlust zwischen Mitte Januar und März bestimmt werden. Der Vortexindex diene hierbei wiederum als Filter zur Identifikation unvermischter Luftmassen. Die Berücksichtigung von Transport und Mischung bei dieser Korrelationsmethode ist essentiell, um eine Unterschätzung des Ozonverlustes, in diesem Fall von bis 35% zu vermeiden. Der maximale Ozonverlust wurde im März auf einer potenziellen Temperatur von 490 K bemessen und betrug $1,4 \pm 0,5$ ppm. Das CLaMS Modell tendiert zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes, die jedoch noch innerhalb des Fehlerbereichs liegt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
1.1	Dynamik der Stratosphäre	1
1.2	Der Polarwirbel	3
1.2.1	Spurengastransport über die Polarwirbelgrenze	5
1.2.2	Polarwirbelgrenze	6
1.2.3	Korrelationsanalyse zur Identifikation von Mischung	8
1.3	Ozonverteilung und Ozonverlust	10
1.3.1	Ozonbildung und Ozonabbau in der Stratosphäre	11
1.3.2	Ozonverteilung	11
1.3.3	Polarer Ozonabbau	12
1.4	Transport und Mischung in der arktischen Polarregion im Winter 2009/2010	13
2	Messungen	15
2.1	Der High Altitude Gas Analyzer	15
2.1.1	GC-ECD	17
2.1.2	LI-COR-6251	18
2.1.3	HAGAR Kalibration	19
2.2	RECONCILE	20
2.2.1	Geophysica-Feldkampagne	21
2.2.2	Messplattform M55-Geophysica	24
2.3	Funktion von HAGAR während RECONCILE	26
2.3.1	Korrektur der GC-Daten für RECONCILE	27
2.3.2	Korrektur der LI-COR-Daten für RECONCILE	29
3	Transport und Mischung in der arktischen Polarregion während RECON-	
	CILE	33
3.1	Dynamik im Polarwirbel im Winter 2009/2010	33
3.2	Kennzeichnung der Luftmassenherkunft	36
3.2.1	Vortexindex	36
3.2.2	Passive Tracer	40
3.3	Validierung und Interpretation des Vortexindex	41
3.3.1	Überprüfung der zugrundeliegenden Annahmen	42
3.3.2	Interpretation des Vortexindex	45

3.4	Transport in der arktischen Polarregion	48
3.4.1	Beobachteter Transport	49
3.4.2	Simulierter Transport in CLaMS	52
3.5	Mischungsprozesse während RECONCILE	58
3.5.1	Entwicklung der beobachteten F11-N ₂ O Korrelation	58
3.5.2	Vergleich mit der simulierten F11-N ₂ O Korrelation	61
3.6	Fazit	66
4	Fallstudien	69
4.1	Transport und Mischung im Januar	69
4.2	Transport und Mischung im März	77
4.2.1	Transport und Mischung im Polarwirbel	77
4.2.2	Mischung an der Wirbelgrenze	85
4.2.3	Mischung außerhalb des Wirbels	89
4.3	Fazit	102
5	Ozon-Tracer-Korrelationen	105
5.1	Abschätzung des Ozonverlustes aus in-situ Messungen	105
5.1.1	Referenzkorrelationskurve	106
5.1.2	Effekt von Transport und Mischung im Analysezeitraum	109
5.2	Ozonverlust im arktischen Winter 2009/10	111
5.3	Ozonverlust in CLaMS	117
5.4	Fazit	122
6	Synthese und Schlussfolgerungen	123
A	Kalibration	129
A.1	Laborkalibration	129
A.1.1	Makro für die Auswertung der Laborkalibrationen	130
A.1.2	Ergebnisse der Laborkalibration	131
A.1.3	H1211-Korrektur	134
A.2	Kampagnenkalibrationen	135
A.2.1	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den GC	135
A.2.2	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für das LI-COR	138
B	CO₂-Fehler	141
C	Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS)	143
D	Größen zur quantitativen Beschreibung der Atmosphäre	145
D.1	Potentielle Temperatur	145
D.2	Potential vorticity PV	146
D.3	Äquivalente Breite	147
D.3.1	Nash Kriterium für die Polarwirbelgrenze	147

Kapitel 1

Einführung

1.1 Dynamik der Stratosphäre

Die Atmosphäre der Erde kann aufgrund ihres Temperaturprofils in verschiedene Bereiche eingeteilt werden. Im untersten Bereich der Atmosphäre, der Troposphäre nimmt die Temperatur stetig ab, bis in einer Höhe von ca. 10 km-16 km (Pol-Äquator) ein Temperaturminimum erreicht wird. Der Bereich um das Temperaturminimum herum heißt Tropopause. Durch die Temperaturabnahme mit zunehmender Höhe ist die Troposphäre weniger stabil geschichtet, was Vertikaltransport und Mischung auf kurzen Zeitskalen ermöglicht. Die Stratosphäre zwischen 10 km und 50 km ist durch einen positiven Temperaturgradienten gekennzeichnet und daher statisch stabil geschichtet. Die vertikale Verteilung von Ozon erreicht in diesem Höhenbereich ein Maximum. Die Absorption von ultravioletter Strahlung (Abk.: *UV - Strahlung*) durch Ozon in der Stratosphäre führt zu diesem positiven Temperaturgradienten [nach Wallace und Hobbs, 2006]. In einer thermisch ungestörten Stratosphäre steht der Erwärmung durch Absorption von UV-Strahlung die Kühlung durch Emission von Infrarot - Strahlung (Abk.: *IR - Strahlung*) insbesondere von CO₂ gegenüber, so dass die Stratosphäre nahezu im Strahlungsgleichgewicht ist [Schoeberl und Hartmann, 1991]. In der Mesosphäre zwischen 50 km und 85 km Höhe nimmt die Temperatur wieder ab, bis in 85 km Höhe erneut ein Temperaturminimum erreicht wird [nach Kapitel 1, Wallace und Hobbs, 2006].

Die Abbildung 1.1 zeigt eine schematische Darstellung der globalen atmosphärischen Zirkulation. Der Transport von Luftmassen in der Atmosphäre wird auf großen Skalen durch die von Brewer (1949) und Dobson (1956) erstmals beschriebene Zirkulation bestimmt. Diese sogenannte Brewer-Dobson-Zirkulation koppelt die Troposphäre, Stratosphäre und Mesosphäre miteinander. Qualitativ kann die Brewer-Dobson-Zirkulation, die ein maßgeblicher Antrieb für den Transport in der Stratosphäre ist, nach Holton et al. (1995) wie folgt beschrieben werden: In der Troposphäre angeregte planetare Wellen breiten sich in die Stratosphäre aus, brechen dort und führen zu einem polwärts gerichteten Transport der Luft in der Stratosphäre (engl.: *wave driven pump*). Da die Masse überall im System erhalten bleiben muss, bewirkt dieser polwärts gerichtete Transport einen Aufwärtstransport

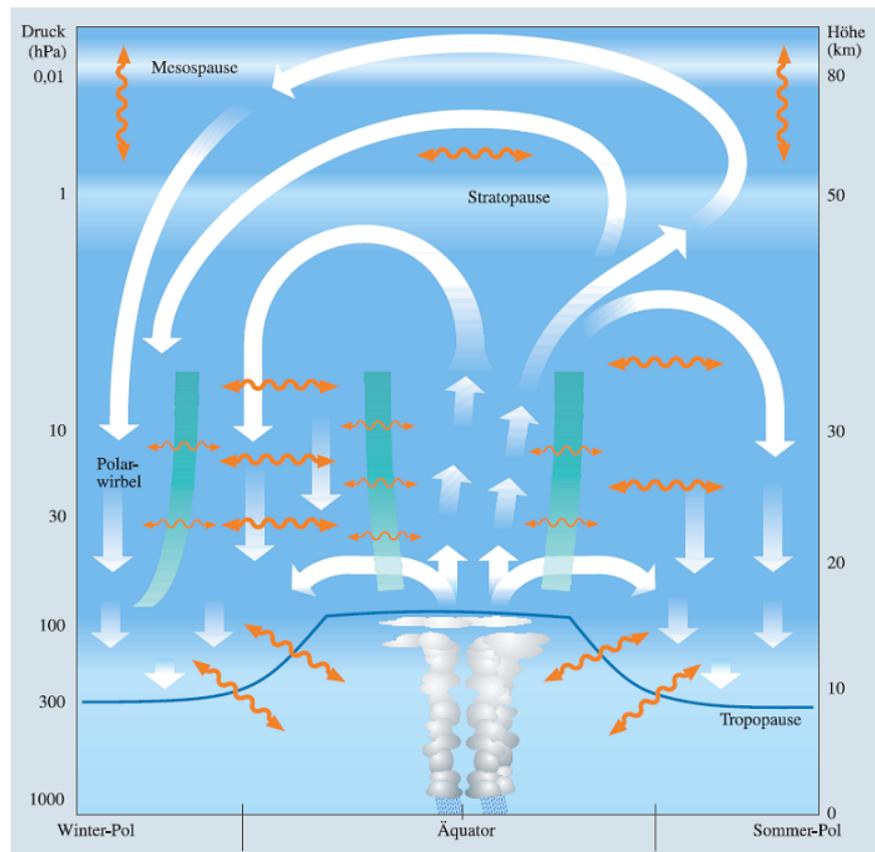


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der globalen Zirkulation in der mittleren Atmosphäre. Die Brewer-Dobson-Zirkulation ist dargestellt durch die dicken weißen Pfeile; die orangefarbenen Pfeile stellen die Mischung entlang isentroper Flächen dar. Die vertikalen grünen Streifen kennzeichnen die Transportbarrieren in den Tropen und am Winterpol. Die horizontale blaue Linie kennzeichnet die Tropopause [Schmidt et al., 2001].

der Luftmassen in den Tropen und einen Abwärtstransport an den Polen. Das Aufsteigen der Luftmassen in den Tropen geht mit einer adiabatischen Abkühlung der Luft einher, das Absinken an den Polen mit einer adiabatischen Erwärmung. Die aufsteigenden Luftmassen in den Tropen bilden ein sogenanntes tropisches Reservoir in der Stratosphäre, das durch eine sogenannte Transportbarriere in den Subtropen begrenzt wird (vgl. Abbildung 1.1). Besonders stark erfolgt der Abwärtstransport über dem Winterpol im Polarwirbel (siehe Kapitel 1.2), dessen Rand ebenfalls eine Barriere für meridionalen Transport darstellt. Der Bereich zwischen den Transportbarrieren an den Tropen und dem Polarwirbel wird als „surf zone“ bezeichnet [McIntyre und Palmer, 1984] und ist durch eine starke Durchmischung gekennzeichnet.

Die Zirkulation ist aufgrund einer verstärkten Wellenaktivität in der Nordhemisphäre, be-

dingt durch die unterschiedliche Landmassenverteilung auf den beiden Hemisphären, stärker als auf der Südhemisphäre. In den Wintermonaten ist die Wellenaktivität auf beiden Hemisphären im Vergleich zu den Sommermonaten erhöht, wodurch das Strahlungsgleichgewicht der Stratosphäre in diesen Zeiträumen gestört ist [Waugh und Polvani, 2009].

In der oberen Stratosphäre und Mesosphäre erfolgt ein zusätzlicher Antrieb der Zirkulation durch das Brechen von Schwerewellen (engl.: *gravity wave pump*) [Holton et al., 1995]. Um die komplette Brewer-Dobson-Zirkulation zu durchlaufen, benötigt ein Luftpaket ca. 5 Jahre [Plumb, 2002].

Spurengastransport in der Stratosphäre kann qualitativ als schneller Transport (Zeitskala Wochen) entlang isentroper Flächen (quasi horizontaler isentroper Transport) und langsamer Transport (Zeitskala Monate) über isentrope Flächen hinweg (quasi-vertikaler diabatischer Transport) beschrieben werden. Der diabatische Transport steht dabei in Zusammenhang mit der Brewer-Dobson-Zirkulation, der isentrope Transport geschieht durch Mischung im Zusammenhang mit dem Brechen planetarer Wellen [z.B. Plumb, 2002].

1.2 Der Polarwirbel

Nach der Herbst-Tagundnachtgleiche herrscht am Winterpol vollständige Dunkelheit. Somit ist die Absorption von UV-Strahlung in diesem Bereich der Stratosphäre unterbrochen, während die Emission von IR-Strahlung weiter andauert. Das Strahlungsgleichgewicht ist daher gestört und es kommt in diesem Bereich zu einer starken Abkühlung der Stratosphäre. Infolge des dadurch entstehenden Temperaturgradienten zwischen dem Polargebiet und mittleren Breiten entsteht auch ein Druckgradient. Der Druckgradient führt gemeinsam mit der Erdrotation zur Ausbildung eines starken Westwindbandes (engl.: *polar night jet*), welches das entstandene Tiefdrucksystem, den Polarwirbel, begrenzt und von den mittleren Breiten isoliert. Nach Bildung des Polarwirbels im Herbst erreicht er seine maximale Stärke in der Mitte des Winters und schwächt sich dann mit zunehmendem Sonnenlicht wieder ab, bis er im Frühjahr zusammenbricht [nach Schoeberl und Hartmann, 1991, Waugh and Polvani, 2009; und darin angegebenen Referenzen].

Die Temperaturen im Polarwirbel werden sowohl von Strahlungsprozessen als auch durch dynamische Einflüsse bestimmt. In welchem Verhältnis der Einfluss durch Strahlungsprozesse und der Einfluss durch dynamische Prozesse bei der Kontrolle der Temperaturen im Polarwirbel zueinanderstehen, wird durch die Wellenaktivität des jeweiligen Winters bestimmt. Die Abkühlung aufgrund des fehlenden Sonnenlichts ist in jedem Winter etwa gleich. Die Wellenaktivität variiert jedoch, insbesondere in der Nordhemisphäre, von Jahr zu Jahr sehr stark, so dass auch die Temperaturen im Polarwirbel stark variieren können. In Wintern mit einer starken Wellenaktivität kommt es zu einem starken Absinken der Luftmassen im Wirbel, wobei sie diabatisch erwärmt werden. Das bedeutet, in solchen Wintern sind die Temperaturen im Polarwirbel vergleichsweise hoch und der Wirbel insgesamt eher instabil. In Wintern mit einer geringen Wellenaktivität dagegen sinken die Luftmassen im Wirbel schwächer ab, die Temperaturen sind vergleichsweise niedriger und der Polarwirbel ist insgesamt stabil. Die für die stratosphärische Dynamik wichtigsten Wellen sind pla-

netare Wellen, die in der Troposphäre durch großskalige orographische oder thermische Kontraste entstehen und die sich im Winter, wenn in der Stratosphäre Westwinde vorhanden sind, in die Stratosphäre ausbreiten. Bei einer verstärkten Anregung von Wellen, die in der Stratosphäre eine lokale Zunahme der Wellenaktivität und schließlich Wellenbrechung implizieren, kommt es zu einer kurzfristigen adiabatischen Erwärmung der Stratosphäre (engl.: *sudden stratospheric warming*), die eine Verschiebung des Wirbels vom Pol weg oder den Zusammenbruch des Wirbels zur Folge haben kann [nach Waugh und Polvani, 2009 und darin angegebenen Referenzen].

Aufgrund des abwärtsgerichteten Transportes der Luft im Polarwirbel wird in der unteren Stratosphäre Luft beobachtet, deren Mischungsverhältnisse charakteristisch für die obere Stratosphäre sind. Außerhalb des Polarwirbels ist die Luft gut durchmischt [McIntyre und Palmer, 1984]. Im Laufe des Winters kommt es also zu einer vertikalen Verschiebung zwischen der Luft im Polarwirbel und der Luft außerhalb [nach Waugh und Polvani, 2009, Plumb, 2002].

Die in der Nordhemisphäre stärkere Aktivität planetarer Wellen führt also nicht nur zu einer stärkeren Zirkulation in der Nordhemisphäre, sondern sie führt auch zu größeren Variationen in der Größe, dem Isolationsgrad und der Stabilität des arktischen Polarwirbels im Vergleich zum antarktischen Polarwirbel [Shepherd, 2003; Waugh und Polvani, 2009]. Die planetaren Wellen sind sensitiv auf Klimaänderungen [McLandress und Shepherd, 2009]. Eine klimabedingte Änderung der Anregung oder Ausbreitung der planetaren Wellen bewirkt auch eine Änderung des Wellenantriebs der Brewer-Dobson-Zirkulation und beeinflusst auch das diabatische Absinken, das Strahlungsgleichgewicht und die Temperatur des Polarwirbels sowie die Stabilität und den Isolationsgrad. Messungen der Temperaturen, des Ozonverlustes und daran gekoppelter Parameter im arktischen Polarwirbel zeigen, dass es eine Tendenz dahin gibt, dass in kalten Wintern immer niedrigere Temperaturen erreicht werden, so dass auch in der Arktis die Bedingungen für einen vollständigen Ozonabbau (Ozonloch) erreicht werden können (Bedingungen für den Ozonabbau siehe Kapitel 1.3) [Rex et al., 2004; Manney et al., 2005; Rex et al., 2006; WMO, 2010; Manney et al., 2011]. Gleichzeitig nimmt aber die Zahl der kalten Winter mit wenig Wellenaktivität ab. Es werden häufiger sehr starke stratosphärische Erwärmungen beobachtet (engl.: *major warming*), die eine nachhaltige Störung des Polarwirbels zur Folge haben [Manney et al., 2005; Rex et al., 2006].

Zur Untersuchung von chemischen, mikrophysikalischen, Transport- und Mischungsvorgängen im Polarwirbel wurden in den vergangenen Jahren einige Flugzeugkampagnen mit dem amerikanischen Höhenforschungsflugzeug ER-2 und dem russischen Höhenforschungsflugzeug M55 Geophysica durchgeführt. Den Anfang der polaren Flugzeugkampagnen machte 1989 AASE I (Airborne Arctic Stratospheric Expedition I) [Tureo et al. 1990]. Es folgten im arktischen Winter 1991/1992 EASOE [z.B. Bauer et al., 1994], 1992 AASE II (Airborne Arctic Stratospheric Expedition II) [Anderson und Toon, 1993], 1999/2000 SOLVE (Sage III Ozone Loss and Validation Experiment) [Newman et al., 2002], im antarktischen Winter 1999 APE-GAIA (Geophysica Aircraft In Antarctica) [Carli et al., 2000], im arktischen Winter 2002/2003 EuPLEx (European polar stratospheric cloud and Lee wave Experiment)

und im arktischen Winter 2009/2010 RECONCILE (Reconciliation of essential processparameters for an enhanced predictability of arctic stratospheric ozone loss and its climate Interactions) [von Hobe et al., 2012]. Während der letzten beiden Kampagnen war die Validierung von Transport und Mischung im lagrangeschen Chemie- und Transportmodell CLaMS (Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere; Details siehe Anhang B) ein weiterer Forschungsgegenstand.

1.2.1 Spurengastransport über die Polarwirbelgrenze

In der unteren Stratosphäre werden, wie schon in Kapitel 1.2 erwähnt, bedingt durch den Abwärtstransport von Luft im Polarwirbel, innerhalb des Polarwirbels Spurengasmischungsverhältnisse beobachtet, die charakteristisch für die obere Stratosphäre sind. Schnelle horizontale Mischung im Polarwirbel und in der „surf zone“ führen zu einer homogenen Verteilung der Spurengase in diesen Bereichen. Durch die Transportbarriere am Wirbelrand entsteht jedoch ein starker horizontaler Gradient in den Spurengasmischungsverhältnissen zwischen diesen Bereichen [Waugh und Polavani, 2009; Plumb et al., 2000]. Die Isolation der Luftmassen im Polarwirbel ist eine Voraussetzung für den starken Ozonverlust im Polarwirbel. Ohne die Transportbarriere würde ozonreiche Luft aus den Tropen in die Polregion transportiert, die dort den chemischen Ozonabbau zumindest teilweise kompensieren würde.

Durch das Brechen planetarer Wellen kann es jedoch im Laufe der Lebenszeit des Polarwirbels zu einem Austausch von Wirbelluftmassen und Luftmassen aus mittleren Breiten kommen [z.B. Waugh und Polvani, 2009]. Der Austausch kann dabei in beide Richtungen erfolgen, das Einmischen von Luft aus mittleren Breiten in den Polarwirbel ist aber seltener als die Einmischung von Wirbelluft in mittlere Breiten [Waugh und Polvani, 2009].

Einige Studien haben am Beispiel verschiedener Winter gezeigt, wie es insbesondere im Zusammenhang mit stratosphärischen Erwärmungen (engl.: *stratospheric warming*) zu Einmischungen von Luft aus mittleren Breiten in den Wirbel kommt und welche Konsequenzen sich daraus für die Ozonchemie bzw. den Ozonverlust im Polarwirbel ergeben [Jost et al., 2002; Konopka et al., 2004; Müller et al., 2005; Grooß et al., 2008; Günther et al., 2008]. Die Studien zeigen weiter, dass die abgeschätzten Ozonverlustraten in Wintern mit einem starken Transport von Luftmassen in den Wirbel von Modellen unterschätzt werden [Konopka et al., 2004; Müller et al., 2005; Grooß et al., 2008].

Der Transport von Luftmassen aus dem Wirbel in mittlere Breiten beeinflusst auch die Ozonschicht in mittleren Breiten [Knudsen und Grooß, 2000; Konopka et al., 2003; Ross et al., 2004; Günther et al., 2008; Manney et al., 2009]. Der Haupteinfluss ist dabei die Verdünnung der ozonreichen Luft aus mittleren Breiten mit der abgereicherten Luft aus dem Wirbel nach dem Zusammenbruch des Wirbels [Knudsen und Grooß, 2000]. Aber auch der Einfluss der Verdünnung durch Extrusionen aus dem Wirbel heraus und deren Einmischung in mittlere Breiten während des Winters ist nicht vernachlässigbar [Ross et al., 2004, Manney et al., 2009]. Es wird abgeschätzt, dass 40-50% der in mittleren Breiten beobachteten Verringerung des Ozons auf eine Verdünnung mit abgereicherter Polarwirbelluft zurückzuführen ist [Knudsen und Grooß, 2000; Ross et al., 2004]. Einen weiteren

Effekt auf das Ozonvorkommen in mittleren Breiten hat eine veränderte Ozonchemie, die zustande kommt, wenn Luft mit aktivierten Chlorspezies aus dem Polarwirbel in mittlere Breiten gelangt [Konopka et al., 2003].

Werden diese Transport- und Mischungsprozesse über die Wirbelgrenze in globalen Transport- oder Zirkulationsmodellen nicht exakt wiedergegeben, werden die hier beschriebenen Effekte nicht berücksichtigt; hierdurch werden die Möglichkeiten genaue Vorhersagen über die zukünftige Entwicklung der Ozonschicht zu treffen begrenzt.

1.2.2 Polarwirbelgrenze

Für eine Analyse der Transport- und Mischungsprozesse in der polaren Stratosphäre, insbesondere der Prozesse im Polarwirbel und in dessen Umgebung, ist die Kenntnis der exakten Wirbelgrenze notwendig. Konventionell erfolgt die Bestimmung der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996). Das Verfahren basiert auf einer meteorologischen Analyse der globalen stratosphärischen Dynamik und stützt sich auf Satellitenmessungen. Die Wirbelgrenze ist dabei definiert als der Ort mit dem stärksten Gradienten in der potenziellen Wirbelstärke (engl.: *potential vorticity*; Abk.: *PV*; Details siehe Anhang C.2) als Funktion der äquivalenten Breite (engl.: *equivalent latitude*; Details siehe C.3) [Nash et al., 1996].

Proffitt et al. (2003), Ivanova (2007) und Ivanova et al. (2008) zeigen, dass die Bestimmung der Wirbelgrenze nach diesem Verfahren lokal nicht sehr exakt ist, da die Auflösung der zugrunde liegenden meteorologischen Parameter nicht ausreicht um kleinskalige dynamische Strukturen am Wirbelrand zu berücksichtigen. Daher ist eine Auflösung kleinskaliger dynamischer Prozesse im Bereich des Wirbelrandes nicht möglich [Proffitt et al., 2003].

Die einzelnen, durch Transportbarrieren voneinander getrennten Bereiche der Stratosphäre sind in sich gut durchmischt. Daher weisen langlebige Spurengase innerhalb des Polarwirbels und innerhalb mittlerer Breiten nur relativ geringe horizontale Gradienten auf. Zwischen den unterschiedlichen Bereichen bilden sich, wie oben beschrieben, jedoch Gradienten aus [z.B. Müller et al., 2005, Ivanova, 2007]. Aufgrund dieser Besonderheit können Spurengasmessungen langlebiger Substanzen zur Bestimmung der Polarwirbelgrenze herangezogen werden. Greenblatt et al. (2002), Jost et al. (2002) und Ivanova (2007) zeigen, dass mit Hilfe solcher hochaufgelösten Spurengasmessungen eine sehr viel exaktere Bestimmung der Wirbelgrenze möglich ist, so dass auch kleinskalige Strukturen am Wirbelrand analysiert werden können.

In Abbildung 1.2 ist die geographische Verteilung des N_2O -Gradienten im Simulationsergebnis des CLaMS-Modells dargestellt. Die Abbildung zeigt den nach dem Betrag maximalen Gradienten der N_2O -Mischungsverhältnisse als Funktion der äquivalenten Breite, der die Grenze zwischen dem Polarwirbel und den mittleren Breiten kennzeichnet am 24.12.2009 bei einer äquivalenten Breite von 65° - $70^\circ N$. Die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996), bei einer äquivalenten Breite von $70^\circ N$, stimmt mit dem rechten Rand des Bereichs, in dem sich der stärkste N_2O -Gradient befindet überein. In der unteren Stratosphäre, dem Höhenbereich ($\Theta < 520 K$), in dem die Messungen, die dieser Studie zugrunde liegen durchgeführt wurden, zeigen die Isolinien der „modified potential vorticity“ (Abk.: *mPV*; Details siehe Anhang D.2) wie auch die Wirbelgrenze nach Nash sehr starke breitenabhän-

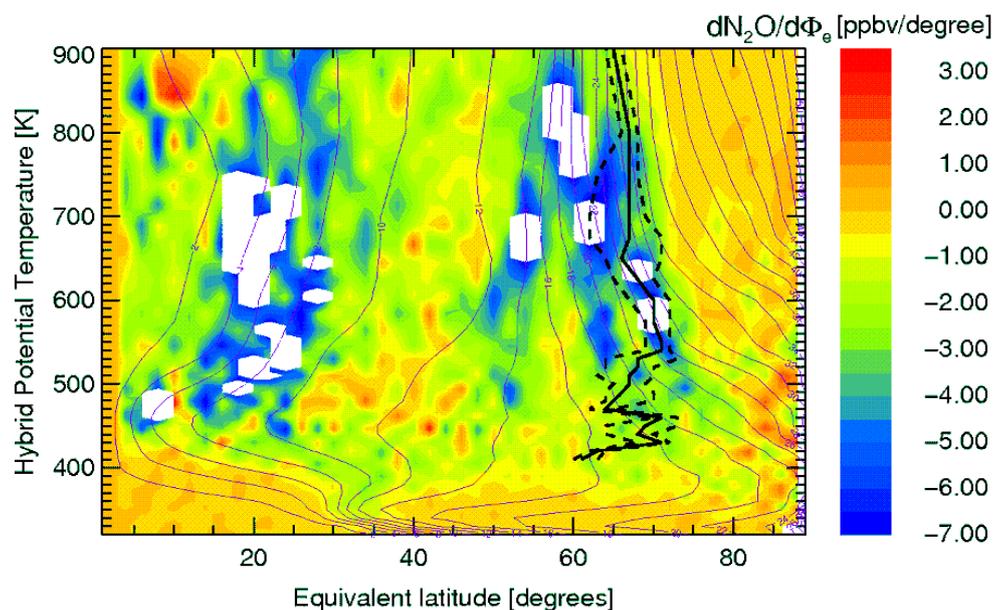


Abbildung 1.2: Geographische Verteilung des Gradienten der N_2O -Mischungsverhältnisse mit der äquivalenten Breite aus CLaMS am 24.12.2009. Als schwarze Linie eingezeichnet ist die Position der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) für diesen Tag, die gestrichelten Linien kennzeichnen die Positionen der inneren und äußeren Wirbelgrenze (siehe C.3.1). Die dünnen Linien stellen Isolinien der mPV dar (Details siehe C.2).

gige Schwankungen. Bei Verwendung dieser Größen zur Interpretation von Messungen in diesem Höhenbereich müssen diese Schwankungen berücksichtigt werden. Die Grenze des passiven Tracers P3 im CLaMS-Modell, der die äußere Wirbelgrenze repräsentiert (Details siehe Kapitel 3.3), bei 19,8 mPVU stimmt mit dem Zentrum des N_2O - Gradienten überein.

Die Übereinstimmung zwischen der nach PV definierten Wirbelgrenze und der Definition aufgrund von Spurengasmessungen besteht nur solange keine Transportprozesse über den Wirbelrand vorliegen, da sich die zugrunde liegenden Größen bei Transportprozessen unterschiedlich verhalten. Während die Spurengase passiv transportiert werden und ihre Mischungsverhältnisse sich nur durch Mischung, also langsame Prozesse (Zeitskala: mehrere Tage bis Wochen) verändern können, wird die PV zwar auch passiv transportiert, verändert sich dann aber schnell (Zeitskala: einige Tage) entsprechend der neuen dynamischen Situation. Die Definition der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) zeigt also die momentane dynamische Grenze des Polarwirbels. Die sich nur langsam verändernden Spurengasmischungsverhältnisse können als Indikator für die Herkunft der Luftmasse verwendet werden, geben aber keine Auskunft über die momentane dynamische Situation. Der direkte Vergleich zwischen der momentanen dynamischen Situation, beschrieben durch die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) und der Herkunft der Luftmassen, gekennzeichnet durch die Spurengasmischungsverhältnisse, kann zur Analyse von Transportprozessen über den Wirbelrand verwendet werden, wie in den Kapiteln 3 und 4 gezeigt wird.

1.2.3 Korrelationsanalyse zur Identifikation von Mischung

Wie in Kapitel 1.2.1 dargelegt, hat die Einmischung von Luft aus mittleren Breiten in den Polarwirbel einen großen Einfluss auf den Ozonverlust im polaren Frühjahr. Aus der Verteilung eines Spurengases bezogen auf die momentane dynamische Situation können Transportprozesse über den Wirbelrand identifiziert werden. Es kann aber nicht festgestellt werden, ob die transportierten Luftmassen mit den umgebenden Luftmassen vermischt wurden. In den letzten Jahren haben sich Tracerkorrelationen als ein geeignetes Werkzeug zur Untersuchung von Transport- und Mischungsprozessen über Transportbarrieren hinweg etabliert (Boering et al., 1994; Volk et al., 1996b; 1997; Plumb et al., 2000; 2002; 2007; Hoor et al., 2002; Ray et al., 2002; Jost et al., 2002; Müller et al., 2005). Das erstmals von Plumb und Ko (1992) vorgestellte Verfahren beruht darauf, dass langlebige Tracer trotz unterschiedlicher Quellen und Senken geometrisch ähnliche Verteilungen in der Stratosphäre zeigen.

Trägt man die Mischungsverhältnisse zweier Tracer, χ_1 und χ_2 , gegen einander auf, so ergibt sich eine kompakte Korrelation (vgl. schematische Darstellung in Abbildung 1.3(b)). Diese kompakte Korrelation ist die Konsequenz aus einem anisotropen Transport mit quasi-horizontaler Mischung, die deutlich schneller ist als die vertikale Advektion [Plumb, 2007]. Durch die Transportbarrieren zwischen den Tropen und mittleren Breiten bzw. den mitt-

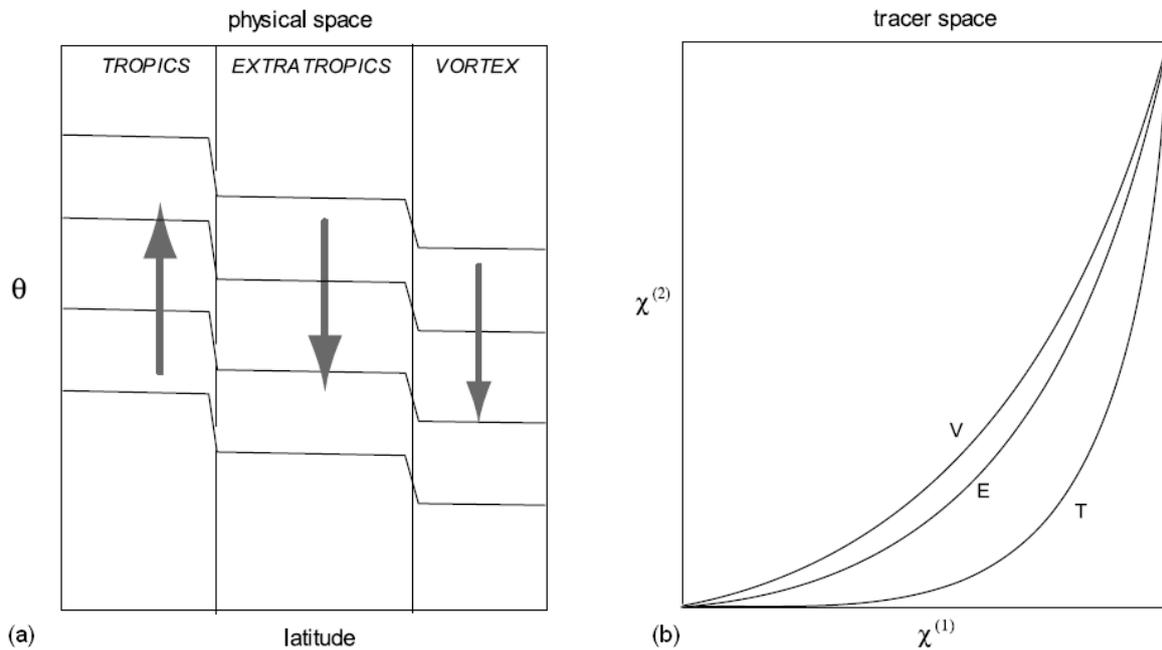
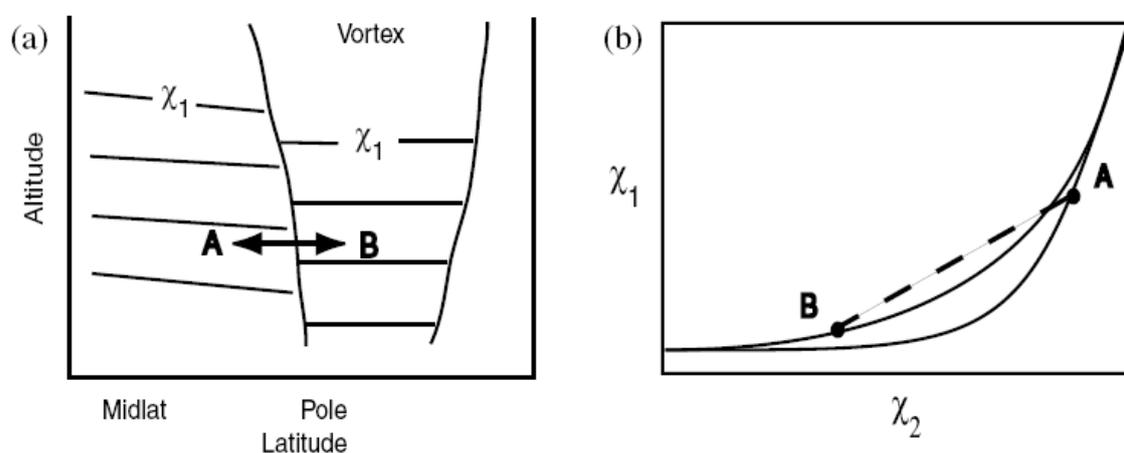


Abbildung 1.3: (a) Schematische Darstellung der Tracer - Isoplethen in den Tropen, mittleren Breiten und dem Polarwirbel für verschiedene potenzielle Temperaturen θ (siehe C.1); (b) Schematische Darstellung der sich ausbildenden Korrelationskurven bei Auftragung der Mischungsverhältnisse χ_1 und χ_2 zweier langlebiger Spurengase in den einzelnen durch Transportbarrieren getrennten Bereichen der Stratosphäre [Plumb, 2007].

leren Breiten und Polarwirbeln, über die hinweg nur ein sehr geringer Austausch von Luft stattfindet, sind die einzelnen Bereiche durch unterschiedliche Mischungsverhältnisse charakterisiert (vgl. schematische Darstellung in Abbildung 1.3(a)). Innerhalb der einzelnen Bereiche dominiert die quasi-horizontale Mischung, so dass es, wie Abbildung 1.3(b) zeigt, zu unterschiedlichen Tracerkorrelationen in den einzelnen Gebieten kommt (vgl. Plumb, 2007).

Der Einfluss von Mischung über die Transportbarrieren hinweg auf die Korrelationskurven wird am Beispiel von Mischung über die Polarwirbelgrenze hinweg erläutert.

Mixing of Midlatitude Air Into the Vortex



Mixing Within the Vortex

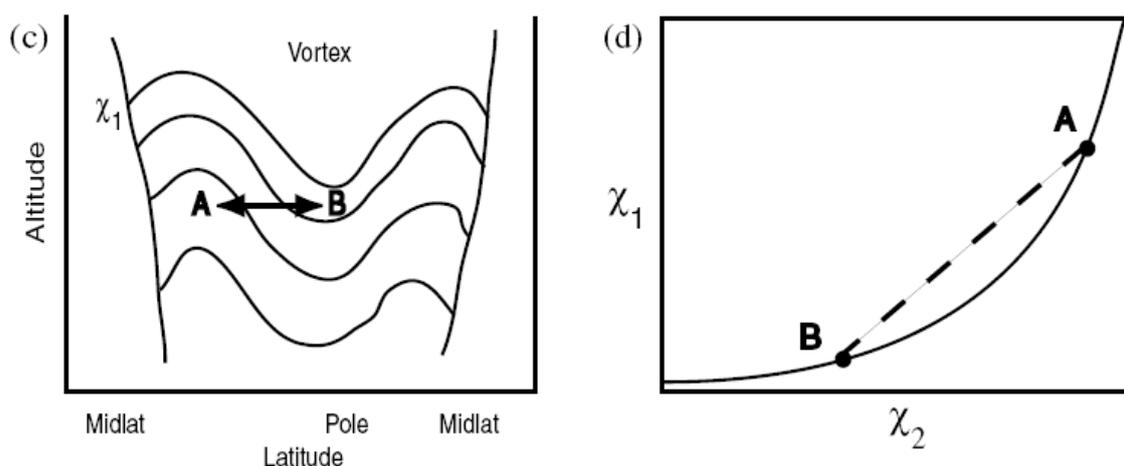


Abbildung 1.4: (a) Mischung zwischen Luft aus mittleren Breiten und Polarwirbelluft im geographischen Raum und (b) in Tracerkoordinaten als Mischungslinien zwischen Korrelationskurven; (c) Mischung innerhalb des Polarwirbels im geographischen Raum und (d) als Mischungslinien zwischen Korrelationskurven im Tracerraum [Ray et al., 2002].

Wie oben schon beschrieben, sinkt die Luft innerhalb des Polarwirbels nach unten ab. Dadurch erhält man auf gleicher Höhe innerhalb des Polarwirbels andere Mischungsverhältnisse als außerhalb. Mischung erfolgt in der Regel auf isentropen Flächen. Wird Luft über eine Transportbarriere, hier die Polarwirbelgrenze, hinweg vermischt, so vermischt sich, wie die schematische Darstellung 1.4(a) zeigt, Luft unterschiedlicher Mischungsverhältnisse miteinander. Betrachtet man eine solche Mischung in Tracerkoordinaten (vgl. schematische Darstellung in Abbildung 1.4(b)), werden irreguläre Korrelationen zwischen den Tracern gebildet. Im Fall eines kürzlich erfolgten, singulären Mischereignisses erscheinen diese irregulären Korrelationen als Mischungslinien zwischen den ursprünglichen Korrelationen. Die Endpunkte der Mischungslinien liegen bei der gleichen potenziellen Temperatur (siehe C.1) auf den jeweiligen Ausgangskorrelationen und kennzeichnen die Ausgangsluftmassen. Vermischte Luftpakete haben Mischungsverhältnisse, die zwischen den beiden Extrempunkten liegen, und so eine Mischungslinie innerhalb der Korrelation bilden [vgl. Ray et al., 2002, Plumb et al., 2000; 2007].

Im Fall eines sehr inhomogenen Polarwirbels kann es auch zu Mischungsprozessen innerhalb des Polarwirbels kommen. Bei einem inhomogenen Polarwirbel entstehen horizontale Gradienten in den Mischungsverhältnissen (vgl. Abbildung 1.4(c)). Mischungsprozesse, wie sie in Abbildung 1.4(c) schematisch dargestellt sind, gleichen die entstandenen Gradienten aus. In Tracerkoordinaten bildet diese Art von Mischung Mischungslinien, deren Endpunkte auf derselben Korrelation liegen (vgl. schematische Darstellung 1.4(d)) [Ray et al., 2002]. Die Ausbildung der Korrelation im Polarwirbel selbst ist auch eine Folge von interner Mischung. Während die Transportbarriere am Rand der Tropen das ganze Jahr über existiert, besteht die Transportbarriere am Polarwirbelrand nur im polaren Winter. Bei Bildung des Polarwirbels im Herbst ist die Korrelation im Polarwirbel zunächst identisch mit der in mittleren Breiten. Die Korrelation in mittleren Breiten wird durch kontinuierliche Einmischung aus den Tropen erhalten. Die Luft im Polarwirbel ist von diesem tropischen Einfluss isoliert, gleichzeitig sinkt die Luft im Wirbel ab. Durch das Absinken der Luftmassen werden die Vertikalprofile der Spurengase verändert, insbesondere wird der Gradient in der unteren Stratosphäre verstärkt. Eine Vielzahl kleiner anomaler Mischungsprozesse im Polarwirbel führt dann zur Ausbildung einer neuen Korrelation, die sich von der Ausgangskorrelation unterscheidet.

1.3 Ozonverteilung und Ozonverlust

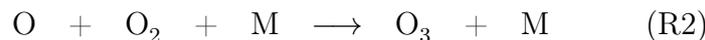
In diesem Abschnitt wird ein kurzer Überblick über die Ozonbildung und -verteilung in der Stratosphäre und die chemischen Prozesse, die im polaren Frühjahr zu starkem Ozonverlust führen, gegeben. Ausführlichere Darstellungen finden sich in den Übersichtsartikeln von Solomon (1999) und Müller (2009) und darin angegebenen Referenzen.

1.3.1 Ozonbildung und Ozonabbau in der Stratosphäre

Die Ozonbildung in der Stratosphäre erfolgt hauptsächlich durch den von Chapman (1930) beschriebenen Zyklus. Darin wird zunächst molekularer Sauerstoff photolysiert:



Die Photolyse erfolgt bei Wellenlängen unterhalb von 242 nm [Kapitel 12, Finnlayson - Pitts und Pitts, 2000]. Der in R1 gebildete atomare Sauerstoff reagiert unter Verwendung eines Stoßpartners M, der chemisch unverändert bleibt, mit molekularem Sauerstoff:



Das gebildete Ozon wird in der Regel sehr schnell (Wellenlänge ≤ 336 nm) wieder photolysiert:



Durch die Reaktionen R2 und R3 befinden sich Ozon und atomarer Sauerstoff im photochemischen Gleichgewicht. Eine weitere Reaktion zum Abbau von Ozon in der Stratosphäre ist die Stoßreaktion mit atomarem Sauerstoff:



Mit Hilfe dieses Reaktionszyklus allein kann das in der Stratosphäre beobachtete Ozonvorkommen nicht vollständig erklärt werden. Weitere katalytische Zyklen werden benötigt um das beobachtete Ozonvorkommen erklären. Die wichtigsten katalytischen Zyklen werden angetrieben durch HO_x -Radikale, NO_x -Radikale und ClO_x -Radikale [Solomon, 1999; Müller, 2009]. Weitere Details zu den katalytischen Zyklen finden sich in Solomon (1999) und Müller (2009) und in den in diesen Werken angegebenen Referenzen.

In der oberen Stratosphäre wird die Ozonverteilung durch das Gleichgewicht zwischen Ozonproduktion durch Photolyse und dem Abbau durch die oben genannten katalytischen Gasphasen-Reaktionen bestimmt, in der unteren Stratosphäre werden zusätzlich heterogene Reaktionen auf Aerosol und Wolkenpartikeln wichtig [z.B. Solomon et al., 1986; Peter, 1997; Solomon, 1999].

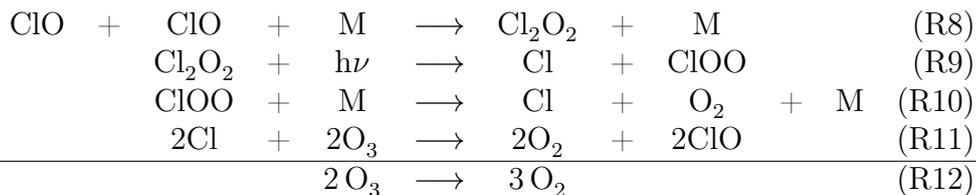
1.3.2 Ozonverteilung

Die Ozonverteilung wird in der gesamten Stratosphäre durch die photochemische Produktion, die photochemische Zerstörung, durch katalytische Zyklen und durch Transportprozesse bestimmt. Durch die Brewer-Dobson-Zirkulation wird Ozon von den Tropen aus polwärts und dort abwärts transportiert. Aufgrund der kurzen photochemischen Lebensdauern in der oberen Stratosphäre spielt Transport dort für die Ozonverteilung keine große Rolle. In der unteren Stratosphäre, wo die photochemischen Lebensdauern deutlich länger sind, dominiert im allgemeinen der Transport die Ozonverteilung.

1.3.3 Polarer Ozonabbau

Farman et al. (1985) brachten als erste den in der Antarktis beobachteten, sehr starken Ozonverlust im polaren Frühjahr in Zusammenhang mit dem in dieser Zeit zunehmenden Vorkommen von anthropogenen Fluorchlorkohlenwasserstoffen in der Atmosphäre. Der Abbau von Ozon durch Chlornradikale, die Fluorchlorkohlenwasserstoffen entstammen, in der Stratosphäre wurde einige Jahre zuvor durch Molina und Rowland (1974) beschrieben. Nach dem heutigen Stand der Forschung sind die Quellgase für den chemischen Ozonverlust Halogenverbindungen wie Fluorchlorkohlenwasserstoffe und Bromverbindungen, die in der unteren Atmosphäre chemisch inert sind [WMO, 2010]. In der Stratosphäre werden durch photochemisches Aufbrechen die Quellgase hauptsächlich in sogenannte Reservoirspezies umgewandelt, die zunächst kein Ozon abbauen [Solomon, 1999]. Im Fall von Chlorverbindungen sind die wichtigsten Reservoirspezies HCl und ClONO₂.

Die niedrigen Temperaturen im Polarwirbel führen dazu, dass zunächst Salpetersäuretrihydrat (engl.: *nitric acid trihydrate*; Abk.: *NAT*) und bei weiterer Abkühlung dann auch Wasser ausfriert. Beide Vorgänge führen zur Bildung von polaren stratosphärischen Wolken (engl.: *polar stratospheric clouds*; Abk.: *PSC*). Eine dritte Klasse von PSCs entsteht durch sogenannte „supercooled ternary solutions“ (Abk.: *STS*). Diese aus flüssigen Teilchen bestehenden PSCs werden bei Temperaturen unterhalb von 192 K gebildet, indem existierende, aus einer binären H₂SO₄-H₂O-Lösung bestehende Tröpfchen HNO₃ aus der Gasphase aufnehmen und so Tropfen, bestehend aus einer ternären H₂SO₄-HNO₃-H₂O-Lösung, bilden [Carslaw et al., 1994]. Auf der Oberfläche der PSC finden heterogene Reaktionen statt, die die Reservoirspezies in aktives Chlor oder Brom umwandeln [z.B. Solomon et al., 1986; Peter, 1997; Solomon, 1999]. Eine weitere Oberfläche für die Halogenaktivierung ist Hintergrundschwefelsäureaerosol [z.B.: Solomon, 1999]. Ein aktueller Forschungsgegenstand ist die Aktivierung auf sogenanntem „cold binary aerosol“ [Drdla und Müller, 2012; Wegner et al., 2012; Wolthmann et al., 2013]. Durch die Bildung der PSC werden Stickstoffverbindungen aus der Gasphase entfernt, die die aktivierten Chlor- und Bromverbindungen wieder deaktivieren könnten. Bei diesem Prozess spricht man von Denitrifizierung der entsprechenden Luftschicht [Schoeberl und Hartmann, 1991]. Mit dem ersten Sonnenlicht wird das meiste aktivierte Chlor in ClO [Molina und Molina, 1987], das aktivierte Brom in BrO [McElroy et al., 1984] umgewandelt. Dadurch werden zwei katalytische Prozesse in Gang gesetzt, die jeweils zum Verlust von zwei Ozonmolekülen pro Zyklus führen; M beschreibt in diesen Gleichungen einen neutralen Stoßpartner [Molina und Molina, 1987; Solomon, 1999]:





Obwohl die Emission der Fluorchlorkohlenwasserstoffe durch das Montreal-Protokoll (1987) und die Folgeprotokolle reglementiert wurde, gehen die Konzentrationen dieser Spezies in der Atmosphäre aufgrund ihrer langen Lebensdauern (z.B. F11 ca. 50 Jahre, F12 ca. 100 Jahre) nur sehr langsam zurück. Die Erholung der Ozonschicht, d.h. die Rückkehr zu Konzentrationen, wie sie 1980 gemessen wurden, wird von Modellen für Mitte dieses Jahrhunderts prognostiziert [WMO, 2010]. Waugh et al. (2009) zeigen, dass die Erholung der Ozonschicht nicht alleine vom Rückgang des atmosphärischen Vorkommens an Chlorspezies abhängt, sondern auch durch Änderungen der atmosphärischen Dynamik und der Zusammensetzung der Atmosphäre, bedingt durch Klimaänderungen, beeinflusst wird. Für die Südhemisphäre zeigen Polvani et al. (2011), dass die reduzierte Ozonschicht im antarktischen Frühjahr eine veränderte atmosphärische Dynamik in der Südhemisphäre zur Folge hat. In der Arktis ist ein maßgeblicher Faktor für den Ozonverlust im Frühjahr die Stabilität des Polarwirbels. Einflüsse, die der Klimawandel auf die Stabilität des Polarwirbels haben kann, wurden bereits in Abschnitt 1.2 erwähnt. Eine weitere mögliche Folge des Klimawandels könnten zunehmend kältere Winter in der arktischen Stratosphäre sein, in denen bei einem stabilen Polarwirbel der Ozonabbau durch die niedrigeren Temperaturen begünstigt wird, bis hin zu einem nahezu vollständigen Abbau des Ozons, wie er im Winter 2011 zum ersten Mal in der Arktis beobachtet werden konnte [Rex et al., 2004 und 2006; Manney et al., 2011].

1.4 Transport und Mischung in der arktischen Polarregion im Winter 2009/2010

In den vorangegangenen Abschnitten wurde dargelegt, welchen Einfluss Transport und Mischung über die Polarwirbelgrenze hinweg auf den Polarwirbel und mittlere Breiten, insbesondere auf die Ozonschicht in diesen Regionen, haben kann. Die Stärke des Transportes in beide Richtungen über die Wirbelgrenze hinweg und die Frage, wie schnell sich die transportierten Luftmassen mit der umgebenden Luft vermischen, spielt eine wichtige Rolle für die Ozonschicht in der entsprechenden Region. Für Prognosen über die Entwicklung der Ozonschicht ist von daher die korrekte Darstellung der Transportbarriere in den entsprechenden Modellen notwendig, damit die Transport- und Mischungsprozesse, die am Wirbelrand stattfinden in den Simulationen korrekt wiedergegeben werden.

Verschiedene Studien in den vergangenen Jahren haben sich mit Transportereignissen über die arktische Polarwirbelgrenze beschäftigt und gezeigt, welchen Einfluss solche Transporte auf die Ozonschicht im Polarwirbel und in mittleren Breiten haben [z.B.: Knudsen und Grooß, 2000; Morgenstern et al., 2002; Rex et al., 2006; Manney et al., 2009]. Die meisten beobachteten Transportereignisse standen dabei in Zusammenhang mit einem Zusammen-

brechen des Wirbels in Folge eines „sudden stratospheric warming“. Einige dieser Studien haben dabei auch gezeigt, dass diese größeren Transportereignisse von den Transportmodellen recht gut wiedergegeben werden können [z.B. für das CLaMS Modell: Konopka et al., 2003; Konopka et al., 2004; Günther et al., 2008]. Aber auch kleinskalige Transporte von Luft aus mittleren Breiten über die Polarwirbelgrenze hinweg können Einfluss auf die chemische Zusammensetzung der Polarwirbelluft haben. Insbesondere in dynamisch weitestgehend inaktiven Wintern, in denen größere Transporte von Luftmassen aus mittleren Breiten in den Polarwirbel ausbleiben und die Bedingungen für einen sehr starken chemischen Ozonverlust vorhanden sind, haben solche kleinskaligen Transporte Einfluss auf das Ozonvorkommen im Polarwirbel. Die Validierung solcher kleinskaligen Transport- und Mischungsprozesse in Modellen kann nur durch den Vergleich der Modellsimulationen mit hochaufgelösten in-situ Spurengasmessungen vorgenommen werden, da Satellitenmessungen nicht die notwendige horizontale Auflösung erreichen.

Mit dem Messinstrument HAGAR an Bord des Höhenforschungsflugzeugs Geophysica wurden im Rahmen des RECONCILE Projektes im arktischen Winter 2009/2010 hochaufgelöste Spurengasmessungen in der Polarregion vorgenommen, die die Grundlage für diese Studie bilden (Kapitel 2). Neben der hohen Auflösung ist die sehr gute Präzision der Spurengasmessungen eine Voraussetzung für die Untersuchung kleinskaliger Strukturen und die Analyse von Mischungsprozessen.

Die Definition eines empirischen Vortexindex, basierend auf den hochaufgelösten N_2O -Messungen erlaubt die Identifikation von Transportereignissen verschiedenen Ausmaßes über die Polarwirbelgrenze hinweg (Kapitel 3). Mit Hilfe dieser Transportanalyse kann also festgestellt werden, wie stark der Transport über die Polarwirbelgrenze im untersuchten Zeitraum war. Aufgrund der dynamischen Besonderheiten des untersuchten Winters wurden sowohl kleinskalige als auch größerskalige Transportprozesse beobachtet. Durch die Korrelationsanalyse langlebiger Spurengase konnte dann weiter untersucht werden, ob die beobachteten Transporte von Luftmassen durch Vermischung dieser Luftmassen mit der umgebenden Luft begleitet waren und wie schnell diese Vermischung vonstatten ging. Die Messungen erlauben sowohl einen Überblick über Transport und Mischung im gesamten Messzeitraum, als auch die Untersuchung einzelner Ereignisse. Der Vergleich der Beobachtungen mit Simulationen des CLaMS Modells zeigt wie gut Transport und Mischung im gesamten Kampagnenzeitraum vom Modell wiedergegeben werden. In den Fallstudien wird dann auch überprüft, wie gut einzelne Ereignisse durch das Modell dargestellt werden können.

Aus der Entwicklung der O_3 - N_2O -Korrelation wird in Kapitel 5 der chemische Ozonverlust im Winter 2009/2010 bis Anfang März abgeschätzt. Hierbei wird der Einfluss von Mischung auf die Korrelation diskutiert. Weiterhin wird der Einfluss dieser Einmischung auf die Ozonschicht im Polarwirbel gezeigt und die Auswirkungen auf die Bestimmung des chemischen Ozonverlustes untersucht.

Kapitel 2

Messungen

Die Messungen, die die Grundlage dieser Arbeit bilden, wurden mit dem High Altitude Gas Analyzer (HAGAR) während der RECONCILE-Kampagne durchgeführt. In diesem Kapitel werden das Instrument, die Prozessierungsmethoden und die Kampagne kurz vorgestellt. Insbesondere werden die Funktion von HAGAR während RECONCILE und Änderungen in der Prozessierung gegenüber früheren Kampagnen, sowie durchgeführte Korrekturen erläutert.

2.1 Der High Altitude Gas Analyzer

HAGAR wurde an der Universität Frankfurt am Main entwickelt und gebaut. Er besteht aus zwei Hauptbestandteilen, einem 2-Kanalgaschromatographen (GC) mit Elektroneneinfangdetektoren (engl.: *electron capture detector*; Abk.: *ECD*) und einem kommerziellen CO₂-Sensor (LI-COR-6251). Da das Instrument speziell für den Einsatz auf einem Stratosphärenballon oder an Bord der Geophysica, wo die Instrumente in unbedruckten Bays installiert werden, entwickelt wurde, befinden sich beide Teile in einem druck- und temperaturkontrollierten Kessel, der diese Parameter konstant hält [Strunk, 1999; Riediger, 2000]. Gemessen werden mit HAGAR die Spurengase N₂O, F12 (CCl₂F₂), F11 (CCl₃F), H-1211 (CBrClF₂), CH₄, SF₆ und H₂ mit einer Zeitauflösung von 90 s mit der GC-ECD Technik und CO₂ mit einer Zeitauflösung von 3 s mit nicht-dispersiver IR-Absorption. Die Luftzufuhr, sowohl für den GC wie auch für den CO₂-Sensor, erfolgt durch zwei parallel laufende Membranpumpen. Weiter können zwei Kalibrationsgase („Cal“ und „Span“) in die Probenschleife geleitet werden. Als Kalibrationsgase werden Außenluftgemische verwendet, eines mit troposphärischen Mischungsverhältnissen (Cal) und eines mit typischen stratosphärischen Mischungsverhältnissen (Span). Zu Diagnosezwecken ist es auch möglich, das Kalibrationsgas über die Pumpe in das System zu geben („Cal-to-Pump“ Modus). Kontrolliert wird das System über einen onboard-Computer, der auch einen vollautomatischen Betrieb erlaubt. Die Signalauslese erfolgt über einen analog-digital-Wandler mit 16 bit Auflösung. Die Daten werden auf einer Flashcard gespeichert, die via Ethernet ausgelesen werden kann.

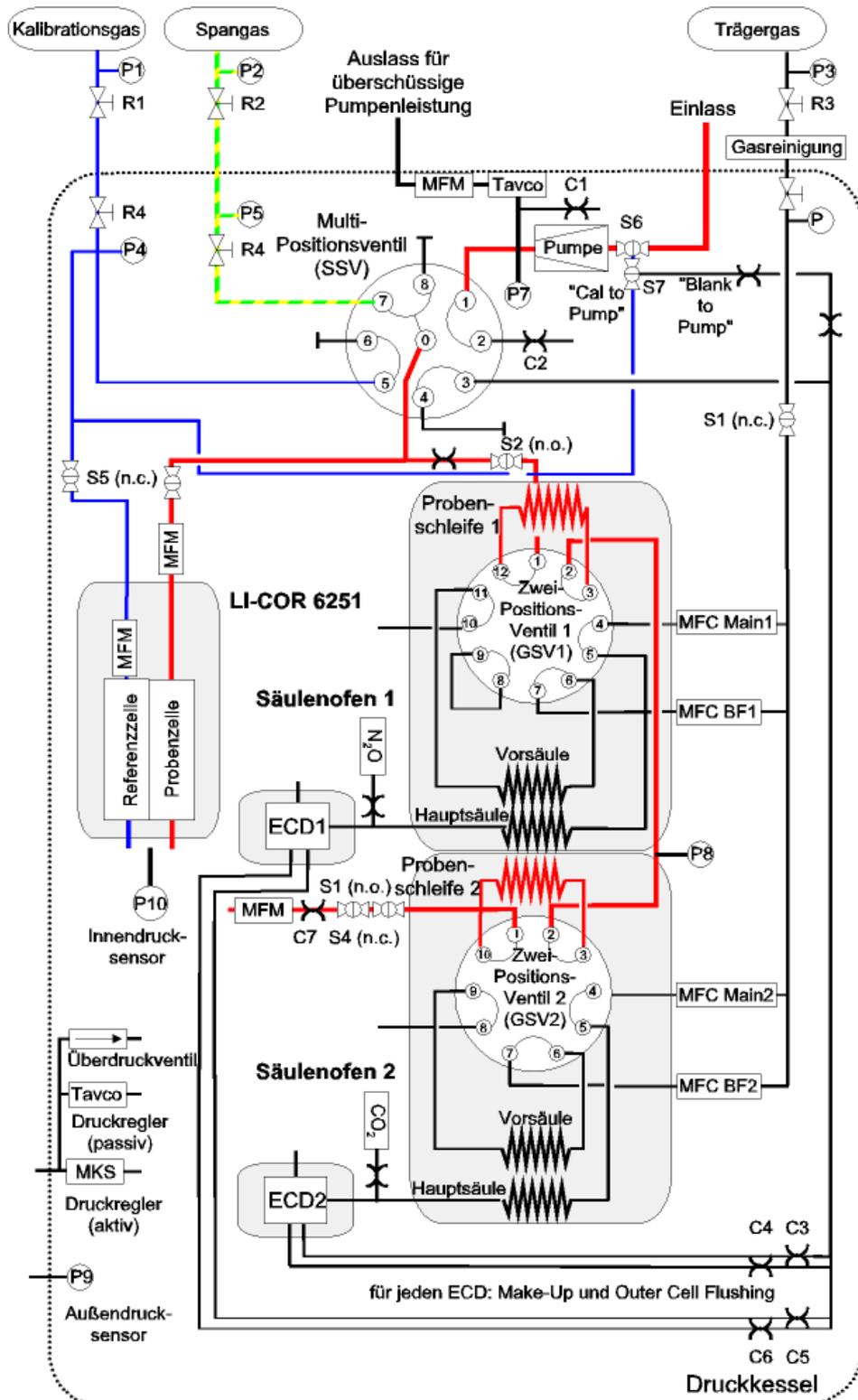


Abbildung 2.1: Gaslaufplan für HAGAR. Der Weg des Trägergases Stickstoff ist in schwarz eingezeichnet, die der Kalibrationsgase in blau (Cal) und gelb/grün (Span) und der des Probenflusses in rot [Werner, 2007].

Die äußeren Abmessungen von HAGAR betragen 55 cm (Höhe) x 45 cm (Durchmesser), das Gewicht mit Befestigungsrahmen und drei Gasflaschen für den Flugbetrieb beträgt ca. 85 kg. Ausführlichere Informationen finden sich in Strunk (1999), Riediger (2000) und Werner (2007).

2.1.1 GC-ECD

Das GC-ECD System von HAGAR beinhaltet zwei parallele Chromatographiekkanäle. Jeder dieser Kanäle besteht aus einem Säulenofen, der die Probenschleife sowie die an ein 2-Positionsventil (in Abbildung 2.1 als Gas sampling valve (GSV) bezeichnet) angeschlossenen Vor- und Hauptsäulen enthält, und einem ECD. Als Säulen werden 1/8" Edelstahlrohre, gepackt mit verschiedenen Säulenmaterialien, verwendet. Die Vor- und Hauptsäulen werden kontinuierlich mit dem Trägergas Stickstoff gespült, der Gasfluss wird durch Massenflussregler kontrolliert. Die folgende Tabelle 2.1 zeigt eine Übersicht über die einzelnen Parameter der zwei GC-Kanäle für die RECONCILE-Kampagne und über die Substanzen, die mit diesen Kanälen gemessen werden.

Tabelle 2.1: Parameter des HAGAR - GC während RECONCILE

Parameter	Kanal 1	Kanal 2
Probenschleife	2,5 ml	2 ml
Vorsäule: Material	Molsieb 5Å 60/80 mesh	Porasil-C, n-Oktan 80/100 mesh
Länge	0,7 m	0,80 m
Innendurchmesser	2,38 mm	2,38 mm
Hauptsäule: Material	Molsieb 5Å 60/80 mesh	Porasil-C n-Oktan 80/100 mesh
Länge	1,50 m	1,80 m
Innendurchmesser	2,38 mm	2,38 mm
Temperatur	74°C	92,5°C
ECD	Shimadzu	Siemens
ECD Temperatur	350°C	350°C
Spezies	SF ₆ H ₂ CH ₄	N ₂ O F12 H-1211 F11
Dopinggasmischungsverhältnis	35 ppm N ₂ O	200 ppm CO ₂ (während des N ₂ O Peaks)

Kontaminationen im Trägergas würden zu einer Erhöhung des Rauschens und zu einer geringeren Sensitivität der ECD führen, daher wird als Trägergas Stickstoff 5.0 (Reinheit

$\geq 99,999\%$) verwendet. Zusätzlich wird das Trägergas vor Eintritt in das System mit einer mit Moleculite gefüllten Falle zur Entfernung von CO und H₂, einem Molekularsieb (Aluminium - Silizium - Oxid 13Å, Aktivkohle und einer kommerziellen Wasser-/Sauerstofffalle (OT3-2) gereinigt.

Die Probennahmezeit beträgt 2 - 3 s, so dass eine Probe ein Gemisch der über diesen Zeitraum gesammelten Luft darstellt. Die gesamte Chromatographiezeit beträgt 90 s [Werner, 2007]. Mit dem Trägergas werden die in der Säule aufgetrennten Substanzen in den ECD transportiert, wo sie detektiert werden (Details zur Funktionsweise eines ECD finden sich in Lovelock (1958) und (1974)). Moleküle, die Atome mit hohen Elektronegativitätsunterschieden beinhalten, können, bedingt durch die Funktionsweise des ECD, gut nachgewiesen werden [vgl. Lovelock, 1958 und Lovelock, 1974]. Moleküle, deren Atome einen geringeren Elektronegativitätsunterschied aufweisen, können durch Zugabe von dritten Komponenten im ECD zur Reaktion gebracht werden. So reagiert N₂O in Gegenwart von CO₂ leichter und CH₄ in Gegenwart von N₂O [vgl. Lovelock, 1974, Phillips et al., 1979]. Diese Gase werden in geringen Konzentrationen als sogenannte Dopinggase in den entsprechenden Detektor injiziert. Eine detaillierte Beschreibung der Dopingtechnik bei HAGAR findet sich in Werner (2007).

Die Datenprozessierung erfolgt mit dem Programm Igor Pro unter Verwendung des in Boulder und Frankfurt entwickelten NOAAChrom analysis package. Die Chromatogramme (10 Datenpunkte pro s) werden zunächst mit einem Savitzky-Golay-Filter (Schrittweite 15 Datenpunkte) geglättet. Dann wird nach dem bei Volk (1996a) vorgestellten Verfahren die Basislinie unter den einzelnen Peaks ermittelt (Details zu diesem Verfahren finden sich in Volk (1996a) und Ivanova (2007)). Das Mischungsverhältnis der einzelnen Substanzen wird über die Peakhöhe, die Differenz zwischen Peakmaximum und Basislinie, der einzelnen Chromatogramme berechnet. Eine Ausnahme bildet die Auswertung von H-1211. Hier wird zunächst eine Gaußkurve über einer exponentiell ansteigenden Basislinie an den Peak angefitet und deren Höhe berechnet. Eine detaillierte Beschreibung beider Verfahren findet sich bei Ivanova (2007). Mit Hilfe der in der Laborkalibration bestimmten Detektorkennlinie und den Cal und Span Punkten aus den Kalibrationen (vgl. Kapitel 2.1.3), wird eine Funktion bestimmt, mit deren Hilfe aus den jeweiligen Peakhöhen ein Mischungsverhältnis für die einzelnen Spurengase bestimmt wird (vgl. Ivanova, 2007). Eine Ausnahme bildet die Berechnung der F11 Mischungsverhältnisse. Hier wird die Funktion, durch die die Peakhöhen in Mischungsverhältnisse umgerechnet werden, durch die Cal- und Span-Punkte und den Punkt (0,0) festgelegt. Für H-1211 erfolgt nach dem, in Anhang A.1.3 dargestellten, Verfahren eine Korrektur der Daten.

2.1.2 LI-COR-6251

Für die CO₂-Messungen ist in HAGAR das kommerzielle Instrument LI-COR-6251 integriert, das parallel zum GC mittels nicht-dispersiver Infrarotabsorption die CO₂-Mischungsverhältnisse misst. Als Messprinzip wird die Differenzmessung zu einem Referenzgas mit bekannter CO₂ - Konzentration verwendet. Das LI-COR enthält zwei gleich aufgebaute,

parallele Messzellen, die Referenzgaszelle und die Messzelle. Bei der Differenzmessung wird in die Referenzgaszelle des LI-COR kontinuierlich das Kalibrationsgas Cal (30 ml/min) gegeben, in die Probenzelle die entsprechende Luftprobe mit einem Fluss von 300 ml/min. In Kalibrationsphasen wird das entsprechende Kalibrationsgas Cal oder Span, abwechselnd alle 7,5 min, in die Probenzelle gegeben. Beide Zellen werden mit Infrarotstrahlung durchleuchtet. Durch Anregung von Molekülschwingungen wird die IR-Strahlung absorbiert. Im Wellenlängenbereich um $4,26 \mu\text{m}$ findet die Absorption fast ausschließlich durch CO_2 und H_2O statt. Durch Vergleich der Absorption in der Probenzelle mit der in der Referenzzelle, sowie der Absorption bei den Kalibrationsphasen, kann das Mischungsverhältnis von CO_2 in der Luftprobe ermittelt werden. Die IR-Absorption durch H_2O kann in der Stratosphäre aufgrund der niedrigen H_2O -Mischungsverhältnisse vernachlässigt werden. Für Messungen in der Troposphäre und um den Restwassergehalt in stratosphärischen Luftproben zu entfernen wird die Luftprobe, bevor sie ins LI-COR gelangt, mittels Magnesium-Perchlorat getrocknet. Die eingesetzten Kalibrationsgase Cal und Span werden auf die allgemein gebräuchliche NOAA-Skala zurückgeführt.

Weitere Details zur Funktionsweise des LI-COR und zur Integration in HAGAR finden sich bei Riediger (2000) und vom Scheidt (2010).

Die Datenprozessierung erfolgt mit der Software Igor Pro. Die Daten (1 Datenpunkt pro s) werden bei der Prozessierung mit einem 3-Punkt Median-Filter gefiltert, um elektronische Spikes zu unterdrücken, atmosphärische aber berücksichtigen zu können. Die physikalische Auflösung der LI-COR-Messungen entspricht 5 s, der zweifachen Spülzeit der Messzelle [vgl. Riediger, 2000]. Um keine weitere Filterung vornehmen zu müssen, die die hochfrequente Variabilität der Atmosphäre unterdrücken würde, wurden die Daten in 3 s Schritten geschrieben. Eine detaillierte Beschreibung der Prozessierungsroutinen findet sich bei Riediger (2000) und vom Scheidt (2010).

2.1.3 HAGAR Kalibration

Zur Bestimmung der Mischungsverhältnisse der Spurengase und zur Kontrolle des Instrumentenstatus wurden während der Kampagne regelmäßige Kalibrationen durchgeführt. Die Kalibrationen wurden gleichzeitig sowohl für die GC-Messungen als auch für die LI-COR-Messungen durchgeführt. Während der Flüge wurde alle 7,5 min wechselweise eines der beiden Kalibrationsgase, Flugcal und Flugspan, in das System geleitet. Die zu diesem Zweck während der Flüge mitgeführten Flugkalibrationsgase sind Abfüllungen der Arbeitsstandards Cal und Span. Um die Stabilität der Flugkalibrationsgase zu überprüfen und eventuelle Abfüllfehler berücksichtigen zu können, wurden diese Flugkalibrationsgase zwischen den Flügen gegen die Arbeitsstandards kalibriert. Details zum Kalibrationsverfahren finden sich in Ivanova (2007), die Ergebnisse der Kalibrationen der Flugstandards gegen die Arbeitsstandards finden sich in Anhang A.2. Vor und nach der Kampagne erfolgte eine Kalibration der Arbeitsstandards gegen vier zertifizierte Standards, die von NOAA/GMD hergestellt wurden und gegen die international verwendete WMO-Skala kalibriert sind. Details zu diesen Laborkalibrationen und die Ergebnisse befinden sich in Anhang A.1.

Zusätzlich wurden im Rahmen der Laborkalibrationen für die mit dem ECD gemessenen Substanzen nichtlineare Detektor-Kennlinien bestimmt, mit deren Hilfe die Mischungsverhältnisse bestimmt wurden.

Da die Kampagnenkalibrationen keine Trends zeigen (vgl. Anhang A.2), wurden zur Berechnung der Mischungsverhältnisse die aus den Laborkalibrationen bestimmten Werte für Cal und Span verwendet. Eine Ausnahme bildet die Berechnung der CO₂- Mischungsverhältnisse in der zweiten Phase der Kampagne, hier wurde zur Berechnung der atmosphärischen Mischungsverhältnisse ein aus den Kampagnenkalibrationen ermittelter Spanwert verwendet (vgl. Anhang A.2.2)

2.2 RECONCILE

Die Hauptziele des EU-Projektes RECONCILE - Reconciliation of essential process parameters for an enhanced predictability of Arctic stratospheric ozone loss and its climate interactions, sind [vgl. von Hobe et al., 2012]:

- Verständnis der Transport- und Mischungsprozesse über die Polarwirbelgrenze hinweg und die korrekte Wiedergabe dieser Prozesse in Simulationen globaler Zirkulationsmodelle.
- Verdeutlichung der Prozesse der NAT-Nukleation, die zur Bildung von PSC führen, insbesondere der Rolle von Meteoritenstaub und der Mechanismen, die NAT-Partikel zu großen NAT-Teilchen mit einem Durchmesser von einigen μm , sogenannten NAT-Rocks, wachsen lassen.
- Untersuchung der Bedeutung der Chloraktivierung auf Hintergrundaerosol für die Chemie im Polarwirbel.
- Abbau der Unsicherheiten im Bezug auf die Parameter, die die katalytische Ozonverlustrate bestimmen.

Das Projekt umfasst dazu Laborstudien, zwei Feldkampagnen im Winter 2009/2010, eine Kampagne mit dem Höhenforschungsflugzeug Geophysica und eine Ozonsonden-“Match“-Kampagne sowie Modellstudien [von Hobe et al., 2012]. Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden im Rahmen der Geophysica-Kampagne durchgeführt. Die auf den Daten basierenden Analysen sollen einen Beitrag zum ersten Punkt leisten, in dem folgende Inhalte detaillierter untersucht werden sollen:

- Wie stark, in beide Richtungen, ist der Transport über den Wirbelrand hinweg?
- Wie schnell vermischen sich transportierte Luftmassen mit der umgebenden Luft?
- Wie beeinflusst der Transport über den Wirbelrand die Abschätzungen des Ozonverlustes?

- Wie kann die Darstellung der Transportbarriere am Wirbelrand in Modellen verbessert werden?

Weitere Details zum RECONCILE-Projekt finden sich in von Hobe et al. (2012) und auf der Internetseite <https://www.fp7-reconcile.eu>.

2.2.1 Geophysica-Feldkampagne

Die Geophysica-Feldkampagne fand zwischen dem 17.1.2010 und dem 5.3.2010 in Kiruna (67°49'N, 20°30'E), Nordschweden statt. Die Kampagne war in zwei Phasen mit einer 25-tägigen Pause im Februar unterteilt (1. Phase: 17.1. - 2.2., 2. Phase: 27.2. - 5.3.). Von der Basis Kiruna aus wurden 12 Flüge mit der Geophysica in die Region des Polarwirbels unternommen. In Abbildung 2.2 sind die projizierten Flugrouten der einzelnen Flüge während

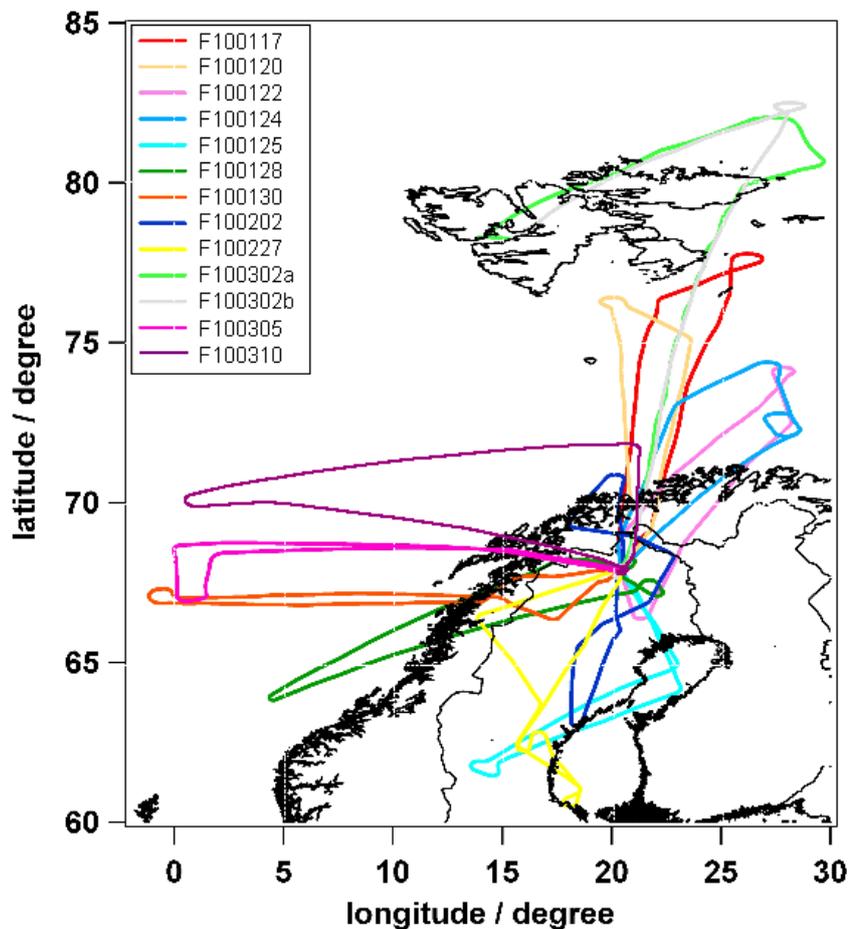


Abbildung 2.2: Flugrouten der RECONCILE- und PREMIER-EX-Kampagne [von Hobe et al., 2012].

der RECONCILE-Kampagne dargestellt. Im Anschluss an die RECONCILE-Kampagne fand am 10.3.2010 ein weiterer Flug im Rahmen des ESA-Projektes PREMIER-EX statt, der im folgenden als Flug 13 aufgeführt wird und in die Analysen mit eingeht.

Den einzelnen Flügen wurde, je nach meteorologischen Bedingungen, ein Forschungsziel zugeordnet. In der folgenden Tabelle 2.2 ist eine Übersicht über die Flugdaten, Start- und Landezeiten (in UTC) und die Ziele der einzelnen Flüge aufgelistet, in Tabelle 2.3 die Instrumentierung der Geophysica während RECONCILE und PREMIER-EX [vgl. von Hobe et al., 2012]:

Tabelle 2.2: Übersicht über die wissenschaftlichen Ziele der einzelnen Flüge. Die Uhrzeiten sind in UTC angegeben.

	Flugdatum	Start	Landung	Hauptziele
1	17.1.	11:20	15:33	PSC Mikrophysik
2	20.1.	8:13	11:55	PSC Mikrophysik CALIPSO Vergleich
3	22.1.	10:01	13:35	PSC Mikrophysik
4	24.1.	13:30	16:56	PSC Mikrophysik De-/Renitrifizierung
5	25.1.	5:50	9:19	PSC Mikrophysik De-/Renitrifizierung Self-Match-Experiment
6	28.1.	9:00	12:56	Dynamik Mischungsprozesse
7	30.1.	6:36	10:15	Self-Match-Experiment De-/Renitrifizierung
8	2.2.	10:01	13:31	Chloraktivierung De-/Renitrifizierung Ozonverlust Matchexperiment
9	27.2.	12:06	15:41	Mischungsprozesse (Wirbelfilament)
10	2.3.	2:51	6:31	Chloraktivierung De-/Renitrifizierung Ozonverlust
11	2.3	9:35	13:35	Chloraktivierung De-/Renitrifizierung Ozonverlust
12	5.3.	15:05	18:36	Mischungsprozesse (Wirbelfilament) Tracerrelease
13	10.3.	7:14	10:51	PREMIER-EX Ozonverlust

Tabelle 2.3: Instrumentierung der Geophysica während RECONCILE

Name	Messgröße	Messtechnik	Institut
CCP			
CIP			
COLD*	CO	2 Kanal CN Zähler	CNR
COPAS	Kondensationskeime (total, non-volatile)	Limb-Sounder/IR-Gitterspektrometrie	MPI Mainz
CRISTA-NF	F11, CCl ₄ , etc.	Lyman- α -photo-fragment Fluoreszenz	BUW
FISH	H ₂ O (total)	Lyman- α	FZJ
FLASH	H ₂ O (Gasphase)		CAO
FOZAN	O ₃	Chemilumineszenz	CAO and ISAC-CNR
FSSP-3000	Aerosole (0.4 - 40 μ m)	Laser particle spectrometer	MPI Mainz
HAGAR	CH ₄ , SF ₆ , H ₂ , N ₂ O, F12, H-1211, F11, CO ₂	GC-ECD und IR Absorption	BUW
HALOX	ClO, BrO, ClONO ₂	Resonanzfluoreszenz, therm. Dissoziation	FZJ
MAL	Remote Aerosolprofile	microjoule lidar	CSEM
MARSHALS**			
MAS	Aerosol optical properties	multi wavelength scattering	CNR
Max-DOAS	Säulendichten	optical absorption spectrometer	Uni Heidelberg
MIPAS-STR	Vertikalprofile von T, O ₃ , HNO ₃ , N ₂ O, CH ₄ , H ₂ O	IR Fourier-Transform-Spectrometer	KIT
SIOUX	NO, NO _y , particle NO _x	Chemilumineszenz; AU converter; subisokinetic	DLR
WAS	Spurengasotope	Probensammler	

* bei PREMIER-EX nicht installiert

** nur bei PREMIER-EX installiert

2.2.2 Messplattform M55-Geophysica

Die M55-Geophysica ist ein russisches Höhenflugzeug, betrieben durch die Firma Myasishchev Design Bureau (MDB). Mit einer maximalen Flughöhe von 21 km ist sie eine Platt-



Abbildung 2.3: M55-Geophysica beim Start, Kiruna, Schweden Februar 2010.

form, die sich sehr gut für stratosphärische in-situ Messungen eignet. Die Geophysica fliegt mit einer Reisegeschwindigkeit von 750 km/h, die maximale Flugdauer beträgt, bei voller Beladung etwa 4 Stunden. Das Flugzeug kann dabei mit wissenschaftlichem Equipment bis zu 1500 kg beladen werden. Die 18 bei RECONCILE eingesetzten Instrumente (Tabelle 2.3) wurden dabei in verschiedenen Bays installiert. Zusätzlich werden meteorologische Daten aufgezeichnet. Über eine Unit for Connection with Scientific Equipment (UCSE) erhalten die einzelnen Instrumente die genaue Uhrzeit sowie Flugparameter wie die Koordinaten, Geschwindigkeit, Flughöhe, Außentemperatur, Außendruck sowie verschiedene Winkel, die die Lage des Flugzeuges angeben. Die Geophysica zeichnet sich durch eine relativ hohe Manövrierfähigkeit und eine weitestgehende Unabhängigkeit von den Bodenbedingungen aus, wodurch sie zu einer idealen Plattform für wissenschaftliche Experimente in schwierigen meteorologischen Situationen an den unterschiedlichsten Orten wird. Seit 1996 war

die Geophysica an verschiedenen Projekten als Messplattform beteiligt:

- 1996, Januar: APE-POLECAT (Polar stratospheric clouds, leewaves, chemistry, aerosols and transport) Rovaniemi, Finnland, 7 Flüge
- 1998, Dezember-1999 Januar: APE-ETC (Extended Test Campaign, Forli, 6 Flüge
- 1999, Februar-März: APE-THESEO Mahe, Seychellen, 7 Flüge
- 1999, September-Oktober: APE-GAIA (Geophysica Aircraft in Antarctica) Ushuaia, Argentinien, 6 Flüge und 8 Transferflüge
- 2002, Juli: APE-Envisat Test- und Validierungskampagne in mittleren Breiten, Forli, Italien, 4 Flüge
- 2002, Oktober: APE-Envisat Midlat Validation Campaign, Forli, 7 Flüge
- 2003, Januar-Februar: EuPLEx (European poplar stratospheric cloud and lee wave experiment), Kiruna, Schweden, 10 Flüge
- 2003, Februar-März: APE-Envisat AVC (Arctic validation campaign), Kiruna, Schweden, 5 Flüge
- 2005, Januar-März: TroCCiNOx (Tropical convection, cirrus and nitrogen oxides experiment), Araçatuba, Brasilien, 9 Flüge, 8 Transferflüge, 1 Testflug und ein zusätzlicher Polarflug (Oberpfaffenhofen, Deutschland)
- 2005, November-Dezember: SCOUT-O3 (Stratospheric - climate links with emphasis on the UTLS, Darwin, Australien, 9 Flüge, 12 Transferflüge, 1 Testflug (Oberpfaffenhofen, Deutschland)
- 2006, Juli-August: AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis), Ouagadougou, Burkina Faso, 6 Flüge, 4 Transferflüge, 1 Testflug in Verona
- 2010, Januar-März: RECONCILE (Reconciliation of essential processparameters for an enhanced predictability of arctic stratospheric ozone loss and its climate Interactions), Kiruna, Schweden, 12 Flüge
- 2010, März: PREMIER-EX RS, Kiruna, Schweden, 1 Flug
- 2011, Dezember: ESSeNCE, Kiruna, Schweden, 2 Flüge

HAGAR war seit 1999 bei den aufgeführten Kampagnen, bei bislang insgesamt 124 Flügen, Teil der Instrumentierung. In dieser Arbeit werden die Ergebnisse der RECONCILE-Kampagne und des Fluges der PREMIER-EX-Kampagne vorgestellt und wissenschaftlich interpretiert.

2.3 Funktion von HAGAR während RECONCILE

Als Arbeitsstandard Cal wurde während der Kampagne der im Jahr 2005 für die AMMA Kampagne in Frankfurt hergestellte Standard verwendet. Der Arbeitsstandard Span wurde für die RECONCILE-Kampagne hergestellt (Details siehe vom Scheidt, 2010). Im Vorfeld der Kampagne wurden alle Trägergasreinigungskartuschen durch frische ersetzt und HAGAR auf Undichtigkeiten überprüft.

Im folgenden sind während der Kampagne aufgetretene Besonderheiten und Probleme aufgelistet:

- Während des Fluges 5 am 25.1.2010 fiel eine der beiden Einlasspumpen aus und störte durch ihren Ausfall auch den Betrieb der zweiten Pumpe nachhaltig. Bei diesem Flug konnten nur während des Auf- und Abstiegs Daten aufgezeichnet werden, deren Qualität aber fragwürdig ist und die in den Analysen auch nicht berücksichtigt wurden.
- In der Folge des Pumpenaustauschs am 26.1.2010 kam es zu einer Undichtigkeit, die während der folgenden drei Flüge zu einer leichten Verdünnung (flussabhängig maximal 2%) der Probenluft durch das Gasgemisch im HAGAR-Kessel führte. Da dieses Gasgemisch während des Fluges zu mehr als 50% aus Probenluft besteht, ist die resultierende Verfälschung für die meisten Spezies vernachlässigbar (<1%), nicht jedoch für CO₂ und N₂O. Da CO₂ mit deutlich höherer Genauigkeit gemessen wird (ca. 0,1%), ist die Verdünnung durch das CO₂-ärmere Gasgemisch im Kessel (ca. 230 ppm; Außenluft in der Stratosphäre hat ca. 380 ppm) signifikant. Im Fall von N₂O führt die Verdünnung zu einer signifikanten N₂O-Kontamination von bis zu 30 ppb, da N₂O als Dopinggas für den ECD in Kanal 1 verwendet wird und daher im Gasgemisch des Kessels stark angereichert ist (Mischungsverhältnis während des Fluges ca. 6 ppm). Die betroffenen Daten sind entsprechend korrigiert worden (vgl. Kapitel 2.3.1 und 2.3.2). Die Leckage konnte erst vor dem Flug 9 am 27.2.2010 schließlich behoben werden.
- Um die N₂O-Kontamination bei den Flügen 7 und 8 zu minimieren, wurde das N₂O-Doping für Kanal 1 sehr stark verdünnt, so dass die CH₄-Daten und die H₂-Daten dieser Flüge nicht zu verwenden sind. Mit Hilfe der Korrelation zwischen CH₄ und F12 der unbelasteten Flüge wurden über die F12-Daten rekonstruierte CH₄-Daten für die betroffenen Flüge berechnet. H₂-Daten liegen für diese Flüge nicht vor. Dies betrifft ebenso Flug 9, bei dem das N₂O-Dopinggas kurz vor dem Flug verdünnt werden musste, da es aufgrund einer Unreinheit einen Signalverlust in Kanal 1 bewirkte. Bei Flug 6, bei dem die Undichtigkeit erstmals auftrat, betrug die resultierende Kontamination etwa 30 ppb. Durch die Verdünnung des N₂O-Dopinggases konnte die Kontamination während der Flüge 7 und 8 deutlich reduziert werden (vgl. Tabelle 2.4). Bei Flug 8 wurde zusätzlich das Dopinggas erst 45 min vor dem Start ins System geleitet, wodurch die Kontamination auf 2,5 ppb nochmals verringert werden konnte.

- Im Zusammenhang mit dem Pumpenaustausch wurde auch ein Leck in der Einlassleitung außerhalb des HAGAR-Kessels entdeckt, welches zu einer Vermischung der Probenluft mit Bay-Luft geführt haben könnte. Für die weiteren Flüge wurde eine Ersatzleitung verwendet, auch diese zeigte bei einem Dichtigkeitstest ein (deutlich kleineres) Leck, das für die Flüge 6-8 behelfsmäßig abgedichtet wurde. Eine weitere komplett intakte Einlassleitung stand erst für die Flüge 9-13 zur Verfügung. Eine Verdünnung mit Bay-Luft während der ersten 4 Flüge würde die Korrelation zwischen zwei beliebigen Spezies für diese Flüge von der der anderen Flüge abweichen lassen. Eine solche Abweichung kann nicht beobachtet werden. Zudem würde die Vermischung mit einem relativ abgeschlossenen Luftreservoir dazu führen, dass schnelle Variabilität in den Messungen unterdrückt würde. Vom Scheidt (2010) zeigt anhand der Korrelation zwischen CO_2 und O_3 , welches vom FOZAN-Instrument gemessen wurde, dass dies nicht der Fall ist. Das bedeutet, entweder ist die Bay so gut mit Außenluft gespült, dass keine Änderungen bemerkbar sind oder aber es ist zu keinem signifikanten Eintrag von Luft aus der Bay durch das Leck gekommen.
- Während des Pumpenaustauschs und der danach notwendigen Tests ist es zu einer Kontamination der meisten Trägergasreinigungskartuschen gekommen, so dass diese nicht weiter verwendet werden konnten. Für die Flüge 6-8 stand daher nur die mit Moleculite gefüllte Falle zur Trägergasreinigung zur Verfügung. Zu Beginn der zweiten Phase konnten dann neue Kartuschen eingesetzt werden, so dass die Trägergasreinigung während der Flüge 9-13 wieder mit allen Fallen durchgeführt wurde.

In Tabelle 2.4 am Ende dieses Kapitels sind für die einzelnen Flüge die aufgetretenen Probleme und der Datenstatus nochmals zusammengestellt.

2.3.1 Korrektur der GC-Daten für RECONCILE

Aufgrund der oben beschriebenen Probleme während Flug 5 und der daraus resultierenden Kontamination mit N_2O wurde für die Flüge 6, 7 und 8 mit Hilfe der alle 30 min durchgeführten „Cal-to-Pump“ Messungen und einer Flussskalierung eine Korrektur der N_2O -Daten vorgenommen. Dieses Verfahren wurde für die APE-Envisat Validierungskampagnen 2002 entwickelt (vgl., Werner, 2007). Seither hat es sich bei verschiedenen Kampagnen bewährt (vgl. Werner, 2007). Bei den Cal-to-Pump-Messungen wird das Kalibrationsgas Cal nicht direkt in die Probenschleife gegeben, sondern über die Pumpe ins System gebracht. Der Weg des Gases ist somit derselbe wie bei einer Außenmessung und das Kalibrationsgas wird auf diesem Weg genauso mit N_2O angereichert wie die Außenluft. Aus dem Vergleich der direkten Cal-Messungen und der Cal-to-Pump-Messungen kann also der Offset ermittelt werden, der durch die Kontamination entsteht. Dieser Offset variiert allerdings mit dem Probenfluss, der während des Fluges nicht konstant ist, sondern bei Messungen von Außenluft in Abhängigkeit von der Flughöhe variiert. Unter der Annahme, dass die Einmischung von Kesselluft in den Gasfluss der Pumpe mit konstanter Leckrate vonstatten geht, wurde der ermittelte, zeitlich abhängige Offset linear mit dem inversen, zeitabhängigen Probenfluss skaliert und auf die Flugdaten angewendet. In Abbildung 2.4 ist die Korrektur

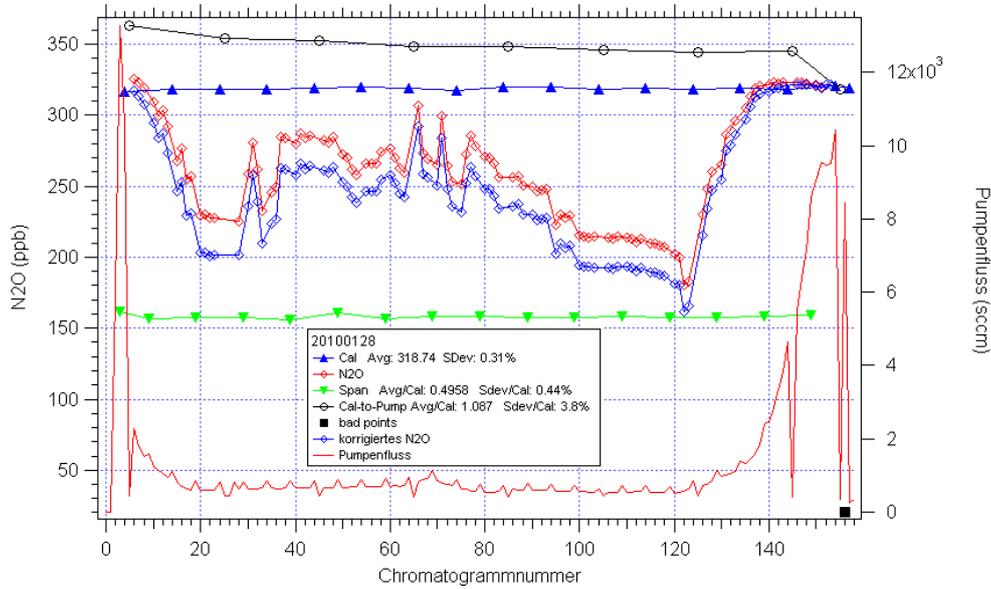


Abbildung 2.4: Direkter Vergleich der korrigierten (blaue Rauten) und unkorrigierten (rote Rauten) N_2O -Daten für Flug 6. Die grünen Dreiecke kennzeichnen die Spanmessungen, die blauen die Calmessungen, die Cal-to-Pump-Messungen sind als schwarze Kreise dargestellt. In rot ist der Pumpenfluss eingezeichnet, mit dem der Offset zwischen Cal und Cal-to-Pump skaliert wird.

exemplarisch für Flug 6 gezeigt. Die Abbildung zeigt deutlich die große Differenz zwischen den Cal-Messungen und den kontaminierten Cal-to-Pump-Messungen. Durch die Flussskalierung ist die Korrektur der N_2O -Daten höhenabhängig. Zur Überprüfung der Korrektur wurde die Korrelation zwischen N_2O und F12 der unbelasteten Flüge herangezogen. Weitere Details zum Korrekturverfahren finden sich in Werner (2007).

Aus den regelmäßigen Standardmessungen während der Flüge lässt sich die Präzision (engl.: *precision*) abschätzen. Für N_2O und F12 lag die Präzision im Mittel bei unter 0,35 %, für CH_4 , H_2 und F11 unter 0,9 % (ohne Berücksichtigung der Flüge 7, 8 und 9 für CH_4 und H_2). Die mittlere Präzision für jeden einzelnen Flug findet sich in Tabelle 2.4. Für SF_6 erhielt man 1,34 % und für H1211 1,5 %. Die prozentualen Angaben beziehen sich auf den troposphärischen Wert der jeweiligen Spezies. Eine detaillierte Beschreibung des Verfahrens zur Berechnung der Präzision für jeden einzelnen Messpunkt unter Berücksichtigung des lokalen Fehlers der Cal- und Span-Messungen wird bei Werner (2007) gegeben.

Für die Flüge, bei denen die N_2O -Daten korrigiert wurden, wurde der statistische Fehler durch quadratische Addition eines angenommenen Fehlers, der durch die Korrektur entsteht, erhöht. Für Flug 6 betrug der angenommene Fehler 2 ppb, für Flug 7 1,6 ppb und für Flug 8 1 ppb. Für die aus der Korrelation mit F12 rekonstruierten CH_4 -Daten, wurde kein Fehler abgeschätzt.

Die angegebene Präzision beschreibt nur den statistischen Fehler der Messung durch instrumentelle Einflüsse. Zur Berechnung des absoluten Fehlers muss zusätzlich der Messfehler

der Arbeitsstandards und der Absolutstandards berücksichtigt werden, die für RECONCILE mit 1% angenommen wurden.

2.3.2 Korrektur der LI-COR-Daten für RECONCILE

Während der ersten 5 Flüge war ein Flussmesser am Ausgang der Messzelle angebracht, der aufgrund seines Strömungswiderstandes, zu zeitlich variablen Druckunterschieden zwischen der Referenzgaszelle und der Messzelle geführt hat. Diese Druckunterschiede wiederum führen zu einer Verfälschung des Messergebnisses [vom Scheidt, 2010]. Für die ersten 4 Flüge (für den fünften liegen keine Daten vor vgl. Tabelle 2.4) muss also eine Flusskorrektur durchgeführt werden. Im LI-COR-Signal bewirkt die Restriktion durch den Flussmesser zunächst, dass Flussänderungen, die beim Schalten des GC von der Load-Position in die Inject-Position entstehen, aufgrund der resultierenden Druckänderungen in der Messzelle im LI-COR-Signal widergespiegelt werden. Die folgende Abbildung 2.5 stellt die beschriebene Flussabhängigkeit des Signals dar. Es handelt sich bei dieser Abbildung um einen

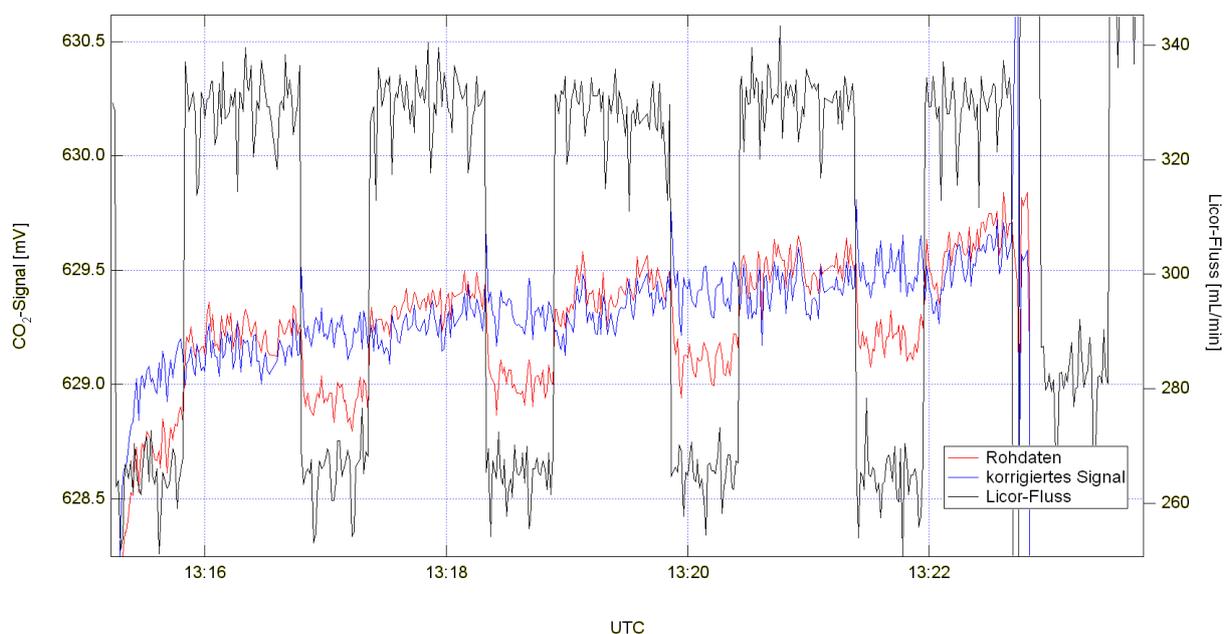


Abbildung 2.5: Lineare Korrektur der Flussabhängigkeit des LI-COR-Signals. In schwarz ist der Fluss durch das LI-COR eingezeichnet, in rot das LI-COR-Originalsignal und blau das flusskorrigierte LI-COR-Signal.

Ausschnitt aus einer Kalibration, bei der anstelle einer Luftprobe 5 GC-Zyklen hintereinander der Arbeitsstandard Cal vermessen wurde. Während der Flüge 1-5 kam es aufgrund von Regelproblemen beim Kesseldruck zu Flussunterschieden zwischen den Mess- und Kalibrationsphasen, die sich als Bias im LI-COR-Signal widerspiegeln. Je nachdem ob der Fluss in der Messphase höher oder niedriger war als in der Kalibrationsphase kam es zu einem negativen oder positiven Bias des Signals.

In die Berechnung des CO₂-Mischungsverhältnisses aus dem LI-COR-Signal geht der Zelldruck ein. Dieser ist abhängig von der Flussrate durch die entsprechende Zelle. Der Zusammenhang zwischen der Flussrate und dem Zelldruck ist im für die Flüge entscheidenden Bereich einer Flussrate zwischen 300 und 400 mL/min ausreichend linear [vgl. vom Scheidt, 2010]. Auch der Zusammenhang zwischen dem Druck in der Messzelle und dem CO₂-Mischungsverhältnis ist nach vom Scheidt [2010] im entsprechenden Druckbereich linear. Daher ist eine lineare Korrektur des LI-COR-Signals der Form $V = V_0 + A * (F_2 - F_0)$ möglich [Riediger, 2000], wobei V_0 das unkorrigierte LI-COR-Signal, A ein Korrekturfaktor, F_0 ein Referenzwert für die Flussrate und F_2 die aktuelle Flussrate durch die Messzelle bedeuten. Aus den Kampagnenkalibrationen im entsprechenden Zeitraum wurde für den Korrekturfaktor ein Wert von 0,005 ermittelt. Das Ergebnis der linearen Flusskorrektur ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Die Abbildung zeigt, dass es mit Hilfe der linearen Flusskorrektur möglich ist, den Einfluss, der durch das Schalten des GC verursachten Flussänderungen auf das Signal, zu korrigieren. Durch diese Korrektur wird ebenfalls der Bias, der durch die Flussunterschiede zwischen Mess- und Kalibrationsphase entsteht, korrigiert. Die Größe der Korrektur findet sich für die einzelnen Flüge in Tabelle 2.4. Eine Korrektur dieser Art wurde für die ersten vier Flüge durchgeführt. Im Zuge des Pumpenaustauschs wurde das LI-COR so umgebaut, dass sich der Flussmesser vor der Messzelle befindet. In der Folge traten keine Schwankungen im Signal mehr auf, die den Flussschwankungen zugeordnet werden konnten [vgl. vom Scheidt, 2010].

Wie in 2.3 bereits erwähnt, ist es bei den Flügen 6, 7 und 8, aufgrund der Undichtigkeit an der Pumpe zu einer CO₂-Abreicherung gekommen. Für diese Flüge wird, ähnlich wie für N₂O, eine Korrektur mit Hilfe der Cal-to-Pump-Messungen vorgenommen. Die aus der Differenz zwischen den Cal-to-Pump-Messungen und den Cal-Messungen berechnete Verfälschung im LI-COR-Signal wird mit dem Verhältnis des Cal-to-Pump-Flusses zum Fluss während der Messung skaliert und vom Originalsignal subtrahiert. Die folgende Abbildung 2.6 zeigt die Korrektur exemplarisch für Flug 6.

Für diese ersten 4 Flüge ist bei der Datenprozessierung ein weiteres Problem aufgefallen. Aus bisher ungeklärten Gründen dauert die Einlaufzeit des Signals nach Schalten des Multipositionsventils (dessen Position darüber entscheidet, welches Gas in die Probenschleife gegeben wird) in die Position für die Spanmessung, während der Flugkalibrationsphasen zu lange. Der für die Kalibration benötigte Spansignalwert ist der Mittelwert über das Signal im Messzeitraum. Die Einlaufphase nach Schalten des Ventils wird in der Regel durch eine „Totzeit“ (typischer Wert 30 s) herausgeschnitten. Bei den ersten 4 Flügen ist es aber zu keinem stabilen Spansignal gekommen, die Einlauf-Drift dauerte die gesamte Kalibrationsphase an. Daher lassen sich die korrekten Spanwerte während dieser Flüge nicht ermitteln. Bei Ignorieren dieses Problems zeigen diese Daten im Vergleich zu den Daten der anderen Flüge einen negativen Bias (anhand der CO₂-F12-Korrelation), so dass eine Korrektur bezüglich der Spanpunkte durchgeführt werden muss. Dazu wird ein Korrekturterm c ermittelt, der die Daten dieser Flüge an die Korrelation zwischen CO₂ und F12 der Flüge 6-8 anpasst. Mit Hilfe dieses Terms werden die Daten nach folgender Gleichung korrigiert,

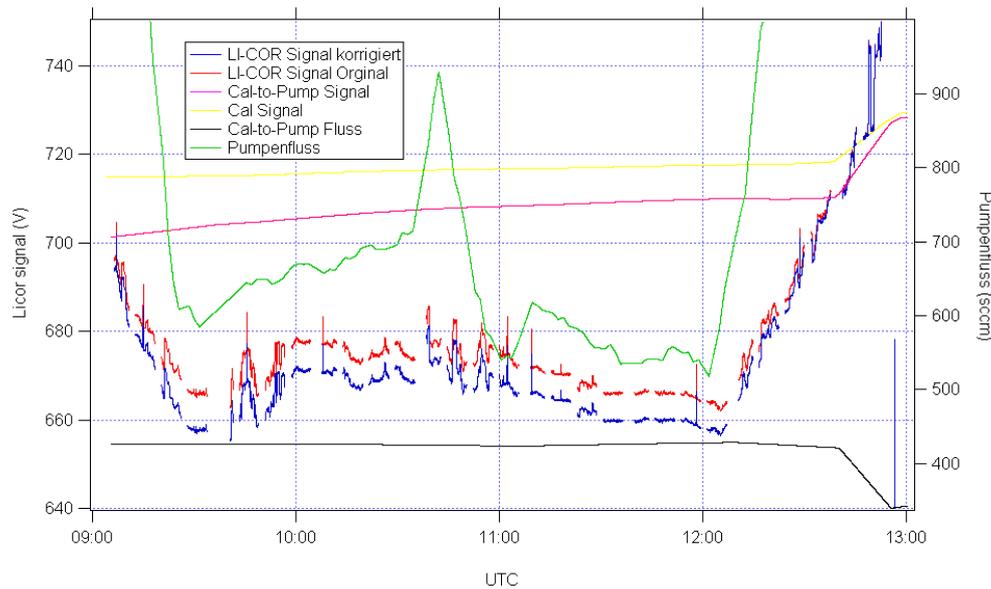


Abbildung 2.6: Flussabhängige Korrektur der CO_2 Abreicherung. In rot ist das LI-COR-Originalsignal, in blau ist das korrigierte Signal dargestellt. Mit eingezeichnet sind die zur Korrektur benötigten Flüsse, der Pumpenfluss in grün, der Fluss während der Cal-to-Pump-Messungen in schwarz. In pink ist das LI-COR Signal der Cal-to-Pump Messungen eingezeichnet, in gelb ist das LI-COR Signal der Cal-Messungen eingezeichnet.

wobei der Korrekturterm $c = 1,6$ für Flug 1, $c = 0,9$ für Flug 2, $c = 0,5$ für Flug 3 und $c = 0,6$ für Flug 4 ist:

$$\text{CO}_{2\text{korr}} = \text{CO}_2 + c * \frac{\text{Cal} - \text{CO}_2}{\text{Cal} - \text{Span}}$$

Die Unsicherheit der CO_2 -Messungen setzt sich hauptsächlich aus 3 Einzelfehlern zusammen: 1. Elektronisches Rauschen, 2. langsame Schwankungen des LI-COR (auf Zeitskalen von Minuten, die durch die Kalibrationen im 15-Minutentakt nicht korrigiert werden können) und 3. Fehler der Laborkalibrationen für Flugkalibrationsgase. Details zur Berechnung der CO_2 Unsicherheiten finden sich in Riediger (2000) und in Anhang B. Der mittlere Fehler für RECONCILE beträgt etwa 0,05%, die mittleren Fehler der einzelnen Flüge sind als Mischungsverhältnisse in Tabelle 2.4 angegeben.

Tabelle 2.4: Datenstatus von HAGAR. Für die einzelnen Spezies ist die Präzision in % des troposphärischen Wertes angegeben, für CO₂ ist der mittlere Fehler der Flüge in ppm angegeben. Die CO₂-Korrekturen sind ebenfalls in ppm angegeben.

Flugdatum	Problem	Daten	SF ₆ Präz.	H ₂ Präz.	CH ₄ Präz.	N ₂ O Präz.	F12 Präz.	H-1211 Präz.	F11 Präz.	CO ₂ mittl. Fehler
1 100117	Flussschwankungen Drift des CO ₂ -Spannpunktes	Flusskorrektur: ≤0,05 Flughöhe; ≤-0,63 Abstieg Korrektur der Spandrift: ≤1,14	1,20%	1,00%	0,58%	0,47%	0,21%	1,91%	0,72%	0,31
2 100120	Flussschwankungen Drift des CO ₂ -Spannpunktes	Flusskorrektur: ≤-0,13 Flughöhe; ≤-0,63 Abstieg Korrektur der Spandrift: ≤0,63	1,38%	0,87%	0,96%	0,37%	0,26%	1,51%	0,58%	0,28
3 100122	Flussschwankungen Drift des CO ₂ -Spannpunktes	Flusskorrektur: ≤0,09 Flughöhe; ≤-0,6 Abstieg Korrektur der Spandrift: ≤0,34	1,24%	0,48%	0,74%	0,20%	0,38%	1,38%	0,69%	0,19
4 100124	Flussschwankungen Drift des CO ₂ -Spannpunktes	Flusskorrektur: ≤-0,03 Flughöhe; ≤-0,63 Abstieg Korrektur der Spandrift: ≤0,38	1,45%	0,45%	0,76%	0,34%	0,31%	1,36%	0,74%	0,20
5 100125	Ausfall einer Pumpe	keine verwendbaren Daten								
6 100128	N ₂ O Kontamination CO ₂ Abreicherung	N ₂ O korrigiert (≤27 ppb) CO ₂ korrigiert (≤2,1)	1,83%	1,02%	1,31%	0,33%	0,41%	1,23%	0,90%	0,13
7 100130	N ₂ O Kontamination stark verdünntes N ₂ O-Doping	N ₂ O korrigiert (≤10 ppb) CH ₄ rekonstruiert aus der Korrelation mit F12 keine H ₂ Daten	0,99%	13,70%	4,89%	0,25%	0,21%	1,46%	0,61%	0,13
8 100202	CO ₂ Abreicherung N ₂ O Kontamination stark verdünntes N ₂ O-Doping	CO ₂ korrigiert (≤2,0) N ₂ O korrigiert (≤3 ppb) CH ₄ rekonstruiert aus der Korrelation mit F12 keine H ₂ Daten	0,85%	12,05%	1,73%	0,29%	0,27%	1,84%	0,44%	0,13
9 100227	CO ₂ Abreicherung stark verdünntes N ₂ O-Doping	CO ₂ korrigiert (≤1,2) CH ₄ rekonstruiert aus der Korrelation mit F12 keine H ₂ Daten	1,66%	-	2,15%	0,48%	0,21%	1,70%	0,43%	0,14
10 100302a		ok	1,50%	0,60%	0,87%	0,43%	0,24%	1,15%	0,55%	0,13
11 100302b		ok	1,38%	0,97%	0,54%	0,33%	0,18%	0,88%	0,26%	0,12
12 100305		ok	1,40%	1,02%	0,59%	0,27%	0,37%	1,67%	0,84%	0,13
13 100310		ok	1,16%	1,30%	0,55%	0,30%	0,19%	1,74%	0,53%	0,13
			1,3%*	0,9%*	0,8%*	0,3%*	0,3%	1,5%	0,6%	0,13

* Mittelwert ohne Flüge 7, 8, und 9

Kapitel 3

Transport und Mischung in der arktischen Polarregion während RECONCILE

Im diesem Kapitel wird zunächst eine kurze Übersicht über die Dynamik des Polarwirbels im Winter 2009/2010 gegeben. Wie in Kapitel 1.2 bereits dargelegt können Transport- und Mischungsprozesse über die Polarwirbelgrenze einen Einfluss auf die Ozonchemie im Wirbel haben. Von Interesse sind bei einer solchen Transportanalyse ausschließlich irreversible Transportprozesse. In Abschnitt 3.2 dieses Kapitels wird ein Konzept vorgestellt, welches die Kennzeichnung der Herkunft der vermessenen Luftmassen anhand von Messungen langlebiger Spurengase erlaubt und somit eine Transportanalyse ermöglicht. Anhand der im CLaMS-Modell für die Luftmassenkennzeichnung gebräuchlichen passiven Tracer wird der Vortexindex validiert und interpretiert, dargelegt in Abschnitt 3.3. Die Anwendung des Vortexindex als Werkzeug zur Identifikation von Transportprozessen wird überblicksweise in Abschnitt 3.4 gegeben. Desweiteren wird dort gezeigt, wie mit Hilfe des Vortexindex der Transport im Modell validiert werden kann. Im letzten Abschnitt wird ein Überblick über Mischungsprozesse während RECONCILE anhand der Analyse der F11-N₂O Korrelation gegeben und die Mischung im Modell untersucht.

3.1 Dynamik im Polarwirbel im Winter 2009/2010

Der arktische Polarwirbel im Winter 2009/2010 war dynamisch sehr aktiv, besonders zu Beginn des Winters war der Wirbel zunächst schwach ausgeprägt [Wang und Chen, 2010]. Hier wird eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ereignisse nach Dörnbrack et al. (2012) wiedergegeben, ausführlichere Informationen finden sich in der angegebenen Veröffentlichung und den darin angegebenen Referenzen.

Nach Bildung des Polarwirbels erfolgte im November zunächst eine Abkühlung, die dem klimatologischen 21-Jahres-Mittel des European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (Abk.: *ECMWF*) folgte. Zwischen Mitte November und Mitte Dezember kam es

zu einer durch Wellen verursachten Erwärmung der Stratosphäre (engl.: *minor warming*), welche Anfang Dezember mit einer Teilung des Wirbels in zwei Teile einherging. Das stärkere und kältere Fragment überstand diese frühe Erwärmung und erholte sich ab Mitte Dezember wieder. Bis Mitte Januar kühlte sich der übrig gebliebene Wirbel weiter ab. In der zweiten Januarhälfte kam es zu einer erneuten Störung des Wirbels durch planetare Wellen der Wellenzahl 1. Dieses Ereignis verschob den Wirbel zunächst über den europäischen Teil der Arktis. Im Zuge einer plötzlichen starken Erwärmung der Stratosphäre (engl.: *major sudden stratospheric warming*) kam es dann Mitte Februar zu einer erneuten Teilung des Wirbels. Eines der beiden Fragmente blieb bis zum Ende der Kampagne im März bestehen.

Die bei Dörnbrack (2012) beschriebene Entwicklung des Polarwirbels beruht auf der Betrachtung der geopotenziellen Höhe und deren Gradienten als Kriterium für die Definition des Wirbels. Diese beschreibt im Falle des geostrophischen Gleichgewichts das Windfeld in der Atmosphäre. Wie in Kapitel 1 beschrieben entsteht am Wirbelrand ein starkes Westwindband. Bei Betrachtung der geopotenziellen Höhe wird dann der Wirbel über dieses Windmaximum definiert.

Seit etwa 2 Jahrzehnten wird zur Beschreibung des Polarwirbels häufig die potenzielle Vorticity (Abk.: *PV*) verwendet und die Wirbelgrenze nach dem von Nash et al. (1996) vorgestellten Verfahren berechnet (vgl. Anhang C). In dieser Arbeit wird die Entwicklung des Polarwirbels anhand der *PV* oder aber von Spurengasmessungen betrachtet. Die *PV* nimmt dabei von den Tropen zum Pol hin zu und erreicht im Polarwirbel die höchsten Werte. Sie gibt die dynamische Entwicklung der Luftmassen an, die z.B. relevant für die Chemie ist, während durch die Betrachtung der geopotenziellen Höhe oder des Windes nur die Entwicklung des Windfeldes Berücksichtigung findet. Die Wirbelgrenze wird von Nash et al. (1996) definiert als der Ort mit dem maximalen meridionalen *PV*-Gradienten. Die äquivalente Breite, an der zu einem bestimmten Zeitpunkt der Gradient der *PV* maximal wird, definiert also die dynamische Grenze des Polarwirbels. Langlebige Spurengase korrelieren mit der *PV* und zeigen ebenfalls einen starken Gradienten in den Mischungsverhältnissen an der Wirbelgrenze, trotzdem unterscheiden sich die beiden Betrachtungsweisen voneinander (Details siehe Abschnitt 3.2.1).

Die folgende Abbildung 3.1 zeigt die einzelnen Phasen der beschriebenen dynamischen Aktivitäten anhand des *PV*-Feldes. Die pinkfarbene Linie kennzeichnet die Wirbelgrenze berechnet nach Nash et al. (1996). Ab dem 17.1.2010 ist in weiß eingezeichnet der projizierte Flugpfad der Geophysica für den jeweiligen Tag zu sehen.

Anfang Dezember ist zunächst der kompakte Wirbel, gekennzeichnet durch hohe *PV*-Werte, zu sehen. Dieser Wirbel teilte sich wie oben beschrieben Mitte Dezember. Anders als in der Beschreibung des Wirbels durch die geopotenzielle Höhe überdauerten bei der Betrachtung von *PV* oder Spurengasmischungsverhältnissen beide Fragmente die Erwärmung, mit für den Polarwirbel charakteristischen Werten und rekombinierten Ende Dezember. Ab dem 25.12.2009 war wieder ein kompakter Wirbel vorhanden, der auch zu Beginn der Kampagne am 17.01.2010 und während der ersten Phase kompakt erhalten war. Die *PV*-Felder vom 24.1. und 2.2 zeigen die Verschiebung des Polarwirbels vom Pol weg in den europäischen Teil der Arktis durch planetare Wellen. Am 11.2.2010 kam es dann zur

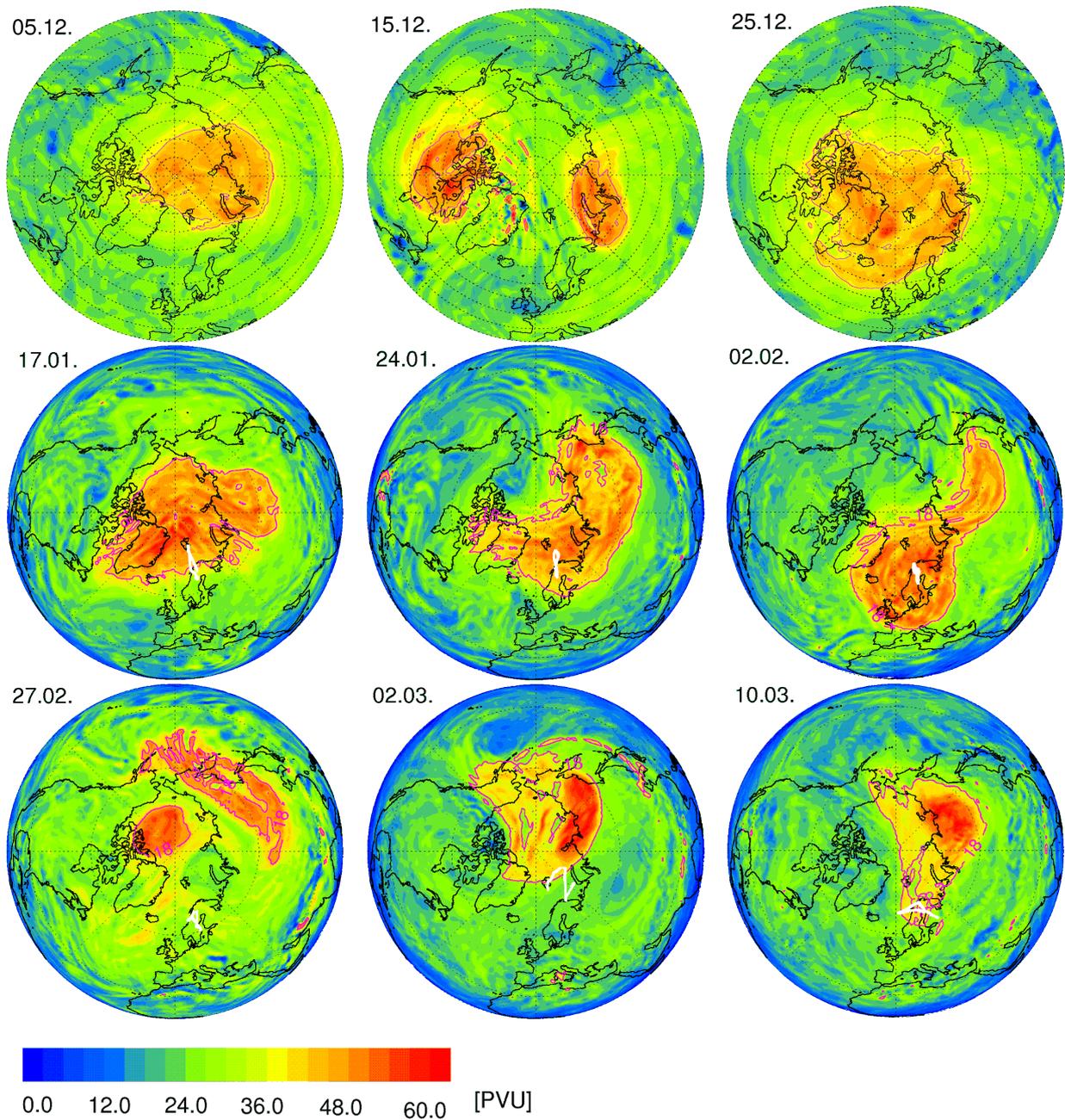


Abbildung 3.1: Entwicklung des arktischen Polarwirbels im Winter 2009/2010 anhand des PV-Feldes bei einer potenziellen Temperatur von 430 K. Die pinkfarbene Linie kennzeichnet die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996). Ab dem 17.1.2010 in weiß eingezeichnet der projizierte Flugpfad der Geophysica für den jeweiligen Tag.

erneuten Teilung des Wirbels, die zu Beginn der zweiten Phase der Kampagne noch Bestand hatte. Die PV-Karte vom 27.2. zeigt die beiden Wirbelfragmente über Nordamerika bzw. Nordasien liegend. Anfang März rekombinierten diese beiden Teile wieder zu einem Wirbel.

3.2 Kennzeichnung der Luftmassenherkunft

3.2.1 Vortexindex

Zur Untersuchung von Transportprozessen muss die Ursprungsregion, aus der die untersuchten Luftmassen stammen, kenntlich gemacht werden. In Transportmodellen erfolgt eine solche Kennzeichnung mittels sogenannter passiver Tracer (vgl. Kapitel 3.2.2), die anhand der dynamischen Struktur der Atmosphäre zum Initialisierungszeitpunkt definiert werden können und Transport- und Mischungsprozesse, die nach dem Initialisierungszeitpunkt stattfanden, kennzeichnen. Für atmosphärische Messungen besteht diese einfache Möglichkeit der Kennzeichnung nicht und es muss eine andere Möglichkeit gefunden werden.

Langlebige Spurengase bieten diese Möglichkeit der Kennzeichnung, sofern sich ihre Mischungsverhältnisse in den einzelnen Regionen von Interesse voneinander unterscheiden. Weiter müssen die Verteilungen der Mischungsverhältnisse räumlich hochaufgelöst und die Mischungsverhältnisse in ihren Werten möglichst präzise vorliegen. Die Abbildung 3.2 zeigt die Verteilung der N_2O -Mischungsverhältnisse auf der Nordhemisphäre, nördlich von $40^\circ N$, wie sie für den 17.1., 10.2. und 10.3.2010 durch das CLaMS-Modell simuliert wurden. Als

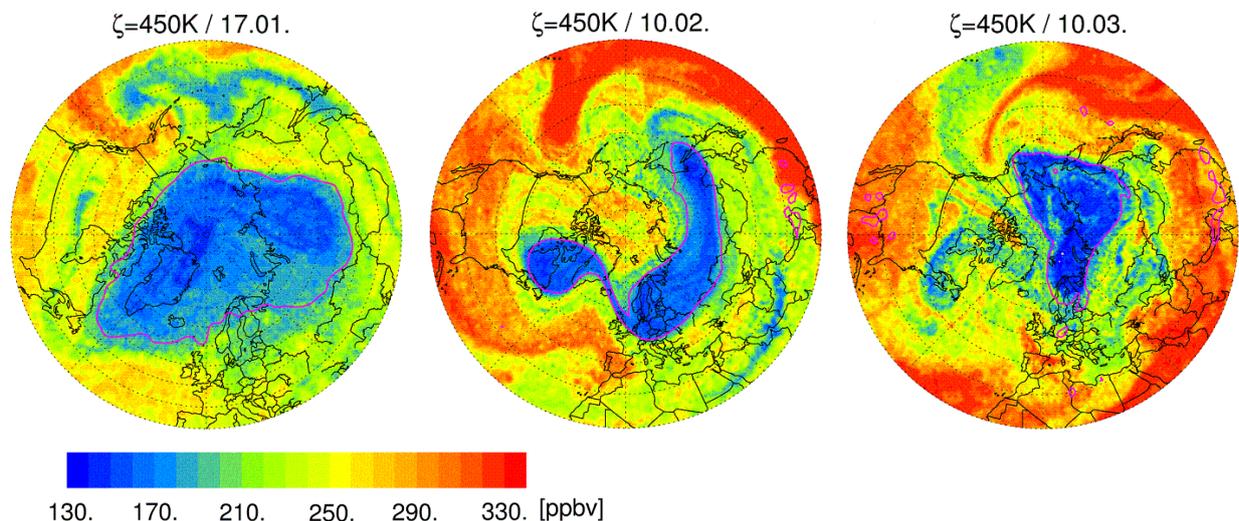


Abbildung 3.2: Verteilung der N_2O -Mischungsverhältnisse auf der Nordhemisphäre ($>40^\circ N$) für den 17.1., 10.2. und 10.3.2010 wie sie durch CLaMS auf einer potenziellen Temperatur von 450 K simuliert wurden. In pink ist die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) eingezeichnet.

Linie in pink eingezeichnet ist die Position der dynamischen Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) für den jeweiligen Tag. Die Abbildung zeigt exemplarisch für diese drei Tage, dass die Position der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) häufig mit dem Ort des stärksten Gradienten der N_2O -Mischungsverhältnisse übereinstimmt. An allen drei Tagen gibt es jedoch auch Regionen, in denen es zu Abweichungen zwischen den maximalen Gradienten der PV und der N_2O -Mischungsverhältnisse kommt. Diese beobachteten Unterschiede kommen durch Transport von Luftmassen zustande. Die PV wird zwar, wie die Spurengase, passiv transportiert, ändert sich dann aber relativ schnell entsprechend der neuen dynamischen Situation (Zeitskala: einige Tage). Die Spurengasmischungsverhältnisse in der transportierten Luftmasse ändern sich dagegen nur sehr langsam durch Mischung mit der umgebenden Luft. Während durch PV also die momentane dynamische Situation des Wirbels dargestellt wird, geben die Spurengasmischungsverhältnisse die Herkunft der Luftmassen anhand der chemischen Zusammensetzung der Luft an. Das bedeutet, dass der stärkste Gradient in den Mischungsverhältnissen langlebiger Spurengase (z.B. N_2O) nicht unbedingt die Lage der momentanen Wirbelgrenze angibt, sondern, im Fall von Transport, die Lage der Wirbelgrenze vor dem Transportereignis. Betrachtet man die Verteilung langlebiger Spurengase im Vergleich zur momentanen dynamischen Wirbelgrenze, kann man Transporte von Luftmassen über die Wirbelgrenze hinweg detektieren.

Um eine Aussage über die Herkunft der Luftmasse unabhängig vom absoluten Wert des Spurengasmischungsverhältnisses und unabhängig von der potenziellen Temperatur Θ treffen zu können, wird, basierend auf den N_2O -Mischungsverhältnissen, ein Index definiert. Der Ansatz zur Definition eines solchen Index baut auf dem Konzept des $\Delta\text{N}_2\text{O}$, welches von Greenblatt et al. (2002) und Ivanova (2007) vorgestellt wurde, auf. Bei Greenblatt et al. (2002) und Ivanova et al. (2008) wird aus den Messungen des langlebigen Spurengases N_2O eine Polarwirbelreferenz bestimmt und dann der Abstand $\Delta\text{N}_2\text{O}$ jedes Datenpunktes zu diesem Referenzprofil ermittelt. Greenblatt et al. (2002) verwendet dieses $\Delta\text{N}_2\text{O}$ um darüber die Wirbelgrenze zu definieren. Ivanova et al. (2008) zeigt, dass die Verwendung des so berechneten $\Delta\text{N}_2\text{O}$ als meridionale Koordinate in einem quasi-lagrangeschen Koordinatensystem in der Antarktis sehr gut zur Untersuchung kleinskaliger Strukturen in der Umgebung des Polarwirbels und der Polarwirbelgrenzregion geeignet ist.

In dieser Studie wird durch eine Skalierung des berechneten $\Delta\text{N}_2\text{O}$ ein sogenannter Vortexindex berechnet, der zum einen eine höhenunabhängige Information liefert und zum anderen als Proxy für den Anteil an Polarwirbelluft in der vermessenen Luftmasse dient. Bei diesem Konzept wird ein vereinfachtes Bild der Atmosphäre betrachtet, in dem die Stratosphäre in Polarwirbel und mittlere Breiten unterteilt wird, die durch eine Grenzregion von einander getrennt sind. Der Polarwirbel und die mittleren Breiten enthalten jeweils vollständig durchmischte Luftmassen, durch die der charakteristische Hintergrund der jeweiligen Region beschrieben wird. In der Grenzregion kommt es immer wieder zu Mischung zwischen Luft aus den beiden getrennten Regionen.

Die Berechnung des Vortexindex erfolgt auf Basis der N_2O Messungen, da dieses Spurengas auf Grund seiner Lebensdauer und seiner Verteilung in der Atmosphäre für solche Untersuchungen gut geeignet ist, wie Ivanova (2007) darlegt. Im folgenden wird beschrieben, wie

die Berechnung des ΔN_2O und des Vortexindex für die Daten der RECONCILE-Kampagne umgesetzt wurde.

Ausgehend von den gemessenen N_2O -Höhenprofilen werden drei Polarwirbelreferenzprofile ermittelt, die dann jeweils für die Flüge im entsprechenden Zeitraum als Polarwirbelreferenz dienen. Durch die Unterteilung des Messzeitraums in drei Phasen wird das diabatische Absinken der Luft im Polarwirbel berücksichtigt, so dass der Wert ΔN_2O unabhängig von diesem dynamischen Einfluss ist. Der erste Zeitraum umfasst die Flüge 1-4 (Abb.3.3a), der zweite die Flüge 6-8 (Abb.3.3b) und der dritte die Flüge 9-13 (Abb.3.3c). Bei einer annähernd homogenen Zusammensetzung der Polarwirbelluft repräsentieren die Daten mit den niedrigsten N_2O -Mischungsverhältnissen, die durch die linke Einhüllende des N_2O -Vertikalprofils beschrieben werden, die vollständig durchmischte Polarwirbelluft, also die charakteristische Hintergrundluft für den Polarwirbel zu diesem Zeitpunkt.

Um ein Polarwirbelreferenzprofil zu bestimmen, werden zunächst die Polarwirbel Daten der einzelnen Zeiträume herausgefiltert. Filterkriterium ist „ Δ equivalent latitude“. „ Δ equivalent latitude“ gibt an, wo sich die jeweils vermessenen Luftpakete relativ zur Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) befinden. Daten mit einem positiven „ Δ equivalent latitude“ repräsentieren Luftpakete im Polarwirbel, Daten mit einem negativen „ Δ equivalent latitude“ Luftpakete außerhalb.

Um die linke Einhüllende des jeweiligen N_2O -Höhenprofils zu erhalten wird in Schritten von $\Theta = 10$ K das 10%-Dezil (10% der Daten liegen unterhalb dieses Wertes, 90% oberhalb) der Daten im entsprechenden Bereich gebildet, sofern 9 oder mehr Datenpunkte in diesem Bereich liegen. Die 10%-Dezile werden mit einer geglätteten, stückweise definierten Polynomfunktion (spline function) angefüttet, die dann als Polarwirbelreferenzprofil des entsprechenden Zeitraums dient. Die Fits, die die Polarwirbelreferenzprofile darstellen, sind in Abbildung 3.3 als durchgezogene Linien eingezeichnet.

Die Differenz ΔN_2O zwischen den gemessenen N_2O -Mischungsverhältnissen (N_2O) und dem Polarwirbelreferenzprofil (N_2O_{Vortex}), gibt den Abstand jedes vermessenen Luftpaketes zum Polarwirbel, repräsentiert durch das Referenzprofil bei der entsprechenden potenziellen Temperatur, in Einheiten von N_2O an.

$$\Delta N_2O(\theta) = N_2O(\theta) - N_2O_{Vortex}(\theta)$$

Da für viele Anwendungen eine höhenunabhängige Größe geeigneter ist, werden die berechneten ΔN_2O -Werte für diese Studie noch skaliert. Durch Skalierung des ΔN_2O -Wertes, mit dem Abstand zwischen einem Profil in mittleren Breiten und den jeweiligen Polarwirbelreferenzprofilen in der Höhe des entsprechenden ΔN_2O -Wertes, wird aus den ΔN_2O -Werten ein höhenunabhängiger Index (Vortexindex) berechnet. Das benötigte Referenzprofil für die mittleren Breiten (N_2O_{Midlat}) wird ermittelt, indem zunächst aus dem gesamten Datensatz der RECONCILE-Kampagne der Bereich zwischen 40° und 60° äquivalenter Breite herausgefiltert wird. Für diese Daten wird in Schritten von $\Theta=20$ K das 90%-Dezil (10% der

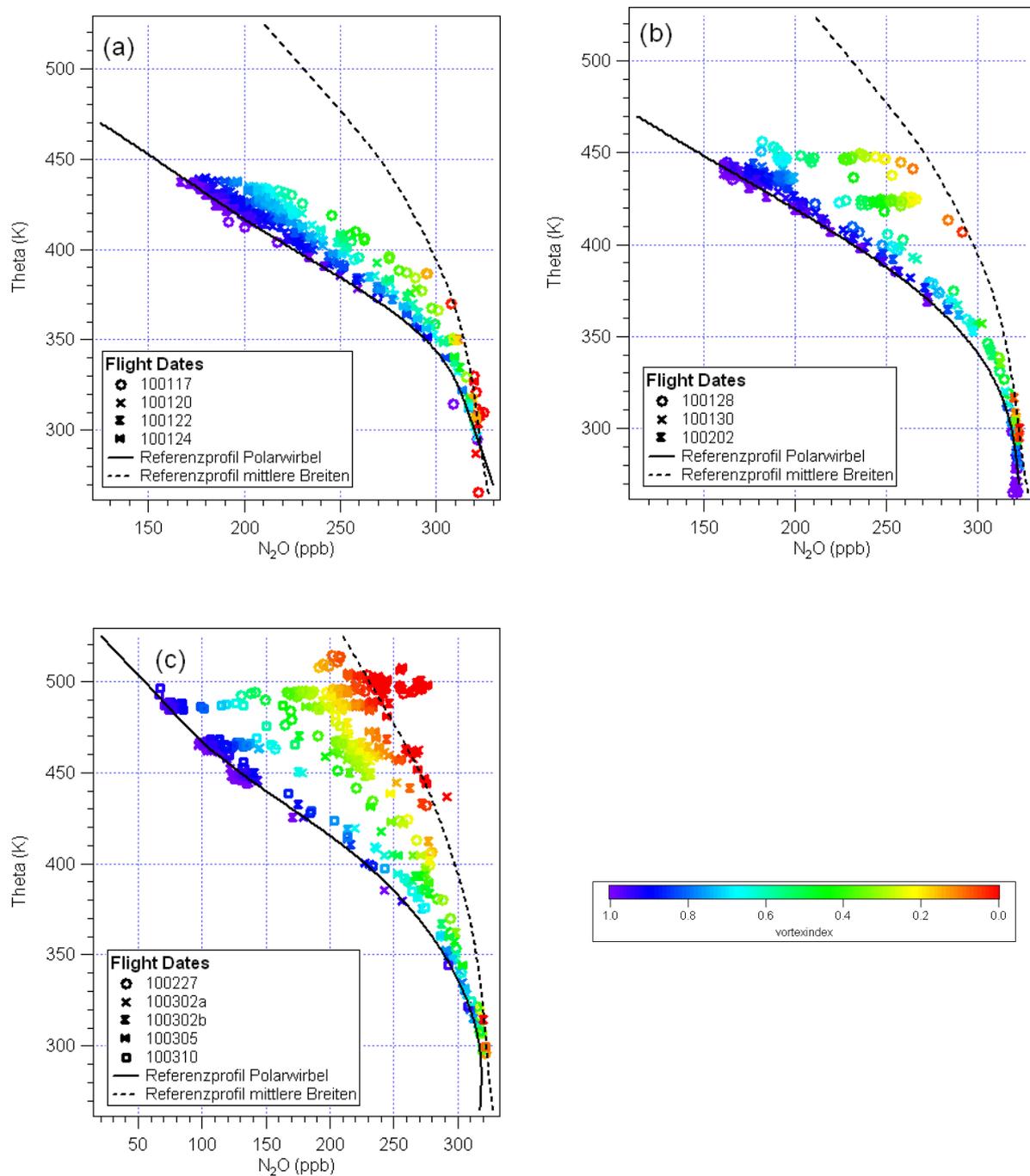


Abbildung 3.3: N_2O Höhenprofile (Höhenkoordinate: potenzielle Temperatur Θ) für die Flüge 1 - 4 (a), 6 - 8 (b) und 9 - 13 (c) mit den jeweiligen Polarwirbelreferenzprofilen (durchgezogene Linie) und dem Profil in mittleren Breiten (gestrichelte Linie) koloriert nach dem Vortexindex.

Werte liegen oberhalb des Werte, 90% unterhalb) gebildet. Die 90%-Dezile werden dann, wie die 10%-Dezile für die Ermittlung der Polarwirbelreferenzprofile, mit einer geglätteten, stückweise definierten Funktion angefügt, welche dann als Referenzfunktion für ein Profil in mittleren Breiten verwendet wird (gestrichelte Linie in Abbildung 3.3). Die Skalierung der $\Delta\text{N}_2\text{O}$ -Werte wird wie folgt vorgenommen:

$$\text{Vortexindex} = 1 - \frac{\Delta\text{N}_2\text{O}(\theta)}{\text{N}_2\text{O}_{\text{Midlat}}(\theta) - \text{N}_2\text{O}_{\text{Vortex}}(\theta)} \quad (3.1)$$

Der berechnete Vortexindex beschreibt die charakteristische Herkunft einer Luftmasse bezogen auf den Polarwirbel anhand der originalen chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre und kennzeichnet damit dynamische Prozesse, die zu einer Änderung der Zusammensetzung der Luft geführt haben. Da der Vortexindex auf die chemische Zusammensetzung Mitte Januar bezogen ist, können mit seiner Hilfe nur dynamische Prozesse analysiert werden, die sich auf diesen neu zusammengesetzten Wirbel beziehen, oder aber solche, deren Signaturen in der chemischen Zusammensetzung Mitte Januar noch nicht durch Vermischung ausgelöscht sind. Die Abbildung 3.3 zeigt, dass mit Hilfe des Vortexindex unter anderem auch eine Separation der Daten nach Polarwirbeln mit einem Vortexindex von 1, Daten aus mittleren Breiten mit Vortexindex von 0 und Daten, die in der „surf zone“ vermischte Luftmassen repräsentieren und die einen Vortexindex zwischen 0,2 und 0,8 zugewiesen bekommen, möglich ist. Ein negativer Wert des Vortexindex (z.B. Abbildung 3.4) kennzeichnet Luftmassen aus mittleren Breiten und den Subtropen.

3.2.2 Passive Tracer

Im CLaMS-Modell (McKenna et al., 2002a; McKenna et al. 2002b; s. auch Anhang C) erfolgt die Kennzeichnung der Herkunft einer Luftmasse mittels sogenannter passiver Tracer. Für die unterschiedlichen Bereiche der Stratosphäre, definiert über Grenzen in modified PV (Abk.: *mPV*) [Lait, 1994; siehe auch Anhang D] wird jeweils ein passiver Tracer definiert. Die Grenzen der einzelnen Bereiche und der zugehörige passive Tracer, wie sie in den verwendeten Simulationen initialisiert wurden, sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Die Luftpakete erhalten im Modell für jeden passiven Tracer einen Wert zwischen 0 und 1, die Summe aller passiven Tracer muss immer 1 ergeben. Zum Initialisierungszeitpunkt erhält der passive Tracer, der den Bereich kennzeichnet, in dem sich das Luftpaket befindet, den Wert 1, alle anderen den Wert 0 [Günther et al., 2008]. Die passiven Tracer durchlaufen während einer Simulation Advektion und Mischung, sie unterliegen aber keinen chemischen Prozessen. Damit kennzeichnen sie die dynamische Entwicklung seit dem Zeitpunkt der Initialisierung. Im Verlauf einer Simulation geben sie an jedem Ort an, wie groß jeweils der Anteil von Luft aus den verschiedenen definierten Bereichen ist. Die Summe aller passiven Tracer muss für jeden Datenpunkt den Wert 1 ergeben. Weitere Details zu den passiven Tracern finden sich in Günther et al. (2008).

In der folgenden Analyse werden die passiven Tracer P3-P8 zu einem passiven Tracer P-vortex zusammengefasst, der die gesamte Wirbelluft im Messbereich beschreibt. Die weitere

Tabelle 3.1: Grenzen der passiven dynamischen Tracer in mPV [G. Günther, persönliche Mitteilung]

Tracer	Grenze in mPVU	Beschreibung
P0	<8	niedrige Breiten
P1	8 - 14.7	mittlere Breiten
P2	14.7 - 19.8	äußere Wirbelgrenze
P3	19.8 - 22.2	innere Wirbelgrenze
P4	22.2 - 26.3	Wirbelkern auf 500 K
P5	26.3 - 27.5	Wirbelkern auf 550 K
P6	27.5 - 29.8	Wirbelkern auf 600 K
P7	29.8 - 32	Wirbelkern auf 650 K
P8	>32	Wirbelkern auf 700 K

Differenzierung, die sich auf potenzielle Temperaturen über 500 K bezieht, wird für die folgenden Analysen nicht benötigt, da die Messungen nur bis zu einer potenziellen Temperatur von 520 K durchgeführt wurden.

3.3 Validierung und Interpretation des Vortexindex

Im folgenden soll der, für die in-situ Daten berechnete, Vortexindex durch den vorgestellten passiven Tracer Pvortex im Modell validiert und interpretiert werden.

Die dazu verwendeten Modellsimulationen mit CLaMS liegen als Datensatz mit einer 24 stündigen zeitlichen Auflösung und einer räumlichen Auflösung von 70 km für die gesamte Nordhemisphäre vor und in einer zeitlichen und räumlichen Interpolation auf die Flugpfade der Geophysica. Der interpolierte Datensatz liegt in einer zeitlichen Auflösung von 1 s vor. In allen folgenden Abbildungen und Analysen wird die Höhe für die Messdaten durch die potenzielle Temperatur Theta (Θ) angegeben, für die Modelldaten durch die Hybridvertikalkoordinate Zeta (ζ) (Einheit: K), die in der Stratosphäre, oberhalb von 300 hPa, identisch mit der potenziellen Temperatur ist [Konopka et al., 2007].

Um Unterschiede, die zwischen Messung und Modell auftreten können, auszuschließen, wurde nach dem in Kapitel 3.2.1 beschriebenen Verfahren analog ein Vortexindex aus den Modelldaten berechnet, im folgenden als CLaMS Vortexindex bezeichnet. Die folgende Abbildung 3.4 zeigt den Vortexindex für die Messdaten im direkten Vergleich zum CLaMS Vortexindex. Dargestellt sind nur Daten, die oberhalb von 400 K gemessen wurden. Die beiden Indizes stimmen gut überein, wie auch der lineare Fit mit einem Korrelationskoeffizienten von 0,90 bestätigt. Die Abweichungen zwischen den beiden Indizes, insbesondere für im März gemessene Daten, werden in Abschnitt 3.4 diskutiert. Ein Vergleich des CLaMS Vortexindex mit den passiven Tracern, in den beiden folgenden Abschnitten vorgestellt, erlaubt also auch eine Aussage über den Vortexindex für die Messungen.

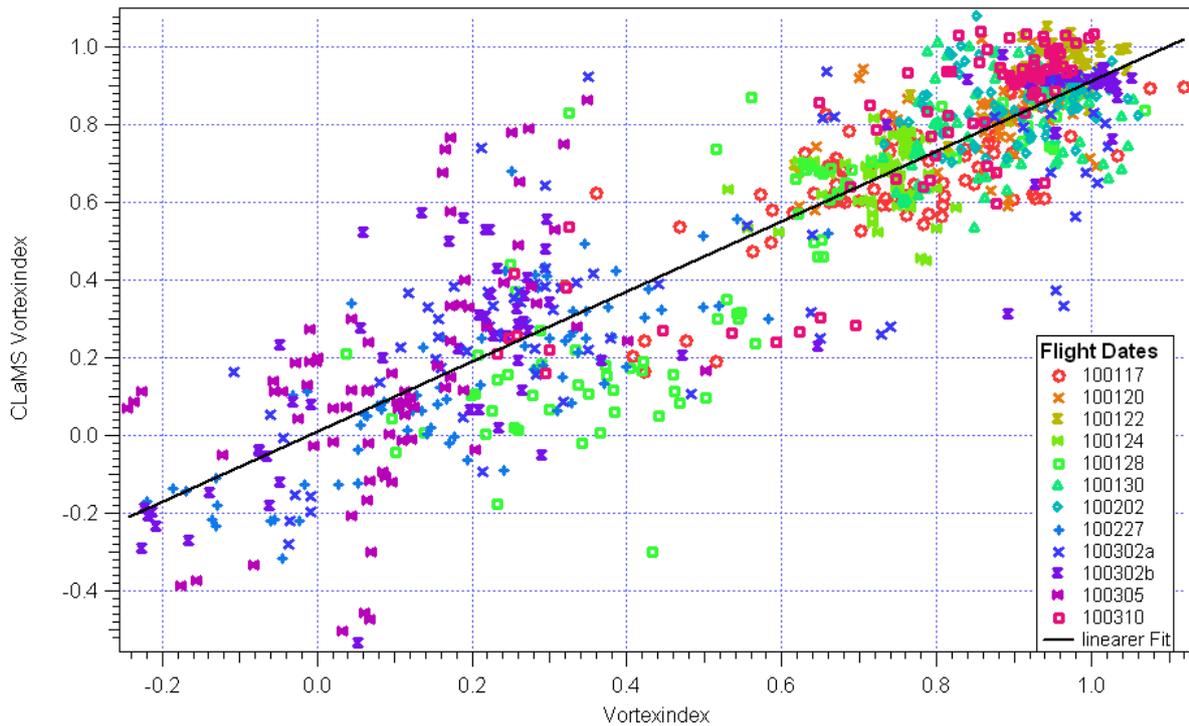


Abbildung 3.4: Direkter Vergleich des Vortexindex und des CLaMS Vortexindex oberhalb von 400 K. Die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugtage, in schwarz ist der lineare Fit zwischen den beiden Indizes eingezeichnet.

3.3.1 Überprüfung der zugrundeliegenden Annahmen

Wie in Abschnitt 3.2.1 dargelegt, liegen der Definition des Vortexindex die Annahmen zugrunde, dass im Polarwirbel gut durchmischte Luftmassen vorliegen, die die charakteristische Hintergrundluft des Polarwirbels repräsentieren und dass in diesen Luftmassen die niedrigsten N_2O -Mischungsverhältnisse gemessen wurden. Im folgenden soll mit Hilfe des passiven Tracers Pvortex gezeigt werden, dass diese Annahmen in diesem Winter erfüllt waren bzw. welche Einschränkungen sich aus der speziellen dynamischen Situation dieses Winters ergeben haben. Hierzu wird eine Simulation verwendet, die am 1.12.2009 initialisiert wurde. Wurden die Polarwirbelreferenzprofile zur Definition des Vortexindex in Regionen gemessen, in denen die Wirbelluft der charakteristischen Hintergrundluft entspricht, so müssen die Daten, denen ein Vortexindex von 1 zugewiesen wird, auch für Pvortex einen Wert von 1 haben.

Die folgende Abbildung 3.5 zeigt den CLaMS Vortexindex und den passiven Tracer Pvortex im direkten Vergleich zueinander. Die Modelldatenpunkte wurden durch einen zeitlichen Filter auf die HAGAR-Messzeitpunkte reduziert. Dargestellt sind nur Daten oberhalb von 400 K. Die Abbildung zeigt eine Abweichung zwischen den beiden Größen. Daten, denen ein Vortexindex von 1 zugewiesen wird, d.h. Datenpunkte die auf dem Referenzprofil liegen, werden für Pvortex größtenteils Werte zwischen 0,4 und 0,8 zugewiesen.

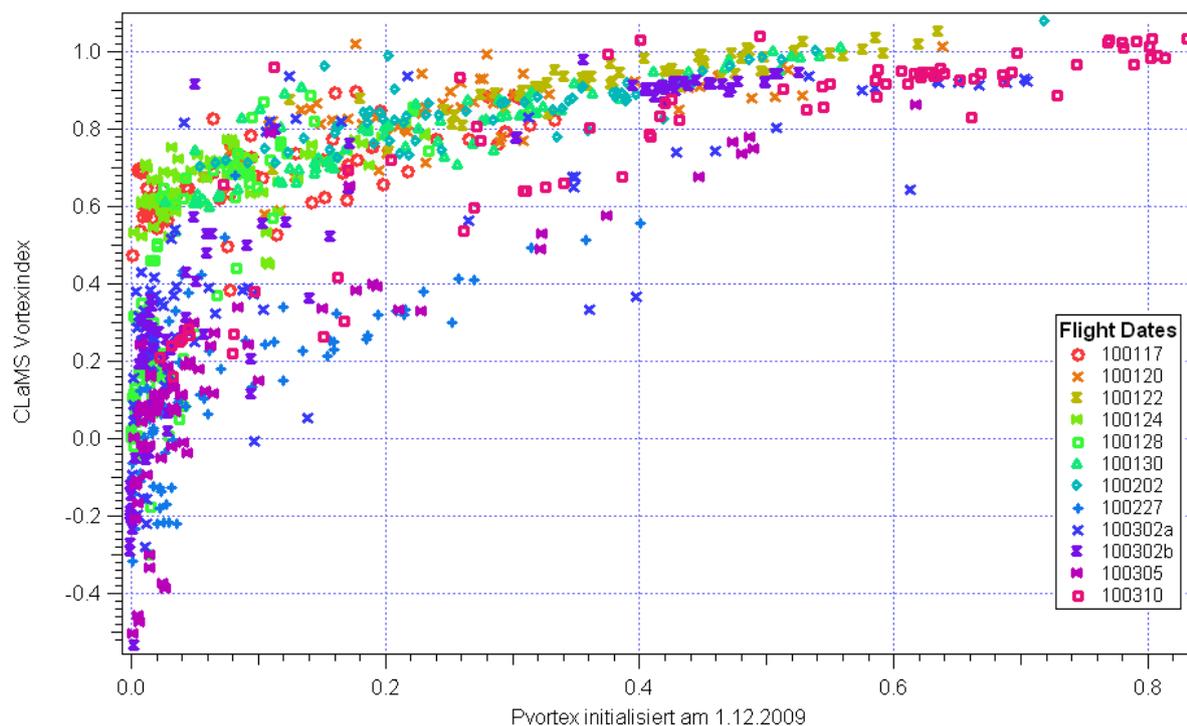


Abbildung 3.5: Direkter Vergleich des CLaMS Vortexindex und des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, farblich gekennzeichnet sind die einzelnen Flugtage. Die Modelldaten sind reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte; dargestellt sind nur Daten oberhalb von 400 K.

Der Hauptunterschied zwischen den beiden Größen ist der Initialisierungszeitpunkt. Der passive Tracer Pvortex wurde am 1.12.2009 initialisiert und bezieht sich auf die dynamische Struktur der Atmosphäre und den Polarwirbel zu diesem Zeitpunkt. Der CLaMS Vortexindex und der Vortexindex aus den Messdaten beziehen sich auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre und den Polarwirbel Mitte Januar. Wie in Abschnitt 3.1 dargelegt, ist der Polarwirbel im Zuge eines „sudden stratospheric warming“ in zwei Fragmente auseinandergebrochen, die Ende Dezember wieder zu einem Wirbel recombinierten. In Folge dieses Zusammenschlusses wurden, wie der passive Tracer Pvortex durch Maximalwerte von 0,8 zeigt, Luftmassen in den Wirbel eingetragen, die zu einer Verdünnung der ursprünglichen Polarwirbelluft geführt haben. Offenbar hat Vermischung der eingetragenen Luft mit der umgebenden Wirbelluft bis Mitte Januar dazu geführt, dass im Januar keine ursprüngliche Wirbelluft mehr beobachtet werden konnte. Das beobachtete Wirbelreferenzprofil (Vortexindex = 1) repräsentiert stattdessen bereits vermischte Luftmassen. Daher kommt es zu Differenzen in den Absolutwerten zwischen Pvortex und dem Vortexindex.

Mit Hilfe des passiven Tracers Pvortex kann überprüft werden, wie homogen durchmischt der Polarwirbel zum Zeitpunkt der Kampagne, nach dieser großen Einmischung, bereits wieder war und ob die Annahme, dass die niedrigsten gemessenen N_2O -Mischungsverhältnisse

charakteristische Hintergrundluft des neu zusammengesetzten Wirbels beschreiben, gerechtfertigt ist. Die folgenden Abbildungen 3.6 zeigen die Polaufsicht des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, für die drei Zeitabschnitte, für die jeweils ein Referenzprofil zur Berechnung des Vortexindex ermittelt wurde. Die Abbildung zeigt, dass der

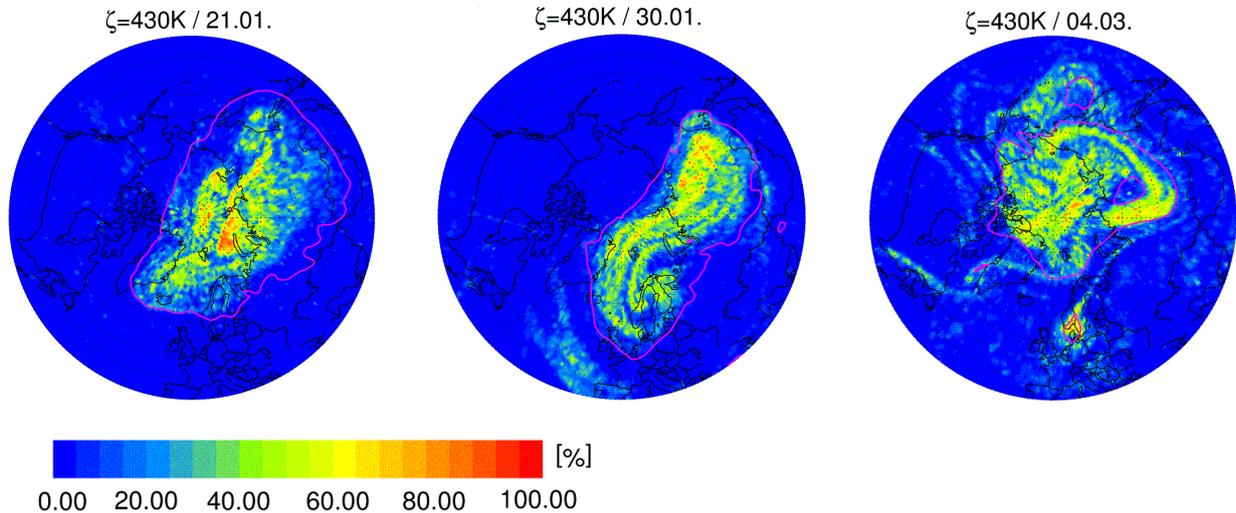


Abbildung 3.6: Polaufsicht (40° - 90° N) des passiven Tracers Pvortex auf 430K, initialisiert im Dezember, für drei Tage, die jeweils einen der Zeitabschnitte repräsentieren, in denen die jeweiligen Polarwirbelreferenzprofile zur Berechnung des Vortexindex definiert wurden. In pink ist die Lage der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) eingezeichnet.

Polarwirbel nach der Rekombination im Dezember, insbesondere im Januar, noch nicht wieder vollständig homogenisiert war. Innerhalb der Polarwirbelgrenze finden sich Regionen in denen der Wert von Pvortex 0 beträgt; in anderen Regionen gibt Pvortex den Anteil Wirbelluft mit 100% an, während der größte Teil des Wirbels noch 50% Polarwirbelluft enthält. Der Vergleich zwischen dem Vortexindex und Pvortex in Abbildung 3.5 zeigt, dass die Luftmassen, die im ersten Zeitraum zwischen dem 17.1. und 24.1. einen Vortexindex von 1 zugewiesen bekommen, für Pvortex im Mittel einen Wert von 0,5 erhalten. Für den zweiten Zeitraum haben die Datenpunkte mit einem Vortexindex von 1 im Mittel ebenfalls einen Wert für Pvortex von 0,5 und für den dritten Zeitraum (27.2. - 10.3.) einen mittleren Pvortex-Wert von 0,6. Der zeitliche Verlauf von Pvortex in Abbildung 3.6 zeigt, dass durch die im Januar andauernde Vermischung, die zunehmend homogene Hintergrundluft im Polarwirbel nach dem Split und der Rekombination für Pvortex in der Dezemberinitialisierung einen Wert von 0,5 zugewiesen bekommt. Das bedeutet, die Daten mit den niedrigsten N_2O -Mischungsverhältnissen, denen beim Vortexindex der Wert 1 und bei Pvortex der Wert 0,5 zugewiesen wird, wurden in einer Region im Polarwirbel gemessen, die nach dem Modell schon relativ gut durchmischt war. Somit kann argumentiert werden, dass die verwendeten Polarwirbelreferenzprofile den gut durchmischten Zustand des Polarwirbels beschreiben. Somit ist die Annahme, auf der die Definition des Vortexindex basiert, erfüllt

und der Vortexindex kann zur Kennzeichnung der Luftmassenherkunft eingesetzt werden.

3.3.2 Interpretation des Vortexindex

Um die berechneten Werte des Vortexindex besser mit den Werten für den passiven Tracer Pvortex vergleichen zu können, wurde eine weitere Simulation mit CLaMS durchgeführt, bei der die passiven Tracer am 15.1.2010, alle anderen Spezies wie gehabt am 1.12.2009 initialisiert wurden. Die Neuinitialisierung der passiven Tracer bietet auch durch den Vergleich mit der Initialisierung im Dezember die Möglichkeit, den Einfluss des „sudden stratospheric warming“ auf den Polarwirbel abzuschätzen.

Die folgende Abbildung 3.7 zeigt den Vergleich zwischen dem CLaMS Vortexindex und dem passiven Tracer Pvortex, initialisiert im Januar, für die erste Phase der Kampagne. Die Modelldatenpunkte wurden hier ebenfalls auf die Messzeitpunkte von HAGAR reduziert. Dargestellt ist der Höhenbereich oberhalb von 400 K. Unterhalb von 400 K-420 K ist die Transportbarriere am Polarwirbelrand deutlich schwächer und es kommt zu starken meridionalen Transport- und Mischungsprozessen. Dieser Höhenbereich wird von daher in diesem Vergleich nicht betrachtet.

Zum Initialisierungszeitpunkt würde man, wenn beide Größen exakt die gleiche Informati-

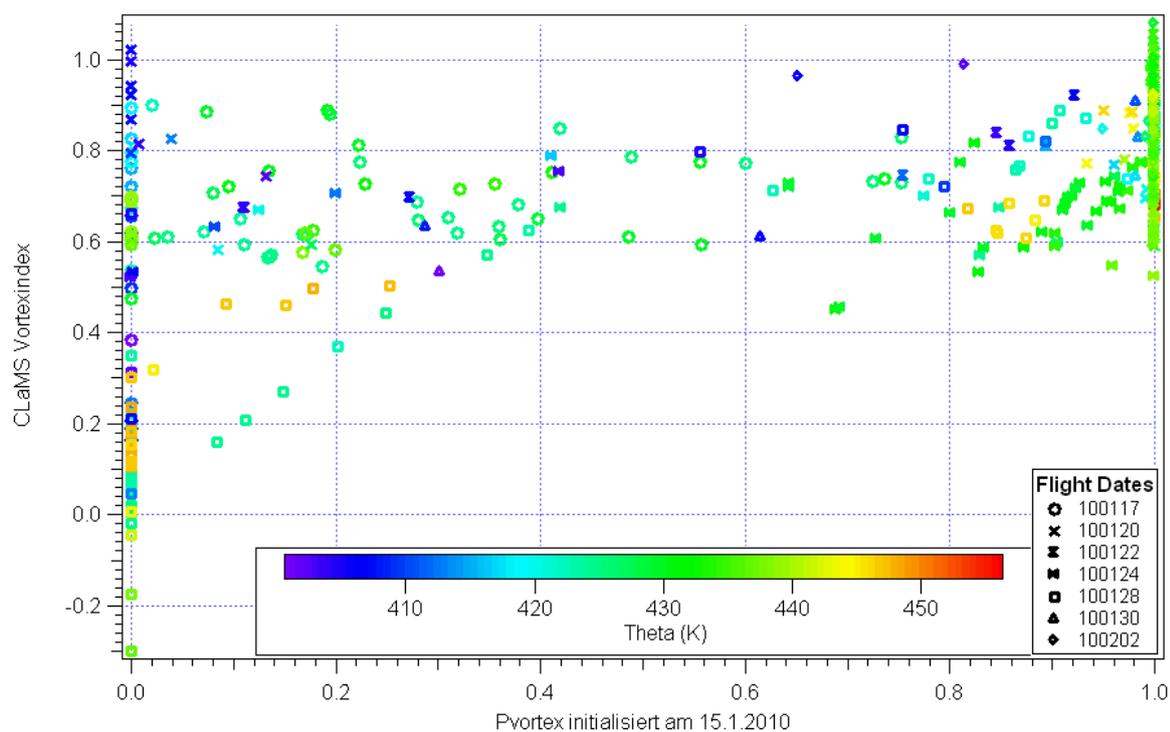


Abbildung 3.7: Direkter Vergleich des CLaMS Vortexindex und des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, für die Flüge 1-8 oberhalb von 400 K. Farblich gekennzeichnet ist die Höhe Theta. Die Modelldaten sind reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte.

on liefern, erwarten, dass alle Datenpunkte im Diagramm bei den Punkten (0,0) und (1,1) liegen. Abbildung 3.7 zeigt, dass die meisten Datenpunkte für Pvortex zwar die Werte 0 und 1 haben, die Werte für den Vortexindex jedoch stark streuen. Diese Streuung lässt sich auf die unterschiedliche Definitionsgrundlage der Indizes zurückführen. Während allen Luftpaketen, die sich am 15.1.2010 im Polarwirbel, dessen Grenze durch die mPV Isolinie bei 19,8 PVU bestimmt ist, befanden, für Pvortex der Wert 1 zugewiesen wurde, basiert die Definition des Vortexindex auf der Annahme, dass die jeweils niedrigsten gemessenen N_2O -Mischungsverhältnisse auf einer Höhe, die für den ganzen Wirbel charakteristische Hintergrundluft repräsentieren. Inhomogenität in der chemischen Zusammensetzung des Wirbels Mitte Januar, z.B. durch unvollständige Durchmischung, führt daher bereits zum Initialisierungszeitpunkt zu einer Bandbreite von Werten des Vortexindex.

Die Inhomogenitäten im Polarwirbel werden von Pvortex, initialisiert im Dezember, und vom Vortexindex angezeigt, während sie durch den passiven Tracer Pvortex, initialisiert im Januar, nicht kenntlich gemacht werden können, da alle Luftmassen, die sich am 15.1.2010 im Wirbel befanden, den Wert 1 zugewiesen bekommen. Die folgende Abbildung 3.8 zeigt den Vergleich zwischen Pvortex, in den beiden Initialisierungen, und dem Vortexindex, veranschaulicht durch das N_2O -Feld, am 15.1.2010. Die Abbildung verdeutlicht, dass die

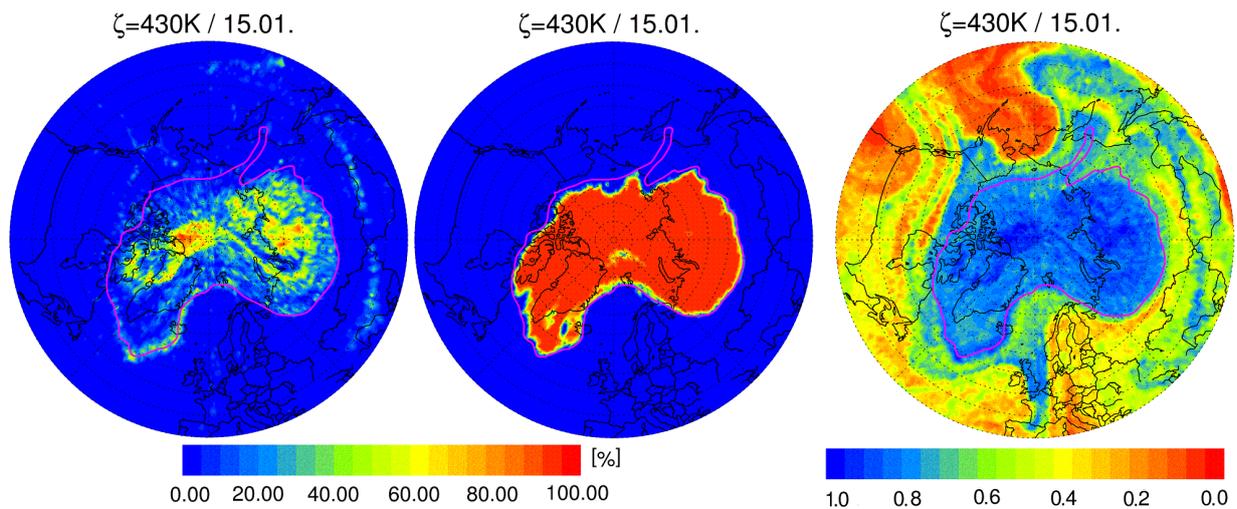


Abbildung 3.8: links: Polaraufsicht des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, am 15.1.2010. mittig: Polaraufsicht des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, am 15.1.2010. rechts: Polaraufsicht des Vortexindex, veranschaulicht durch das N_2O -Feld am 15.1.2010. In pink ist in allen Abbildungen die Wirbelgrenze nach Nash dargestellt, alle Abbildungen zeigen 40° - 90° N auf 430 K.

Inhomogenitäten, die im Januar durch Pvortex, initialisiert im Dezember, angezeigt werden, in der Initialisierung im Januar nicht berücksichtigt werden. Durch den Vortexindex werden sie jedoch gezeigt. Das bedeutet, im Polarwirbel kann es, auch wenn der Vortexindex und der passive Tracer Pvortex, initialisiert im Januar, überwiegend sehr gut übereinstimmen, zu Abweichungen kommen, wenn Bereiche betrachtet werden, die nicht

vollständig durchmischt sind und die in der Folge einen niedrigeren Vortexindex, aber für Pvortex einen Wert von 1 haben, wie in Abbildung 3.8 veranschaulicht wird.

Die Datenpunkte, die in Abbildung 3.7 zwischen den beiden Extrempunkten von Pvortex liegen, kommen durch Messungen im Randbereich des Wirbels bzw. durch die Vermessung eines Filamentes am 17.1. (siehe Kapitel 4.1 und 4.2) zustande. In diesem Bereich kommt es zu Mischung zwischen dem Wirbelrand bzw. dem Filament und der umgebenden Wirbelluft.

Abbildung 3.9 zeigt den Vergleich zwischen Pvortex und dem Vortexindex in der zweiten Phase der Kampagne. Wie schon in Abbildung 3.7 sind auch in dieser Abbildung die

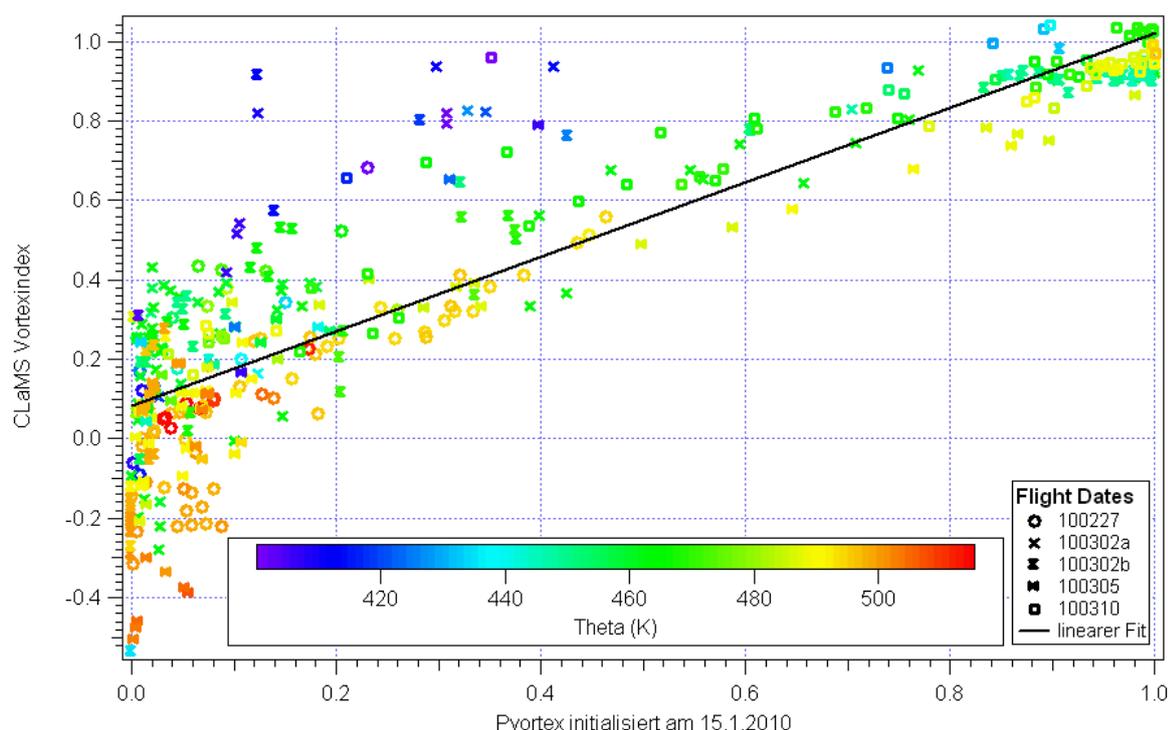


Abbildung 3.9: Direkter Vergleich des CLaMS Vortexindex und des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, für die Flüge 9-13 oberhalb von 400 K. Farblich gekennzeichnet ist die Höhe Theta. Die Modelldaten sind reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte. Die schwarze Linie kennzeichnet den linearen Fit der Daten.

Modelldatenpunkte auf die HAGAR-Messzeitpunkte reduziert und es wird nur der Höhenbereich oberhalb von 400 K dargestellt. Je länger der Initialisierungszeitpunkt zurückliegt, desto mehr Mischungsprozesse werden beobachtet. Mischungsprozesse führen dazu, dass die Anteile reiner Wirbelluft bzw. reiner Luft aus der „surf zone“ in den gemessenen Luftpaketen geringer werden, d.h. dass mehr Werte (für beide Größen) zwischen den beiden Extrempunkten liegen. Im Idealfall, in dem Vortexindex und Pvortex die selbe Aussage treffen, würden die Daten eins zu eins übereinstimmen. Abbildung 3.9 zeigt, dass die beiden Größen gut übereinstimmen. Der Fit bestätigt, durch einen Korrelationskoeffizienten von 0,89, dass in dieser Phase eine gute Korrelation zwischen den beiden Größen vorhanden

ist. Die größten Abweichungen zeigen Daten, die unterhalb von 420 K gemessen wurden. In diesem Höhenbereich, nahe der Unterkante des Polarwirbels, kommt es, auf Grund der unterschiedlichen Definitionen, zu Unterschieden zwischen den beiden Größen.

Wie dieser Vergleich zeigt, liefern Pvortex und der Vortexindex im Mittel gut übereinstimmende Ergebnisse. Die Absolutwerte der beiden Indizes können zwar nicht für jeden einzelnen Datenpunkt direkt verglichen werden, da der Wert des Vortexindex im Fall von Transport- und Mischungsprozessen davon abhängt, aus welchen Regionen die Luftmassen stammen, die miteinander vermischt wurden, während dies für Pvortex keine Rolle spielt. Dies führt in Phase 2 zu Abweichungen von bis zu 20%. Die größten Abweichungen treten hier, bedingt durch die unterschiedlichen Definitionen, bei Daten, die für Pvortex einen Wert von 0 haben, auf. Die Werte für den Vortexindex haben außerhalb des Wirbels eine größere Bandbreite (-0,2-0,7), je nachdem ob die Daten in der direkten Umgebung des Polarwirbels gemessen wurden oder in subtropischen Luftmassen. Pvortex dagegen differenziert die verschiedenen Regionen außerhalb des Polarwirbels nicht. Wie Abbildung 3.9 zeigt, ist es aber möglich, durch den Vortexindex für die zweite Phase der Kampagne den Anteil Wirbelluft an einem vermessenen Luftpaket abzuschätzen. Der Vortexindex kann aber immer, unabhängig von den bestimmten Absolutwerten, vergleichbar mit passiven Tracern im Modell, zur Kennzeichnung der Luftmassenherkunft für in-situ Messungen verwendet werden. Der Vortexindex ermöglicht auch im Modell, im Gegensatz zu den simulierten passiven Tracern, Transportanalysen, die unabhängig von eventuellen Fehlern in der Simulation von Transportprozessen sind.

3.4 Transport in der arktischen Polarregion

In dieser Analyse soll hauptsächlich der meridionale Transport von Luftmassen über die Wirbelgrenze hinweg für die beiden Phasen der Kampagne untersucht werden. Von Interesse sind bei einer solchen Analyse irreversible Transportprozesse, da diese die Polarwirbelluft beeinflussen können. Die Verwendung der äquivalenten Breite (siehe Anhang D.3) als Koordinate in einer Transportanalyse bietet gegenüber der Verwendung der geographischen Breite den Vorteil, dass alle reversiblen Wellentransporte nicht berücksichtigt werden und nur die irreversiblen Transporte dargestellt werden können. Daher wird im folgenden die Transportanalyse basierend auf der äquivalenten Breite durchgeführt.

Die stabile Transportbarriere am Wirbelrand bildete sich erst in einer Höhe von etwa 400 K - 420 K aus. Die Höhenprofile von N_2O in Abbildung 3.3 zeigen ab dieser Höhe deutliche Unterschiede zwischen den Mischungsverhältnissen im Polarwirbel und in der „surf zone“. Unterhalb dieser Höhe stimmen die Mischungsverhältnisse in den verschiedenen Bereichen überein. Auch die Spurengasmessungen des Fernerkundungsinstrumentes CRISTA-NF, das während des gesamten Fluges Profile verschiedener Spurengase unterhalb der Flughöhe misst, zeigen in einer Höhe von 15 km (entspricht 410 K) einen sehr starken vertikalen Gradienten, der die Unterkante des Wirbels kennzeichnet [Kalicinsky, 2012]. Unterhalb des Wirbels kommt es verstärkt zu meridionalen Transporten [vgl. z.B. Manney et al.; Werner et al., 2010], die in den folgenden Analysen zu erkennen sind, auf die jedoch nicht näher

eingegangen wird.

Für die Analyse von Transport- und Mischungsprozessen ist die Kenntnis der Herkunft der Luft notwendig. Der Vortexindex, der die charakteristische Herkunft aufgrund der chemischen Zusammensetzung anzeigt und die passiven Tracer in CLaMS, die die Herkunft anhand der dynamischen Position zum Initialisierungszeitpunkt anzeigen, bieten diese Kenntnis und können daher als Werkzeuge zur Identifizierung des Transports eingesetzt werden. Betrachtet man die geographische Verteilung des Vortexindex und der passiven Tracer in einem bestimmten Zeitraum, kann festgestellt werden, ob die Luftmassen, die in einem bestimmten Bereich beobachtet werden, dort ihren Ursprung haben oder aus anderen Regionen dorthin transportiert wurden.

3.4.1 Beobachteter Transport

Die Abbildung 3.10 zeigt die geographische Verteilung des Vortexindex bezogen auf die Wirbelgrenze, bestimmt nach Nash et al (1996), im Januar. Ohne Transport von Luftmassen über die Wirbelgrenze hinweg würden im Wirbel nur Daten mit einem sehr hohen Vortexindex $\geq 0,8$ gemessen, außerhalb nur Daten mit einem niedrigeren Vortexindex. Es befinden sich aber, wie Abbildung 3.10 zeigt, eine am 17.1. vermessene Luftmasse mit Vor-

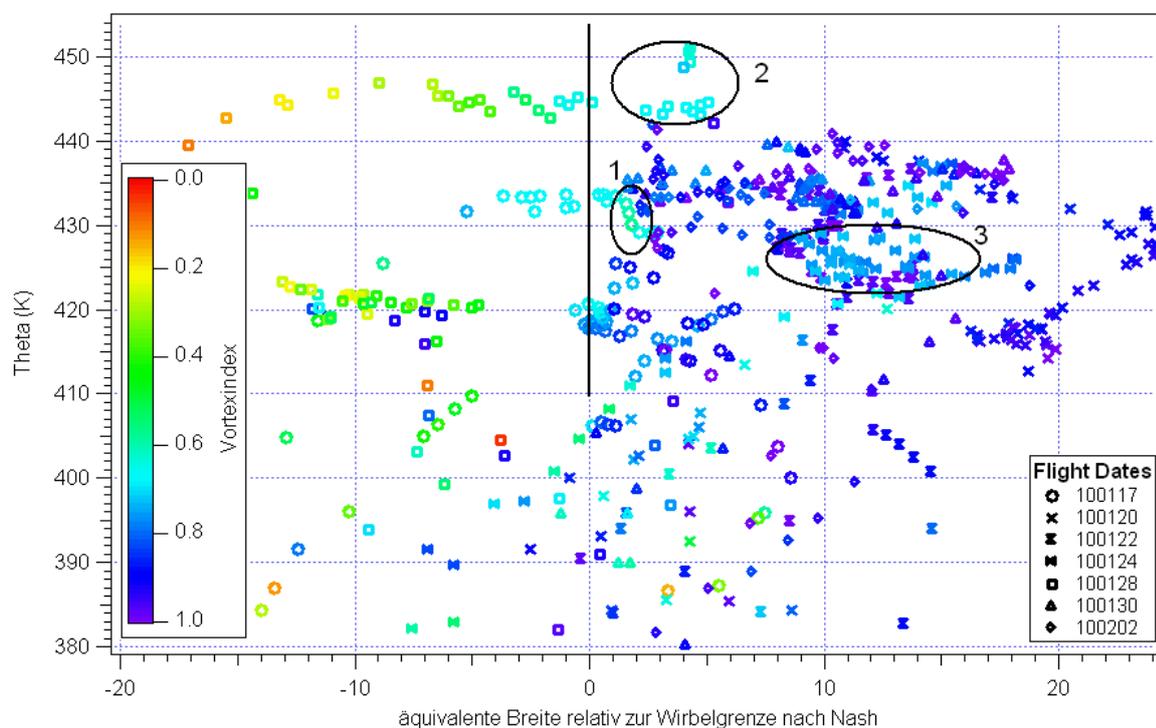


Abbildung 3.10: Geographische Verteilung des Vortexindex zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg für die Flüge 1-8. Gekennzeichnet sind drei Datenbereiche, die einen Transport von Luftmassen in den Wirbel anzeigen.

tindex 0,5 (1 in Abbildung 3.10) und verschiedene Luftmassen mit einem Vortexindex von 0,7 (2 und 3 in Abbildung 3.10) innerhalb der Wirbelgrenze, d.h. es wurde Luft von außen in den Wirbel transportiert.

Der Vortexindex gibt allerdings keine Auskunft darüber, ob es sich um wirbelnahe Luft aus hohen Breiten mit einem Vortexindex von 0,7 handelt, die in den Wirbel transportiert wurde oder um Luft aus mittleren bis niedrigen Breiten mit einem niedrigeren Vortexindex, die bereits mit Wirbelluft vermischt wurde. Die Daten von Luftmassen mit einem Vortexindex $\sim 0,8$, die im Wirbel gemessen wurden, verteilen sich über den gesamten bei dieser Phase abgedeckten Höhenbereich und wurden bei verschiedenen Flügen gemessen. Die Abbildung zeigt weiter, dass es außerhalb des Polarwirbels einen Bereich von ca. $3-5^\circ$ Breite gibt, in dem Luftmassen gemessen wurden denen ein Vortexindex von 0,6 - 0,7 zugeordnet wird. Das bedeutet, dass dort Luftmassen vermessen wurden, deren Charakteristik nicht der von Luft aus der „surf zone“ (im Mittel Vortexindex 0,3) entspricht.

Unterhalb von 410 K, an der Polarwirbelunterkante, finden sich verstärkt Luftmassen mit einem hohen Vortexindex außerhalb des Polarwirbels. Das bedeutet, dass in diesem Höhenbereich, in dem die Transportbarriere deutlich schwächer ausgeprägt ist, ein Ausfluss von Polarwirbelluft beobachtet werden konnte.

Das gleiche Verfahren wird auch auf die Daten der Flüge 9 - 13 angewendet. In Abbildung 3.11 ist die Verteilung des Vortexindex im Bezug auf die Wirbelgrenze nach Nash dargestellt. Im März wurden, zwei jeweils auf eine Höhe begrenzte, Transportereignisse über die Wirbelgrenze hinweg beobachtet. Zunächst konnten bei einer potenziellen Temperatur von 470 K Luftmassen mit einem Vortexindex von 0,3 bis 0,7 innerhalb des Polarwirbels vermessen werden (1 in Abbildung 3.11). Bei einer potenziellen Temperatur von 490 K wurden Luftmassen mit einem Vortexindex von 0,4-0,6 außerhalb des Wirbels, ca. 15° von der Wirbelgrenze entfernt beobachtet (Ereignis 3 in Abbildung 3.11). Ein dritter Transportprozess (2 in Abbildung 3.11), der bei 60°N zu beobachten war, wird in dieser Darstellung durch Daten mit einem Vortexindex ≤ 0 , der Luft aus mittleren Breiten (ca. 40°N) kennzeichnet, visualisiert. In der zweiten Phase von RECONCILE konnten also drei verschiedene Transportereignisse beobachtet werden, der Transport von Luft in den Wirbel hinein, der Transport von Wirbelluft in die „surf zone“ und Transport von Luft aus niedrigen Breiten in die Polarregion hinein. Eine detailliertere Betrachtung erfolgt in Kapitel 4.2.

Auch in diesem Zeitraum ist ein ca. 6° breiter Bereich um die Wirbelkante herum beobachtet worden, in dem nicht reine Luft aus der „surf zone“ gemessen wurde.

In dieser Phase finden sich unterhalb von 410 K Luftmassen mit dem gesamten Spektrum an Werten für den Vortexindex, sowohl innerhalb, als auch außerhalb der Polarwirbelgrenze. Das bedeutet, dass in diesem Höhenbereich die Transportbarriere an der Polarwirbelgrenze soweit abgeschwächt ist, dass es zu verstärktem meridionalen Transport kommt.

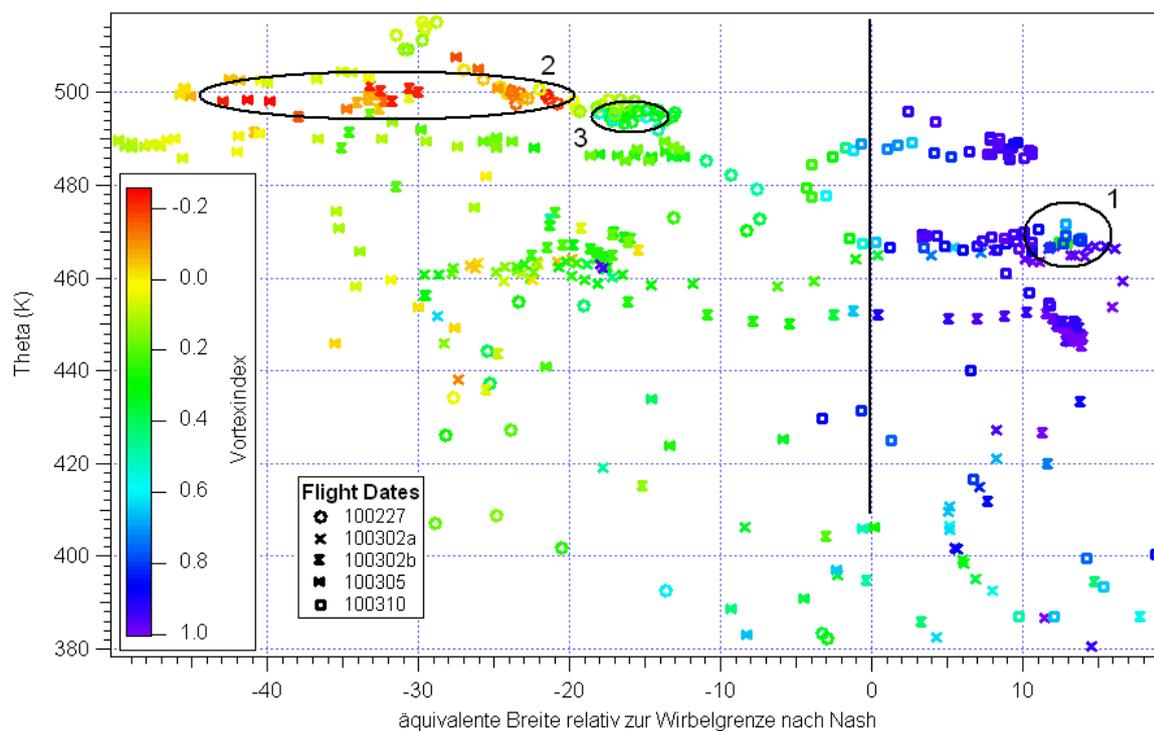


Abbildung 3.11: Geographische Verteilung des Vortexindex zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg für die Flüge 9 - 13 mit Kennzeichnung der drei beobachteten Transportereignisse. Die Farbskala berücksichtigt hier auch negative Werte für den Vortexindex zur Identifikation der subtropischen Luftmassen.

Um die Übergangsregion zwischen Polarwirbel und mittleren Breiten, die sich in den Abbildungen 3.10 und 3.11 andeutet, detaillierter betrachten zu können, ist in Abbildung 3.12 der Vortexindex in Abhängigkeit von der äquivalenten Breite, bezogen auf die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996), dargestellt. Im Polarwirbel werden den Luftmassen im Mittel Werte zwischen 0,8 und 1,0 zugewiesen (die Werte zwischen 0,6 und 0,7 innerhalb des Wirbels sind auf Transport zurückzuführen s.o.), in der „surf zone“ erhalten die Luftmassen im Mittel einen Vortexindex von 0,3. Die Verteilung des Vortexindex zeigt nun, dass die Werte des Vortexindex in einem 3-5° breiten Übergangsbereich um die Wirbelgrenze herum von 0,8 auf 0,3 abfallen. Das bedeutet, dass die, nach der Theorie gut durchmischte „surf zone“ [McIntyre und Palmer, 1984], gekennzeichnet durch einen Vortexindex von 0,3, hier nicht direkt an den, ebenfalls gut durchmischten, Wirbel grenzt, sondern durch eine weniger gut durchmischte Übergangsregion, die Transportbarriere, von diesem getrennt ist. Im Gegensatz zur Studie von Haynes und Shuckburgh (2000), die in einer Modellstudie auch eine, an die „surf zone“ angrenzende Region, geringer Mischung identifiziert haben, handelt es sich in den Beobachtungen nur um einen Übergangsbereich an der Wirbelgrenze. In dieser Modellstudie ist der Wirbel selber auch durch geringe Mischung gekennzeichnet, was durch die Vortexindexwerte, die innerhalb des Polarwirbels keinen Gradienten aufweisen in dieser Analyse nicht bestätigt wird.

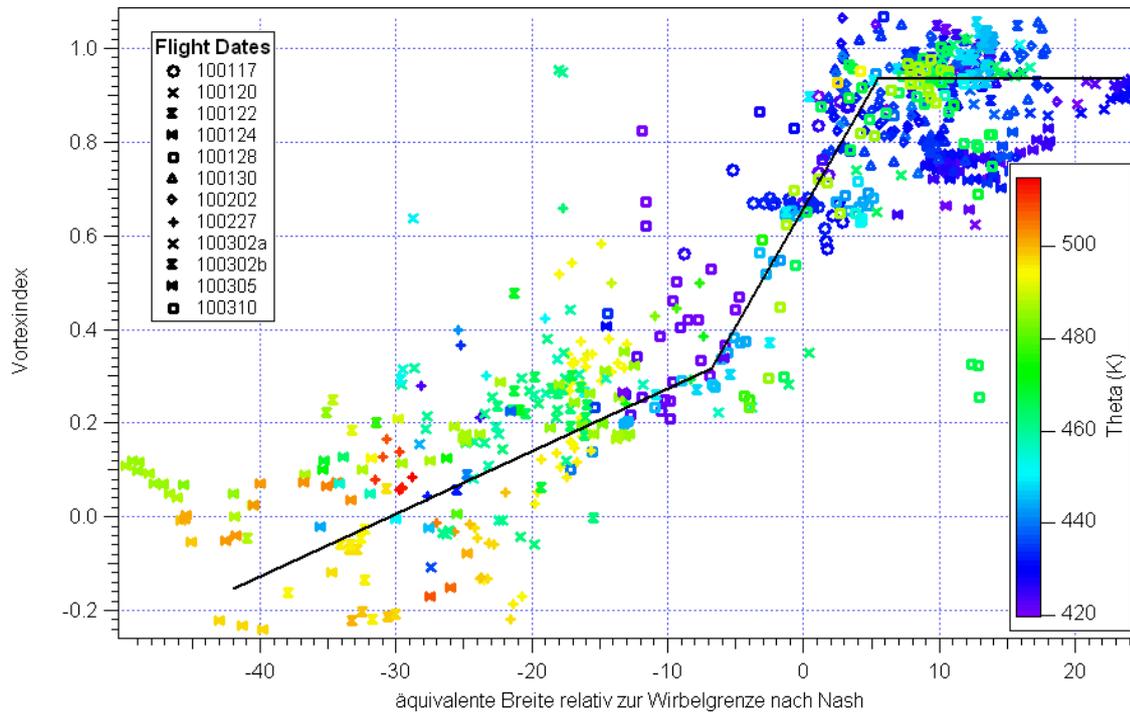


Abbildung 3.12: Abhängigkeit des Vortexindex von der äquivalenten Breite bezogen auf die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996). Farblich gekennzeichnet ist die Höhe Theta. Dargestellt ist nur der Höhenbereich oberhalb von 420 K.

3.4.2 Simulierter Transport in CLaMS

Im folgenden soll der beobachtete Transport mit dem durch CLaMS simulierten Transport verglichen werden. In Abbildung 3.13 ist die gleiche Analyse für den passiven Tracer Pvortex, initialisiert im Januar, dargestellt. Die Zahl der Modelldatenpunkte wurde für diesen Vergleich auf die Zahl der HAGAR-Messpunkte reduziert. Der passive Tracer Pvortex, initialisiert im Januar, zeigt ebenfalls Transport von Luftmassen, in den Wirbel, gekennzeichnet durch Datenpunkte mit einem Wert von $\leq 0,8$ für Pvortex. Während durch den Vortexindex drei deutliche Transportereignisse angezeigt werden, lässt sich durch den passiven Tracer Pvortex nur ein Ereignis identifizieren. Die mit 1 gekennzeichneten Umrandungen in den Abbildungen 3.10 und 3.13 zeigen, dass dieses Transportereignis durch beide Indizes angezeigt wird (Details siehe Kapitel 4). Die weiteren Transporte, die durch den Vortexindex angezeigt werden (2 und 3), werden durch Pvortex, initialisiert im Januar, nicht angezeigt. Der passive Tracer indiziert einen weiteren Transport, beobachtet während Flug 1 am 17.1., zwischen 420 K und 430 K, der durch den Vortexindex nicht angezeigt wird. Da auf die Region nahe der Polarwirbelunterkante in dieser Studie nicht eingegangen wird, wird dieser Transportprozess im folgenden nicht weiter untersucht. Die Region unvollständiger Durchmischung an der Polarwirbelgrenze, die durch den Vortexindex identifiziert werden konnte, kann durch Pvortex nicht angezeigt werden, da dieser

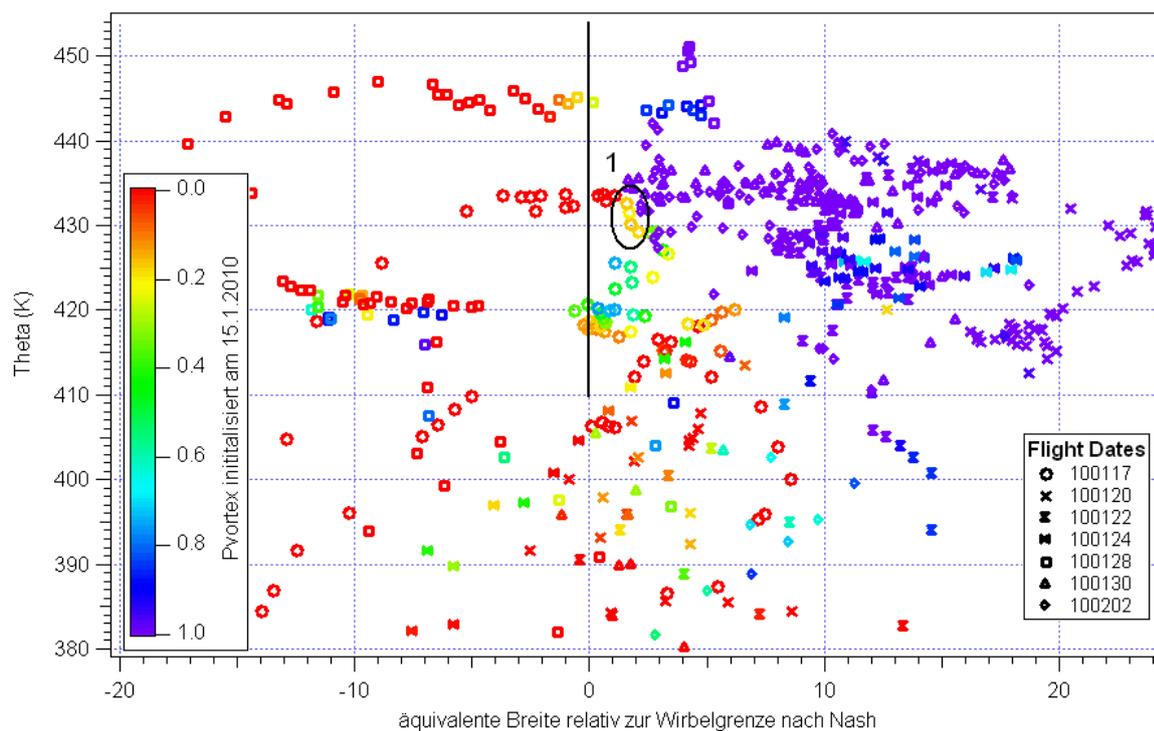


Abbildung 3.13: Geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg, für die Flüge 1-8. Die CLaMS Datenpunkte sind auf die Messpunkte von HAGAR reduziert; gekennzeichnet sind die Daten, die einen Transport von Luft in den Wirbel anzeigen.

für Luft außerhalb des Wirbels keine Skalierung vornimmt.

Pvortex ermöglicht im Vergleich zum Vortexindex zusätzlich die Aussage, dass die Luftmassen, die in den Wirbel transportiert wurden, teilweise mit Wirbelluft vermischt wurden, da die meisten Datenpunkte einen Wert für Pvortex größer 0 haben.

Wie in Kapitel 3.3 dargelegt, werden Inhomogenitäten im Polarwirbel, auf Grund der Neuintialisierung der passiven Tracer am 15.1.2010, durch diese nicht berücksichtigt. Wurden Luftmassen vor diesem Zeitpunkt in den Wirbel transportiert, die sich zum Zeitpunkt der Messung noch nicht vollständig mit der umgebenden Wirbelluft vermischt haben, können diese Transporte durch den Vortexindex angezeigt werden. Die Transporte, die nur durch den Vortexindex, nicht aber durch den passiven Tracer angezeigt werden, in Abbildung 3.10 mit 2 und 3 gekennzeichnet, fanden also vermutlich vor dem 15.1.2010 statt. Um diese Vermutung zu belegen, wird die analoge Darstellung für den passiven Tracer Pvortex, initialisiert im Dezember, betrachtet. Die entsprechenden Datenpunkte, in Abbildung 3.14 ebenfalls mit 2 und 3 gekennzeichnet, haben einen sehr niedrigen Wert von 0-0,1 für den passiven Tracer Pvortex, initialisiert im Dezember, während die anderen Luftmassen im Wirbel überwiegend Werte zwischen 0,2 und 0,5 haben. Das bedeutet, dass die entsprechenden Luftmassen in den Wirbel transportiert wurden und sich dort laut Modell nur

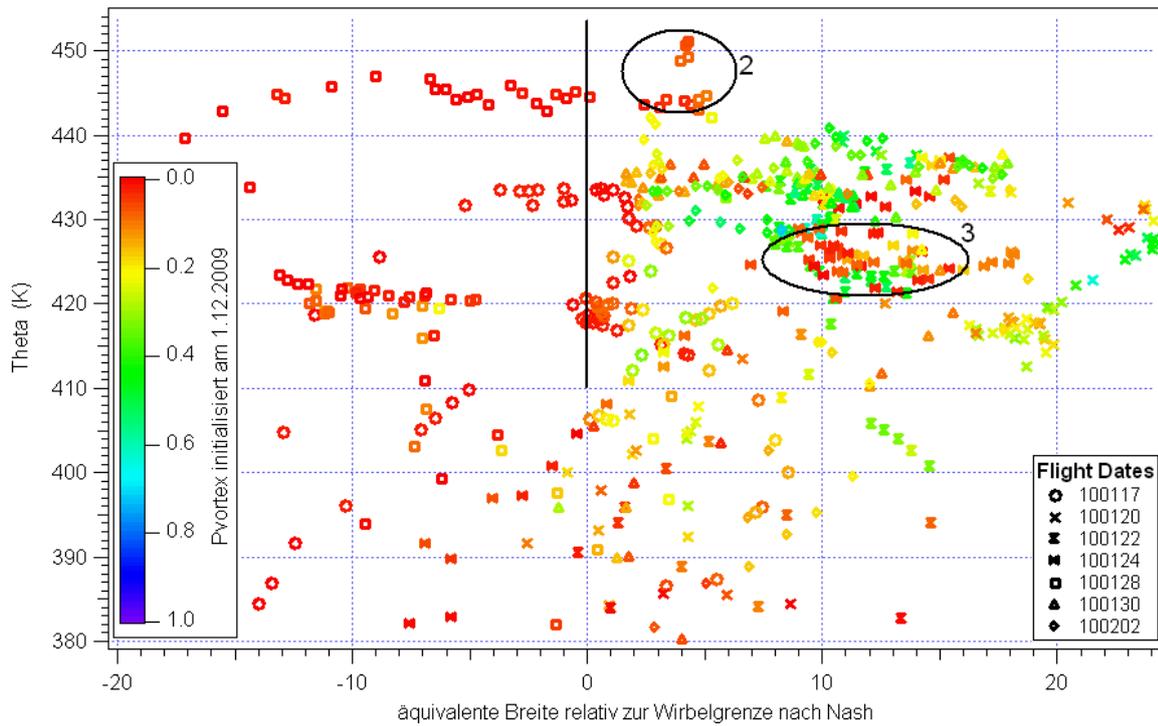


Abbildung 3.14: Geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg, für die Flüge 1-8. Die Anzahl der CLaMS Datenpunkte ist auf die Zahl der Messpunkte von HAGAR reduziert. Die Kreise kennzeichnen die Daten, die nach der Transportanalyse durch den Vortexindex die Transportereignisse 2 und 3 repräsentieren.

wenig mit der ursprünglichen Polarwirbelluft vermischt haben. Da Pvortex, initialisiert im Januar, diesen Transportprozess nicht anzeigt, muss die Luft vor dem 15. Januar in den Wirbel gelangt sein. Transportprozesse, die vermutlich auf den Split und die Rekombination des Polarwirbels im Dezember zurückzuführen sind, können also nur vom Vortexindex und Pvortex, initialisiert im Dezember, identifiziert werden. Eine detailliertere Betrachtung dieser Transporte erfolgt in Kapitel 4.1.

Auch für die zweite Phase der Kampagne wird der Vergleich zwischen dem aus in-situ Daten abgeleiteten Vortexindex und dem passiven Tracer Pvortex im CLaMS-Modell durchgeführt. Abbildung 3.15 zeigt die geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, für die Flüge 9 - 13; die Modelldaten sind auch hier auf die HAGAR-Messzeitpunkte reduziert. Der Transport von Luft bei einer potenziellen Temperatur von 470 K in den Wirbel hinein (1) ist auch durch den passiven Tracer Pvortex eindeutig zu identifizieren. Durch den Anteil von 40-60% Pvortex an den auf 470 K in den Wirbel transportierten Luftpaketen kann auch hier von einer Vermischung der hineintransportierten Luft mit Wirbelluft ausgegangen werden. Im Vergleich zum beobachteten Transport scheint im Modell ein stärkerer Transport von Luft in den Wirbel hinein simuliert zu wer-

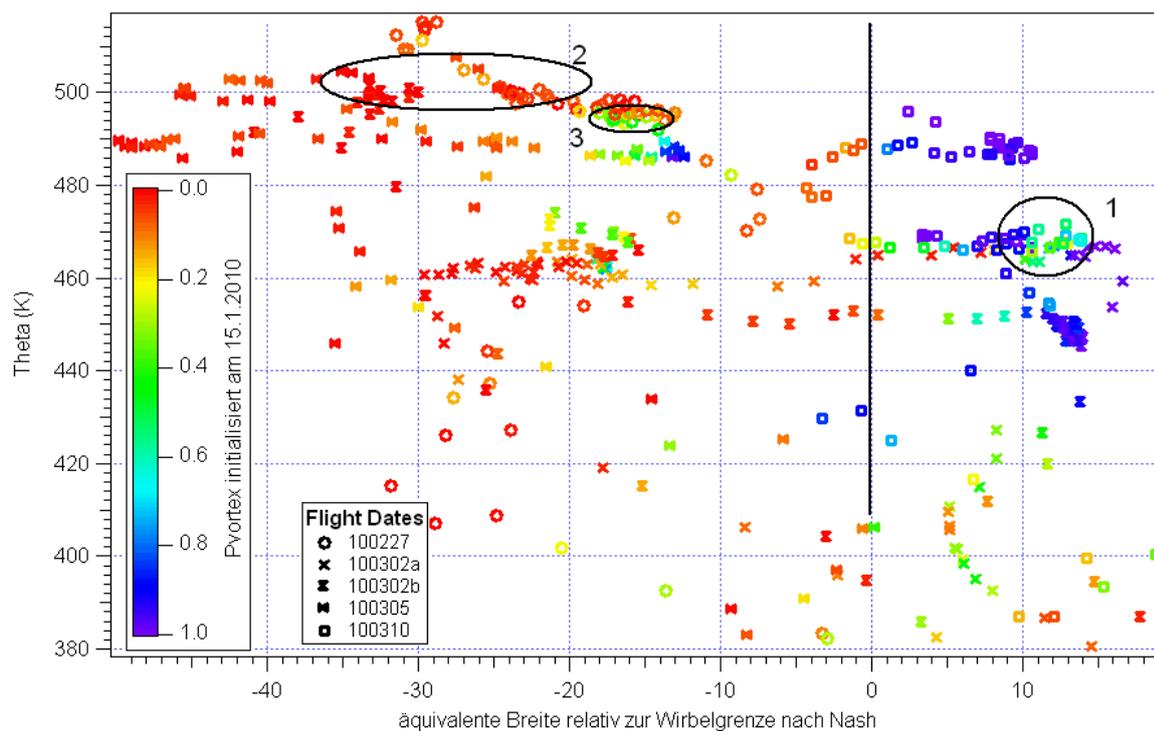


Abbildung 3.15: Geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg, für die Flüge 9 - 13. Die CLaMS Datenpunkte sind auf die Messpunkte von HAGAR reduziert. Gekennzeichnet sind die zwei beobachteten Transportereignisse.

den. Der am 27.2. durch den Vortexindex identifizierte Transport von Luftmassen aus dem Wirbel heraus (Ereignis 3) kann durch Pvortex ebenfalls identifiziert werden. Die Werte von 0,2-0,5 für Pvortex zeigen, dass die Wirbelluft bereits vermischt wurde. Sehr viel deutlicher erscheint in Abbildung 3.15 jedoch eine am 5.3. beobachtete Struktur unterhalb von Ereignis 3, die durch den Vortexindex nicht identifiziert werden konnte.

Die Luft, die aus mittleren bzw. niedrigen Breiten in die Polarregion transportiert wurde (2), vom Vortexindex durch sehr niedrige Werte gekennzeichnet, kann durch Pvortex, der Luftmassen außerhalb des Polarwirbels nicht weiter unterscheidet, nicht diagnostiziert werden. Aus diesem Grund kann auch die Region unvollständiger Durchmischung an der Wirbelkante, die durch den Vortexindex angezeigt wurde, durch Pvortex nicht diagnostiziert werden. Die Daten, die in Abbildung 3.11 Luft aus niedrigen Breiten kennzeichnen, zeigen in Abbildung 3.15 allerdings auch nur einen sehr geringen Anteil Pvortex. Eine detailliertere Analyse dieser einzelnen Transportereignisse erfolgt in Kapitel 4.

Die vorangegangenen Transportanalysen zeigen, dass die einzelnen Transportereignisse in den Simulationen des CLaMS Modells recht gut wiedergegeben werden. Der Vergleich zwischen dem Vortexindex, berechnet aus den in-situ Daten und dem CLaMS Vortexindex erlaubt noch eine explizitere Aussage darüber, wie gut der gesamte simulierte Transport

mit den Messungen übereinstimmt. Betrachtet man Spurengasverteilungen zur Analyse des Transportes im Modell kann im Fall einer Abweichung zwischen Modell und Messung meist nicht klar unterschieden werden, ob diese Unterschiede auf die Initialisierung zurückzuführen sind oder aber auf den Spurengastransport. Die Verwendung des Vortexindex zur Validierung von Transport im Modell bietet den Vorteil weitestgehend unabhängig von der Modellinitialisierung und dem Vertikaltransport im Modell zu sein. Der Vertikaltransport wird bei der Berechnung des Vortexindex durch Unterteilung der gesamten Messzeit in drei Phase herausgerechnet. Somit ist der Vortexindex, im Gegensatz zu Spurengasmischungsverhältnissen, nicht sensitiv auf vertikale Transportprozesse.

Abbildung 3.16 zeigt die geographische Verteilung der Differenz zwischen dem CLaMS Vortexindex und dem HAGAR Vortexindex, getrennt nach den beiden Phasen der Kampagne. Differenzen zwischen den beiden Indizes können direkt auf den im Modell simulierten Transport zurückgeführt werden. Die Abbildungen 3.16 und 3.4 zeigen, dass für beide Phasen die Differenz zwischen den Indizes innerhalb des Wirbels sehr klein ist. In der ersten Phase kommt es außerhalb des Wirbels, wie Abbildung 3.16 zeigt, zu Unterschieden zwischen dem CLaMS Vortexindex und dem HAGAR Vortexindex. Die außerhalb des Wirbels gemessenen Daten bekommen für den HAGAR Vortexindex größere Werte zugewiesen als für den CLaMS Vortexindex. Diese Unterschiede kommen hier jedoch nicht durch unterschiedlichen Transport im Januar zustande, sondern durch eine unterschiedliche Lage des Referenzprofils in mittleren Breiten. Die Lage des Referenzprofils wird durch Messungen im März bestimmt. Ein Unterschied im Transport im März zeigt sich in diesem Fall in der Analyse für Januar.

In der zweiten Phase der Kampagne finden sich außerhalb des Polarwirbels einzelne Strukturen, in denen die Differenz zwischen den beiden Indizes negativ ist und einzelne Strukturen, in denen die Differenz positiv ist. Hier ist kein Trend zu einer Über- oder Unterschätzung des Transportes im Modell zu erkennen. Auffällig ist jedoch, dass jene Struktur, die durch Pvortex als Extrusion aus dem Wirbel identifiziert wurde (in Abbildung 3.16 durch einen Pfeil gekennzeichnet), durch den Vortexindex jedoch nicht, in dieser Darstellung einen Wert von 0,4 erhält. Das bedeutet, dass der CLaMS Vortexindex dieser Struktur ebenfalls Wirbelcharakter zuordnet. Daraus lässt sich schließen, dass in CLaMS eine Struktur entlang des Flugpfades simuliert wurde, die so nicht beobachtet wurde.

Die analoge Analyse zur Untersuchung der Übergangsregion an der Polarwirbelkante mit dem CLaMS Vortexindex, wie sie in Abbildung 3.12 für die Messungen durchgeführt wurde, zeigt ein vergleichbares Bild. Die beobachtete Übergangsregion zwischen Polarwirbel und mittleren Breiten wird vom Modell also auch gut wiedergegeben.

Insgesamt lässt sich aus dieser Analyse schließen, dass der Transport im Modell recht gut simuliert wird.

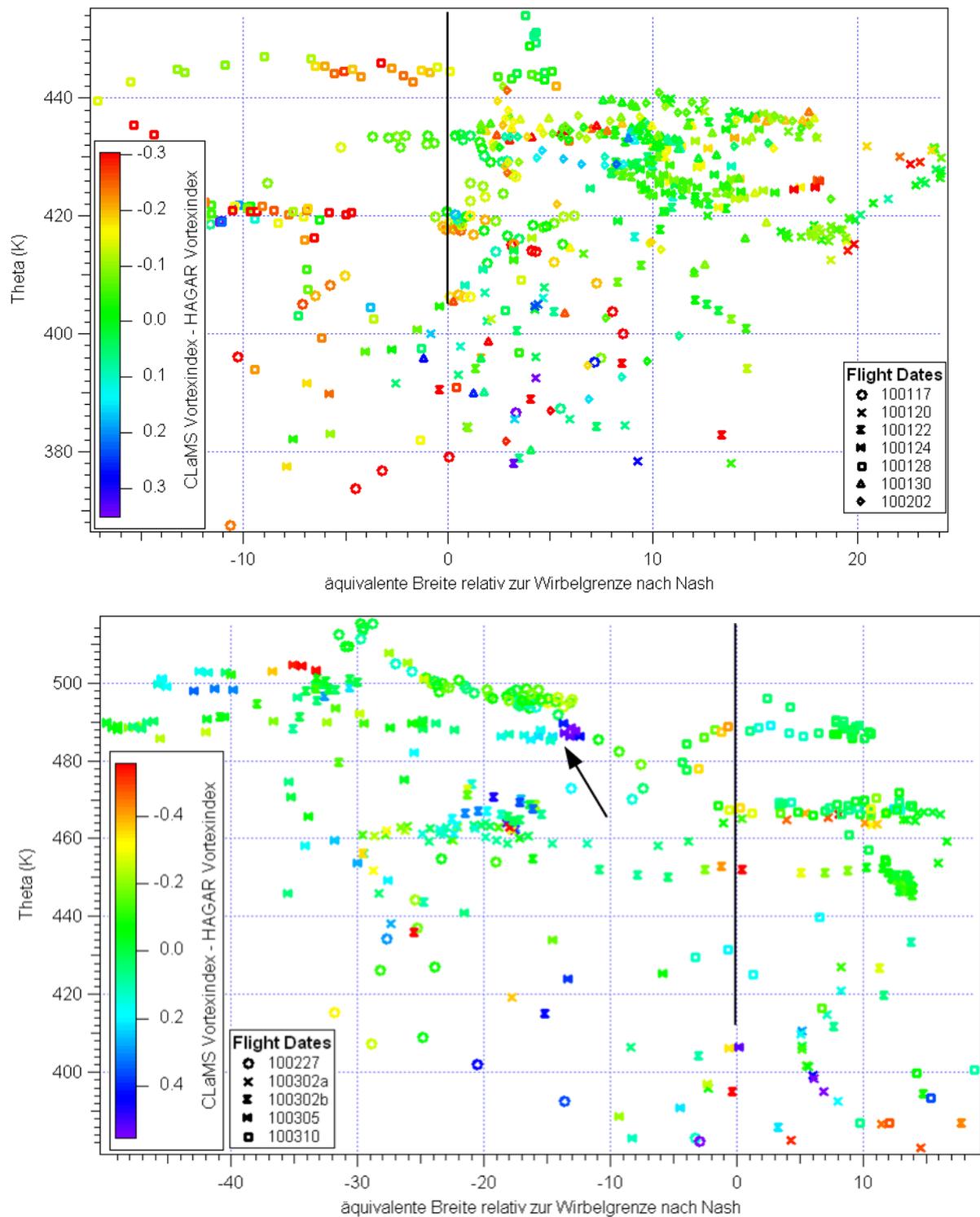


Abbildung 3.16: Geographische Verteilung der Differenz zwischen dem HAGAR Vortexindex und dem CLaMS Vortexindex für die erste Phase oben und für die zweite Phase unten zur Validierung des meridionalen Transportes.

3.5 Mischungsprozesse während RECONCILE

Im folgenden soll untersucht werden, inwieweit die transportierten Luftmassen mit umgebenden Luftmassen vermischt wurden. Die Mischungsanalyse für RECONCILE wird nach der in Kapitel 1.2.2 vorgestellten Theorie, anhand der Korrelationskurve aus den F11-Mischungsverhältnissen und den N₂O-Mischungsverhältnissen durchgeführt. In diesem Abschnitt wird zunächst ein Überblick über die Entwicklung der beobachteten F11-N₂O Korrelation gegeben. Diese Entwicklung wird dann mit der Entwicklung der Korrelation in den Simulationen des CLaMS Modells verglichen. Eine detaillierte Analyse einzelner Ereignisse erfolgt in Kapitel 4.

3.5.1 Entwicklung der beobachteten F11-N₂O Korrelation

Abbildung 3.17 zeigt die gemessene Korrelation zwischen F11 und N₂O für die erste Phase von RECONCILE. Wie in Kapitel 1.2.3 dargelegt, unterscheiden sich die Korrelationen je nach Herkunftsregion der Luftmassen, die wiederum durch den Vortexindex kenntlich gemacht werden. Daher werden die verschiedenen sichtbaren Strukturen in der Korrelation

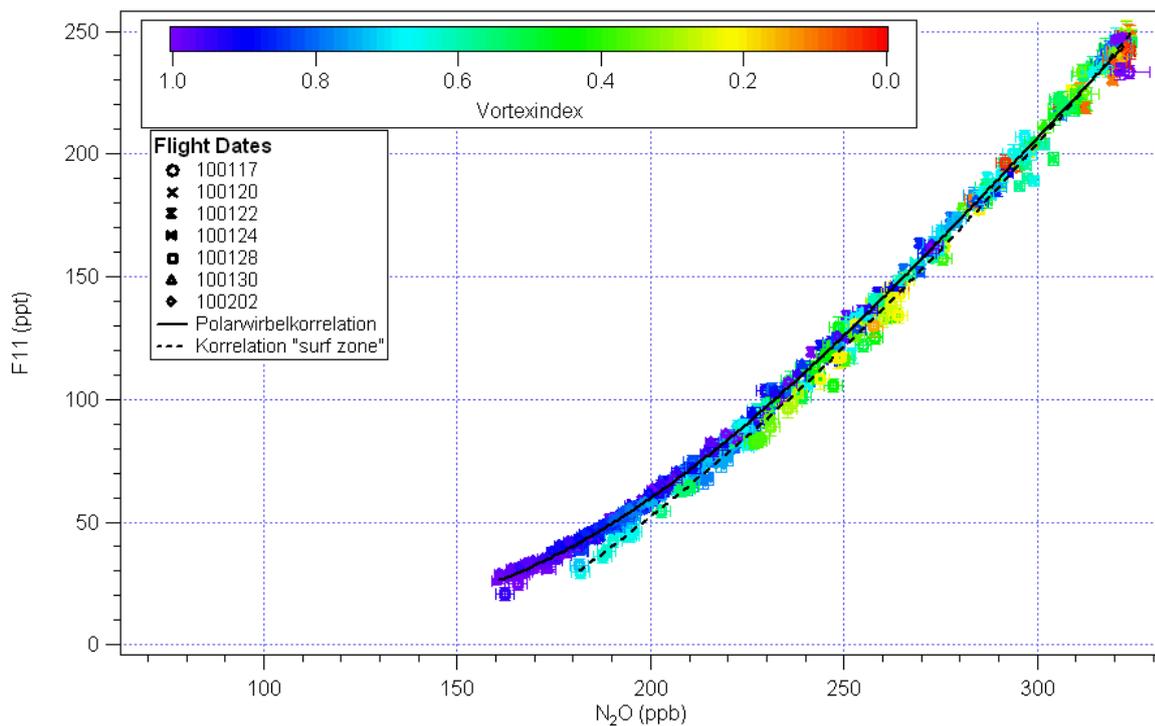


Abbildung 3.17: F11-N₂O Korrelation für die Flüge 1-8. Die Polarwirbeldaten (Vortexindex $\geq 0,8$) und die Daten aus der „surf zone“ (Vortexindex $\leq 0,7$) wurden jeweils angefitet, die gestrichelte Linie beschreibt den Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation für die Flüge 1-8 (Vortexindex $\geq 0,8$), die durchgezogene Linie den Fit der Korrelation in der „surf zone“ (Vortexindex 0,2-0,7 für alle 13 Flüge).

durch den Vortexindex sehr gut aufgetrennt, wie Abbildung 3.17 zeigt.

Die Daten, insbesondere die Daten mit einem Vortexindex zwischen 0,8 und 1, bilden für diesen Zeitraum eine sehr kompakte Korrelation. Diese Daten (Vortexindex $\geq 0,8$) wurden mit einem Polynom dritten Grades angefitet. Der Fit beschreibt während der Flüge 1 - 8 die F11-N₂O-Korrelation in Luftmassen mit Polarwirbelcharakteristik und wird im folgenden als charakteristische Polarwirbelkorrelation bezeichnet. Lediglich einige Daten mit einem Vortexindex zwischen 0,2 und 0,7 weichen auch unter Berücksichtigung ihrer Fehler von dieser kompakten Polarwirbelkorrelation ab. Diese Datenpunkte ergeben sich aus Messungen aus dem Randbereich des Wirbels sowie hohen Breiten außerhalb des Wirbels und deuten die Korrelation außerhalb des Polarwirbels in diesem Zeitraum an. Auch diese Daten wurden mit einer Polynomfunktion angefitet. Der Vergleich der Fits zeigt die von der Theorie beschriebene Trennung zwischen der Korrelationen im Polarwirbel und der Korrelation in der „surf zone“. Die außerhalb des Wirbels gemessenen Daten weisen, wie insbesondere auch der Vergleich zwischen der ersten Phase in Abbildung 3.17 und der zweiten Phase in Abbildung 3.18 zeigt, eine große Bandbreite auf. Die, im folgenden als Korrelation in der „surf zone“ bezeichnete, Korrelation außerhalb des Polarwirbels beschreibt, bedingt durch die räumlich begrenzten Messungen und das Filterkriterium (Vortexindex 0,2 - 0,7), durch welches Messungen, die in der, in Abschnitt 3.4 beschriebenen, unvollständig durchmischten Übergangsregion zwischen Polarwirbel und der gut durchmischten „surf zone“ in mittleren Breiten durchgeführt wurden, berücksichtigt wurden, eine mittlere Korrelation in der „surf zone“ nur mit begrenzter Genauigkeit.

Anzeichen für Mischungslinien zwischen diesen Korrelationen gibt es nicht. Das bedeutet, dass mit dieser Analyse keine Mischung zwischen der Luft, die, wie in 3.4 beschrieben, im Januar in den Wirbel transportiert wurde und Wirbelluft festgestellt werden kann.

Abbildung 3.18 zeigt die gemessene Korrelation für die zweite Phase von RECONCILE im März. Auch für diese Phase ist eine kompakte Polarwirbelkorrelation vorhanden, in der Abbildung gekennzeichnet durch Datenpunkte mit einem hohen Vortexindex. Wie für die erste Phase von RECONCILE sind die Polarwirbeln mit einem Vortexindex $\geq 0,8$ durch eine Polynomfunktion angefitet worden. Dieser Fit, in Abbildung 3.18 als durchgezogene Linie eingezeichnet, beschreibt die charakteristische Polarwirbelkorrelation während der Flüge 9 - 13. Der in Abbildung 3.18 als gestrichelte Linie eingezeichnete Fit, der die Korrelation in der „surf zone“ beschreibt, ist der gleiche, der auch in der ersten Phase die Korrelation in der „surf zone“ beschreibt. Durch das Absinken der Polarwirbelluft im Verlauf des Februar wurden in der zweiten Phase auf gleicher Flughöhe niedrigere Mischungsverhältnisse gemessen als in der ersten Phase.

Die Flüge in diesem Zeitraum fanden teilweise auch außerhalb des Polarwirbels statt. Die dort gemessenen Daten mit einem teilweise sehr niedrigen Vortexindex liegen unterhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“ und sind auch unter Berücksichtigung des Messfehlers nicht mit diesen zu vereinen. Diese Daten mit einem sehr niedrigen Vortexindex bilden eine Linie, deren Anfangspunkt auf der Korrelation in der „surf zone“ liegt und die in die Richtung verläuft, in der nach der Theorie die tropische Korrelation liegt.

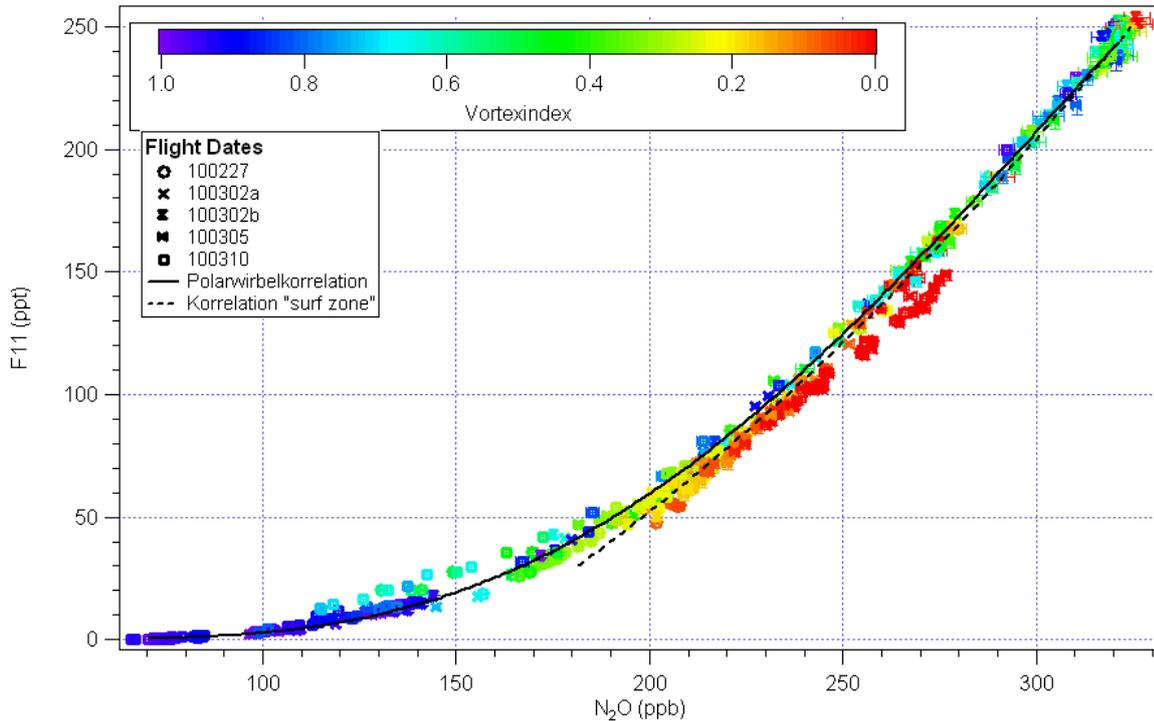


Abbildung 3.18: F11-N₂O Korrelation für die Flüge 9 - 13. Als gestrichelte Linie eingezeichnet der Fit, der die Korrelation in der „surf zone“ beschreibt (Vortexindex 0,2-0,7 für alle 13 Flüge), als durchgezogene Linie eingezeichnet ist der Fit (Vortexindex $\geq 0,8$), der die charakteristische Polarwirbelkorrelation während der Flüge 9 - 13 beschreibt.

Außerdem befinden sich oberhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation einige Daten mit einem Vortexindex von 0,7, die ebenfalls signifikant von der Korrelation abweichen.

Um nochmals einen besseren Überblick über die Lage der einzelnen gemessenen Korrelationen zu erhalten, zeigt Abbildung 3.19 die Fits der Korrelationen in der „surf zone“ (grün) und dem Polarwirbel (Phase 1: pink; Phase 2: blau), ermittelt aus den HAGAR-Daten und zusätzlich den Fit einer tropischen Korrelation (rot), aus den Daten des Satelliteninstrumentes ACE-FTS (eine detaillierte Beschreibung des Experimentes findet sich in Bernath et al., 2005; Details zur tropischen Korrelation siehe Kapitel 4.2.3). Aus dieser Abbildung geht zunächst einmal hervor, dass die Fits der charakteristischen Polarwirbelkorrelationen in den beiden Phasen nahezu identisch sind. Das bedeutet, dass die Korrelation zwischen F11 und N₂O in Luftmassen, die ihrer chemischen Charakteristik nach dem Polarwirbel zuzuordnen sind, durch den Split und die Rekombination im Februar unverändert geblieben ist. Es ist also zu keiner größeren Einmischung in den Wirbel gekommen. In schwarz sind die beiden Linien eingezeichnet, die durch Daten gebildet werden, die auch im Rahmen ihrer Fehler nicht mit diesen Korrelationen in Einklang zu bringen sind. Diese Abbildung legt nahe, dass es sich bei diesen Linien um zwei Mischungslinien handelt, eine zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“ und eine

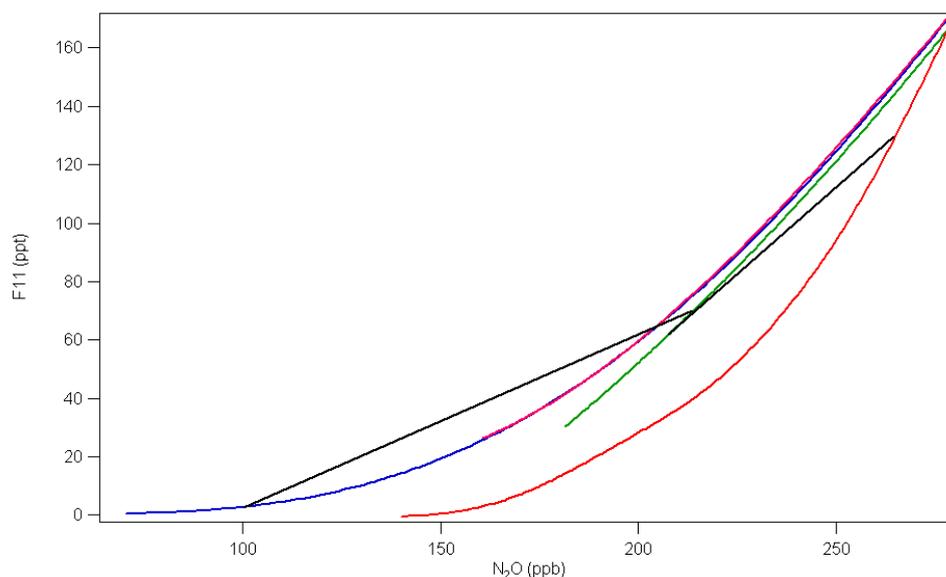


Abbildung 3.19: Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation der Flüge 1 - 8 (pink), Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation der Flüge 9 - 13 (blau), Fit der Korrelation in der „surf zone“ (grün), jeweils aus HAGAR-Daten, Fit der tropischen Korrelation (rot) aus ACE-FTS Daten mit den vermuteten Mischungslinien zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der „surf zone“-Korrelation sowie der „surf zone“-Korrelation und der tropischen Korrelation (schwarz).

zwischen der Korrelation in der „surf zone“ und der tropischen Korrelation. Im Unterschied zur ersten Phase der Kampagne scheinen in der zweiten Phase also Mischungsvorgänge beobachtet worden zu sein. Eine detaillierte Untersuchung dieser Mischungsprozesse erfolgt in Kapitel 4.2.

3.5.2 Vergleich mit der simulierten F11-N₂O Korrelation

In diesem Abschnitt soll die beobachtete F11-N₂O Korrelation mit der durch das CLaMS Modell simulierten Korrelation verglichen werden. Abbildung 3.20 zeigt die simulierte Korrelation für die erste Phase der Kampagne. Farblich dargestellt ist in den folgenden Abbildungen der passive Tracer Pvortex.

Die F11-N₂O Korrelation im CLaMS Modell für diesen Zeitraum zeigt ein vergleichbares Bild zu der beobachteten Korrelation. Um einen direkten Vergleich zwischen der gemessenen Korrelation und der Korrelation im Modell zu ermöglichen, wurden auch hier wieder die Daten des Modells auf die HAGAR-Messzeitpunkte reduziert.

Innerhalb des Polarwirbels zeigt sich auch im Modell eine kompakte Korrelation. Die Polarwirbeldaten, Daten mit Pvortex $\geq 0,8$, sind auch hier mit einer Polynomfunktion angefitet worden, die die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Modell beschreibt. Die Andeutung einer separaten Korrelation außerhalb des Polarwirbels ist aus den Daten im Modell dagegen nicht zu erkennen. Die Daten in dieser Korrelation mit einem P1-Wert $\geq 0,7$ (mitt-

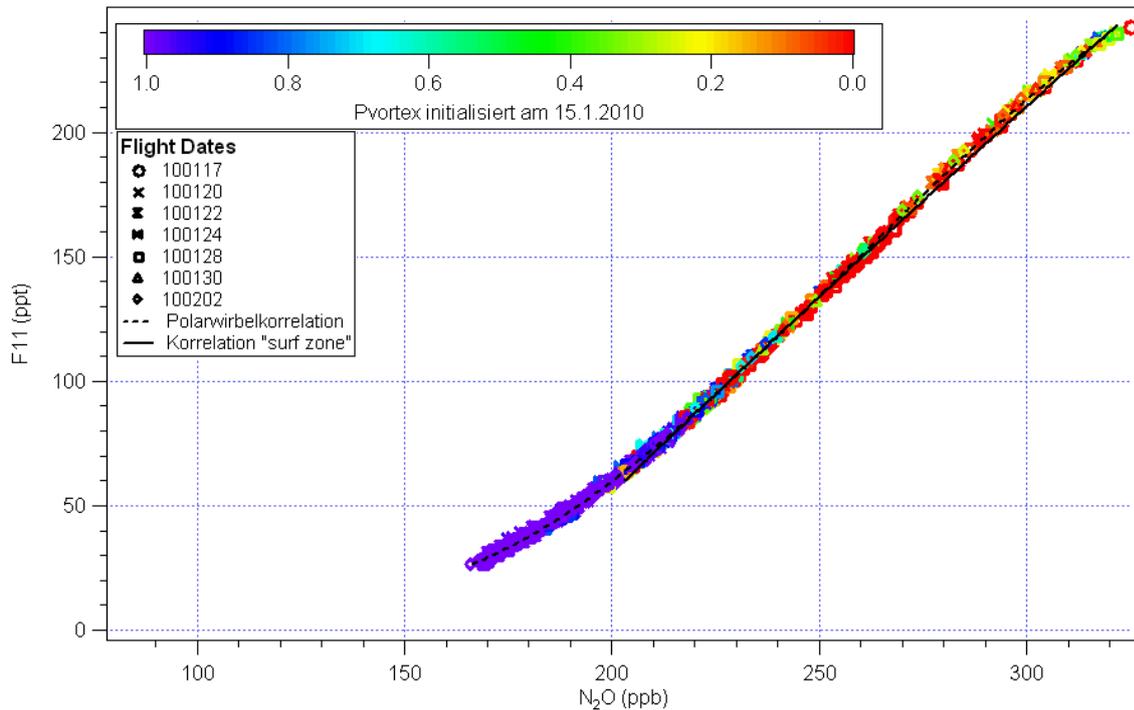


Abbildung 3.20: F11-N₂O Korrelation in CLaMS. Die CLaMS Datenpunkte sind auf den Flugpfad der Flüge 1 - 8 interpoliert und auf die HAGAR Messzeitpunkte reduziert. Die durchgezogene Linie beschreibt den Fit der Daten mit $P_1 \geq 0,7$, und damit die Korrelation in der „surf zone“, die gestrichelte Linie den Fit der Daten mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$, also die charakteristische Polarwirbelkorrelation.

lere Breiten) wurden mit einem Polynom dritten Grades angefitet, welches die Korrelation in der „surf zone“ im Modell beschreibt. Die Fits für die jeweiligen Korrelationen im Modell wurden mit den auf die HAGAR-Messpunkte reduzierten Datensatz durchgeführt. Da während der Flüge 1-8 nur sehr wenige Daten mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,7$ vermessen wurden, wurden zur Durchführung dieses Fits die entsprechenden Daten beider Phasen verwendet. Dieser Fit repräsentiert die Korrelation in der „surf zone“ für beide Phasen. Der Vergleich der beiden Fits zeigt, dass sich die beiden Korrelationen im Modell im Gegensatz zu den beobachteten Korrelationen in Abbildung 3.17 kaum unterscheiden. Für diesen Unterschied zwischen Messung und Modell gibt drei Erklärungsmöglichkeiten: 1. Die initialisierten Spurengasfelder sind nicht korrekt und zeigen die gleiche Korrelation in der „surf zone“ und im Polarwirbel. 2. Die Prozesse, die zur Ausbildung einer separaten, charakteristischen Polarwirbelkorrelation führen, sind im Modell nicht korrekt repräsentiert. 3. Im Modell wird in der Nähe der Wirbelgrenze so stark und schnell gemischt, dass die Korrelation aus der „surf zone“ in der Nähe der Wirbelgrenze mit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation zusammenfällt.

In Abbildung 3.21 ist die F11-N₂O-Korrelation im CLaMS-Modell für die zweite Phase von RECONCILE dargestellt. In diesem Zeitraum zeigen sich ebenfalls Unterschiede zwischen

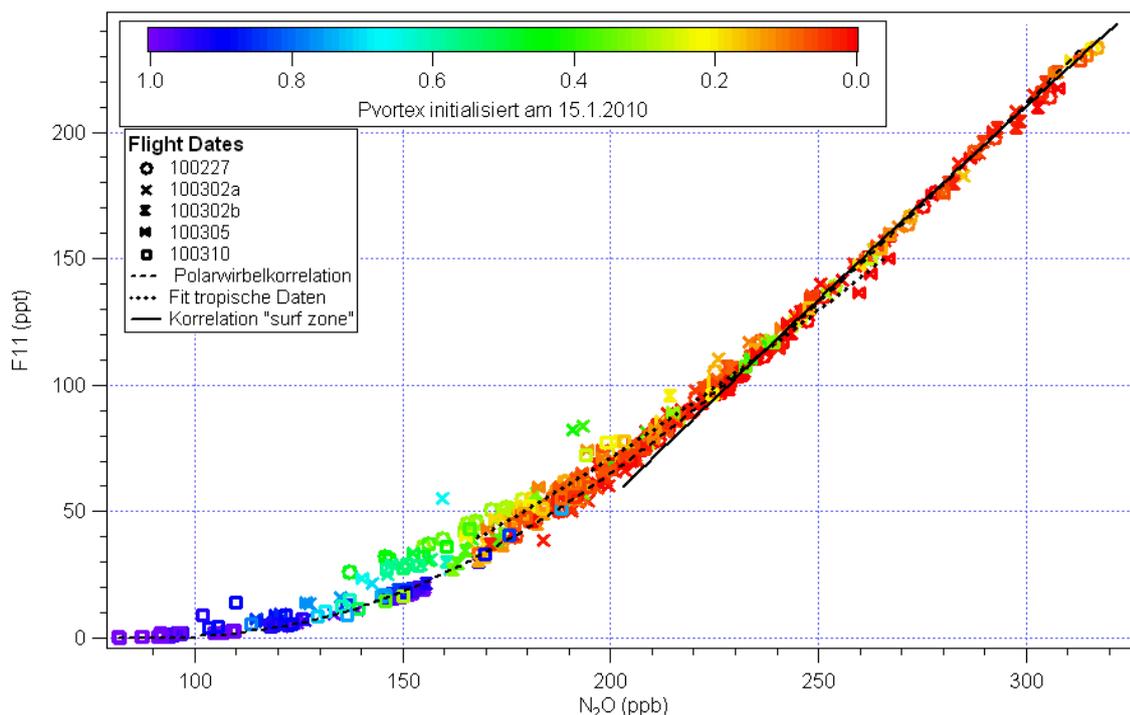


Abbildung 3.21: F11-N₂O Korrelation in CLaMS für die Flüge 9-13. Die CLaMS Datenpunkte sind reduziert auf die HAGAR Messzeitpunkte. Die gestrichelte Linie beschreibt die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Modell für Phase 2 ($P_{\text{vortex}} \geq 0,8$; oberhalb von 170 ppb N₂O durch Daten $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$ aus Phase 1 ergänzt), die durch gezogene Linie die Korrelation in der „surf zone“ ($P_1 \geq 0,7$), und die gepunktete Linie einen Fit der Daten mit einem Anteil aus niedrigen Breiten von mehr als 20%.

der beobachteten (Abbildung 3.18) und der simulierten Korrelation.

In Abbildung 3.21 ist weiterhin eine kompakte Polarwirbelkorrelation im Modell zu erkennen. Die Polarwirbelmodelldaten, gekennzeichnet durch $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$, wurden auch hier wieder mit einem Polynom dritten Grades angefitet. Um durch den Fit den Verlauf der gesamten Korrelation darstellen zu können, wurden für den Fit oberhalb von 170 ppb N₂O Daten mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$ aus Phase 1 ergänzt. Der Fit ist in Abbildung 3.21 als gestrichelte Linie dargestellt. Die erwähnte Mischungslinie zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“ scheint in den Modelldaten ebenso vorhanden zu sein wie in den gemessenen Daten. Auffallend sind Datenpunkte mit P_{vortex} -Werten zwischen 0,4 und 0,6, die in Abbildung 3.21 oberhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation liegen. In der gemessenen Korrelation sind dort weniger Datenpunkte, die auch weniger stark von der Korrelation abweichen. Eine genauere Analyse zeigt, dass diese Datenpunkte Luftmassen außerhalb des Polarwirbels repräsentieren, die durch einen Anteil tropischer Luftmassen gekennzeichnet sind. In der gemessenen Korrelation scheinen diese Daten, wie oben dargelegt, eine Mischungslinie zwischen der Korrelation in der „surf zone“ und der tropischen Korrelation zu bilden. Es ist ersichtlich, dass diese

Daten in der Modellkorrelation keine Mischungslinie zwischen der tropischen Korrelation und der Korrelation in der „surf zone“ darstellen. Es ist möglich, dass der Flugpfad im Modell die vermessenen Strukturen nicht durchquert, oder aber die Mischung ist im Modell schon soweit fortgeschritten, dass die Mischungslinie zwischen den Korrelationen nicht mehr vorhanden ist. Eine detailliertere Betrachtung erfolgt in Kapitel 4.2.3.

Um festzustellen inwieweit die Luftmassen, die sich nach der dynamischen Definition im Wirbel befanden, sich durch Einmischung verändert haben, wird im folgenden die Korrelation zwischen F11 und N₂O von Luftmassen betrachtet, die innerhalb der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) gemessen wurden. In den folgenden beiden Abbildungen sind daher alle Daten die nördlich von „ Δ äquivalente latitude“ 0° liegen dargestellt. Abbildung

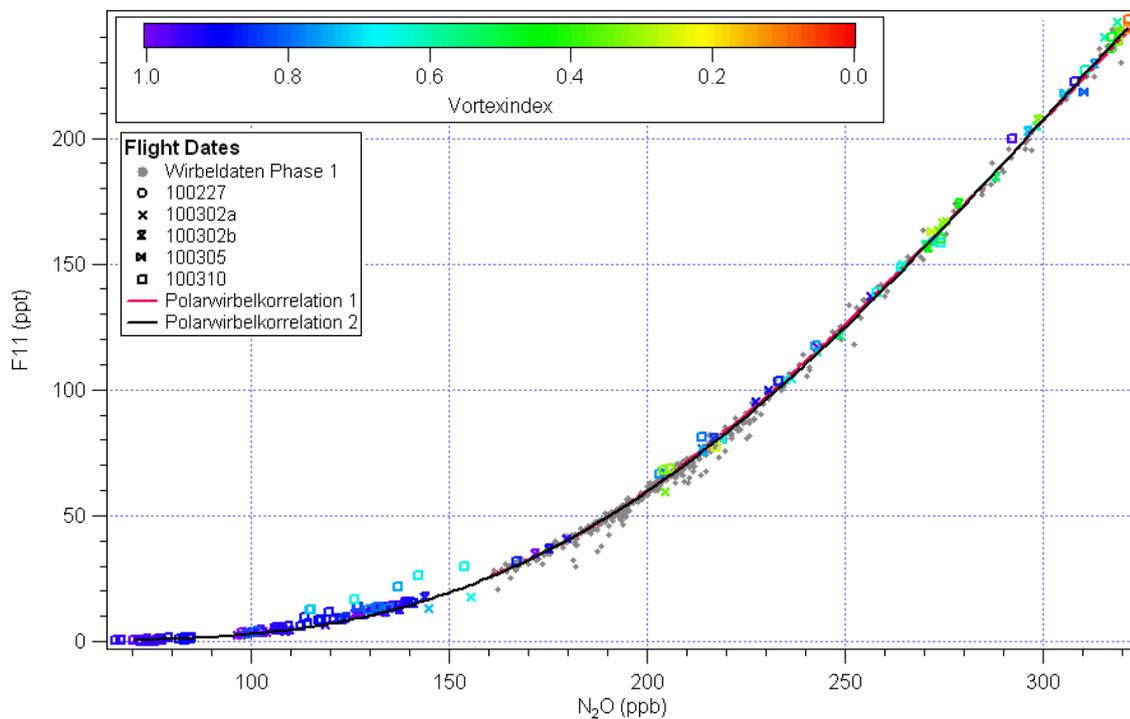


Abbildung 3.22: Polarwirbelkorrelation („ Δ Equivalent latitude“ ≥ 0) zwischen F11 und N₂O für die Phase 1 von RECONCILE in grau und die Phase 2 koloriert nach dem Vortexindex. Als durchgezogene Linie ist pink die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Januar dargestellt, in schwarz die charakteristische Polarwirbelkorrelation im März.

3.22 zeigt zunächst die gemessene Korrelation. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die charakteristischen Polarwirbelkorrelationen in diesen Phasen. Die Fits dieser Korrelationen stimmen so gut überein, dass sie in weiten Teilen nicht zu unterscheiden sind. Die Polarwirbelkorrelation ist im Zeitraum zwischen dem 17.1.2010 und dem 10.3.2010 also unverändert geblieben. Das bedeutet, in diesem Zeitraum ist es zu keiner Einmischung gekommen, die zu einer signifikanten Verdünnung der Polarwirbelluft geführt hat.

In der Abbildung 3.23 ist der Vergleich zwischen den Polarwirbelkorrelationen der beiden Phasen von RECONCILE im CLaMS-Modell dargestellt. Als Linie in pink ist die charakteristische Polarwirbelkorrelation der ersten Phase dargestellt. Die schwarze Linie repräsentiert den Fit der Daten der zweiten Phase mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$. In Abbildung 3.23

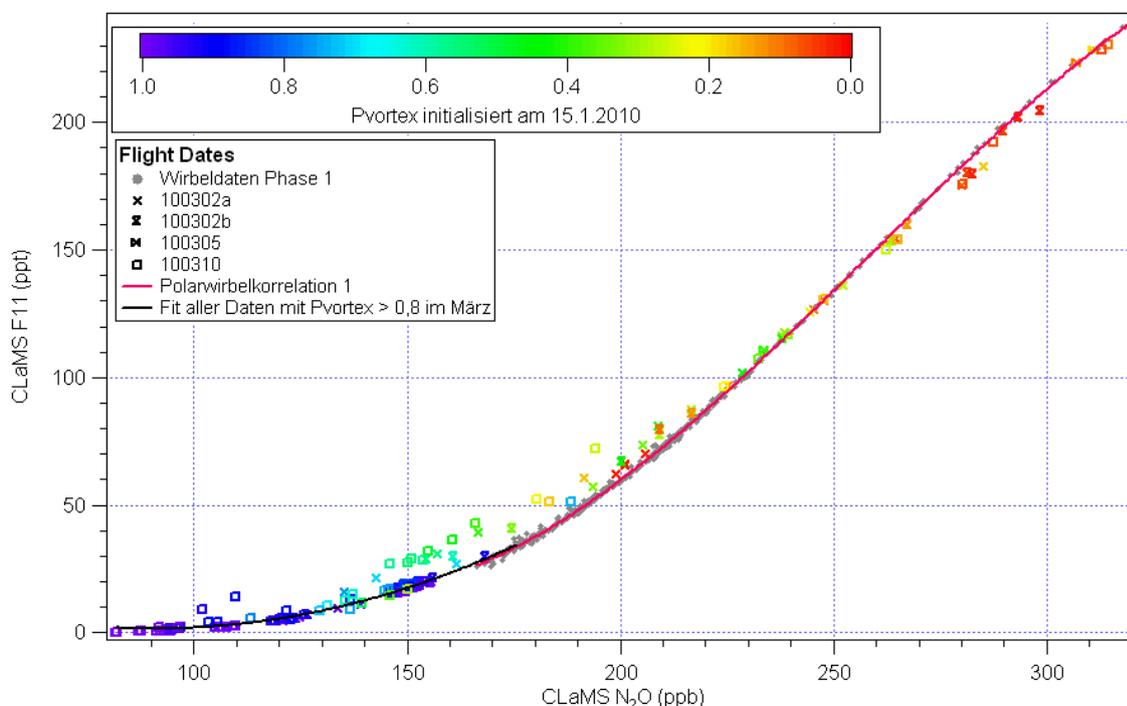


Abbildung 3.23: Charakteristische Polarwirbelkorrelation in CLaMS (gefiltert „ Δ Equivalent latitude“ ≥ 0) zwischen F11 und N₂O für die Phase 1 von RECONCILE in grau und die Phase 2 koloriert nach P_{vortex} . Als Linie in pink ist die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Modell für die Phase 1 dargestellt. Die schwarze Linie zeigt den Fit der Daten mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$ aus der zweiten Phase.

zeigt sich, dass keine Daten mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,8$ ein größeres N₂O-Mischungsverhältnis als 170 ppb (entspricht im März einer potenziellen Temperatur von ca. 445 K) aufweisen. Das bedeutet unterhalb dieser Höhe wurde nach dem Modell keine unverdünnte Wirbelluft beobachtet. Zur Durchführung des Fits, der die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Modell beschreibt wurde dieser Datensatz daher wie oben beschrieben ergänzt. Die Daten, die unvermischte Luft beschreiben und ihr Fit bilden, wie aus Abbildung 3.23 hervorgeht, die direkte Verlängerung des Fits aus der ersten Phase. Alle Daten, die vermischte Luftmassen beschreiben (P_{vortex} zwischen 0,2 und 0,6), liegen oberhalb dieser charakteristischen Polarwirbelkorrelationen und nach dem Modell sind dies in dieser Phase alle Daten oberhalb von 170 ppb N₂O. In der gemessenen Korrelation liegen sehr viel mehr Daten mit einem hohen Vortexindex, d.h. Daten die unvermischte Luftmassen repräsentieren, insbesondere oberhalb von 170 ppb N₂O, entlang der charakteristischen Polarwirbelkorrelation. Aus diesem Vergleich lässt sich schlussfolgern, dass im Modell die Polarwirbelluft unter-

halb von 445 K stärker verdünnt wurde, als es nach den Beobachtungen zu schließen in der Realität der Fall war. Aus den Werten von Pvortex lässt sich ein Verdünnungsgrad dieser Luftmassen zwischen 40% und 80% abschätzen. Die Ursache für diese stärkere Verdünnung im Modell kann in einer zu schnellen Mischung im Modell liegen. Wie in Kapitel 4 ausführlicher diskutiert wird, wurden einige dieser Luftmassen allerdings im Randbereich des Wirbels und in einem in den Wirbel eingeschlossenen Filament beobachtet.

3.6 Fazit

Zur Analyse von Transport- und Mischungsprozessen anhand von Beobachtungsdaten wurde eine Größe eingeführt, die, basierend auf den N₂O-Messungen, die charakteristische Herkunft der Luftmassen anhand ihrer chemischen Zusammensetzung, kennzeichnet. Die Validierung, Interpretation und Anwendung dieses Vortexindex lieferte folgende Ergebnisse:

- Die Annahme, auf der die Definition des Vortexindex beruht, nämlich dass die niedrigsten gemessenen N₂O- Mischungsverhältnisse (Polarwirbelreferenzprofil) die gut durchmischte charakteristische Hintergrundluft des Polarwirbels repräsentieren, sind in diesem Winter nicht für den ursprünglichen, im Dezember gebildeten, Polarwirbel erfüllt, sondern nur für den, nach dem Split und der Rekombination im Dezember, neu zusammengesetzten Polarwirbel. Der Vortexindex dient damit als ein quantitatives Werkzeug, bestimmt aus Beobachtungen, für die Kennzeichnung der Herkunft der Luftmassen und die Transporthistorie bezogen auf diesen neu zusammengesetzten Polarwirbel.
- Durch den Vergleich mit dem passiven Tracer Pvortex im CLaMS Modell zeigt sich, dass der Vortexindex ab mehreren Wochen nach Initialisierung dieses Tracers als Proxy für diesen dienen kann. Der Vortexindex kann somit als der Anteil an Polarwirbelluft interpretiert werden.
- Der Vortexindex kann weiter verwendet werden, um Transport über die Polarwirbelgrenze hinweg zu identifizieren. Die Transportanalyse mit Hilfe des Vortexindex zeigt, dass sowohl im Januar als auch im März verschiedene Transportprozesse, insbesondere Intrusionen in den Wirbel, beobachtet werden konnten. Diese werden in Kapitel 4 detaillierter untersucht.
- Durch den Vortexindex konnte weiter gezeigt werden, dass die gut durchmischte „surf zone“ nicht direkt an die Wirbelgrenze heranreicht, sondern dass zwischen Polarwirbel und der „surf zone“ eine wenig durchmischte ca. 3-5° breite Übergangsregion, die Transportbarriere, besteht.
- Die Transportanalyse zeigt weiter, dass eine stabile Transportbarriere erst ab etwa 410 K besteht. Darunter konnte durch den Vortexindex ein erhöhter horizontaler Austausch der Luftmassen visualisiert werden.

- Die, analog für die Simulationen des CLaMS Modells durchgeführte, Transportanalyse anhand des passiven Tracer Pvortex zeigt bei einzelnen Transportereignissen über die Polarwirbelgrenze eine gute Übereinstimmung zwischen Beobachtung und Modell.
- Der Vergleich eines für die Modelldaten berechneten Vortexindex mit dem aus Beobachtungen bestimmten, erlaubt eine Validierung des meridionalen Transportes im Modell, die, anders als ein direkter Vergleich von Spurengasmischungsverhältnissen, sowohl von der Initialisierung des Modells als auch vom vertikalen Transport im Modell, unabhängig ist. Generell ist die Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungen sehr gut. Außerhalb des Polarwirbels kommt es im März jedoch zu Abweichungen (bis max. 0,6) in einzelnen Strukturen.
- Bei Betrachtung der Korrelation zwischen F11 und N₂O zeigt sich, dass der Vortexindex die verschiedenen Strukturen in der Korrelation sehr gut unterscheidet.
- Die Korrelationsanalyse lässt weiter vermuten, dass neben Transportprozessen auch Mischungsprozesse während RECONCILE beobachtet wurden. Eine detaillierte Analyse dieser Prozesse erfolgt in Kapitel 4.
- Die durch CLaMS simulierte F11-N₂O Korrelation zeigt die, in der gemessenen Korrelation auftretenden, Strukturen (die Aufspaltung zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“; Mischungslinie zwischen der Korrelation in der „surf zone“ und der tropischen Korrelation) nicht. Ursache dafür können Fehler in der Initialisierung oder eine unkorrekte Repräsentation verschiedener Prozesse im frühwinterlichen Polarwirbel oder aber zu starke Mischung im Modell sein.
- Betrachtet man die Entwicklung der Korrelation für im Polarwirbel gemessene Daten zeigt sich, dass die beobachtete Korrelation zwischen Januar und März kompakt erhalten geblieben ist. Die Daten mit hohen Vortexindexwerten liegen weiterhin kompakt entlang der charakteristischen Polarwirbelkorrelation. In der simulierten Korrelation hingegen zeigt sich dass im Modell nur noch sehr wenige Daten entlang dieser charakteristischen Polarwirbelkorrelation liegen. Im Modell gab es demnach unterhalb von 445 K im Polarwirbel keine unvermischten Luftmassen mehr, was nach den Beobachtungen zu schließen so nicht der Realität entspricht. Aus den Werten von Pvortex lässt sich ein Verdünnungsgrad dieser Luftmassen im Modell zwischen 40% und 80% bestimmen.

Insgesamt zeigt sich, dass der Vortexindex ein sehr gutes Werkzeug zur Analyse von Transport und Mischungsprozessen anhand von Spurengasmessungen ist. Gegenüber den in Modellen simulierten passiven Tracern bietet der Vortexindex den Vorteil solche Analysen unabhängig von Fehlern in den Transportschemata und Mischungsparametrisierungen der Modelle durchführen zu können.

Kapitel 4

Fallstudien

Die in Kapitel 3 kurz vorgestellten, im Winter 2009/2010 beobachteten Transport- und Mischungsvorgänge sollen in diesem Kapitel mit den vorgestellten Methoden zur Untersuchung von Transport und Mischung detaillierter untersucht und mit Hilfe von Simulationen durch das CLaMS Modell in den dynamischen Kontext dieses Winters eingeordnet werden.

4.1 Transport und Mischung im Januar

Wie in Kapitel 3.4 erwähnt, konnten im Januar 2010 verschiedene Transportprozesse in den Wirbel hinein beobachtet werden. Zum einen konnten durch den Vortexindex und Pvortex, initialisiert im Dezember, Luftmassen im Wirbel identifiziert werden, die vor dem 15.1. eingetragen wurden (Ereignisse 2 und 3 in Abbildungen 3.10 und 3.14), zum anderen konnten durch den Vortexindex und Pvortex, initialisiert im Januar, ein weiterer Transport (Ereignis 1 in Abbildungen 3.10 und 3.13) in den Wirbel im Verlauf des Januars beobachtet werden. Diese Indizes geben aber alle keine Auskunft darüber, woher genau die Luft stammt, die in den Wirbel transportiert wurde. Zur Klärung dieser Frage werden für alle Transportereignisse die passiven Tracer P0 (niedrige Breiten), P1 (mittlere Breiten) und P2 (hohe Breiten/ äußere Wirbelgrenze) des CLaMS-Modells herangezogen.

Die Abbildungen 4.1 und 4.2 zeigen die geographische Verteilung der passiven Tracer P1 und P2 initialisiert im Dezember. Aus diesen Abbildungen geht hervor, dass am 24.1. (Ereignis 3) und 28.1. (Ereignis 2) Luft mit einer Signatur aus mittleren und hohen Breiten im Wirbel gemessen wurde. Der Beitrag der verschiedenen passiven Tracer zeigt, dass sich die in den Wirbel transportierte Luft dort mit der Wirbelluft vermischt hat, denn auch der Vortex-Tracer Pvortex zeigt zwar geringe aber von 0 verschiedene Werte, wie in Abbildung 3.14 gezeigt wird. Der passive Tracer P0, der tropische Luftmassen kennzeichnet, hat für die Daten im Polarwirbel den Wert 0; ein Transport tropischer Luftmassen in den Wirbel kann somit ausgeschlossen werden. Der überwiegende Teil dieser Luftmassen stammt mit 30% - 70% Anteil aus der unmittelbaren Umgebung des Wirbels.

Die Abbildung 4.3 zeigt Ausschnitte aus den P2-Feldern des 24.1. (a) und des 28.1. (b). Innerhalb des Wirbels stammen die meisten Luftmassen an diesen beiden Tagen zu ca. 50%

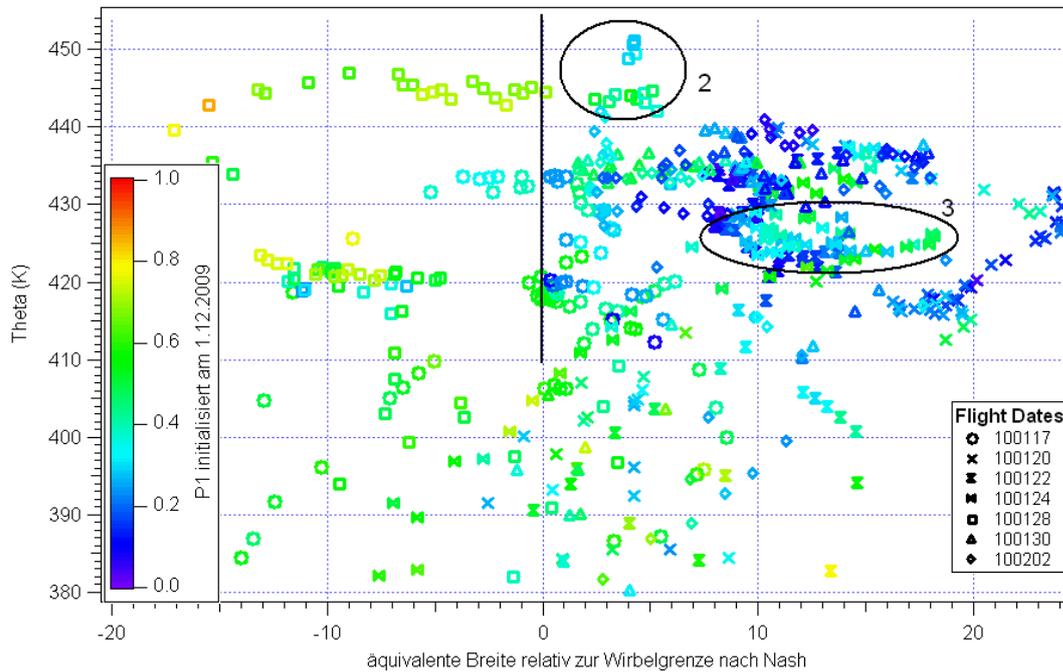


Abbildung 4.1: Geographische Verteilung des passiven Tracers P1 (mittlere Breiten), initialisiert am 1.12.2009, zur Identifikation der Herkunft der im Dezember eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt.

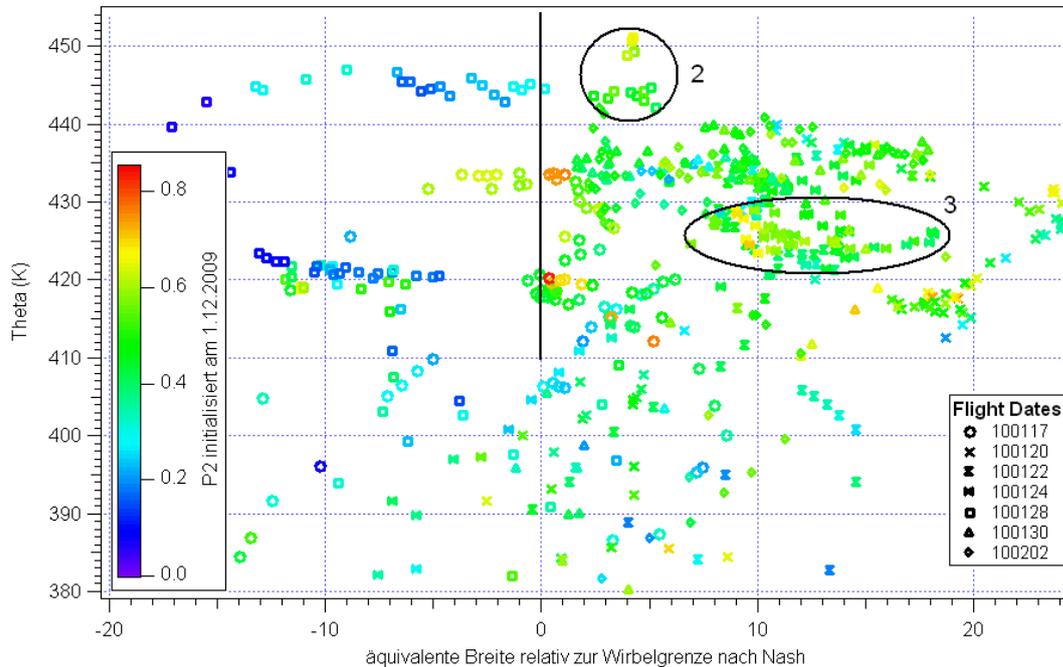


Abbildung 4.2: Geographische Verteilung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten), initialisiert am 1.12.2009, zur Identifikation der Herkunft der im Dezember der eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt

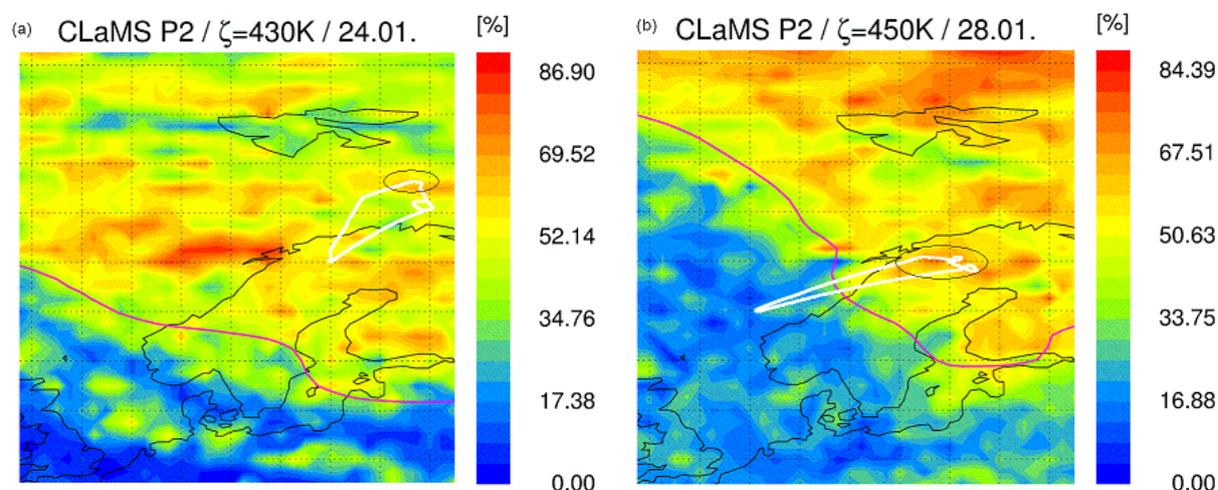


Abbildung 4.3: Ausschnitt aus dem P2 Feld in CLaMS initialisiert im Dezember für den 24.1. auf 430 K (a) und 28.1. auf 450K (b). In pink ist jeweils die Wirbelgrenze nach Nash eingezeichnet, in weiß der Flugpfad der Geophysica am jeweiligen Tag.

aus der unmittelbaren Umgebung des Wirbels. Es finden sich aber an beiden Tagen einige Strukturen mit bis zu 70% Luft aus hohen Breiten innerhalb des Wirbels. Der, in weiß eingezeichnete, Flugpfad der Geophysica am jeweiligen Tag zeigt, dass innerhalb des Wirbels Luftmassen durchflogen wurden, die nach dem Modell zu ca. 70% aus hohen Breiten, außerhalb des Wirbels, stammen. Der Vergleich mit der Transportanalyse in Abbildung 4.2 zeigt, dass die Luftmassen, denen am 24.1. ein P-vortex-Wert von 0,6-0,7 zugewiesen wurde bei der größten, an diesem Tag erreichten, äquivalenten Breite relativ zur Wirbelgrenze gemessen wurden. Diese Messungen lassen sich dem, in Abbildung 4.3(a) markierten, Filament zuordnen. Die am 28.1. gemessenen Datenpunkte, denen in Abbildung 4.2 P-vortex-Werte zwischen 0,6 und 0,7 zugewiesen werden, lassen sich ebenfalls einem Filament von Luft aus hohen Breiten im Wirbel zuordnen (Markierung in Abbildung 4.3(b)), das an diesem Tag durchflogen wurde.

Zur besseren Übersicht sind die P1- und P2 Felder der beiden Tage in Abbildung 4.4 als Polaufsicht für die Nordhemisphäre nördlich von 40°N dargestellt. Wie die Abbildung 4.4 noch einmal für den gesamten Wirbel verdeutlicht, stammen die Luftmassen, die sich im Januar im Wirbel befinden, bezogen auf den Ursprungswirbel im Dezember zu 50% aus hohen Breiten, während die Luftmassen, die sich in der unmittelbaren Umgebung des Wirbels befinden zu einem großen Teil aus mittleren Breiten stammen. Durch den Wirbelsplit und die Rekombination im Dezember sind die Luftmassen im Wirbel also stark durch Luft aus hohen Breiten beeinflusst und die Polarwirbelluft hat im Vergleich zum Ursprungswirbel im Dezember eine neue Charakteristik erhalten. Das Anzeigen von Transport durch den Vortexindex, der sich auf die neue Charakteristik der Wirbelluft bezieht, am 24.1. und 28.1., kommt durch eine noch nicht vollständige Durchmischung der eingetragenen Luftmassen zustande, die horizontale Gradienten in den N_2O -Mischungsverhältnissen im Polarwirbel

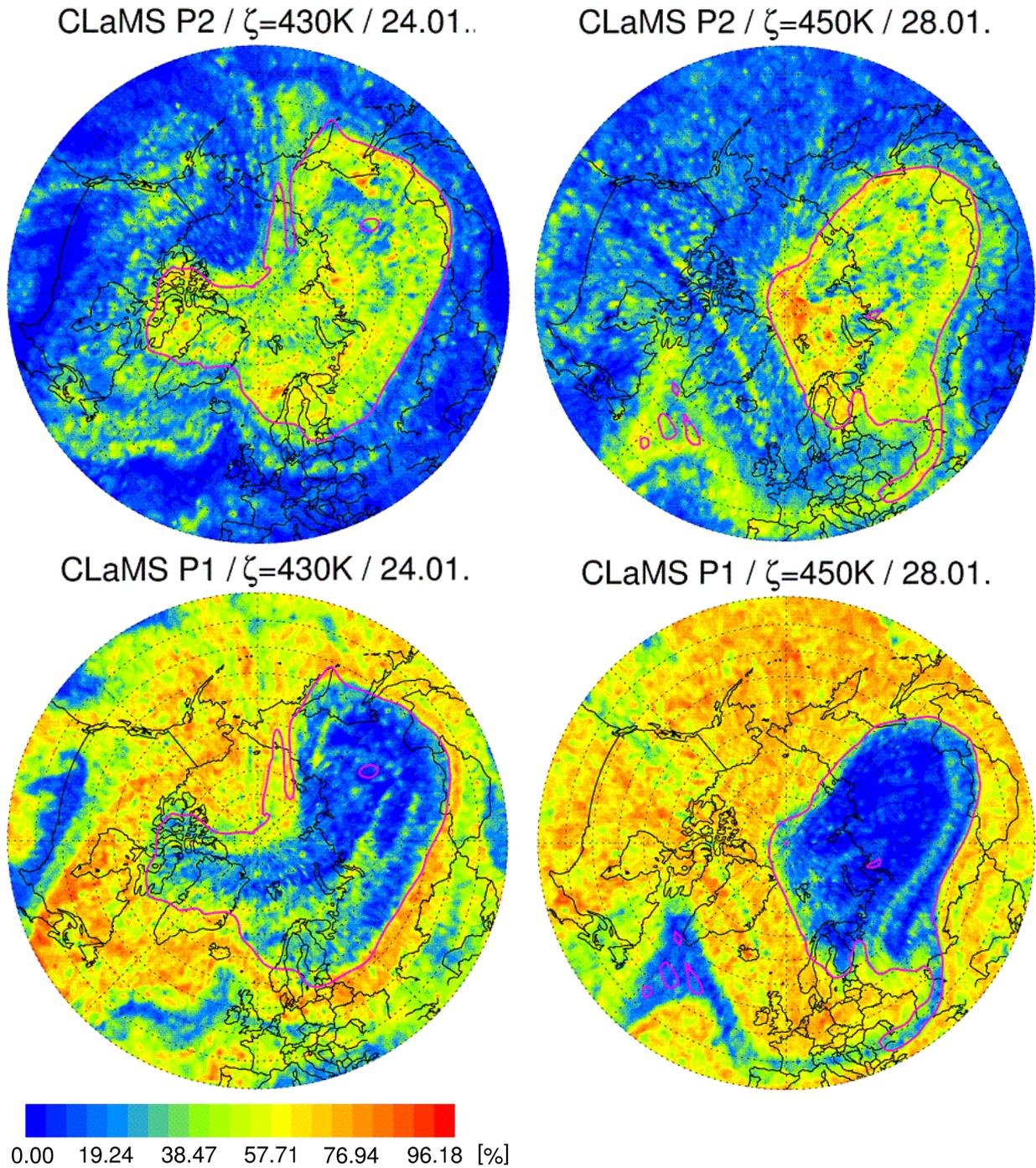


Abbildung 4.4: P2 Feld in CLaMS initialisiert im Dezember für den 24.1. auf 430 K (links oben) und den 28.1. auf 450 K (rechts oben) und P1 Feld in CLaMS initialisiert im Dezember für den 24.1. auf 430K (links unten) und den 28.1. auf 450 K (rechts unten). In pink ist jeweils die Wirbelgrenze nach Nash eingezeichnet.

zur Folge hat. Diese unvollständige Durchmischung wird durch die filamentären Strukturen in den Abbildungen 4.3 und 4.4 bestätigt. Wie in Kapitel 3.3 dargelegt, beziehen sich die Referenzprofile, anhand derer der Vortexindex definiert wurde, auf homogen durchmischte Luftmassen. Luftmassen, die noch nicht vollständig durchmischte sind, weisen höhere N_2O -Mischungsverhältnisse auf, bekommen so einen niedrigeren Vortexindex zugewiesen und werden somit noch als in den Wirbel transportierte Luftmassen identifiziert. Ein genauer Zeitpunkt für den Eintrag der vermessenen Luftmassen in den Wirbel lässt sich nicht feststellen.

Wie oben dargelegt ist die Luft aus hohen Breiten nicht nur in den Wirbel transportiert worden, laut Modell ist es auch zu einer Vermischung mit Polarwirbelluft gekommen. Wie in Kapitel 3.5 dargelegt gibt es in der Korrelation für diesen Zeitraum allerdings keine Anzeichen für Mischungslinien.

Betrachtet man nur die Korrelation innerhalb des Polarwirbels in Abbildung 4.5, sieht man, dass einige Daten, die innerhalb des Polarwirbels gemessen wurden, auf der Korrelation der „surf zone“ liegen. Die entsprechenden Daten wurden am 24.1. in einer Höhe von etwa 420 K und am 28.1. in einer Höhe von 450 K gemessen und entsprechen damit,

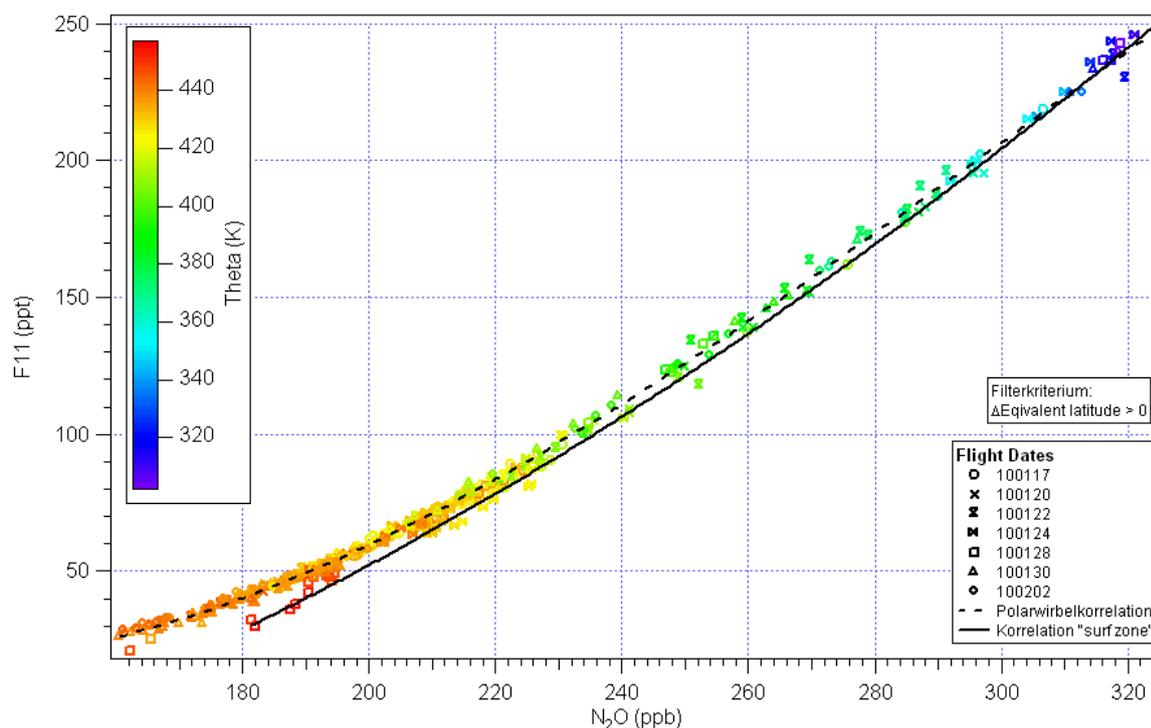


Abbildung 4.5: Gemessene F11- N_2O -Korrelation innerhalb des Polarwirbels (gefiltert nach der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996)) während der Flüge 1 - 8. Die Farben kennzeichnen die Höhe Theta. Die Polarwirbeln wurden mit „ Δ Equivalent latitude“ aus dem Datensatz herausgefiltert.

wie die Transportanalyse oben zeigt, Luftmassen (Vortexindex: 0,6-0,7; P2 initialisiert am 1.12.2009: 0,7), die vor dem 15.1. in den Wirbel gelangten. Wie in Kapitel 3.5.1 dargelegt beschreibt der Fit, der als „surf zone“-Korrelation bezeichnet wird, die mittlere Korrelation in der „surf zone“ nur mit begrenzter Genauigkeit. Die, von 0 verschiedenen Werte, des passiven Tracers P1, initialisiert am 1.12.2009, legen nahe, dass die hier als Korrelation in der „surf zone“ definierte Korrelation zu einem geringen Anteil ($\leq 20\%$) von Wirbelluft beeinflusst ist. Diese Daten kennzeichnen also eine aus Polarwirbelluft und Luft aus der „surf zone“ gemischte Luftmasse.

Die geographischen Verteilungen der passiven Tracer P1 und P2 initialisiert am 15. Januar in den Abbildungen 4.6 und 4.7 zeigen, dass die Luft, die seit Mitte Januar in den Wirbel eingetragen wurde (Ereignis 1 in den Abbildungen 3.10 und 3.13), aus hohen Breiten stammt. Ein Eintrag von Luft aus mittleren oder niedrigen Breiten in den Wirbel, gekennzeichnet durch Beiträge von P0 und P1 an den entsprechenden Daten, wird hier nicht beobachtet.

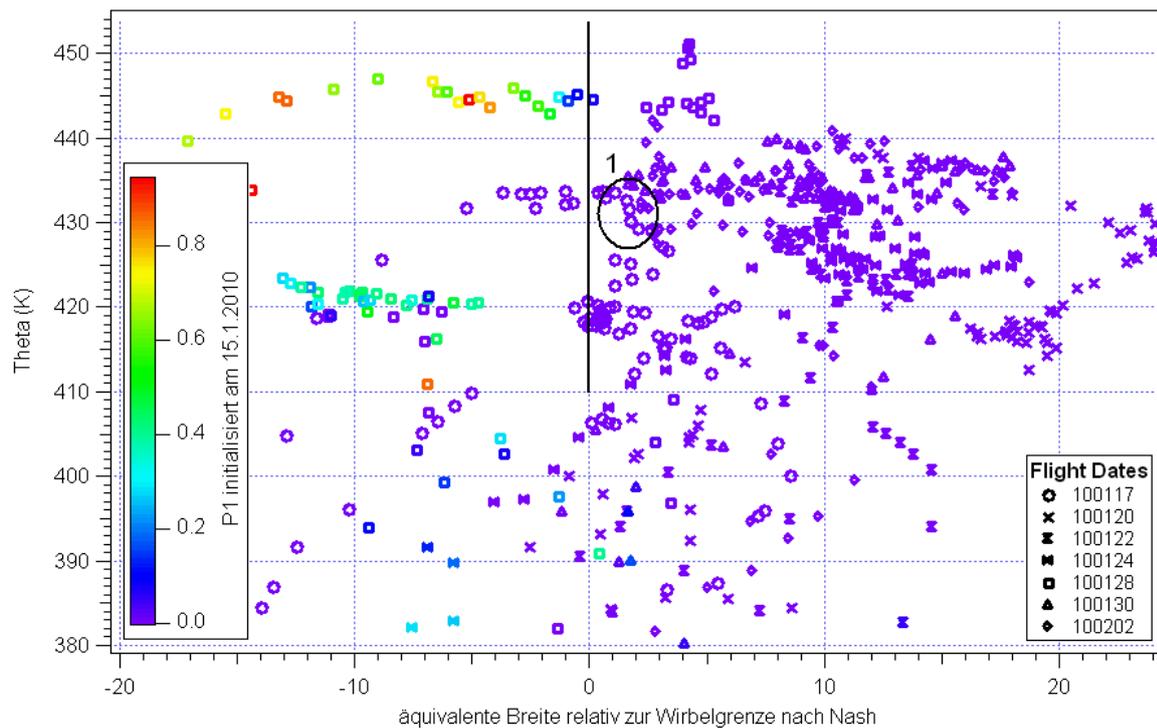


Abbildung 4.6: Geographische Verteilung des passiven Tracers P1 (mittlere Breiten), initialisiert am 15.1.2010, zur Identifikation der Herkunft der seit Mitte Januar in den Wirbel eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt.

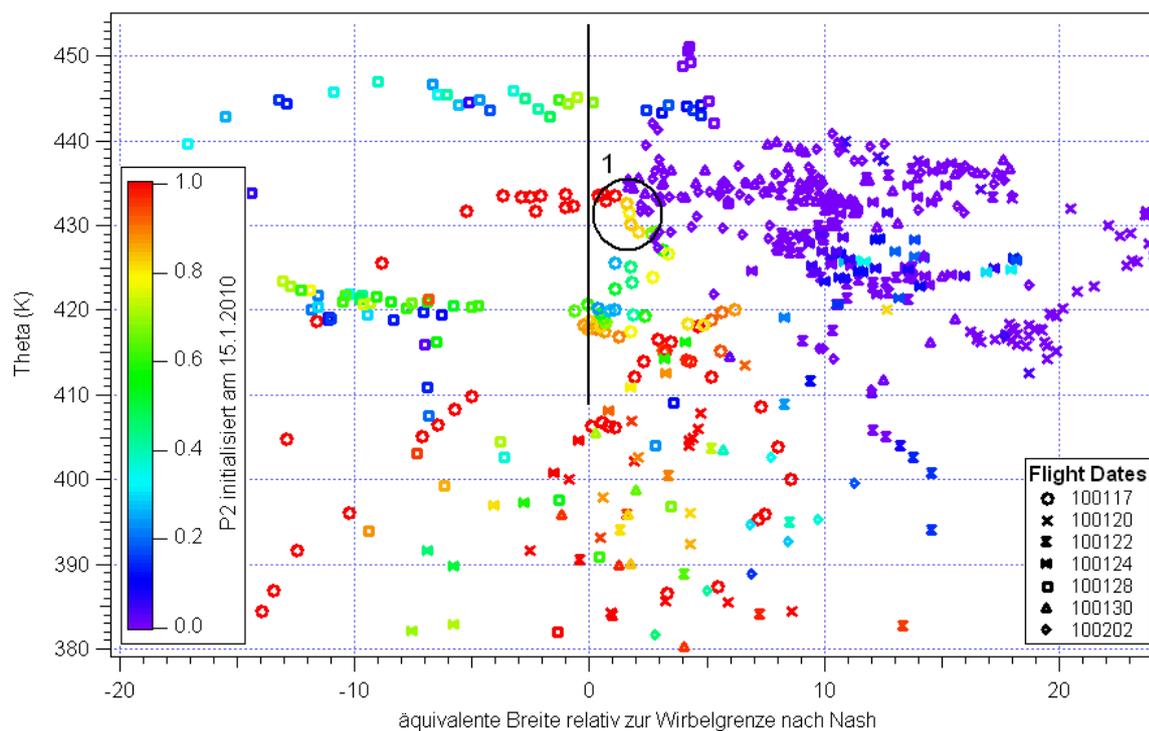


Abbildung 4.7: Geographische Verteilung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten), initialisiert am 15.1.2010, zur Identifikation der Herkunft der seit Mitte Januar in den Wirbel eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt

Die Luftmassen, die am 17.1. innerhalb des Wirbels vermessen wurden (Ereignis 1), enthalten, wie die passiven Tracer zeigen, einen Anteil von 60 - 100% Luft aus hohen Breiten, der restliche Anteil ist, wie Pvortex in Abbildung 3.13 zeigt, Polarwirbelluft. Die Luft aus hohen Breiten ist gemäß dem Modell also nicht nur in den Wirbel transportiert worden, sondern hat sich dort auch mit der umgebenden Polarwirbelluft vermischt.

Um diesen Transportprozess in den dynamischen Kontext des Wirbels einzuordnen ist in Abbildung 4.8 das P2-Feld initialisiert im Januar für den 17.1. dargestellt. In weiß ist der Flugpfad der Geophysica am 17.1. eingezeichnet, in pink die Wirbelgrenze nach Nash. Die Abbildung zeigt, dass während des ersten Fluges am 17.1. ein in den Wirbel eingeschlossenes Filament von Luft aus hohen Breiten durchflogen wurde. Aus der Entwicklung des P2-Feldes initialisiert im Januar zwischen dem 15.1. und 17.1., dargestellt in Abbildung 4.9, ist ersichtlich, dass sich am 16.1. ein Filament vom Wirbelrand nach innen hin bildet, welches am 17.1. vermessen wurde.

Die Daten, die innerhalb dieses Filamentes gemessen wurden liegen in der beobachteten F11-N₂O-Korrelation zwischen den Fits der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“. Es handelt sich also auch in diesem Fall um Luftmassen, in denen Polarwirbelluft und Luft aus mittleren Breiten vermischt wurde, wie es auch die Werte der passiven Tracer und des Vortexindex schon angedeutet haben.

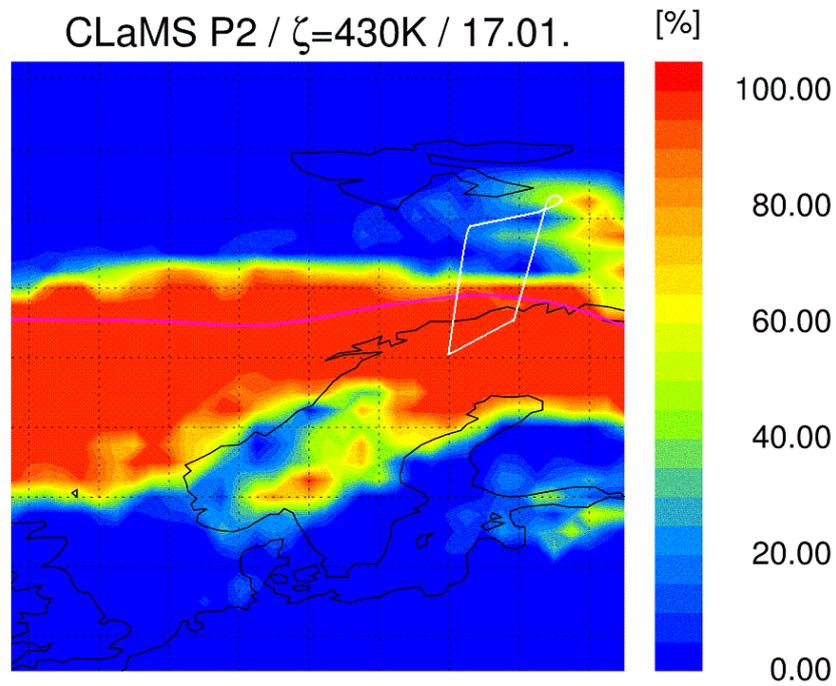


Abbildung 4.8: P2-Feld in CLaMS entlang des Flugpfades für Flug 1 auf 430 K. In weiß eingezeichnet ist der Flugpfad, in pink die Wirbelgrenze nach Nash.

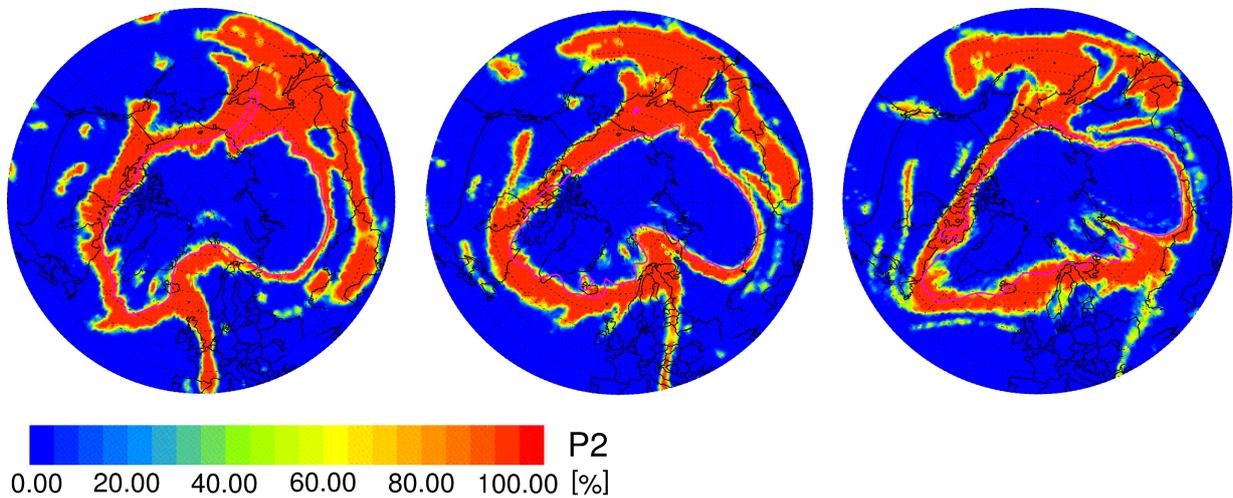


Abbildung 4.9: Entwicklung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten) initialisiert am 15.1.2010 zwischen dem 15.1. und 17.1.2010 auf einer Höhe von 430 K. Die pinkfarbene Linie kennzeichnet die Wirbelgrenze nach Nash.

4.2 Transport und Mischung im März

4.2.1 Transport und Mischung im Polarwirbel

Wie in Kapitel 3.4 dargelegt sind im März verschiedene Transportereignisse zu beobachten. In diesem Abschnitt wird zunächst der Transport von Luft in den Wirbel hinein detaillierter untersucht (Transportereignis 1 im März).

Die im folgenden verwendeten passiven Tracer des CLaMS-Modells sind immer die am 15.1.2010 initialisierten passiven Tracer.

Die Abbildung 4.10 zeigt den Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des Vortexindex innerhalb des Polarwirbels. Bei einer potenziellen Temperatur von 470 K wurden, neben Daten mit einem Vortexindex $\geq 0,8$ auch Daten mit einem Vortexindex zwischen 0,4 und 0,7 innerhalb des Polarwirbels gemessen (Ereignis 1 in Abbildung 3.11). Diese Daten, die einen Transport von Luft von außerhalb des Polarwirbels in den Polarwirbel hinein anzeigen, wurden während Flug 13 gemessen.

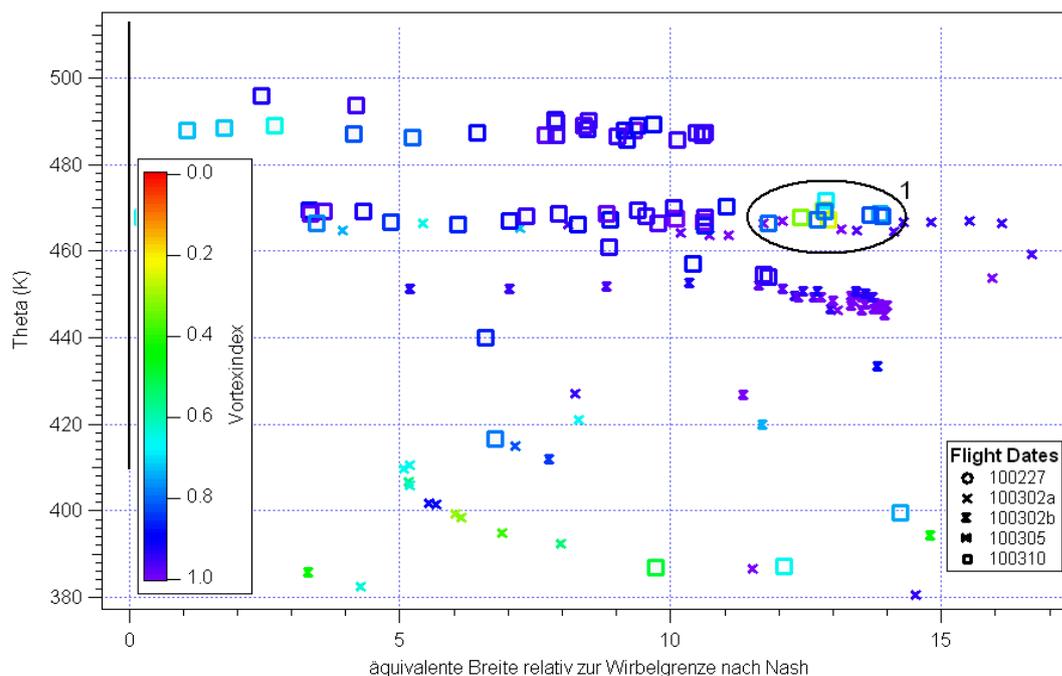


Abbildung 4.10: Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des Vortexindex innerhalb des Polarwirbels für die Flüge 9 - 13.

Zur Einbettung dieses Transportprozesses in den dynamischen Kontext des Polarwirbels wird die Entwicklung des Polarwirbels anhand des N_2O -Feldes im CLaMS-Modell zwischen dem 28.2. und 10.3.2010 betrachtet. Abbildung 4.11 zeigt zunächst einen Ausschnitt aus dem N_2O -Feld in CLaMS am 10.3.2010 entlang des Flugpfades bei einer potenziellen Temperatur von 470 K. Flug 13 startete von Kiruna aus zunächst in Richtung Norden. Nach

einem Richtungswechsel verlief der Flug in Richtung Südwesten. Die Flughöhe in Richtung Norden und Südwesten betrug etwa 18,5 km, entsprechend einer potentiellen Temperatur von 470 K. Unmittelbar vor dem Umkehrpunkt bei 70,14°N und 0,41°O erfolgte ein Aufstieg auf 20 km, entsprechend 490 K.

Der in Abbildung 4.11 auf 470 K projizierte Flugpfad zeigt, dass gemäß dem Modell ein in den Wirbel eingeschlossenes Filament erhöhter N₂O-Mischungsverhältnisse, durchquert wurde.

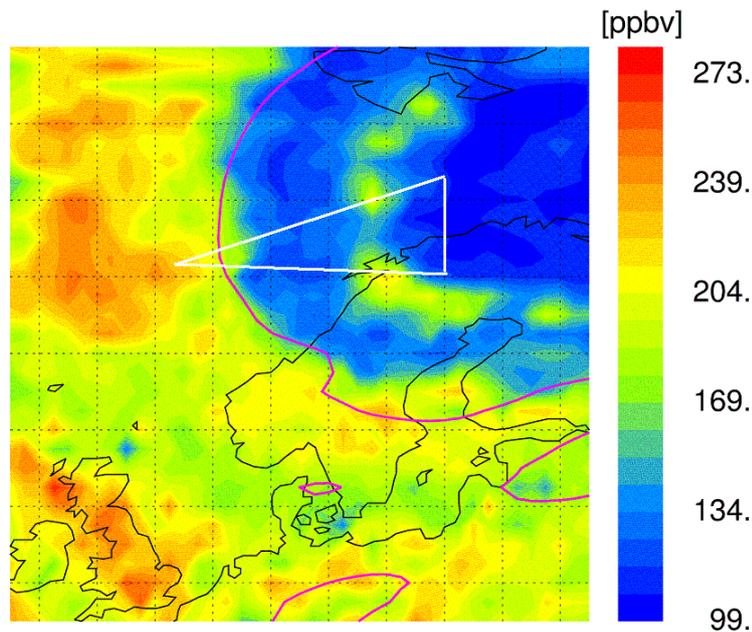


Abbildung 4.11: Ausschnitt (50°-80°N; 10°W-30°O) aus dem N₂O-Feld in CLaMS am 10.3.2010 auf einer potenziellen Temperatur von 470 K mit dem projizierten Flugpfad in weiß und der Wirbelgrenze nach Nash in pink.

In Abbildung 4.12 ist die Entwicklung des Polarwirbels in CLaMS auf einer potenziellen Temperatur von 470 K für den Zeitraum zwischen dem 28.2. und 10.3.2010 an Hand der Polaufsicht des N₂O-Feldes (50°-90°N) gezeigt. Verfolgt man das am 10.3. vermessene Filament zurück, sieht man, dass es sich dabei um Luft handelt, die bei der Rekombination zwischen den beiden Wirbelfragmenten eingeschlossen wurde.

Zur detaillierten Analyse dieses Filamentes in den Messungen und den Simulationen sind in Abbildung 4.13(a) der Vortexindex und der CLaMS Vortexindex als Funktion der geographischen Breite für den Flugabschnitt in Richtung Westen, auf 470 K, dargestellt. Abbildung 4.13(b) zeigt die analoge Abbildung für die passiven Tracer Pvortex, P1 und P2. Zunächst einmal zeigt die Abbildung, dass die geographische Lage des Filamentes in Mes-

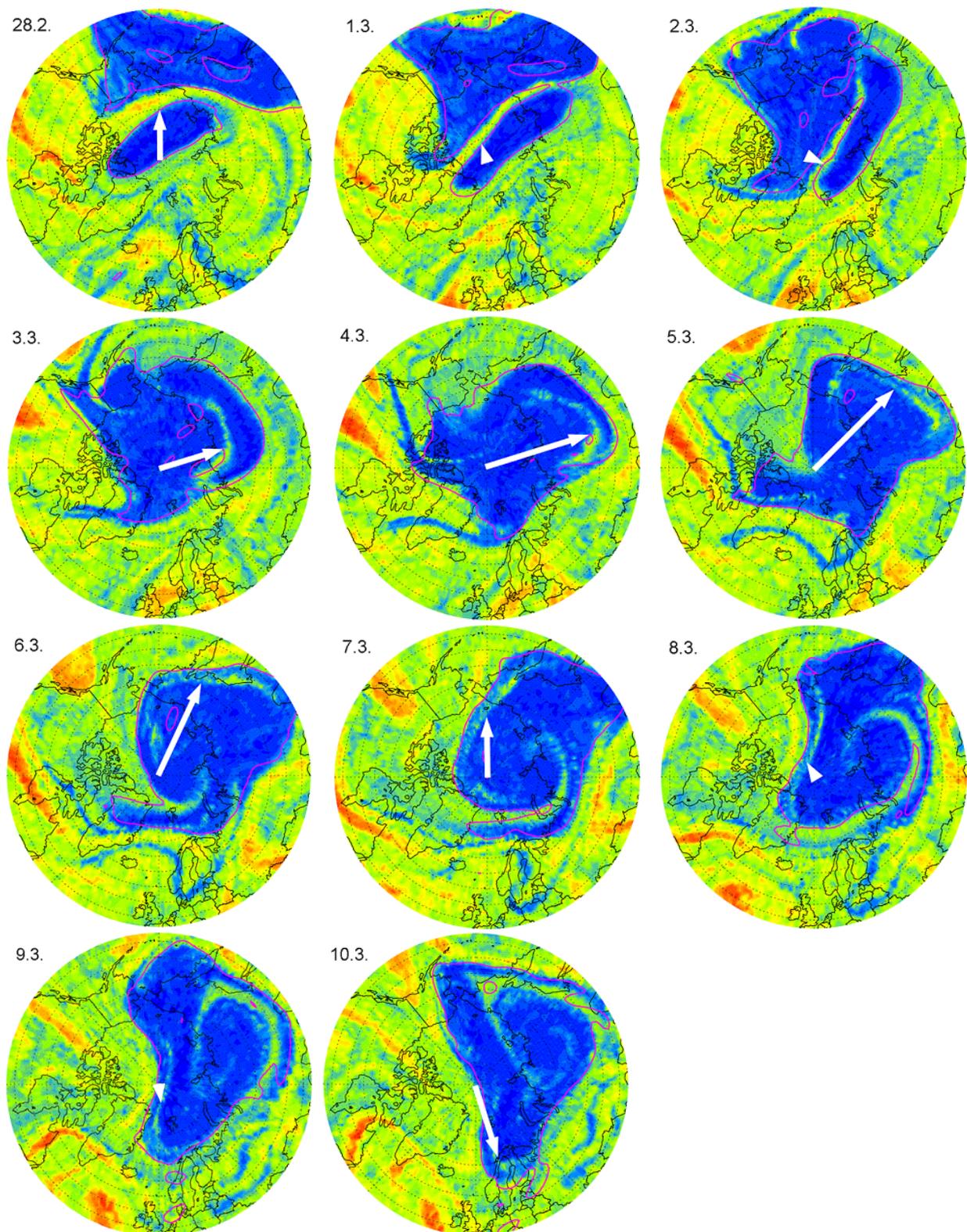


Abbildung 4.12: Entwicklung des Polarwirbels zwischen dem 28.2. und 10.3.2010 auf 470 K an Hand des N_2O -Feldes in CLaMS. Die weißen Pfeile kennzeichnen das vermessene Filament.

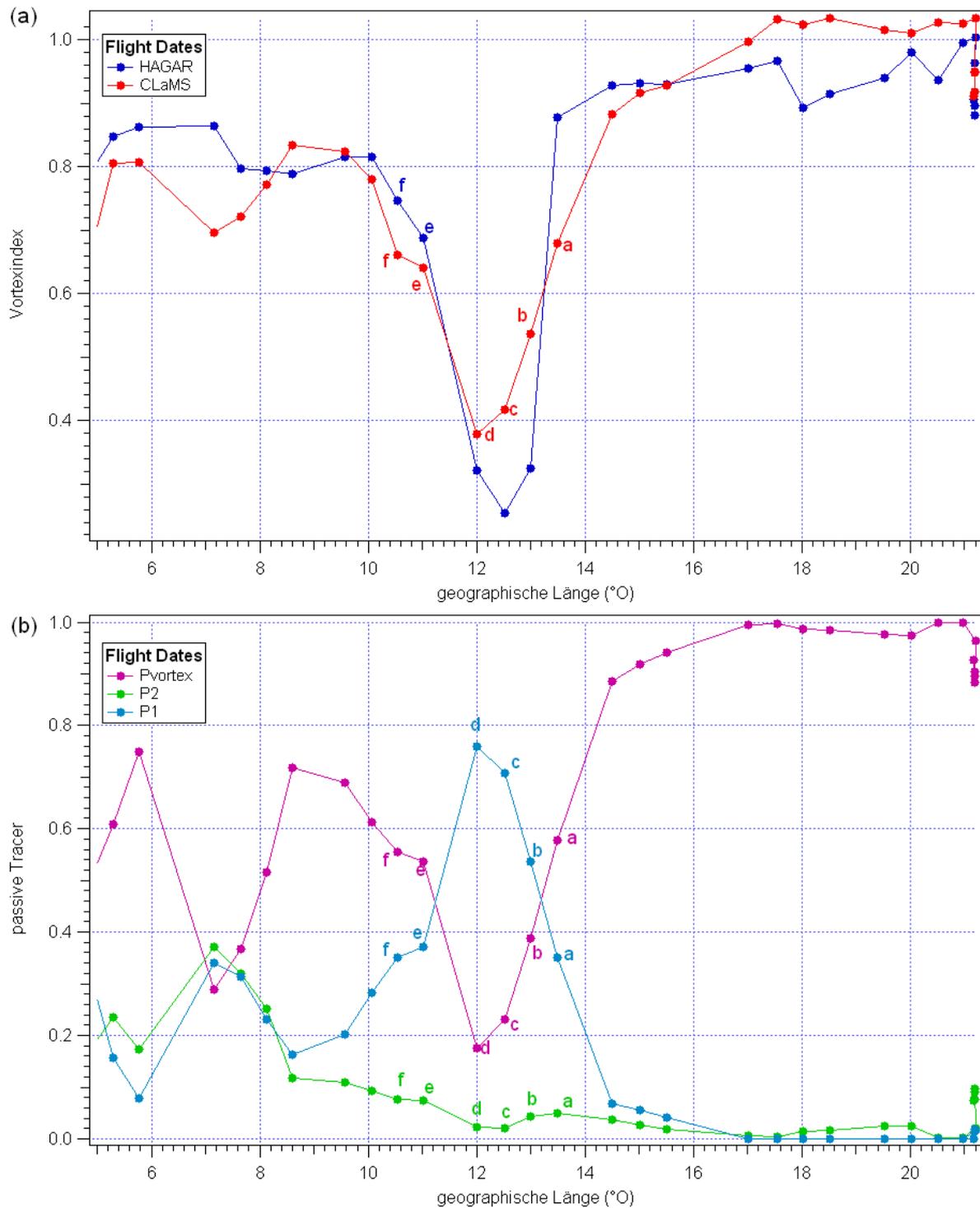


Abbildung 4.13: (a): Vortexindex und CLaMS Vortexindex als Funktion der geographischen Länge für den Flugabschnitt in Richtung Westen. (b): Passive Tracer Pvortex, P1 und P2 als Funktion der geographischen Länge für den Flugabschnitt in Richtung Westen. Die mit Buchstaben gekennzeichneten Datenpunkte sind der jeweiligen Mischungslinie oberhalb der F11-N₂O Korrelation zuzuordnen.

sung und Beobachtung sehr gut übereinstimmt. In Abbildung 4.11 liegt die Stelle, an der das Filament durchquert wurde, bei ca. $71,5^{\circ}\text{N}$ und 13° - 16°O und erscheint damit an einer leicht verschobenen geographischen Position verglichen zur beobachteten Position in Abbildung 4.13. Die Abbildungen 4.11 und 4.12 zeigen die Situation jeweils um 12 Uhr (UTC). Der Flug am 10.3. fand zwischen 7 Uhr und 11 Uhr (UTC) statt und die Durchquerung des Filamentes war gegen 8:30 Uhr. Diese zeitliche Differenz erklärt die leichte Verschiebung des Filamentes in den Darstellungen 4.11 und 4.12 im Vergleich zu Abbildung 4.13

Der Wert des Vortexindex in Abbildung 4.13(a), fällt beim Eintritt in das Filament von Osten her von 0,9 auf 0,3 und indiziert damit einen sehr scharfen Übergang zwischen Wirbel und Filament. Werte von 0,3 wurden in Abschnitt 3.4.1 als Mittel für die „surf zone“ angenommen, so dass hier geschlussfolgert werden kann, dass die im Zentrum des Filamentes vermessene Luft eine Signatur aus der „surf zone“ hat und weitestgehend unvermischt erhalten geblieben ist. Beim Austritt aus dem Filament in westlicher Richtung indiziert der Vortexindex mit Werten von 0,68 und 0,75 eine Mischung zwischen Filament und umgebender Wirbelluft.

Der CLaMS Vortexindex verhält sich sehr ähnlich, es fällt jedoch auf, dass die gesamte Struktur breiter ist als in den Beobachtungen. In den Beobachtungen erstreckte sich das Filament von 10°O bis 13°O , während es in den Simulationsergebnissen bis 14°O reicht. Der Übergang zwischen Polarwirbel und Filament am östlichen Rand erscheint beim CLaMS Vortexindex ebenfalls weniger scharf. Die Werte fallen dort nicht direkt von 0,9 auf 0,4, sondern es gibt einen Bereich in dem den Luftmassen Werte von 0,7 und 0,54 zugewiesen werden. Das bedeutet, dass nach dem CLaMS Vortexindex auch am östlichen Rand eine Mischung simuliert wurde. Am westlichen Rand des Filamentes zeigen Vortexindex und CLaMS Vortexindex ein übereinstimmendes Bild. Insgesamt indizieren die höheren CLaMS Vortexindex-Werte jedoch eine stärker ausgeprägte Vermischung des Filamentes, als es in den Beobachtungen der Fall war. Es kann aus dieser Analyse jedoch nicht gezeigt werden, ob im Modell tatsächlich zu schnell gemischt wird oder bedingt durch die horizontale Auflösung der Simulationen und die Interpolation der Modellergebnisse auf den Flugpfad nur der Eindruck einer zu schnellen Mischung im Modell erzeugt wird.

Aus Abbildung 4.13(b) lässt sich, anhand der Beiträge der verschiedenen passiven Tracer, erkennen wie die Luftmassen im Filament, nach dem Modell, zusammengesetzt sind. Ein Beitrag tropischer Luftmassen, gekennzeichnet durch P0-Werte >0 (hier nicht gezeigt) ist nicht zu verzeichnen. Der Hauptanteil der Luftmassen im Zentrum des Filamentes stammt mit ca. 78% aus mittleren Breiten (P1). Einen weiteren Anteil an den Luftmassen im Zentrum hat mit ca. 20% Polarwirbelluft (Pvortex) und auch ein, mit 2%, geringer Anteil von Luft vom äußeren Wirbelrand und aus hohen Breiten (P2) kann verzeichnet werden. Der Beitrag von Luft vom äußeren Wirbelrand und hohen Breiten ist im gesamten Filament relativ konstant bei 2%-4%, während sich die anderen Beiträge zum Rand hin verändern. An den Rändern des Filamentes stammt die Luft, nach dem Modell jeweils zu 40%-60% aus dem Polarwirbel und mittleren Breiten. Das Modell zeigt also erwartungsgemäß an den Rändern des Filamentes eine starke Mischung mit der umgebenden Polarwirbelluft,

die zum Zentrum des Filamentes hin abnimmt.

Wie in Kapitel 3.5 bereits angesprochen, bilden in der Korrelation zwischen F11 und N_2O der zweiten Phase von RECONCILE die Daten mit einem Vortexindex zwischen 0,4 und 0,7, gemessen während Flug 13, oberhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation eine oder mehrere Linien, die signifikant von der kompakten Korrelation abweichen (vgl. Abbildung 3.18).

Im folgenden soll nun untersucht werden, ob es sich um Mischungslinien handelt und ob eine dieser Linien dann mit dem oben angesprochenen Transport- und Mischungsereignis in Zusammenhang gebracht werden kann. Handelt es sich dabei um Mischungslinien, müssen die Daten dieser Linien, wie in Kapitel 1.2.2 dargelegt, jeweils bei der selben potentiellen Temperatur gemessen worden sein. Wenn also das auf 470 K beobachtete Transportereignis, mit irreversibler Mischung einherging, die zur Ausbildung einer Mischungslinie innerhalb der F11- N_2O -Korrelation geführt hat, muss innerhalb des Polarwirbels, ca. 10° von der Wirbelgrenze entfernt, eine Mischungslinie beobachtet worden sein. Die folgende Abbildung 4.14 zeigt einen Ausschnitt aus der F11- N_2O -Korrelation für alle Daten, die innerhalb des Polarwirbels, mehr als 5° vom Wirbelrand entfernt, gemessen wurden. Zur Orientierung

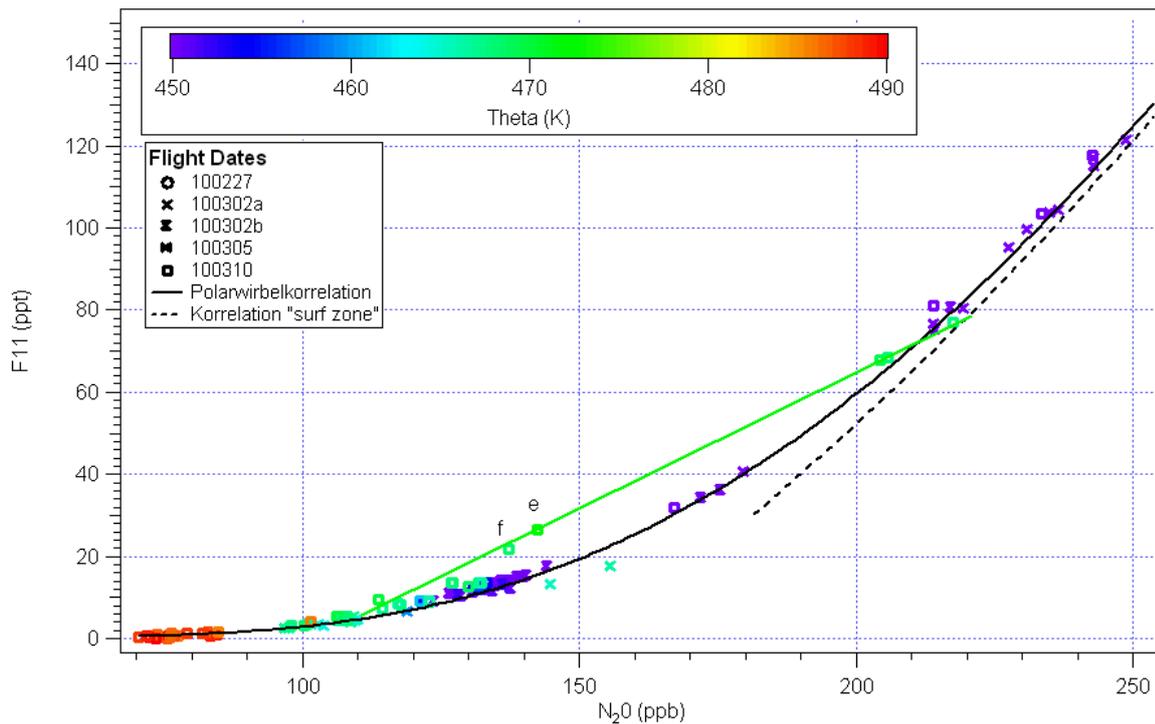


Abbildung 4.14: Ausschnitt aus der F11- N_2O -Korrelation. Als Datenpunkte dargestellt nur die Daten, die im Polarwirbel, mehr als 5° von der Wirbelgrenze entfernt, gemessen wurden („ Δ equivalent latitude“ $\geq 5^\circ$). Die charakteristische Polarwirbelkorrelation im März wird durch ihren Fit dargestellt, ebenso wie die charakteristische Korrelation in der „surf zone“.

sind die Fits der charakteristischen Korrelationen, die den Polarwirbel und die „surf zone“ repräsentieren, eingezeichnet. Abbildung 4.14 zeigt, dass einige der Datenpunkte aus der Signatur in Abbildung 3.18 tatsächlich eine Mischungslinie auf 470 K zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“ bilden. Diese Datenpunkte, in Abbildung 4.14 mit e und f gekennzeichnet wurden bei einer geographischen Länge von 11°O bzw. $10,5^{\circ}\text{O}$ gemessen und sind damit in der Transportanalyse Datenpunkten zuzuordnen, die am westlichen Rand der Transportsignatur gemessen wurden (in Abbildung 4.13(a) ebenfalls durch e und f gekennzeichnet). Die im Zentrum des Filamentes gemessenen Datenpunkte mit einem Vortexindex von 0,3 finden sich in Abbildung 4.14 als Endpunkt auf der Korrelation in der „surf zone“ wieder. Das bestätigt die oben dargelegte Vermutung, dass in den Beobachtungen die Luft im Zentrum des Filamentes unvermischt erhalten war. Zusammen mit der Transportanalyse aus dem ersten Teil dieses Kapitels lässt sich aus dieser Analyse schlussfolgern, dass in einer Höhe von 470 K tatsächlich Luft aus hohen und mittleren Breiten in den Polarwirbel transportiert wurde und sich dort mit der umgebenden Polarwirbelluft vermischt hat. Am westlichen Rand dieses Filamentes konnte irreversible Mischung beobachtet werden, die zur Ausbildung einer Mischungslinie oberhalb der F11-N₂O-Korrelation führte, während die Luft im Zentrum unvermischt erhalten war.

Die Transportanalyse anhand der Simulationsergebnisse zeigt, dass dort ebenfalls auf 470 K ein Transport von Luft in den Polarwirbel zu verzeichnen war (vgl. Abbildung 3.15). Weiter zeigt Abbildung 3.21, dass im Modell ebenfalls eine Signatur oberhalb der simulierten F11-N₂O-Korrelation zu beobachten ist. Die Werte für P_{vortex} von 0,4-0,6 in dieser Signatur weisen ebenfalls auf eine Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft von außerhalb hin. Im folgenden soll nun überprüft werden ob auch im Simulationsergebnis von CLaMS dem Transportereignis eine Mischungslinie zugeordnet werden kann. Die Abbildung 4.15 zeigt die analoge Darstellung zu Abbildung 4.14 im Modell. Wie Abbildung 4.15 zeigt, ist im Modell ebenfalls eine Mischungslinie innerhalb des Polarwirbels, mehr als 5° von der Polarwirbelgrenze entfernt, zu beobachten. Die Analyse zeigt weiter, dass die Datenpunkte a-f, die die Mischungslinie bilden, bei geographischen Breiten zwischen $10,5^{\circ}\text{O}$ und $13,4^{\circ}\text{O}$ liegen und somit Filament zuzuordnen sind (vgl. a-f in Abbildung 4.13(a)). Aus den Abbildungen 4.15 und 4.13(a) geht außerdem hervor, dass im Modell alle im Filament gemessenen Datenpunkte auf der Mischungslinie liegen. Das bedeutet im Modell ist, im Gegensatz zur Messung, auch im Zentrum keine unvermischte Luft mehr erhalten. Die oben, auf Grund der Werte des CLaMS Vortexindex, aufgestellte Vermutung, dass im Modell das Filament, insbesondere im Zentrum, bereits stärker mit der umgebenden Polarwirbelluft vermischt ist, als in der Beobachtung, wird hierdurch also bestätigt. Dieser Eindruck einer zu starken Vermischung in der Analyse der Modellergebnisse kann auch eine Folge der horizontalen Auflösung des Modells sein. Während die Messungen eine horizontale Auflösung von ca. 20 km haben beträgt die horizontale Auflösung in den Simulationen 70 km. Kleine Strukturen können somit nicht ausreichend gut aufgelöst werden und erscheinen somit stärker vermischt.

Der in Abbildung 4.15 durch einen Pfeil markierte Datenpunkt auf der Mischungslinie re-

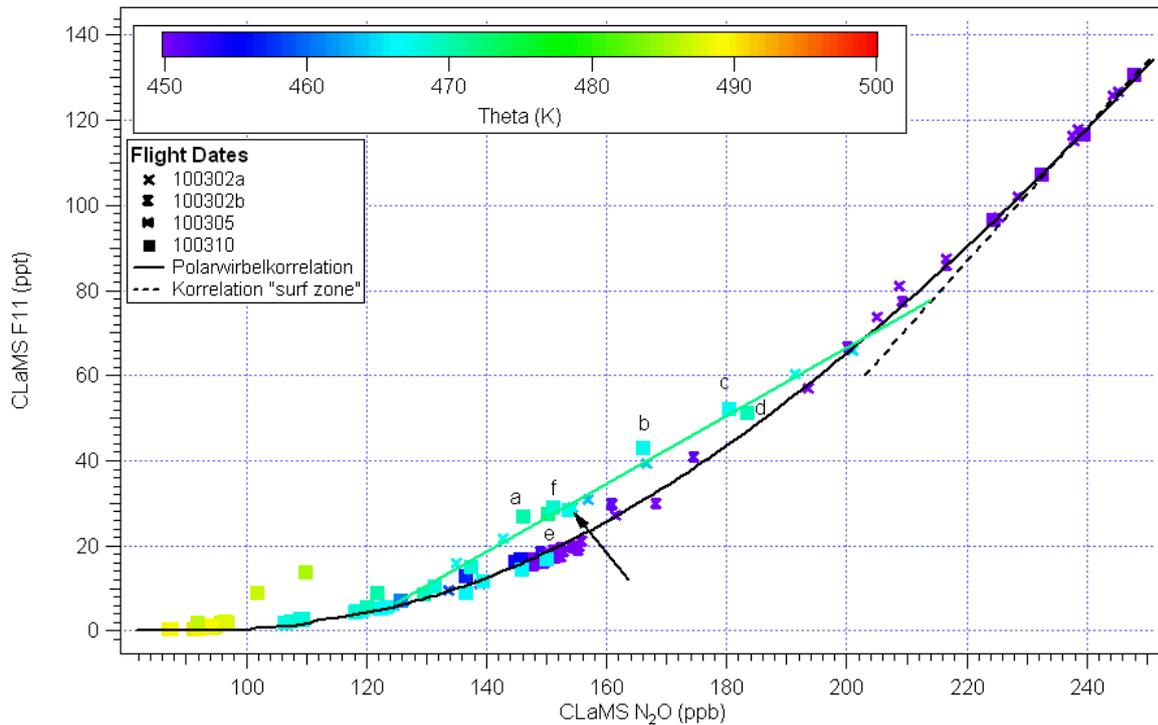


Abbildung 4.15: Ausschnitt aus der simulierten F11-N₂O-Korrelation. Als Datenpunkte dargestellt nur die Daten, die im Polarwirbel, mehr als 5° von der Wirbelgrenze entfernt, liegen („ Δ equivalent latitude“ $\geq 5^\circ$). Die charakteristische Polarwirbelkorrelation im März wird durch ihren Fit dargestellt, ebenso wie die charakteristische Korrelation in „surf zone“. Die Zahl der Datenpunkte im Modell wurde auf die HAGAR Messzeitpunkte reduziert. Durch die Buchstaben werden die Datenpunkte der Mischungslinie gekennzeichnet, die der Durchquerung des Filamentes beim Flug in Richtung Westen zuzuordnen sind; mit einem Pfeil ist der Datenpunkt markiert der aus einer erneuten Durchquerung des Filamentes im Sinkflug resultiert.

sultiert aus einer erneuten Durchquerung des Filamentes im Sinkflug kurz von der Landung. In den Beobachtungen ist im Abstieg kein Datenpunkt zu finden, der auf der Mischungslinie liegt. Das Filament scheint also in der Realität nicht nochmals durchfolgen worden zu sein.

Insgesamt wird das beobachtete Filament durch die Simulationen sehr gut, d.h. an der richtigen geographischen Position, wiedergegeben. Die größere Breite, die höheren Werte des CLaMS Vortexindex und die Mischungslinie können indes auf eine bereits etwas fortgeschrittenere, d.h. zu schnelle Mischung in CLaMS hindeuten oder aber durch die schlechtere Modellauflösung zustande kommen.

4.2.2 Mischung an der Wirbelgrenze

Abbildung 3.18 zeigt, dass deutlich mehr Datenpunkte mit einem Vortexindex 0,4-0,6, die am 10.3. gemessen wurden, oberhalb der F11-N₂O-Korrelation liegen, als durch Abbildung 4.14 der Mischung am Rand des eingeschlossenen Filaments zugeordnet werden konnten. Um zu prüfen wie diese Daten einzuordnen sind, ist in Abbildung 4.16 der relevante Ausschnitt aus der am 10.3. beobachteten Korrelation dargestellt.

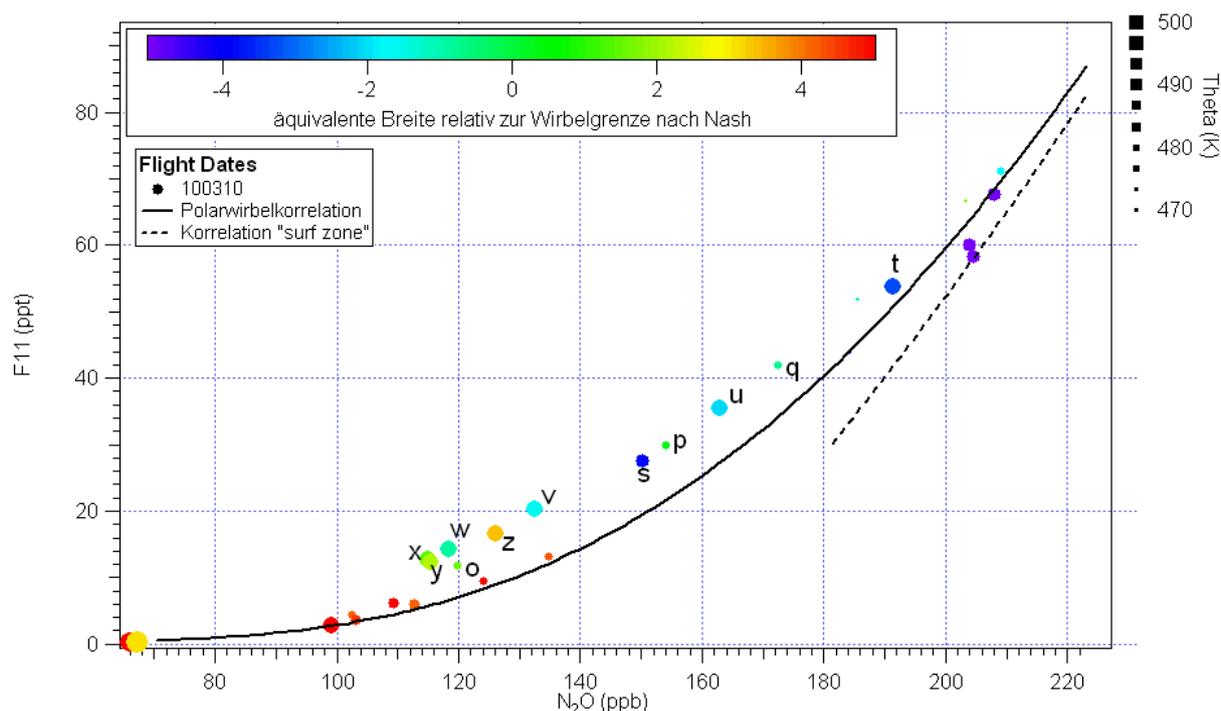


Abbildung 4.16: Ausschnitt aus der am 10.3. beobachteten F11-N₂O-Korrelation. Dargestellt sind nur Daten, die in einem 10° breiten Bereich um die Wirbelgrenze herum gemessen wurden ($-5^\circ < \Delta \text{equivalent latitude} < 5^\circ$). Die farbliche Kodierung gibt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash an; die Größe der Symbole gibt die potenzielle Temperatur Theta an.

Aus dem gesamten Datenbereich wurden die Daten heraus gefiltert, die in einem 10° breiten Bereich um die Wirbelgrenze herum gemessen wurden. Abbildung 4.16 zeigt, dass die anderen Datenpunkte aus der in Kapitel 3 beschriebenen Signatur in diesem Bereich gemessen wurden. Die farbliche Kodierung zeigt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996); die unterschiedlichen Größen der Symbole geben die unterschiedlichen potenziellen Temperaturen Theta an. Abbildung 4.16 zeigt, dass am 10.3. auf verschiedenen potenziellen Temperaturen, zwischen 470 K und 490 K, Datenpunkte entlang solcher Mischungslinien beobachtet wurden. Abbildung 4.17 zeigt den Vortexindex und CLaMS Vortexindex als Funktion der geographischen Breite in der Umgebung des Umkehrpunktes des Flugpfades. Mit den Buchstaben o-z sind die Datenpunkte gekennzeichnet die sich den

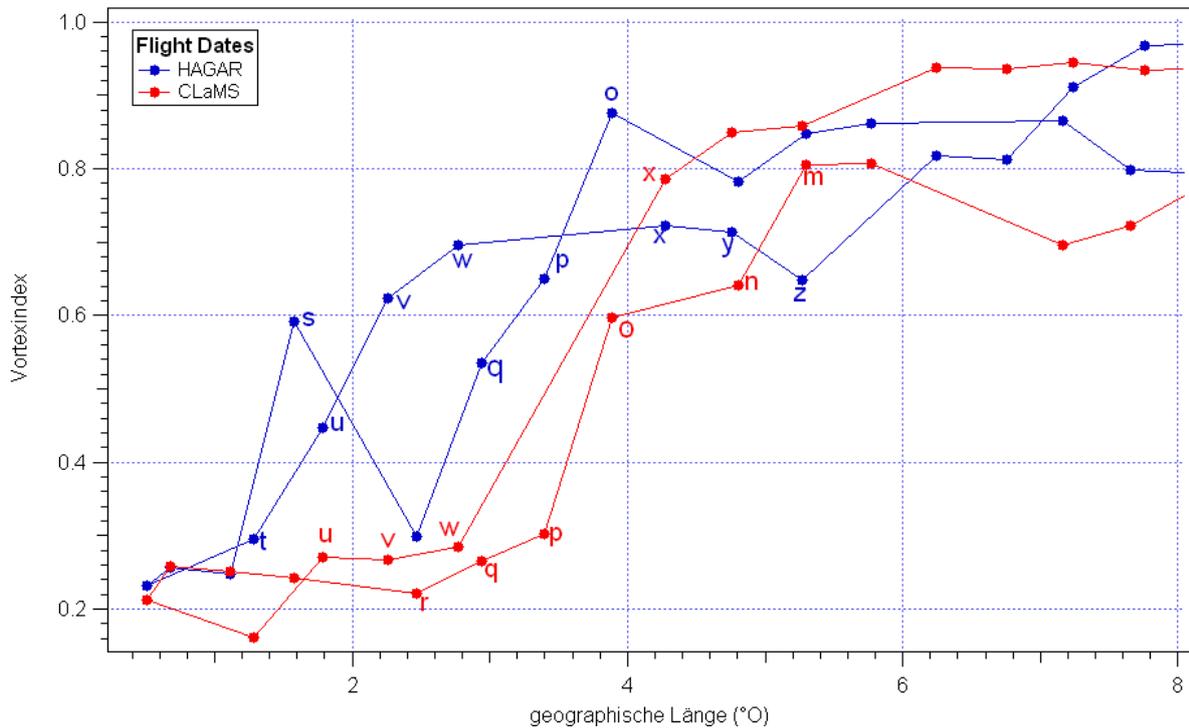


Abbildung 4.17: Vortexindex und CLaMS Vortexindex als Funktion der geographischen Länge in der Nähe des Umkehrpunktes des Flugpfades für Flug 13 am 10.3.2010. Die Buchstaben kennzeichnen die Datenpunkte, die den Mischungssignaturen in den Abbildungen 4.16 und 4.18 zuzuordnen sind.

Mischungssignaturen in Abbildung 4.16 zuordnen lassen. Geographisch sind diese Datenpunkte also einer Region zwischen $1,6^{\circ}\text{O}$ und $5,4^{\circ}\text{O}$ zuzuordnen, die vor und nach dem Umkehrpunkt durchquert wurde. Ein konkreter Transportprozess ist diesen Datenpunkten in der Transportanalyse nicht zuzuordnen. Diese Mischungssignaturen sind also auf eine Vermischung zwischen Wirbelluft und Luft aus der „surf zone“ an der Wirbelgrenze zurückzuführen.

Um zu prüfen wie gut diese kleinskaligen Mischungsprozesse an der Wirbelgrenze im Modell simuliert werden können, ist in Abbildung 4.18 die simulierte $\text{F11-N}_2\text{O}$ -Korrelation einem Bereich von 10° Breite um die Wirbelgrenze herum für den 10.3. dargestellt. Abbildung 4.18 zeigt, dass auch in der simulierten Korrelation deutliche Mischungssignaturen in diesem 10° breiten Bereich an der Wirbelgrenze zu finden sind. Wie in den Beobachtungen befinden sich diese Signaturen in einem Bereich zwischen 470 K und 490 K. Die entsprechenden Datenpunkte werden in den Abbildungen 4.17 und 4.18 durch die Buchstaben m-x gekennzeichnet. Die simulierten Mischungssignaturen befinden sich überwiegend, wie durch Abbildung 4.17 deutlich wird, geographisch an der selben Position wie die beobachteten. Die Mischung an der Wirbelkante wird in diesem Einzelfall also gut durch das Modell wiedergegeben.

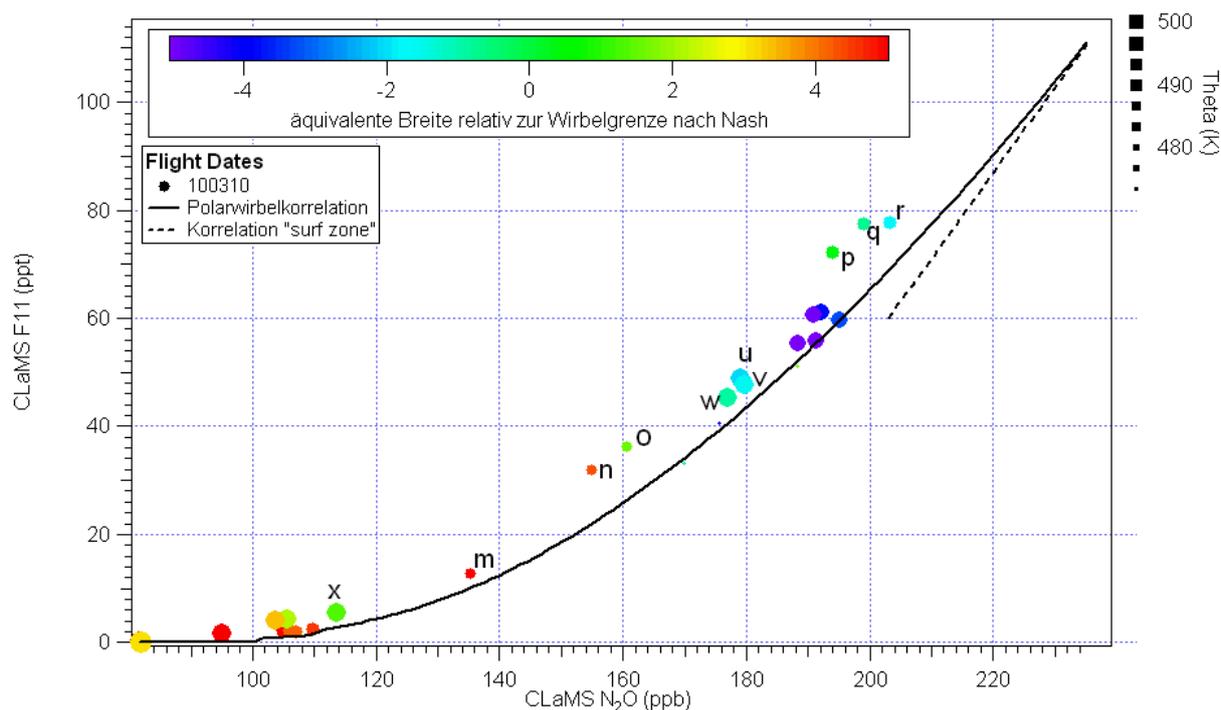


Abbildung 4.18: Ausschnitt aus der simulierten F11-N₂O-Korrelation für den 10.3.2010. Dargestellt sind nur Datenpunkte aus einem 10° breiten Bereich an der Wirbelgrenze ($-5^\circ < \Delta$ equivalent latitude $< 5^\circ$). Die farbliche Kodierung gibt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash an; die Größe der Symbole gibt die potenzielle Temperatur Theta an.

Um zu überprüfen, ob eine solche Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus hohen Breiten auch bei der Querung der Wirbelgrenze während anderer Flüge beobachtet werden konnte, ist in Abbildung 4.19 die Korrelation für alle Flüge, in einem Bereich von 10° Breite um die Wirbelgrenze herum (Filterkriterium: $-5^\circ \geq \Delta$ „equivalent latitude“ $\geq 5^\circ$), dargestellt. Abbildung 4.19 zeigt, dass viele Daten, die in der Nähe der Wirbelgrenze gemessen wurden eine Mischungssignatur aufweisen. In der zweiten Phase der Kampagne (Flüge 9-13) wurden, abgesehen vom 10.3., nur sehr wenige Messungen in dieser Region um die Wirbelgrenze herum durchgeführt. Während der Flüge am 27.2. und 5.3. wurde die Wirbelgrenze nicht überquert. Am 2.3. wurde während beider Flüge die Wirbelgrenze überquert, jedoch fallen in diesen Bereich nur einzelne Messungen, so dass sich in der Korrelation nur einzelne Datenpunkte wiederfinden lassen. Während Flug 11 (in Abbildung 4.19 als 100302b bezeichnet) findet sich jedoch ein Datenpunkt der auch auf einer Mischungslinie oberhalb der F11-N₂O-Korrelation zu liegen scheint.

Während der Flüge 1-8 liegen die Daten aus dem Bereich der Transportbarriere zumeist auf einer Korrelation, die zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“, in Abbildung 4.19 durch die jeweiligen Fits repräsentiert, verläuft. Die Mischungssignatur in dieser Phase unterscheidet sich damit von der im März. Dieser Unterschied kommt zum einen dadurch zustande, dass die Luftmassen im Polarwir-

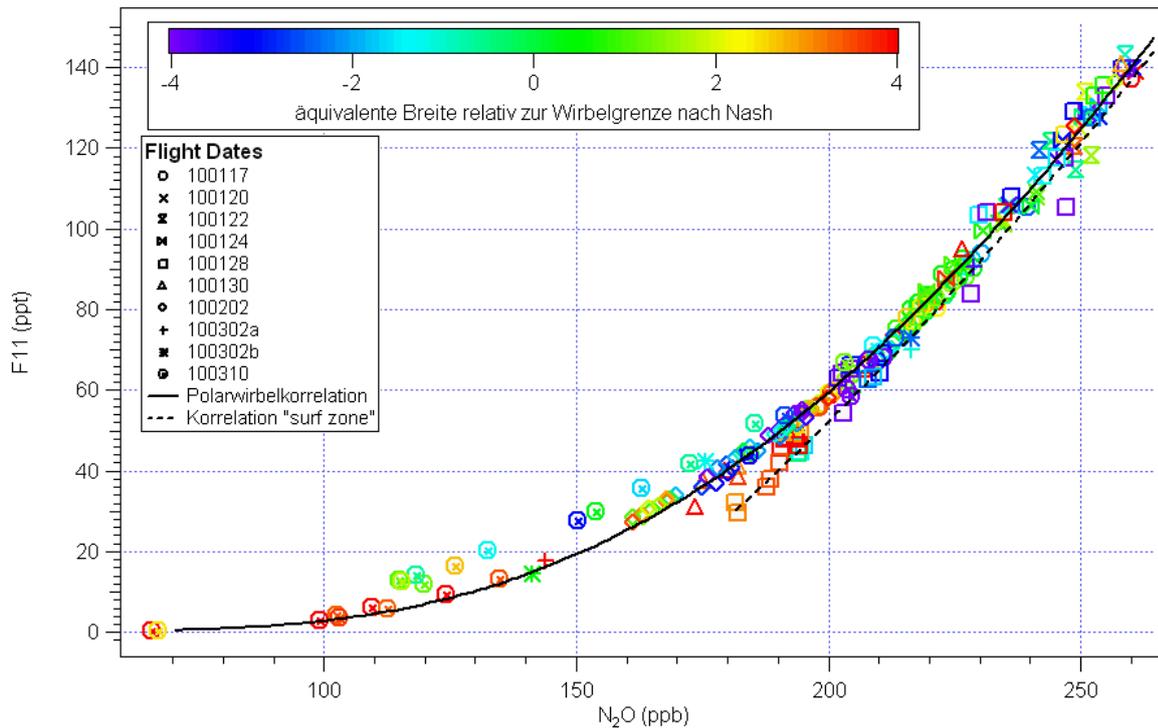


Abbildung 4.19: Ausschnitt aus der beobachteten F11-N₂O-Korrelation für die Flüge 1-13. Dargestellt sind nur Daten, die in einem 10° breiten Bereich um die Wirbelgrenze herum gemessen wurden ($-5^\circ < \Delta \text{ equivalent latitude} < 5^\circ$). Die farbliche Kodierung gibt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash an.

bel im Januar noch nicht so weit abgesunken waren und zum anderen daher, dass im Januar nur eine maximale potenzielle Temperatur von 450 K erreicht wurde. Im Januar wurden auf 450 K N₂O-Mischungsverhältnisse von etwa 150 ppb gemessen. Gleichzeitig waren im Januar der Wirbel und die hohen Breiten weniger durch den Einfluss planetarer Wellen, durch die Luft aus mittleren und niedrigen Breiten in die Polarregion gebracht werden kann, gestört, so dass im Januar außerhalb des Wirbels ältere Luftmassen mit niedrigeren N₂O-Mischungsverhältnissen gemessen wurden als im März. Außerhalb des Polarwirbels wurden im Januar auf 450 K Mischungsverhältnisse von ca. 200 ppb gemessen. Eine Mischungslinie auf 450 K mit diesen Anfangs- und Endpunkten auf den jeweiligen Korrelationen verläuft unterhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation. Aus diesem Grund befinden sich im Januar Daten die eine Mischungssignatur zeigen zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“.

Die Region mit Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus hohen Breiten wurde also während mehrerer Flüge beobachtet. Am 10.3. konnten auf Grund des Flugpfades und der Lage der Wirbelgrenze besonders viele Messungen in dieser Region an der Wirbelgrenze durchgeführt werden, die eine detailliertere Untersuchung möglich gemacht haben. Die Transportbarriere zwischen dem Polarwirbel und der „surf zone“ (vgl. Abbildung 3.12), die Kapitel 3.4 identifiziert wurde und in der keine schnelle Mischung mit mittleren Breiten

mehr vorliegt, entspricht auch in etwa der Region, in der Luftmassen aus hohen Breiten mit Polarwirbelluft vermischt werden. Nach dieser Analyse reicht diese Mischregion ca. 3° in den Wirbel hinein. Diese Mischung findet ohne identifizierbaren Transport, wie größere Filamente, also kleinskalig und vermutlich kontinuierlich statt.

4.2.3 Mischung außerhalb des Wirbels

In diesem Abschnitt sollen die in Kapitel 3.4 erwähnten, Transportereignisse 2 und 3 außerhalb des Wirbels näher untersucht werden. Dargestellt sind daher in den folgenden Abbildungen nur Daten die außerhalb des Polarwirbels und der Transportbarriere gemessen wurden (Filterkriterium „ Δ equivalent latitude $\leq -5^\circ$ “). Die folgende Abbildung 4.20 zeigt einen Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des Vortexindex, in der die Lage dieser beiden Transportereignisse gekennzeichnet ist. Es wurden Daten mit einem Vortex-

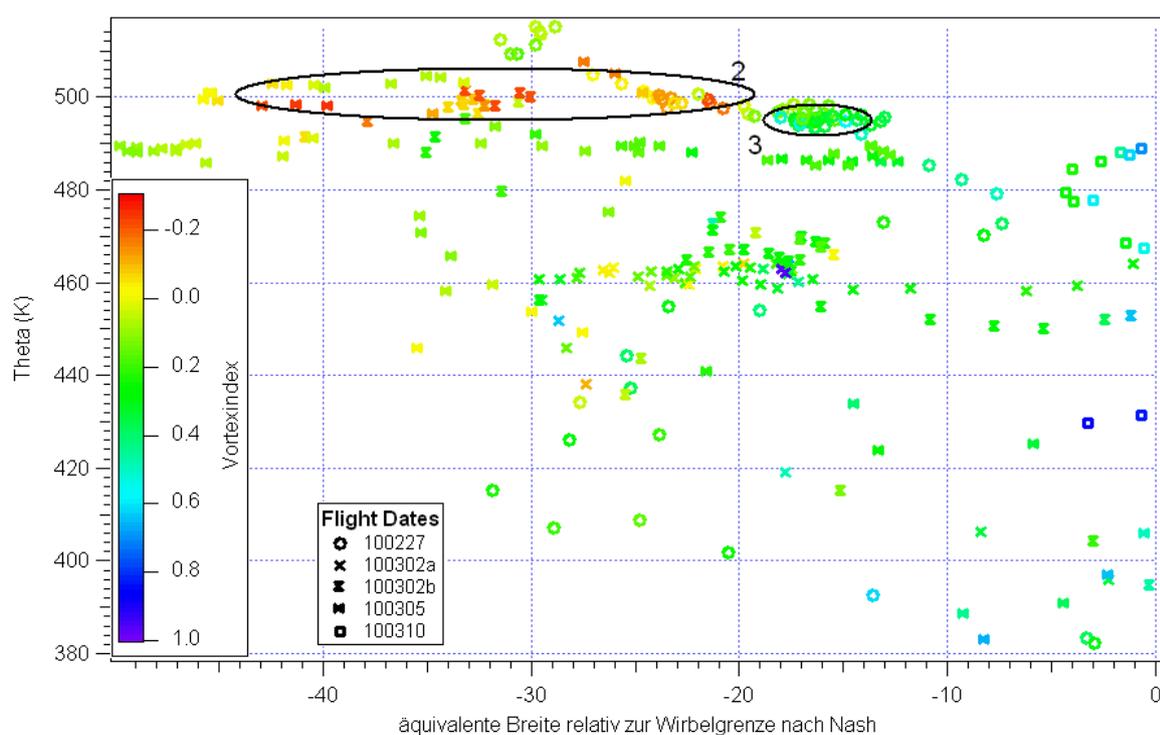


Abbildung 4.20: Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des Vortexindex zur Identifikation der subtropischen Luftmassen (Transportereignis 2) und der Wirbelextrusion (Transportereignis 3). Die Farbskala zur Darstellung des Vortexindex berücksichtigt hier negative Werte, die die subtropischen Luftmassen repräsentieren.

index zwischen $-0,2$ und $0,2$, der den Ursprung der vermessenen Luft auf Grund der Mischungsverhältnisse in mittleren und niedrigen Breiten ansiedelt, in hohen Breiten (60°N) gemessen. Innerhalb des Wirbels wurden keine Luftmassen mit einem so niedrigen Vortexindex beobachtet, so dass ein Transport von Luft aus niedrigen Breiten in den Wirbel hinein in dieser Analyse ausgeschlossen werden kann.

Während des Fluges am 27.2. wurden Luftmassen mit einem Vortexindex von 0,4-0,6, außerhalb des Wirbels ca. 15° von der Wirbelgrenze entfernt beobachtet. Diese Werte zeigen, dass dort eine Luftmasse vermessen wurde, die etwa zur Hälfte Polarwirbelcharakter aufweist.

Im CLaMS-Modell kann ein Transport von Luft aus niedrigen Breiten in die Polarregion durch den passiven Tracer Pvortex alleine nicht diagnostiziert werden. Abbildung 4.21 zeigt, dass die meisten Datenpunkte, die in dieser Phase außerhalb des Wirbels gemessen wurden, zumindest einen geringen Anteil Pvortex haben. Das bedeutet, dass gemäß dem Modell die vermessenen Luftpakete einen Anteil Wirbelluft enthielten. Das bedeutet, dass nach dem Modell seit dem 15.1.2010 in größerem Umfang Luft aus dem Wirbel heraus gelangt ist und sich mit umgebender Luft vermischt hat. Auch die Daten aus Abbildung 4.20 mit einem sehr niedrigen Vortexindex (Transportereignis 2) repräsentieren teilweise Luft, die nach dem Modell maximal 10% Wirbelluft enthält.

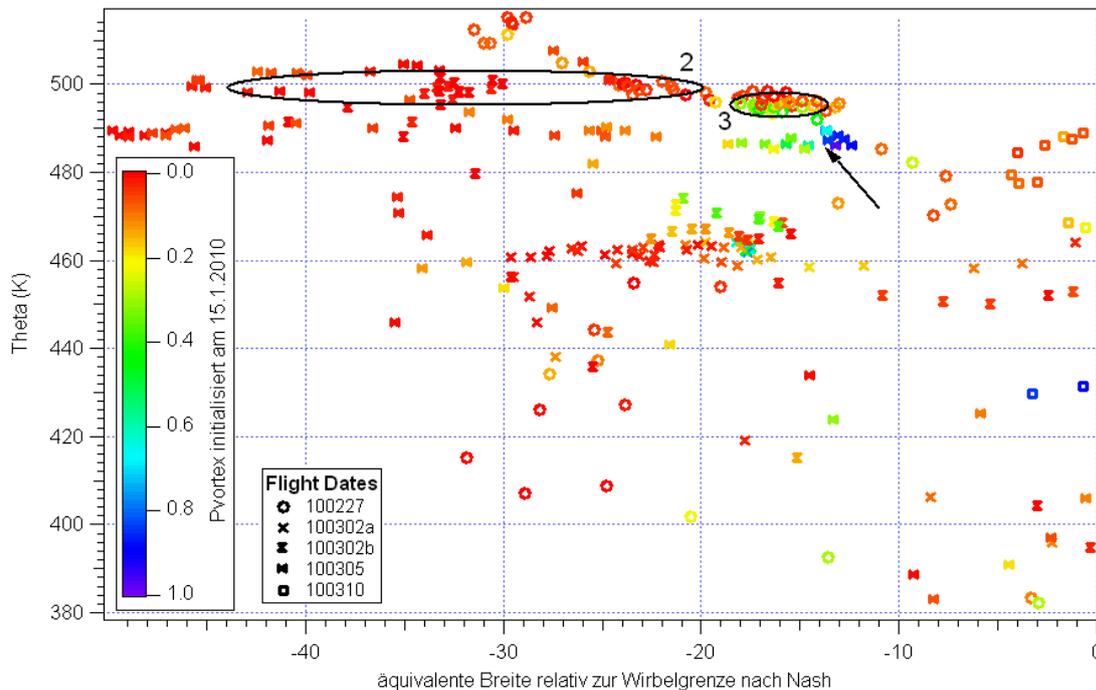


Abbildung 4.21: Ausschnitt aus der geografischen Verteilung des passiven Tracers Pvortex zur Identifikation von Transport und Mischung außerhalb des Wirbels.

Betrachtet man die Verteilung der passiven Tracer P0 in Abbildung 4.22 und P1 in Abbildung 4.23, die Luft aus niedrigen bzw. mittleren Breiten repräsentieren, sieht man, dass die Luftpakete, die in Abbildung 4.20 durch einen niedrigen Vortexindex gekennzeichnet sind, einen Anteil von 20% - 80% tropischer Luft und einen Anteil von 20% - 60% Luft aus mittleren Breiten haben. Weiter enthalten diese Luftpakete bis zu 20% Luft aus hohen Breiten (siehe Abbildung 4.24). In der vermessenen Luftmasse ist also Luft aus niedrigen

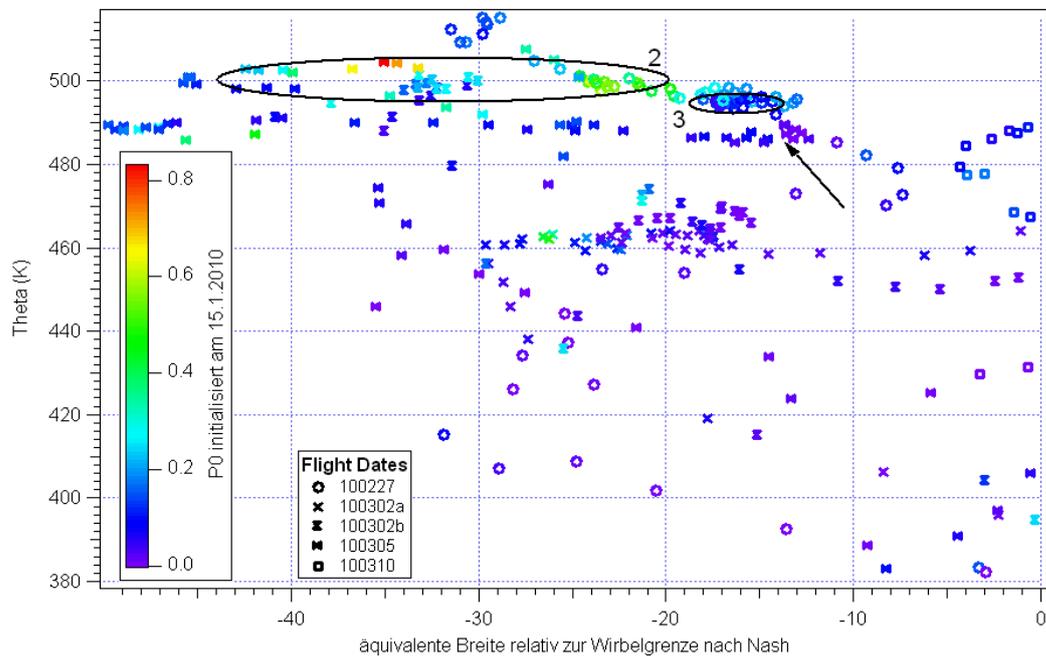


Abbildung 4.22: Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers P0 (niedrige Breiten) zur Bestimmung des tropischen Anteils an den Luftmassen in den Transportereignissen 2 und 3.

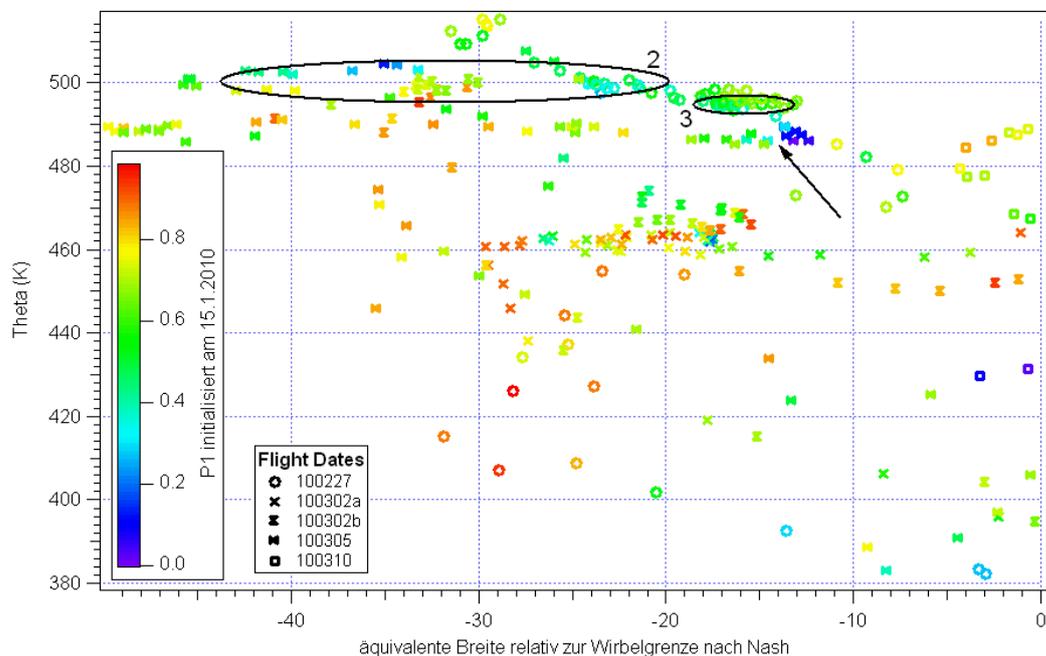


Abbildung 4.23: Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers P1 (mittlere Breiten) zur Bestimmung des Anteils von Luft aus mittleren Breiten an den Luftmassen in den Transportereignissen 2 und 3.

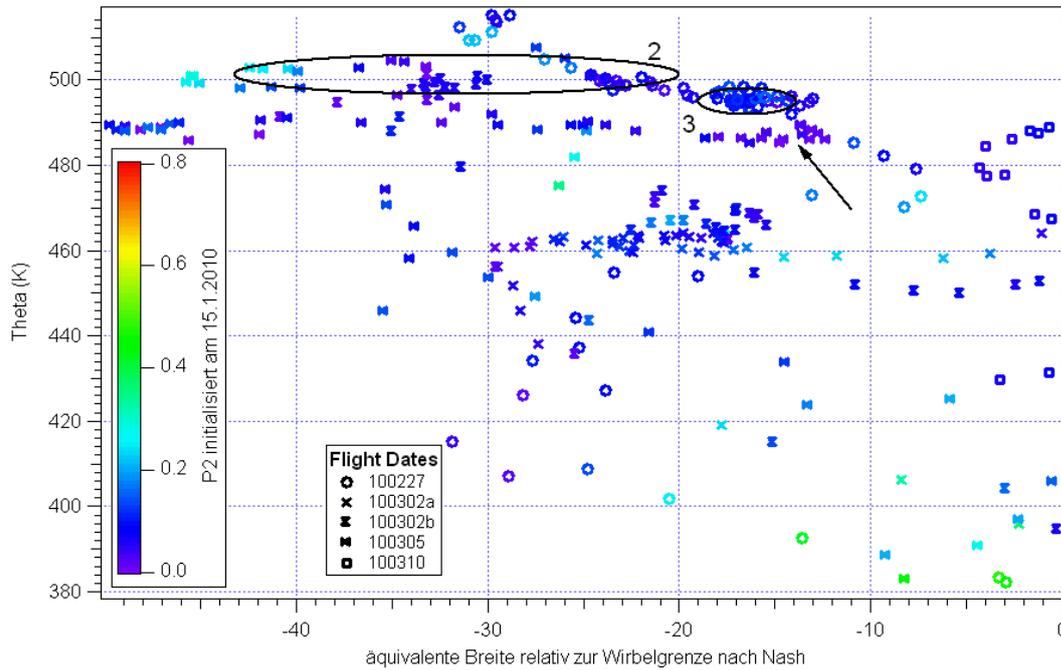


Abbildung 4.24: Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten/äußerer Wirbelrand) zur Bestimmung des Anteils von Luft aus hohen Breiten an den Luftmassen in den Transportereignissen 2 und 3.

Breiten mit Luft aus mittleren und hohen Breiten sowie dem Polarwirbel vermischt worden. Diese Luftmassen wurden während der Flüge 9, 11 und 12 in Höhen von 500 K und darüber vermessen.

Das am 27.2. beobachtete Transportereignis 3, weist im Modell ebenfalls zu 30-50% eine Polarwirbelsignatur auf. Durch die anderen passiven Tracer zeigt sich, dass die Luftmasse weniger als 10% tropische Luft (P0) und Luft aus hohen Breiten (P2) enthält und 40-50% Luft aus mittleren Breiten (P1).

Die Signatur, die am 5.3. nur im Modell zu finden ist und für P-vortex Werte zwischen 0,3 und 1 aufweist (in Abbildungen für CLaMS mit einem Pfeil gekennzeichnet), enthält, nach den passiven Tracern zu schließen, weniger als 10% tropische Luft, zwischen 50% und 80% Luft aus mittleren Breiten und weniger als 5% Luft aus hohen Breiten. Abbildung 4.25 zeigt erneut einen Ausschnitt aus der F11-N₂O-Korrelation für die zweite Phase von RECONCILE, dieses Mal um die Daten außerhalb des Polarwirbels zu analysieren.

Abbildung 4.25 zeigt, dass außerhalb des Wirbels zwei Signaturen beobachtet werden konnten, die deutlich von den kompakten Korrelationen im Polarwirbel und der „surf zone“ abweichen. Daten mit einem niedrigen Vortexindex (≤ 0), gemessen während der Flüge 9 und 12 bilden eine, in Kapitel 3.5 schon erwähnte, kompakte Korrelation (in Abbildung 4.25 durch eine gepunktete Linie dargestellt), die von der Korrelation in der „surf zone“ ausgeht und in Richtung der tropischen Korrelation verläuft (vgl. Abbildung 3.19). Die Daten, die diese Korrelation bilden, lassen sich den Luftmassen aus der Transportanalyse

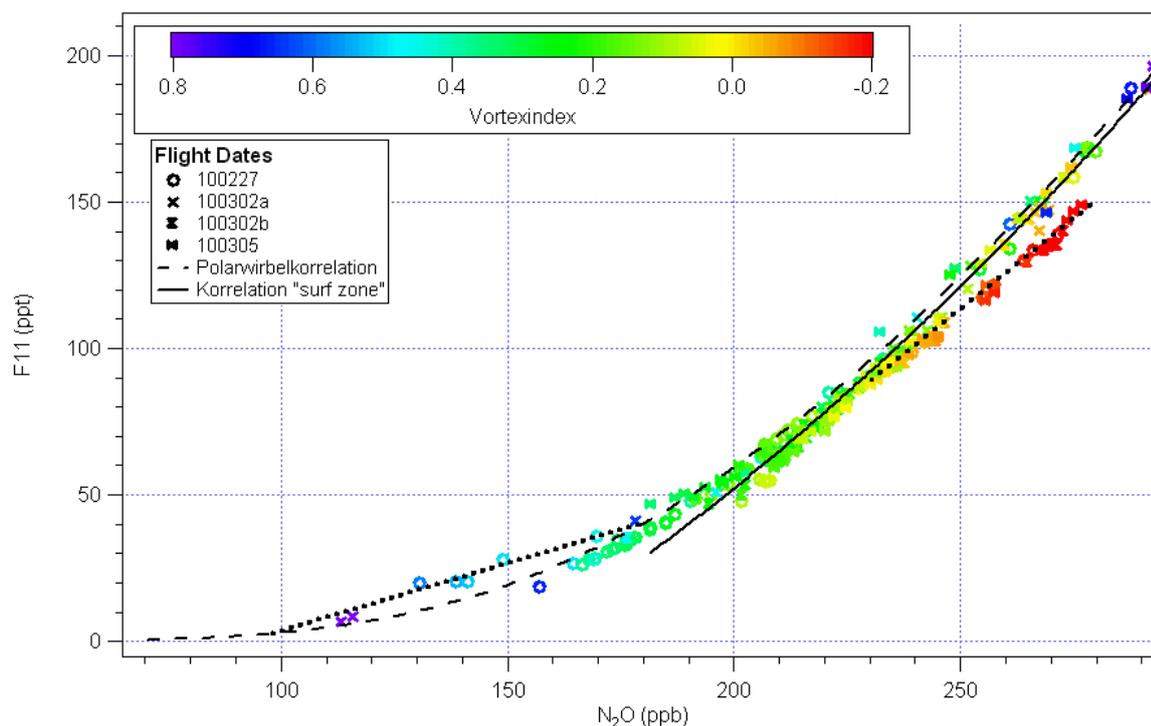


Abbildung 4.25: Ausschnitt aus der F11-N₂O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels (Filterkriterium: „ Δ equivalent latitude“ $\leq -5^\circ$) für die Flüge 9 - 13. Die gestrichelte schwarze Linie repräsentiert den Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation, die durchgezogene Linie den Fit der Korrelation in der „surf zone“. Durch die gepunkteten Linien werden die beiden Mischungslinien zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der „surf zone“-Korrelation bzw. der „surf zone“-Korrelation und der tropischen Korrelation dargestellt.

zuordnen, die aus niedrigen und mittleren Breiten in die Polarregion transportiert wurden (Transportereignis 2). Die Messung dieser Daten erfolgte hauptsächlich während Flug 9 am 27.2. und Flug 12 am 5.3.. Mit Hilfe der passiven Tracer konnte gezeigt werden, dass es sich um vermischte Luftmassen handeln muss, die dort vermessen wurden. Das bedeutet, die kompakte Linie, die sich dort ausgebildet hat, stellt also Mischungslinien zwischen der tropischen Korrelation und der Korrelation in der „surf zone“ dar.

Abbildung 4.25 zeigt weiter, dass einige Datenpunkte mit einem Vortexindex von 0,5 eine weitere am 27.2. vermessene Mischungssignatur oberhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation bilden. Diese Mischungssignatur beschreibt also eine Vermischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus der „surf zone“. Die Daten dieser Mischungssignatur lassen sich Transportereignis 3 zuordnen. Das bedeutet, dass die Wirbelluft in dieser Extrusion sich mit der umgebenden Luft aus der „surf zone“ vermischt hat. Diese Analyse bestätigt, was durch die passiven Tracer im Modell schon angedeutet wurde, nämlich, dass die Luftmasse überwiegend aus einer Mischung von Wirbelluft und Luft aus mittleren Breiten besteht.

Abbildung 4.26 zeigt die Korrelation koloriert nach der potenziellen Temperatur Θ um zu prüfen, ob die beobachteten Signaturen tatsächlich bei der selben potenziellen Temperatur gemessen wurden. Aus Abbildung 4.26 wird deutlich, dass die Mischungslinie zwischen

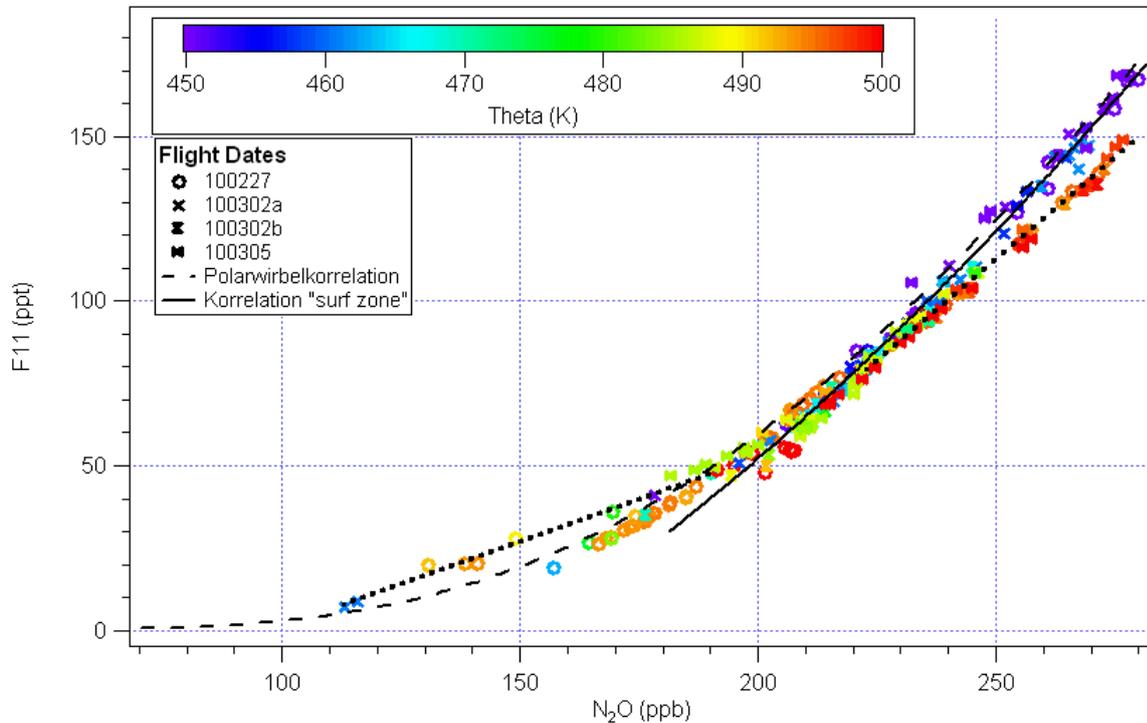


Abbildung 4.26: F11-N₂O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels für die Flüge 9 - 13 koloriert nach der potenziellen Temperatur Θ (Filterkriterium: „ Δ equivalent latitude“ $\leq -5^\circ$). Die durchgezogene Linie repräsentiert die Korrelation in der „surf zone“; die gestrichelte Linie repräsentiert die charakteristische Polarwirbelkorrelation. Die gepunkteten Linien stellen die beiden beobachteten Mischungslinien dar.

der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“ auf einer potenziellen Temperatur von 490 K beobachtet wurde. Die Daten dieser Mischungslinie lassen sich damit und über die geographische Position der Messungen eindeutig der Extrusion aus dem Wirbel (Transportereignis 3) zuordnen. Die Wirbelluft, die aus dem Wirbel herausgelangt ist, hat sich also beim Transport mit der umgebenden Luft aus der „surf zone“ vermischt.

Der überwiegende Teil der Daten der zweiten Mischungslinie, wurde, wie die Abbildung 4.26 zeigt, in einer Höhe von 500 K gemessen. Diese Daten lassen sich den subtropischen Signaturen aus der Transportanalyse (Transportereignis 2) zuordnen.

Wie in 1.2.2 dargelegt liegen die Endpunkte einer Mischungslinie auf den jeweiligen Ausgangskorrelationen. Für die weitere Analyse der Mischungslinie unterhalb der beobachteten Korrelation wird daher eine Referenzkorrelation aus niedrigen Breiten (Tropen) benötigt.

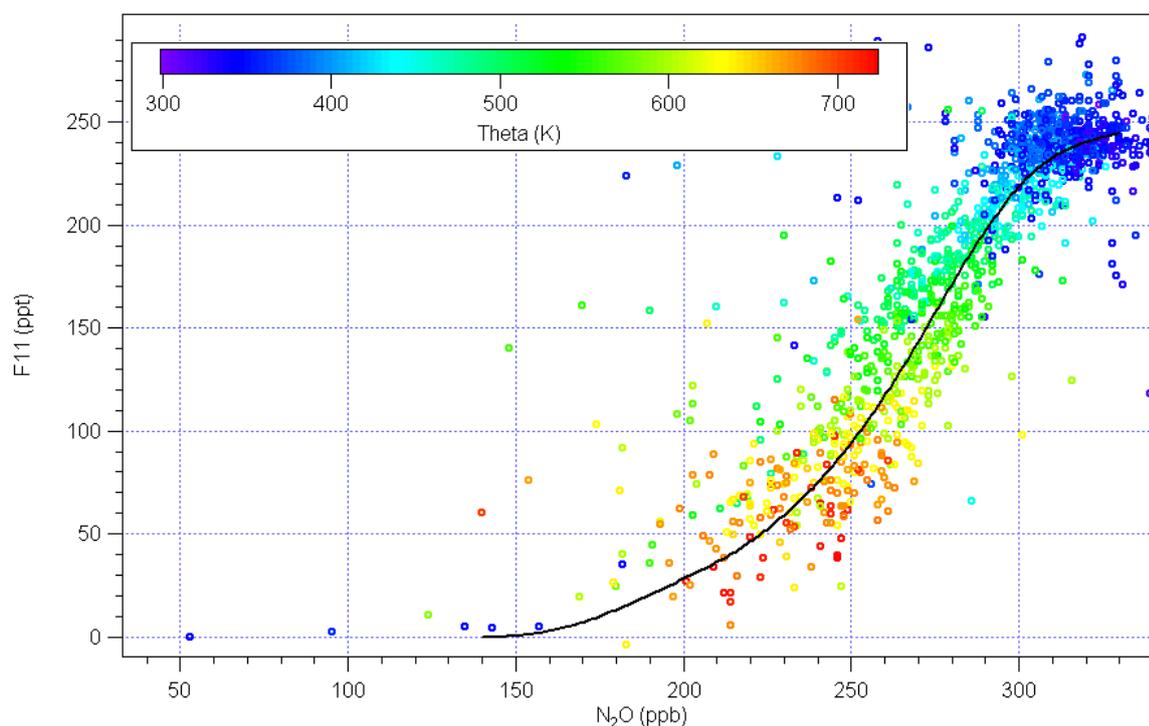


Abbildung 4.27: F11-N₂O Korrelation zwischen 20°S und 20°N äquivalenter Breite aus ACE-FTS Daten von Januar-März; in schwarz der Fit der tropischen Daten.

Für die Referenzkorrelation aus niedrigen Breiten werden die Daten des Satellitenexperimentes ACE-FTS herangezogen. Abbildung 4.27 zeigt die F11-N₂O-Korrelation aus ACE-FTS-Daten in den Tropen, zwischen 20°S und 20°N äquivalenter Breite, in den Monaten Januar-März 2010. Da die Satellitendaten eine sehr breite Streuung aufweisen, wurde in Intervallen von 10 ppb N₂O der Median gebildet und diese Mediane mit einer Polynomfunktion angefitet.

Abbildung 4.28 zeigt die F11-N₂O-Korrelation zusammen mit der tropischen Referenzkorrelation in grau und dem Fit der tropischen Daten. In Abbildung 4.28 wird erneut die Ausbildung verschiedener Korrelationen im Polarwirbel und niedrigen Breiten deutlich. In dem für diese Analyse interessanten Höhenbereich um 500 K, in dem die mutmaßliche Mischung von Luft aus niedrigen und hohen Breiten stattgefunden hat, liegen die Korrelationen noch dicht beieinander. Die Satellitendaten weisen außerdem eine große Streuung auf. Daher ist hier nicht so eindeutig, wie bei der Mischungslinie innerhalb des Wirbels (Kapitel 4.2.1) oder der oben beschriebenen Mischungslinie, zu bestimmen, ob der Endpunkt der ausgebildeten Linien tatsächlich auf der tropischen Korrelation liegt. Es deutet sich in Abbildung 4.28 aber an, dass die Linien aus Daten mit einem niedrigen Vortexindex, gemessen auf 500 K, separiert von der Korrelation in der „surf zone“, in Richtung der tropischen Korrelation verlaufen.

Für eine detailliertere Ansicht zeigt Abbildung 4.29 den Ausschnitt zwischen 180 ppb und

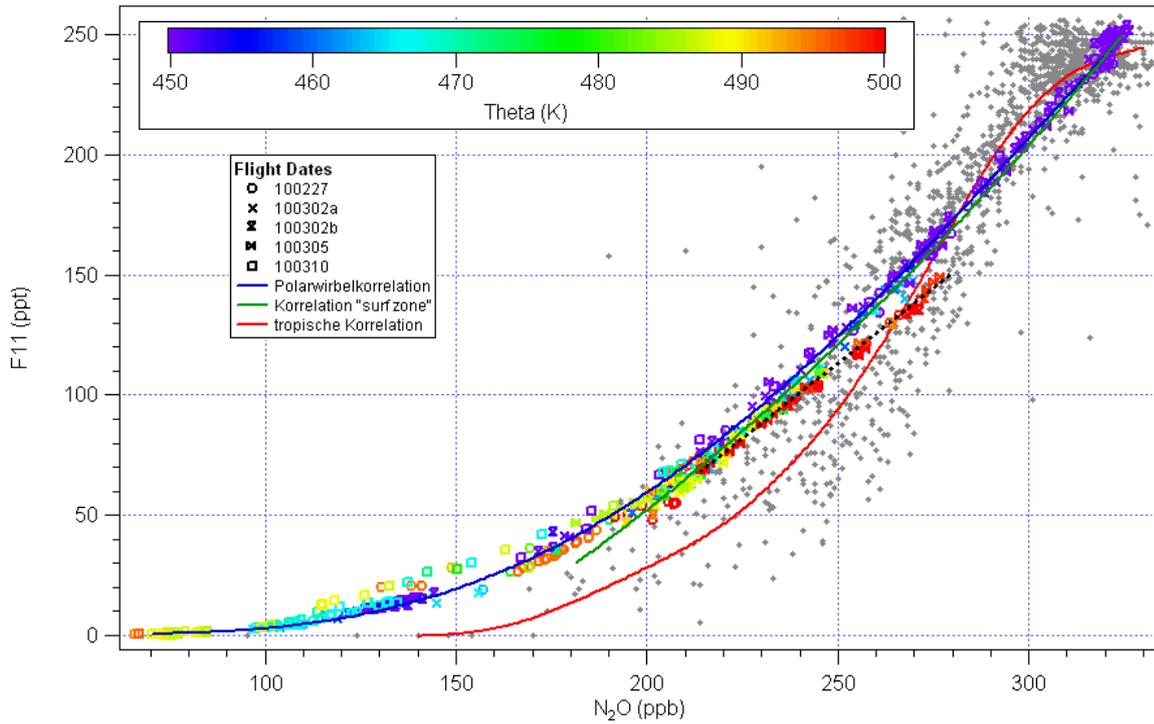


Abbildung 4.28: F11-N₂O-Korrelation aus HAGAR-Daten (Flüge 9-13) koloriert nach der potenziellen Temperatur θ zusammen mit der tropischen Referenzkorrelation aus den ACE-FTS-Daten (Jan-März 2010) in grau. Die blaue Linie stellt die charakteristische Polarwirbelkorrelation dar, die grüne die Korrelation in der „surf zone“ und die rote Linie die tropische Korrelation.

330 ppb N₂O aus der Gesamtkorrelation, die in Abbildung 4.28 dargestellt ist. Zusätzlich sind die Satellitendaten im Höhenbereich zwischen 450 K und 550 K, so wie die Korrelation aus HAGAR-Daten, koloriert nach der potenziellen Temperatur Θ eingezeichnet. Die Daten, die die beschriebene Verbindungslinien bilden, wurden auf 500 K gemessen. Der Endpunkt dieser Linien auf der tropischen Korrelation liegt im Bereich von ACE-FTS-Daten mit einer potenziellen Temperatur von 540 K.

Auffällig ist in den Abbildungen 4.28 und 4.29, dass die mittlere tropische Korrelation im Bereich zwischen 320 ppb und 220 ppb N₂O entlang der Korrelation in der „surf zone“ bzw. oberhalb der Korrelation in der „surf zone“ verläuft. Nach der Theorie [z.B. Plumb, 2007] sollte sie deutlich unterhalb dieser Korrelation verlaufen. In dem Fit, der die mittlere tropische Korrelation beschreibt, wurden die Unsicherheiten der N₂O und F11 Messungen durch ACE-FTS nicht berücksichtigt. Die Höhenunsicherheit der ACE-FTS Messungen beträgt 0,25 km [Minschwaner et al., 2013]. Die Unsicherheit der F11-Messungen beträgt 10% (Höhenbereich: 5-22 km) [Mahieu et al., 2008]. Die Unsicherheit der N₂O-Messungen im Höhenbereich 6-30 km 15% [Strong et al., 2008]. Im Rahmen dieser Unsicherheiten kann die mittlere tropische Korrelation auch deutlich unterhalb der Korrelation in der „surf zone“ verlaufen. Der Endpunkt der Mischungslinie auf dieser tropischen Referenzkorrelation liegt

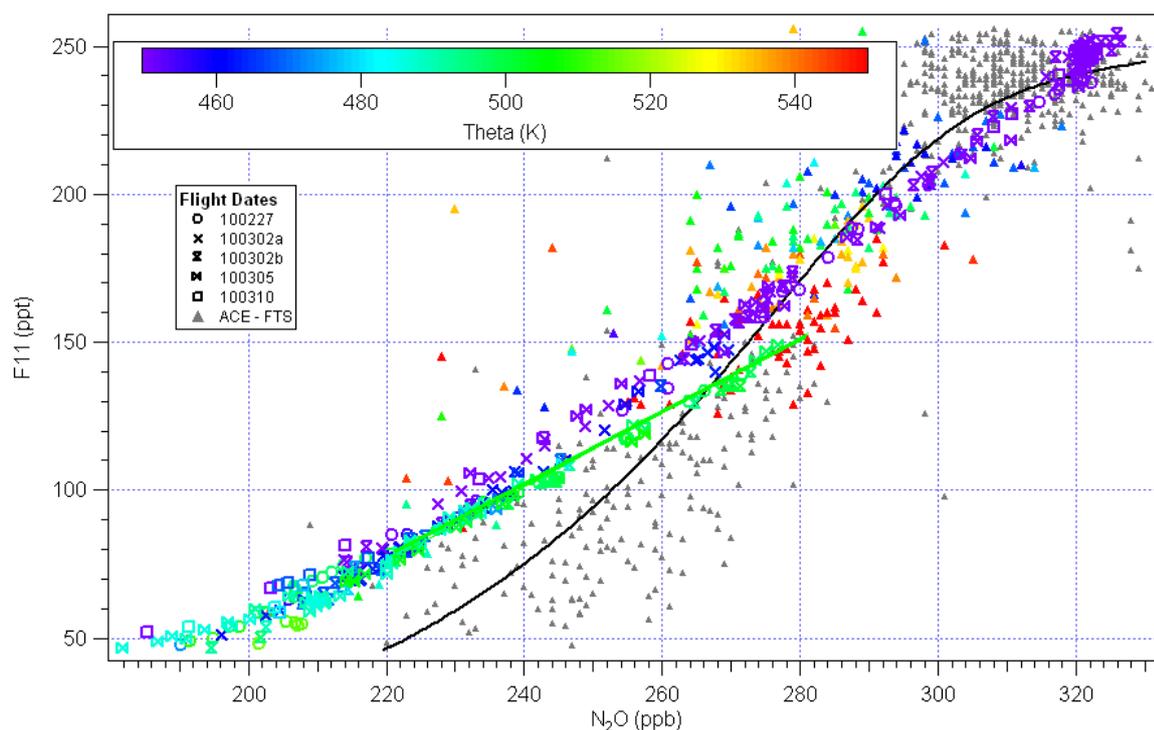


Abbildung 4.29: Ausschnitt aus der F11-N₂O-Korrelation für die Flüge 9 - 13 und der tropischen Korrelation aus ACE-FTS Daten (gesamte Korrelation siehe Abbildung 4.28) mit eingezeichneter Mischungslinie auf 500 K zwischen hohen Breiten und den Tropen. Zusätzlich sind die Satellitendaten im Höhenbereich bis 550 K ebenfalls nach der potenziellen Temperatur θ koloriert.

dann auch bei einer potenziellen Temperatur von etwa 500 K. Unter Berücksichtigung der Unsicherheiten kann also geschlussfolgert werden, dass während der Flüge 9 (27.2.) und 12 (5.3.) irreversible Vermischung zwischen Luft aus den Tropen mit Luft aus der „surf zone“ beobachtet wurde.

Um zu zeigen wie diese Signaturen im CLaMS Modell simuliert werden, ist in der folgenden Abbildung 4.30 die simulierte F11-N₂O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels dargestellt. In der oberen Abbildung ist die Korrelation koloriert nach Pvortex, in der unteren Abbildung nach P0. In der Modellkorrelation scheint die Mischungslinie zwischen der Korrelation in der „surf zone“ und der tropischen Korrelation anders zu verlaufen als in der beobachteten (vgl. Kapitel 3.5). Die entsprechenden Daten ($P_0 \geq 0,2$) liegen in der Modellkorrelation sehr viel dichter bei der charakteristischen Polarwirbelkorrelation (teilweise sogar oberhalb) als es in der gemessenen Korrelation beobachtet wird. Die passiven Tracer zeigen jedoch nur einen Anteil von maximal 10% Wirbelluft an den dort vermessenen Luftmassen. Das bedeutet, dass im Modell der geringe Anteil von Wirbelluft dafür sorgt, dass die Mischungslinie zu höheren F11-Mischungsverhältnissen hin verschoben wird und

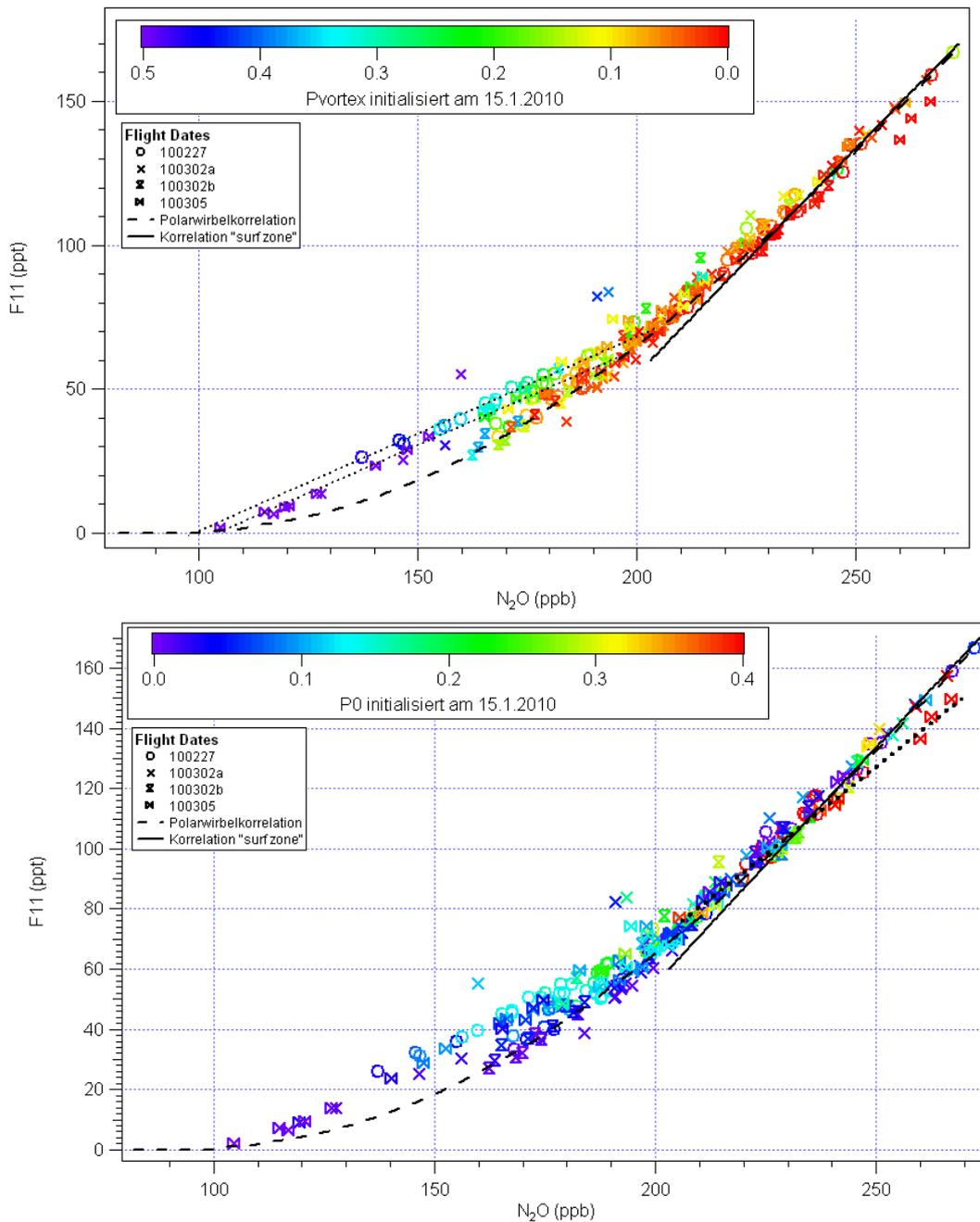


Abbildung 4.30: Ausschnitt aus der simulierten F11-N₂O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels („ Δ equivalent latitude „ $\leq -5^\circ$) reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die Korrelation in der „surf zone“, die gestrichelte die charakteristische Polarwirbelkorrelation. Oben: Die Farben kennzeichnen Pvortex; die gepunkteten Linien zeigen die Mischungslinien zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“. Unten: Die Farben kennzeichnen P0; die gepunktete Linie zeigt die Mischungslinie zwischen den Korrelationen in der „surf zone“ und den Tropen.

somit oberhalb der charakteristischen Polarwirbelkorrelation verläuft. In den Messungen wird ein solcher Einfluss von Polarwirbelluft nicht beobachtet. Für diesen Unterschied gibt es zwei Erklärungsmöglichkeiten: Wie Abbildung 4.31 zeigt war die „surf zone“ während dieser Zeit geprägt von filamentären Strukturen tropischen Ursprungs und Strukturen die Polarwirbelcharakteristik hatten. In dieser stark inhomogenen „surf zone“ kann es dazu gekommen sein, dass im Modell eine Struktur mit Polarwirbelcharakteristik entlang des Flugpfades lag, in den Beobachtungen jedoch nicht. Es kann aber auch sein, dass diese tropischen Strukturen und die Wirbelstrukturen im Modell bereits stärker miteinander vermischt wurden, als es in der Beobachtung der Fall war.

Die am 27.2. beobachtete Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus der „surf zone“ findet sich in den Simulationsergebnissen in vergleichbarer Weise wie in den Beobachtungsdaten wieder. Das bedeutet, dass auch im Modell die Extrusion aus dem Wirbel heraus mit Luft aus der „surf zone“ vermischt wurde.

In der simulierten Korrelation findet sich aber eine weitere Mischungssignatur. Diese, durch Daten vom 5.3. gebildete Signatur, wird in den Messungen nicht beobachtet. Diese Daten lassen sich dem oben erwähnten Transportprozess von Wirbelluft nach außen zuordnen, der ebenfalls nur im Modell zu finden ist. In den Simulationsergebnissen lag entlang des Flugpfades am 5.3. also eine zweite Extrusion aus dem Wirbel, die sich auch mit der umgebenden Luft in der „surf zone“ vermischt hat.

Zur Einordnung der Transport- und Mischungssignaturen in den dynamischen Kontext des Wirbels sind in Abbildung 4.31 die N_2O -Felder entlang der Flugrouten am 27.2.2010 und 5.3.2010 bei einer potenziellen Temperatur von 500 K dargestellt. Die Abbildungen (a) und (b) zeigen, dass auf beiden Flugrouten im Modell Filamente mit, im Vergleich zur Umgebung, stark erhöhten N_2O -Mischungsverhältnissen durchflogen wurden. Die Abbildungen (c) und (d) zeigen einen größeren Ausschnitt aus dem N_2O -Feld der jeweiligen Tage, wodurch die geographische Lage dieser Filamente und des Polarwirbels deutlich wird. In Abbildung 4.32, in der die Entwicklung des Polarwirbels anhand des N_2O -Feldes in CLaMS bei einer potenziellen Temperatur von 500 K dargestellt ist, lassen sich diese Filamente bis zu ihrer Entstehung in den Tropen zurückverfolgen. Die Entwicklung ist im Zeitraum zwischen dem 16.2. und 5.3.2010 dargestellt. Anhand erhöhter N_2O -Mischungsverhältnisse, die in Abbildung 4.32 von den Tropen ausgehend im zeitlichen Verlauf zunehmend nördlicher beobachtet werden können, lässt sich sagen, dass ein „Streamer“ aus den Tropen heraus nach Norden transportiert wurde, der sich in zwei filamentäre Strukturen aufteilte. Der „Streamer löste sich am 16./17. 2. aus den Tropen heraus und wurde in der folgenden Zeit dann nach Norden transportiert. Zu diesem Zeitpunkt war der Wirbel in zwei Teile gesplittet, ein Teil lag über Kanada der andere Teil über Sibirien. Durch die Rotation der beiden Wirbelfragmente wurde ein Teil dieser tropischen Luftmasse zwischen den beiden Wirbelteilen hindurch nach Europa transportiert (in Abbildung 4.32 mit 1 gekennzeichnet). Während des Transports vermischte sich dieses Filament tropischer Luft teilweise mit umgebender Luft. Die Überreste dieses, teilweise vermischten Filamentes lagen im Messbereich des Fluges 9 am 27.2.2010.

Der andere Teil des „Streamers“ (in Abbildung 4.32 mit 2 gekennzeichnet) wurde mit der

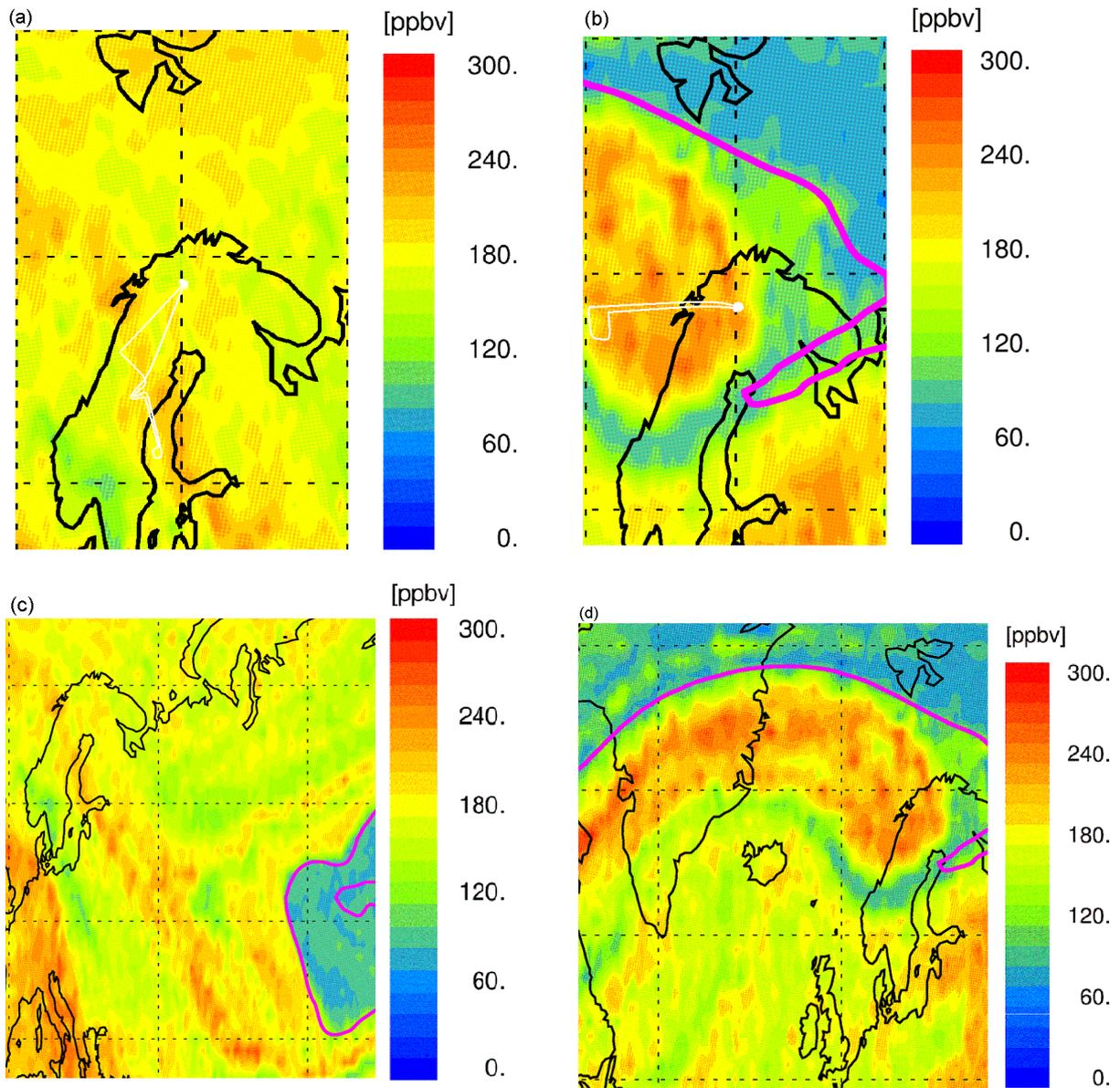


Abbildung 4.31: Ausschnitt zwischen 0°O und 40°O und 58°N und 80°N aus dem N_2O -Feld in CLaMS für die Flüge am 27.2.2010 (a) und 3.5.2010 (b) auf einer potenziellen Temperatur von 500 K. In weiß ist jeweils eine Projektion des Flugpfades auf diese Höhe eingezeichnet. Die Abbildungen (c) und (d) zeigen die Filamente in größerem Zusammenhang.

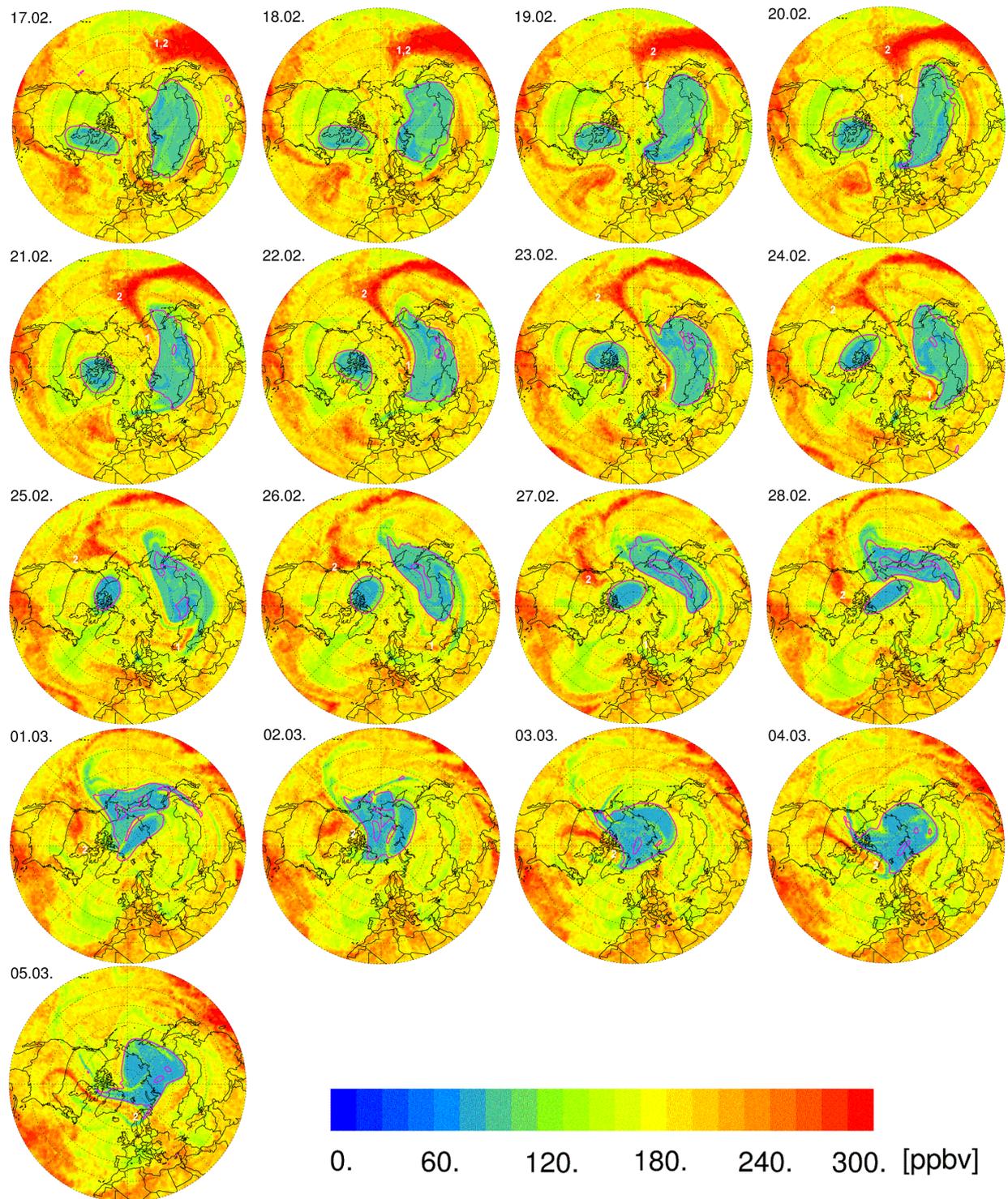


Abbildung 4.32: Entwicklung des N₂O-Feldes in CLaMS zwischen dem 16.1. und 5.3.2010 auf einer potenziellen Temperatur von 500 K.

Rotation des Wirbelfragments über Kanada in Richtung Nordamerika transportiert. Durch die Rotation des rekombinierten Wirbels gelangte dieses zweite Filament Anfang März schließlich nach Europa. Am 5.3. lag dieses Filament, eingeschlossen zwischen einer Extrusion aus dem Wirbel und dem Wirbel selbst, im Messgebiet der RECONCILE-Kampagne. Der passive Tracer P0 in CLaMS zeigt, dass die beobachtete Mischung zwischen Luft aus mittleren Breiten und der subtropischen Luft in den Randbereichen des Filamentes etwa 50% betrug.

Die am 27.2. beobachtete Extrusion aus dem Wirbel heraus wurde am Umkehrpunkt des Flugpfades beobachtet. Abbildung 4.31(a) zeigt etwas südlich des Umkehrpunktes eine Region mit geringeren N_2O -Mischungsverhältnissen, als in der Umgebung, die eine Luftmassen mit Polarwirbelcharakteristik andeuten. Diese Darstellungen zeigen die Situation wie sie für 12 Uhr (UTC) simuliert wurde. Der Umkehrpunkt wurde gegen 13:30 Uhr (UTC) erreicht. Zu diesem Zeitpunkt kann das Filament weiter nördlich gelegen haben, so dass man schlussfolgern kann, dass die am 27.2., sowohl in Messung als auch Modell, beobachtete Vermischung im Randbereich dieses Filamentes stattgefunden hat. Aus Abbildung 4.32 lässt sich erkennen, dass es sich um ein Filament handelt, das sich am 21.2. vom Wirbelfragment über Sibirien gelöst hat.

Die Abbildung 4.31(b) zeigt, dass in der Nähe des Umkehrpunktes von Flug 12 (5.3.) ebenfalls ein Wirbelfilament zu finden ist. Dieses Filament lag nach dieser Darstellung nicht entlang des Flugpfades. Der Flug am 5.3. fand zwischen 15 Uhr und 19 Uhr (UTC) statt, die Abbildung stellt wiederum die Situation im Modell um 12 Uhr dar. Im Modell hat sich dieses Wirbelfilament vermutlich in der Zwischenzeit so verlagert, dass es entlang des Flugpfades lag. In den Messungen lag es aber weiterhin nicht entlang des Flugpfades.

4.3 Fazit

Mit Hilfe des Vortexindex und den in den Kapiteln 1 und 3 vorgestellten Analysemethoden konnten während RECONCILE verschiedene Transport- und Mischungsprozesse beobachtet und detaillierter untersucht werden. Durch die vergleichenden Analysen mit Hilfe des CLaMS Vortexindex und der passiven Tracer konnte überprüft werden, wie die beobachteten Transport- und Mischungsprozesse durch das Modell simuliert werden. Zudem konnten die Beobachtungen mit Hilfe der Simulationen in den dynamischen Kontext eingeordnet werden. Die Analysen lieferten die folgenden Ergebnisse:

- Durch den Vortexindex konnten während der ersten Phase der Kampagne (17.1.-2.2.) drei Transportereignisse identifiziert werden, von denen zwei durch den passiven Tracer Pvortex, initialisiert am 1.12.2009, und das dritte durch den passiven Tracer Pvortex, initialisiert am 15.1.2010, ebenfalls identifiziert werden konnten.
- Die Transporte, die auch durch den von CLaMS berechneten Tracer Pvortex, initialisiert am 1.12.2009, am 24.1. und 28.1. auf 445 K bzw. 425 K identifiziert werden konnten (Ereignisse 2 und 3), sind auf Intrusionen im Zuge des Wirbelsplits und

der Rekombination im Dezember zurückzuführen, die sich zum Zeitpunkt der Messungen noch nicht homogen mit ihrer Umgebung im Wirbel vermischt haben. Die entsprechenden Datenpunkte zeigen in der F11-N₂O-Korrelation Luftmassen dementsprechend auch eine Signatur, die eher der „surf zone“ Korrelation als der charakteristischen Polarwirbelkorrelation entspricht. Laut den passiven Tracern in CLaMS handelt es sich um Luftmassen aus mittleren und hohen Breiten, die sich zu einem geringen Teil bereits mit Wirbelluft vermischt haben.

- Das dritte Transportereignis auf 430 K, das durch Pvortex, initialisiert am 15.1.2010, ebenfalls identifiziert wurde (Ereignis 1), ist auf ein Filament zurückzuführen, welches sich am 16.1. vom inneren Wirbelrand löste und in den Wirbel hinein gelangte. Auch dieses Transportereignis ist, laut den passiven Tracern von Mischung begleitet.
- Am 10. März ist eine Transportsignatur innerhalb des Wirbels auf 470 K, sowohl durch den Vortexindex als auch Pvortex, initialisiert am 15.1.2010, zu identifizieren. Der beobachtete Transportprozess lässt sich einem, in den Wirbel eingeschlossenen, Filament zuordnen, welches während Flug 13 in Ost-West-Richtung durchquert wurde. Dieses Filament wurde während der Rekombination des Wirbels Anfang März, also etwa 10 Tage zuvor, zwischen den beiden Wirbelfragmenten eingeschlossen. Eine oberhalb der F11-N₂O-Korrelation beobachtete Mischungssignatur lässt sich den Messungen in diesem Filament zuordnen. Die Analyse zeigt, dass die Mischungssignatur am westlichen Rand des Filamentes beobachtet wurde. Die Luft im Zentrum des Filamentes hingegen scheint unvermischt erhalten zu sein.
- In den Simulationen erscheint das Filament geographisch an der selben Position wie in den Beobachtungen, es ist jedoch longitudinal stärker ausgedehnt. Die passiven Tracer zeigen, dass in der entsprechenden Luftmasse Luft aus dem Polarwirbel mit Luft aus hohen und mittleren Breiten vermischt wurde. Auch in der simulierten F11-N₂O-Korrelation kann eine Mischungssignatur diesem Filament zugeordnet werden. Im Modell liegen jedoch Daten im Zentrum des Filamentes auf dieser Mischungssignatur. Auch die passiven Tracer zeigen Vermischung mit Polarwirbelluft. Die Vermischung des Filamentes mit Polarwirbelluft ist in den Simulationen also bereits weiter fortgeschritten als in den Beobachtungen. Diese fortgeschrittenere Vermischung des Filamentes in den Simulationen kann durch die Auflösung der Simulationen zustande kommen oder durch eine zu starke Mischung im Modell.
- Weitere, während Flug 13 beobachtete Mischungssignaturen lassen sich geographisch einer ca. 6° breiten Region um die Wirbelgrenze herum zuordnen, die in Kapitel 3 als Transportbarriere identifiziert wurde. Diesen Mischungssignaturen kann jedoch kein in CLaMS identifizierbarer Transportprozess zugeordnet werden. Es ist davon auszugehen, dass hier kleinskalige Mischung über die Wirbelgrenze hinweg beobachtet wurde. Solche Signaturen lassen sich auch während anderer Flüge über die Wirbelgrenze hinweg nachweisen. Das heißt, dass diese kleinskalige Mischung zwischen Luft

aus der „surf zone“ und dem Polarwirbel im Bereich der Transportbarriere vermutlich ein kontinuierlich ablaufender Prozess ist.

- Aus dem Vergleich der beobachteten mit den simulierten Mischungssignaturen an der Wirbelgrenze für Flug 13 lässt sich schließen, dass diese kleinskalige Mischung über die Transportbarriere hinweg durch das CLaMS Modell gut simuliert werden kann.
- Als ein zweiter größerer Transportprozess konnte am 27.2. und 5.3. auf 500 K Luft mit einer subtropischen Signatur bei ca. 60°N beobachtet werden. Die Herkunft dieser Luftmassen konnte einem „Streamer“ aus den Tropen zugeordnet werden. Während des Transportes nach Norden teilte sich dieser „Streamer“ in zwei filamentäre Strukturen, die sich mit der umgebenden Luft in der „surf zone“ vermischt. Auch diesem Transportprozess konnten Mischungslinien zugeordnet werden.
- Dieser Transport subtropischer Luft in hohe Breiten ist durch die Transportanalyse der Simulationen des CLaMS Modells zu finden. Laut den passiven Tracern ist diese Luft zum Beobachtungszeitpunkt hauptsächlich eine Mischung aus tropischer Luft und Luft aus mittleren Breiten. Die Luftmassen enthält jedoch auch einen geringen Anteil (<10%) Polarwirbelluft. Diesem Transportprozess konnte in der simulierten Korrelation ebenfalls eine Mischungslinie zugeordnet werden, deren Lage sich jedoch von der beobachteten unterscheidet. Diese Unterschiede können auf eine stärkere Mischung im Modell oder auf eine unterschiedliche Lage filamentärer Strukturen in der „surf zone“ im Modell zurückgeführt werden.
- Außerhalb des Wirbels konnte am 27.2. auf 490 K zu dem noch eine Struktur mit Polarwirbelcharakteristik beobachtet werden. Diese Luft wurde am Rand eines Wirbelfilamentes gemessen, das sich von einem der Wirbelfragmente gelöst hat. Auch in diesem Fall lässt sich dem Transportereignis eine Mischungssignatur in der F11-N₂O-Korrelation zuordnen. Diese Mischungssignatur zeigt, dass sich diese Extrusion mit der sie umgebenden Luft aus der „surf zone“ vermischt.
- Diese Extrusion ist auch in den Simulationen des CLaMS Modells zu finden. Die passiven Tracer zeigen in diesem Fall, dass die Luft hauptsächlich aus dem Polarwirbel und mittleren Breiten stammt. Dies spiegelt sich ebenfalls in der beobachteten Mischungssignatur in der simulierten Korrelation wieder. Diese Extrusion wird also im Modell ähnlich wie beobachtet wiedergegeben.
- Eine weitere Transport- und Mischungssignatur die durch das Modell am 5.3. auf etwa 485 K simuliert wurde, wird durch die Messungen nicht beobachtet. Dieser Unterschied kommt entweder dadurch zustande, dass filamentäre Strukturen aus dem Polarwirbel und den Tropen in der „surf zone“ im Modell bereits stärker miteinander und der umgebenden charakteristischen „surf zone“ Luft vermischt wurden, oder aber einzelne Strukturen im Modell entlang des Flugpfades liegen, in den Beobachtungen jedoch nicht.

Kapitel 5

Ozon-Tracer-Korrelationen

Seit den ersten Studien zur Abschätzung des polaren Ozonverlustes aus einer Korrelationsanalyse von O_3 und N_2O von Proffitt et al. (1990) und (1993) wurde diese Technik in verschiedenen Studien sowohl im arktischen wie auch antarktischen Polarwirbel auf der Grundlage verschiedener Spurengasmessungen eingesetzt (z.B. Richard et al., 2001; Ross et al., 2004; Ulanovsky et al., 2004; Müller et al., 1996, 2001, 2005, 2007; Salawitch et al., 2002; Vogel et al., 2003; Robinson et al., 2005; Tilmes et al., 2003, 2004, 2006).

Im folgenden wird eine Abschätzung des Ozonverlustes im arktischen Winter 2009/10 anhand einer Korrelationsanalyse, basierend auf den in-situ Messungen von O_3 und N_2O vorgenommen. In diesem Zusammenhang wird die Bedeutung der Referenzkorrelation und der Einfluss von Transport und Mischung im Polarwirbel auf eine solche Abschätzung aus einer Korrelationsanalyse diskutiert. Die Abschätzung aus den mit dem Fast-Response Chemiluminescent Airborne Ozone Analyser (Abk.: *FOZAN*; Details siehe Ulanovsky et al., 2001) und HAGAR gemessenen Daten wird dann mit den Ergebnissen aus Simulationen des CLaMS-Modells verglichen.

5.1 Abschätzung des Ozonverlustes aus in-situ Messungen

In einem gut isolierten und homogenen Polarwirbel bleibt die Korrelationskurve zwischen zwei langlebigen Spezies kompakt erhalten. Korreliert man eine langlebige Substanz gegen eine, die chemisch nicht inert ist, wird die Änderung der Korrelationskurve in einem gut isolierten Polarwirbel durch den chemischen Abbau der einen Substanz bestimmt. Betrachtet man die Korrelation zwischen O_3 und dem langlebigen N_2O , kann man den chemisch induzierten Ozonverlust im Polarwirbel abschätzen, wenn die folgenden beiden Annahmen erfüllt sind [Müller et al., 2005]:

1. Im frühen Polarwirbel ist eine kompakte Korrelation gebildet worden.
2. Alle Änderungen der Korrelation im Wirbel über den Winter hinweg werden in erster Linie durch chemischen O_3 -Verlust hervorgerufen.

Müller et al. (2005; 2007), sowie weitere dort zitierte Arbeiten, zeigen, dass diese Annahmen im allgemeinen erfüllt sind. Das heißt, wenn eine glaubhafte frühe Referenzkorrelation vorhanden ist und dynamische Effekte auf diese weitestgehend ausgeschlossen werden können, kann der Ozonverlust als Differenz zwischen der Frühwinter-Korrelation vor Einsetzen des O_3 -Verlustes und der gemessenen O_3 - N_2O -Korrelation nach Einsetzen des O_3 -Verlustes bestimmt werden. Müller et al. (2005) weisen weiter darauf hin, dass der Einfluss von Mischung auf die Ozon-Tracerkorrelation in der Abschätzung des Ozonverlustes aus Korrelationen nicht vernachlässigbar ist.

5.1.1 Referenzkorrelationskurve

Um Informationen über den frühen Polarwirbel im November und Dezember 2009 zu erhalten werden Messungen des Satelliteninstrumentes ACE-FTS herangezogen. Abbildung 5.1 zeigt die O_3 - N_2O -Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 1.11.2009 - 1.12.2009. Die Ab-

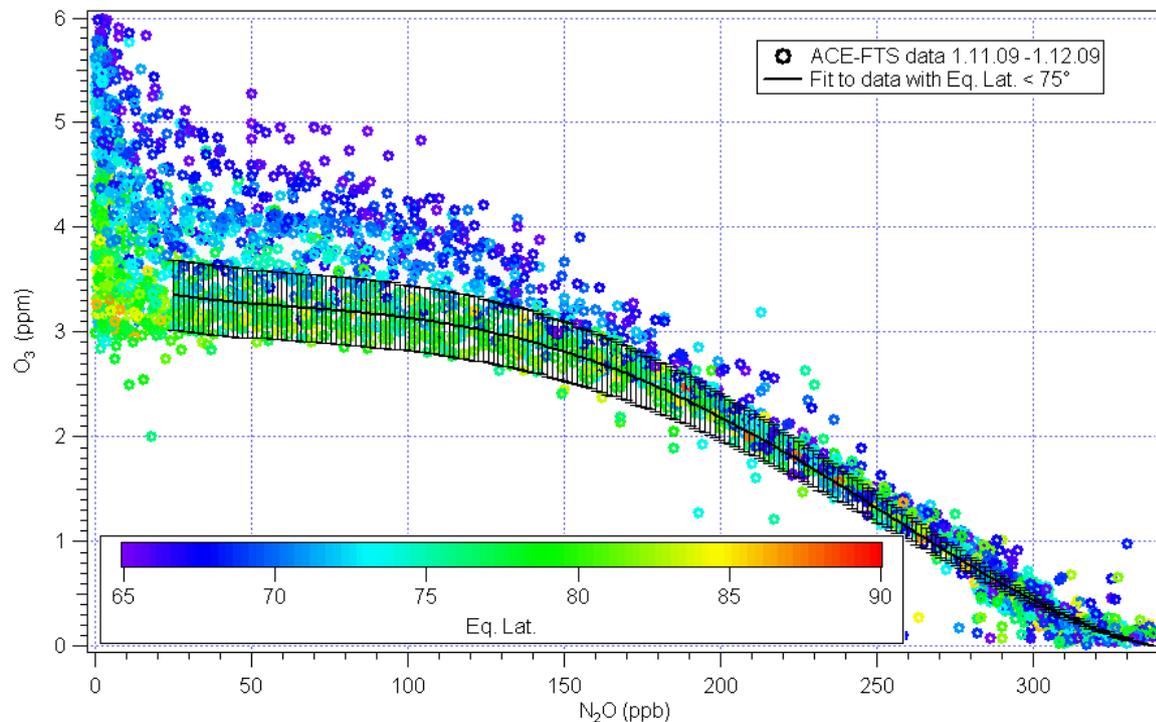


Abbildung 5.1: O_3 - N_2O Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 1.11.2009 - 1.12.2009 koloriert nach äquivalenter Breite mit angefitteter Korrelation im Polarwirbel. Als Linie eingezeichnet ein Polynomfit aller Daten $\geq 75^\circ$ äquivalenter Breite. Die Fehlerbalken am Fit kennzeichnen die Unsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS.

bildung zeigt, dass sich im November in hohen äquivalenten Breiten ($\geq 75^\circ N$) bereits eine kompakte Korrelation ausgebildet hat. Um eine glatte Korrelationskurve zu erhalten sind die Daten nördlich äquivalenter Breite $\geq 75^\circ N$ gefiltert und angefittet worden. Die Genauigkeit der Ozon-Messungen durch ACE-FTS wird im Höhenbereich zwischen 15 km und

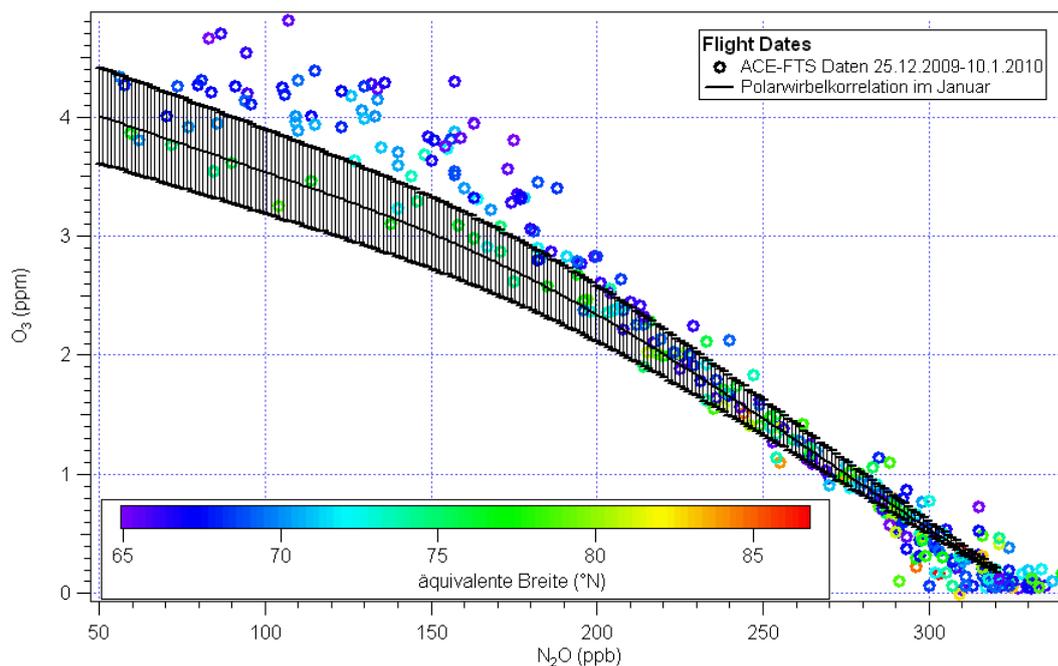


Abbildung 5.2: O_3 - N_2O Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 25.12.2009 - 10.1.2010 im Bereich zwischen $65^\circ N$ und $90^\circ N$ äquivalenter Breite koloriert nach äquivalenter Breite mit angefitteter Korrelation im Polarwirbel im Januar. Der Fit beschreibt Daten nördlich von $72^\circ N$ äquivalenter Breite. Die Fehlerbalken am Fit kennzeichnen die Unsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS.

40 km mit 10% angegeben [Walker et al., 2005]. Diese Unsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS wird in Abbildung 5.1 durch die Fehlerbalken am Fit dargestellt.

Wie im Kapitel 3.1 dargelegt, hat sich der Polarwirbel im Dezember in zwei Teile geteilt, die Ende Dezember rekombinierten. Bedingt durch diese dynamische Aktivität ist Luft aus mittleren Breiten in den Wirbel gelangt (vgl. Kapitel 3.3 und 3.4). Abbildung 5.2 zeigt, dass sich nach der Rekombination im Januar wieder eine kompakte Korrelation im Polarwirbel ausgebildet hat. ACE-FTS ist ein Okkultationsinstrument und benötigt zur Messung Sonnenlicht, daher sind Ende Dezember/Anfang Januar nur sehr wenige Datenpunkte für hohe Breiten vorhanden. Die Daten, die nördlich einer äquivalenten Breite von $72^\circ N$ (d.h. in der Regel im Polarwirbel) liegen, sind angefittet worden, um eine glatte Korrelationskurve für diesen Zeitraum zu erhalten. Die Unsicherheit der ACE-FTS-Messungen wird wieder durch Fehlerbalken am Fit dargestellt.

Abbildung 5.3 gibt einen Eindruck, wie sich die Korrelation im Polarwirbel durch Einmischung von Luft aus mittleren Breiten verändern kann. Mischung erfolgt in der Stratosphäre im allgemeinen auf isentropen Flächen. In Abbildung 5.3 sind diese isentropen Flächen durch die Pfeile angedeutet. Für die O_3 - N_2O -Korrelation im Polarwirbel bedeutet eine Einmischung aus mittleren Breiten also, dass die Korrelation zu höheren N_2O -Werten hin verschoben wird, wie auch Tilmes et al. (2003) für den Winter 1996/97 zeigen. Abbildung

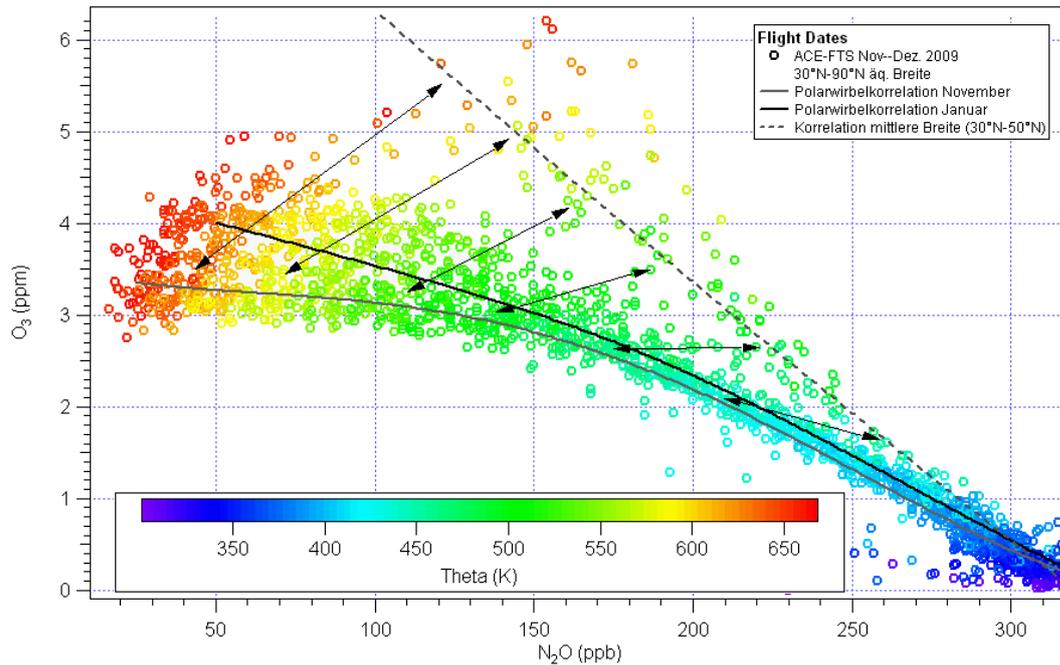


Abbildung 5.3: O₃-N₂O Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 1.1.2010 - 31.1.2010 zwischen 30°N und 90°N äquivalenter Breite koloriert nach äquivalenter Breite. Die durchgezogene graue Linie repräsentiert die Korrelationen im Polarwirbel von November und die gestrichelte graue Linie die Korrelation in mittleren Breiten. Die durchgezogene Linie repräsentiert die Korrelation im Polarwirbel im Januar. Die Pfeile kennzeichnen Isolinien der potenziellen Temperatur entlang derer zwischen mittleren Breiten und dem Polarwirbel gemischt werden kann.

5.3 zeigt die Korrelation im Polarwirbel von November als graue Linie, die Korrelation in mittleren Breiten (Fit 30°N-50°N äquivalente Breite) als gestrichelte graue Linie und die im Januar durch Einmischung verschobene Korrelation als schwarze Linie. Eine Nichtberücksichtigung von Einmischungen in den Wirbel bei der Wahl einer Referenzkorrelation führt zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes [Müller et al., 2005]. Die Korrelationskurve im Polarwirbel von November kann daher in diesem Winter keine geeignete Referenzkurve für die Abschätzung des chemischen Ozonverlustes sein. Damit die Korrelationskurve von Anfang Januar als Referenzkorrelation für die Analyse verwendet werden kann, darf der Ozonverlust zu diesem Zeitpunkt allerdings noch nicht begonnen haben.

Dörnbrack et al. (2012) (Abbildung 5.4) zeigen, dass die Temperaturen in der Stratosphäre erst Ende Dezember unter die Schwellwerttemperaturen fielen, die notwendig zur Bildung von PSC sind. Das bedeutet, erst ab Ende Dezember war eine Aktivierung der Reservoirspezies auf der Oberfläche von PSCs oder kaltem Sulfat-Aerosol möglich. Außerdem war im Dezember nicht ausreichend Sonnenlicht vorhanden um die gespeicherten Chlorspezies zu photolysieren, in aktives Chlor umzusetzen und die katalytischen Abbauzyklen

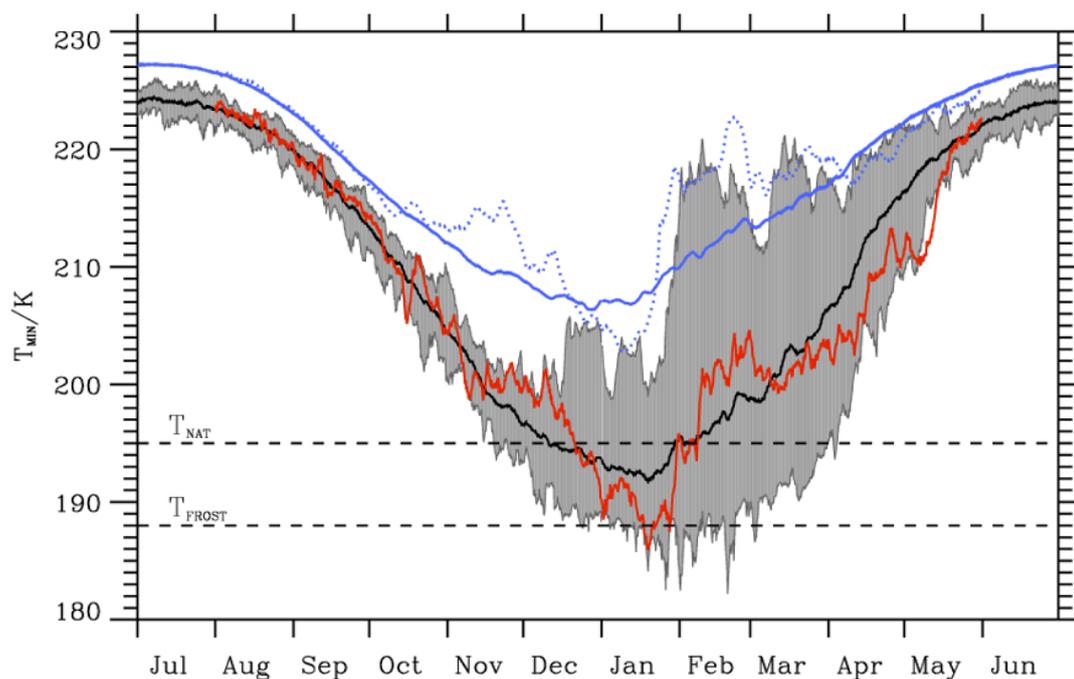


Abbildung 5.4: Minimumtemperatur T_{MIN} zwischen $65^{\circ}N$ und $90^{\circ}N$ auf der 50hPa Druckfläche. Die schwarze Linie kennzeichnet den Mittelwert der Jahre 1989 - 2009, die rote die Entwicklung der Minimumtemperatur von August 2009 - Mai 2010; T_{NAT} : Schwellwerttemperatur zur PSC-Bildung (reproduziert aus [Dörnbrack et al., 2012]).

zu starten. Das bedeutet, dass der Polarwirbel Anfang Januar chemisch unverändert war und daher in seiner chemischen Zusammensetzung die Ausgangslage für den im Januar einsetzenden Ozonverlust bildete. Der Polarwirbel vor Beginn des Ozonverlustes wird für den Winter 2009/2010 also nur von der Korrelation Ende Dezember/ Anfang Januar korrekt beschrieben; diese wird im folgenden als Referenzkorrelation zur Abschätzung des chemischen Ozonverlustes verwendet.

5.1.2 Effekt von Transport und Mischung im Analysezeitraum

Im vorherigen Abschnitt wurde bereits gezeigt welchen Einfluss Mischung im Wirbel auf die O_3 - N_2O -Korrelation hat. Transport und Mischung während des andauernden Ozonverlustes würde die Korrelation, die durch den Ozonabbau zu niedrigeren Ozonwerten verschoben wird, ebenfalls zu höheren N_2O -Werten hin verschieben. Damit würde ein Teil der entstandenen Differenz zwischen der Referenzkorrelation und der beobachteten Korrelation kompensiert und der tatsächliche Ozonverlust unterschätzt. Die Abschätzung darf also nur für Luftmassen durchgeführt werden, die unbeeinflusst von Mischungsprozessen sind.

Wie in den Kapiteln 3 und 4 beschrieben, sind im Analysezeitraum (Januar-März) verschiedentlich Luftmassen in den Wirbel transportiert worden. Der Vortexindex bietet die Möglichkeit die unbeeinflussten Luftmassen von den durch Mischung beeinflussten zu tren-

nen, wie im folgenden nochmals verdeutlicht wird. Die Abbildung 5.5 zeigt nochmals den Vergleich zwischen dem CLaMS Vortexindex und dem HAGAR Vortexindex für die zweite Phase von RECONCILE, wie er schon in Kapitel 3 gezeigt wurde. Die Farben kennzeichnen dieses Mal die Werte von Pvortex. Die Daten, für die der Vortexindex sowohl in der

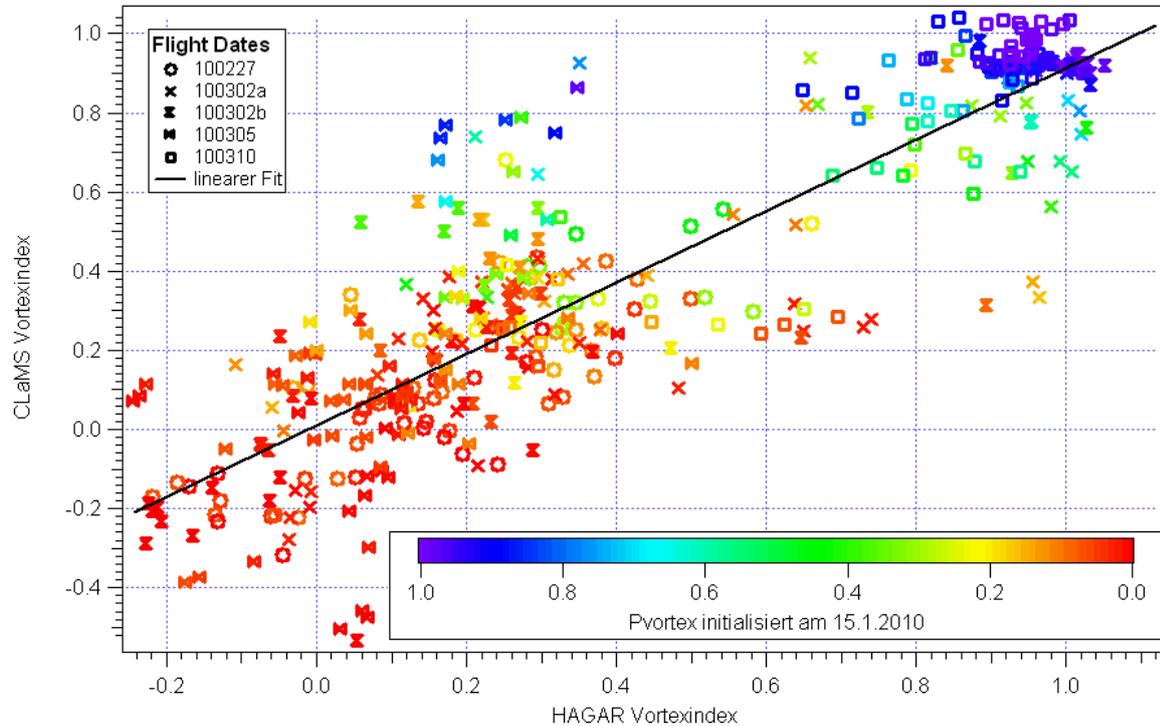


Abbildung 5.5: Vergleich zwischen CLaMS Vortexindex und HAGAR Vortexindex oberhalb von 400 K. Die Farben kennzeichnen die Werte des passiven Tracers Pvortex.

Messung als auch im Modell Werte von 0,85 - 1 annimmt, bekommen auch für den passiven Tracer Pvortex Werte zwischen 0,8 und 1 zugewiesen. Das bedeutet, dass im März, bezogen auf den Polarwirbel Anfang Januar noch unvermischte Polarwirbelluft beobachtet wurde, die durch den Vortexindex herausgefiltert werden kann.

In der folgenden Abbildung 5.6 ist die Korrelation zwischen dem sogenannten passiven Ozon und N_2O im CLaMS Modell nach Phasen getrennt gezeigt. Das passive Ozon ist ein passiver Tracer im Modell, der zu Beginn einer Simulation (1.12.2009) wie das Spurengas Ozon initialisiert wird und in der Folge alle dynamischen Prozesse durchläuft, jedoch keinen chemischen Prozessen unterliegt [Groß et al., 2008]. Das bedeutet, dass durch die Korrelation zwischen dem passiven O_3 und N_2O gezeigt werden kann wie sich die Korrelation, im Modell, ohne den Einfluss von Chemie entwickelt. In Abbildung 5.6 sind nur Daten die nördlich von 5° äquivalenter Breite innerhalb des Wirbel beobachtet wurden dargestellt. Die offenen Kreise symbolisieren dabei jeweils alle Daten in diesem Bereich, die als ausgefüllte Kreise dargestellten Daten wurden zusätzlich mit Vortexindex $\geq 0,85$ herausgefiltert. Die Abbildung zeigt, dass durch den Vortexindex tatsächlich alle Luftmas-

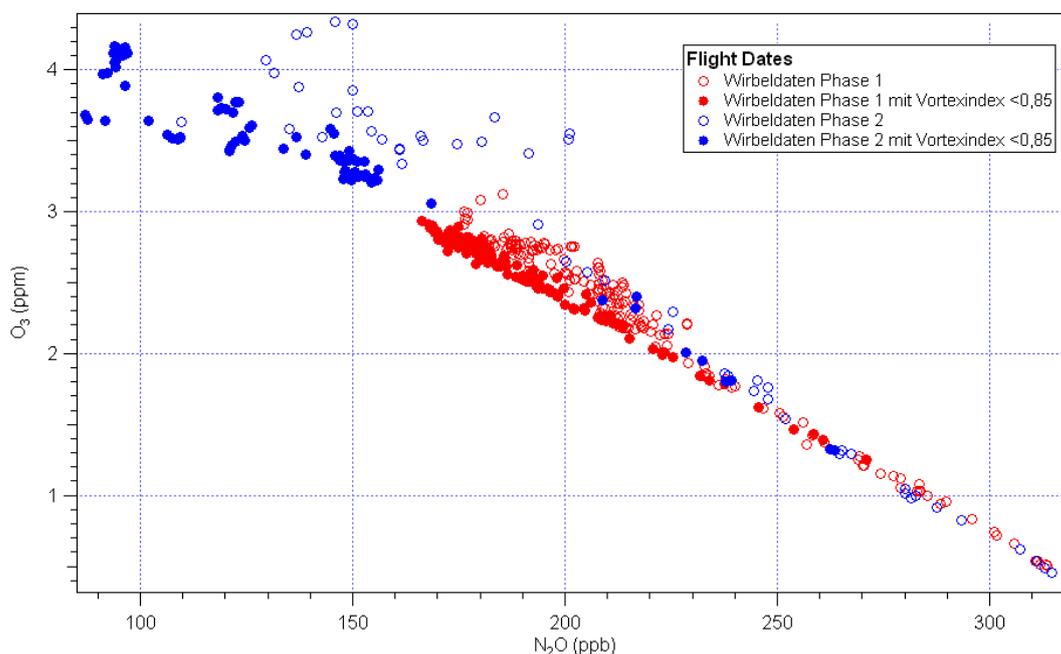


Abbildung 5.6: Korrelation im Polarwirbel zwischen passivem Ozon und N_2O (gefiltert „ Δ equivalent latitude“ $>5^\circ$) für erste Phase als offene rote Kreise, für die zweite Phase als blaue offene Kreise dargestellt. Die Korrelation im Polarwirbel zusätzlich gefiltert durch CLaMS $Vortexindex \geq 0,85$ ist durch die ausgefüllten Symbole in den jeweiligen Farben gekennzeichnet.

sen, die durch Mischung beeinflusst sind, und dadurch zu höheren N_2O -Werten verschoben sind, heraus gefiltert werden können. Die Daten, die unbeeinflusste Luftmassen beschreiben bilden dabei eine sehr kompakte Korrelation, die sich zwischen Januar und März im Modell ein wenig zu verändern scheint. Diese Änderung bedeutet, dass es im Modell zwischen Januar und März dynamische Einflüsse auf den Wirbel gegeben hat, die zu einer Verdünnung der Polarwirbelluft geführt haben. Eine vergleichbare Beobachtung wurde auch schon für die F11- N_2O -Korrelation im Modell gemacht (vgl. Kapitel 3.5), die in diesem Zeitraum ebenfalls eine solche Verdünnung zeigte. Da sich die F11- N_2O -Korrelation in den Beobachtungen aber nicht verändert hat und es in den vorgestellten Studien mehrere Indizien für zu starke Mischung in Modell gegeben hat, wird dieser Unterschied auf die Mischung im Modell zurückgeführt. Es wird im folgenden daher davon ausgegangen, dass die Daten, die unbeeinflusste Luftmassen beschreiben, herausgefiltert mittels Vortexindex, in den Beobachtungen im März weiterhin eine kompakte, unveränderte Korrelation bilden.

5.2 Ozonverlust im arktischen Winter 2009/10

Die Abbildung 5.7 zeigt die gesamte O_3 - N_2O -Korrelation während der RECONCILE-Kampagne koloriert nach dem Vortexindex, mit eingezeichnet ist die Referenzkorrelation von Anfang Januar. Die Referenzkorrelation beschreibt die in-situ gemessene Korrelation

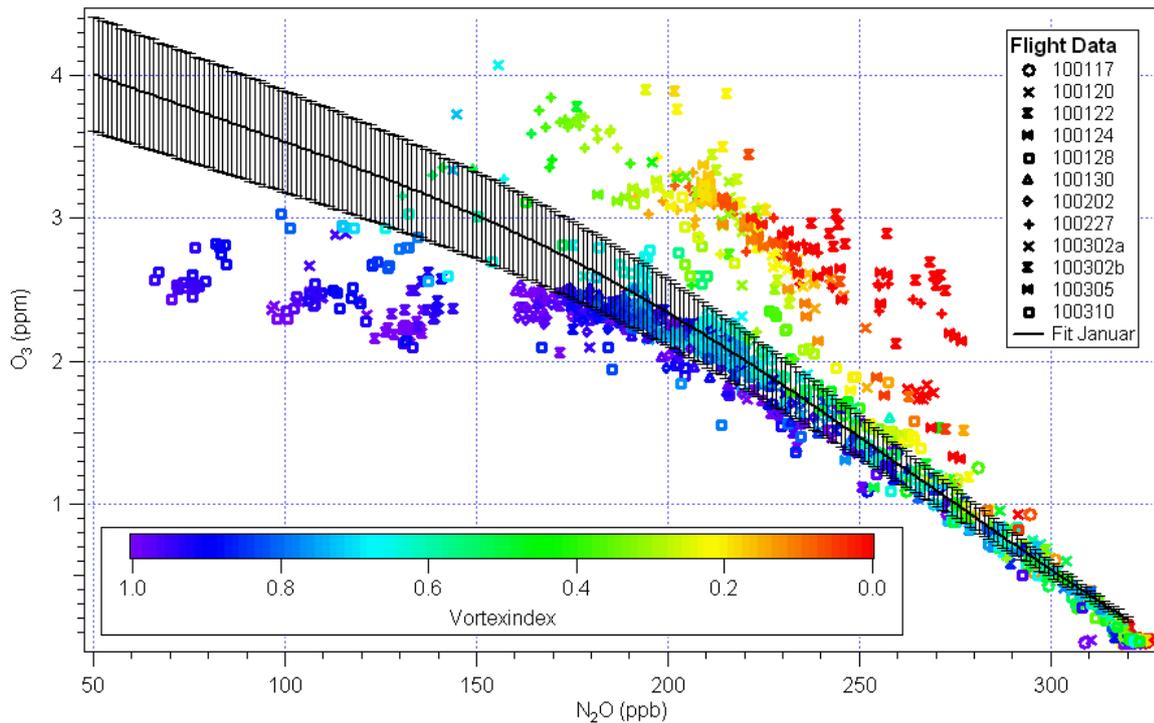


Abbildung 5.7: O_3 - N_2O Korrelation aus den Daten der RECONCILE-Kampagne von FOZAN und HAGAR koloriert nach Vortexindex mit der Referenzkorrelation von Anfang Januar. Die Fehlerbalken am Fit geben die Messunsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS an.

in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre bis zu einem Mischungsverhältnis von 200 ppb N_2O sehr gut. Ab einer potenziellen Temperatur von etwa 420 K (420 K entspricht im März einem N_2O -Mischungsverhältnis von 200 ppb), ab der die Transportbarriere stabil vorhanden ist, beginnt die gemessene Korrelation (Vortexindex 0,85-1) bedingt durch chemischen Ozonabbau von der chemisch unbeeinflussten Korrelation von Anfang Januar abzuweichen. Die Daten mit einem sehr niedrigen Vortexindex bis 0,2 zeigen den Verlauf der O_3 - N_2O -Korrelation in mittleren Breiten.

Mit Hilfe des Vortexindex werden aus der gesamten O_3 - N_2O -Korrelation die charakteristischen Polarwirbeldaten herausgefiltert, die nicht durch Einmischung beeinflusst sind. In Abbildung 5.8 ist die Korrelation im Polarwirbel zwischen O_3 und N_2O , gebildet aus Daten mit einem Vortexindex größer 0,85, zusammen mit der Januar-Referenzkorrelation dargestellt. Der relative Fehler der Ozonmessungen durch FOZAN beträgt weniger als 10% des Messwertes [Ulanovsky et al., 2001]. Als Obergrenze für eine Fehlerabschätzung wird daher ein relativer Fehler von 10% angenommen. Die Differenz zwischen der Referenzkorrelation und der während RECONCILE gemessenen Korrelation, gibt den chemischen Ozonverlust bis zum Zeitpunkt der Messung an. Der so bestimmte chemische Ozonverlust ist in den Abbildungen 5.9 und 5.10 nach den beiden Phasen der Kampagne getrennt jeweils als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur dargestellt. Auch in diesen Abbildung werden nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$ dargestellt. Unterhalb von 420 K bekommt der Vortex-

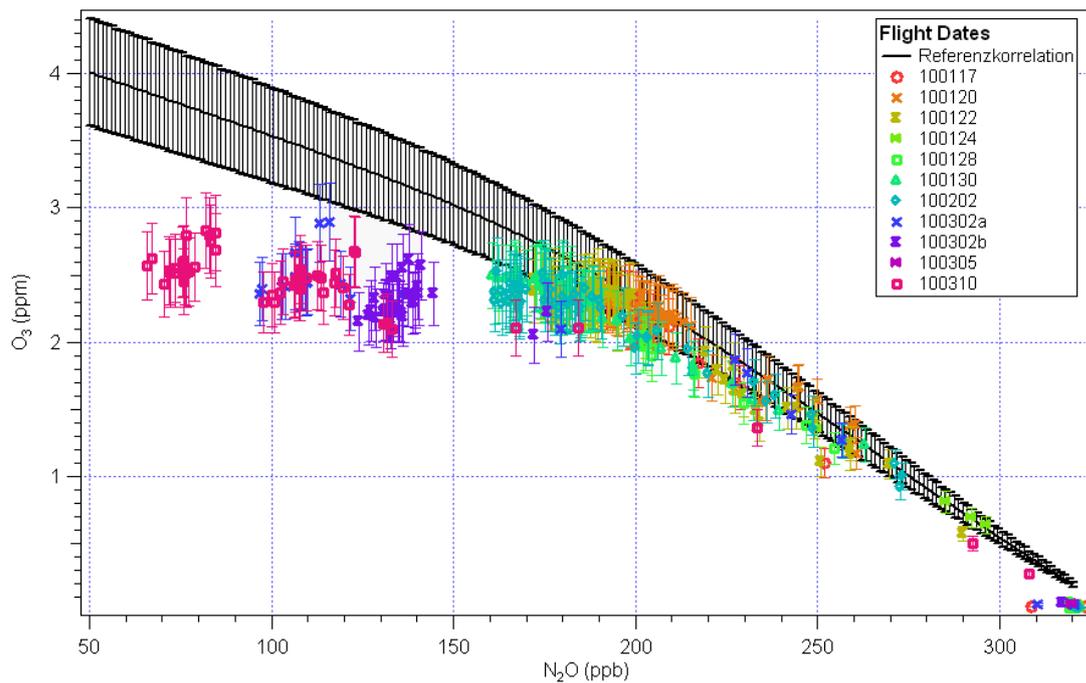


Abbildung 5.8: O_3 - N_2O Korrelation gefiltert mit Vortexindex $\geq 0,85$ mit Referenzkorrelation. Die Farben und Symbole kennzeichnen die einzelnen Flugtage.

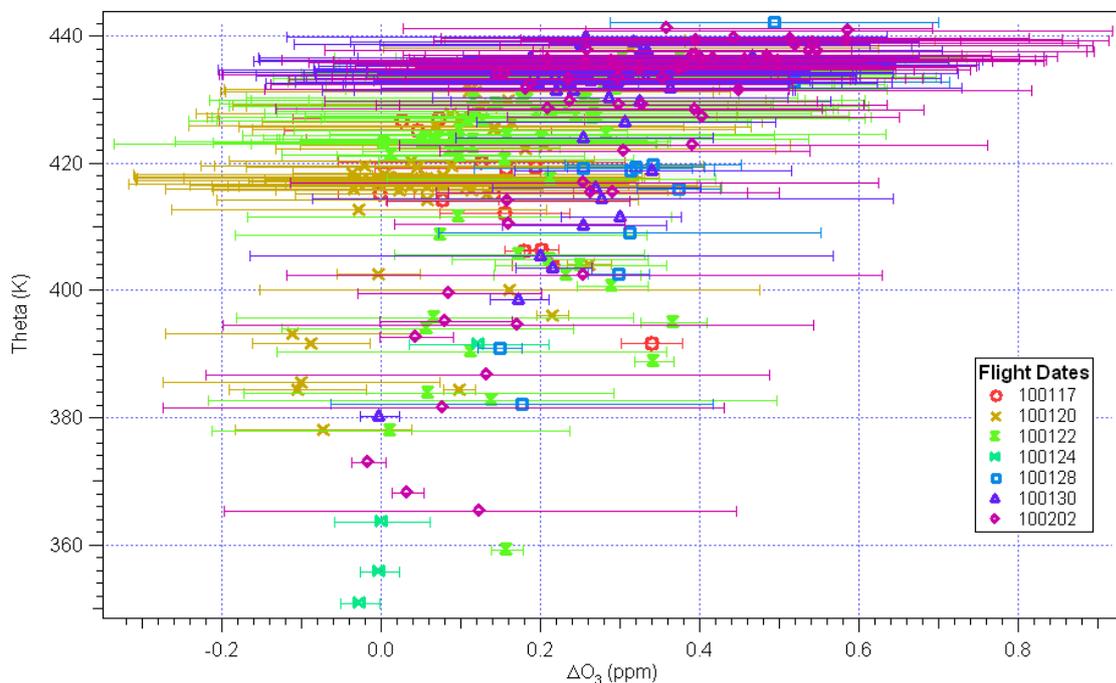


Abbildung 5.9: Ozonverlust während der ersten Phase von RECONCILE dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur, die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$.

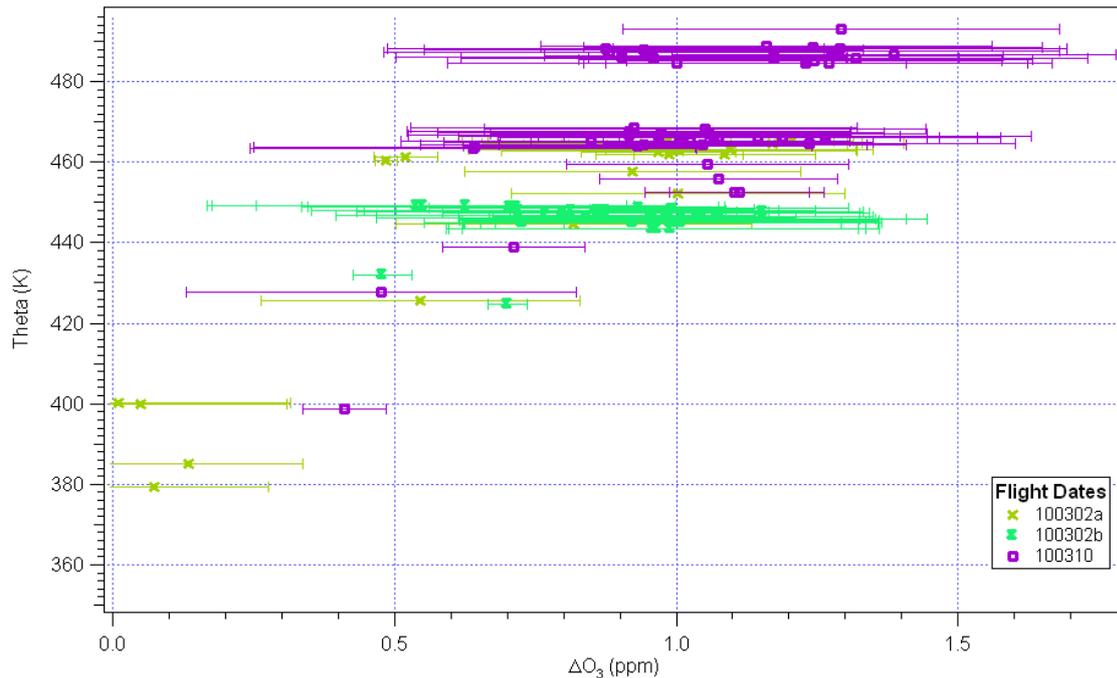


Abbildung 5.10: Ozonverlust während der zweiten Phase von RECONCILE dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur, die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$.

index zunehmend eine größere Unsicherheit, da die Referenzprofile zur Berechnung des Index dort nur durch sehr wenige Datenpunkte bestimmt sind. Das bedeutet, dass in diesem Bereich die dynamischen Effekte nicht zuverlässig herausgefiltert werden können und die Abschätzung dort mit größeren Unsicherheiten einhergeht. Daher wird im folgenden der Ozonverlust nur oberhalb von 410 K betrachtet.

Während der ersten Phase konnte auf allen Höhen ein Ozonverlust beobachtet werden. Ein wirklich signifikanter Verlust konnte jedoch erst während des Fluges am 2.2. oberhalb von 420 K festgestellt werden. Das bedeutet, dass im betrachteten Höhenbereich ein signifikanter Ozonverlust Anfang Februar einsetzte. Der maximale Wert des Ozonverlustes der während dieses Fluges bestimmt werden konnte beträgt etwa $0,6 \pm 0,3$ ppm auf 440 K. Während der zweiten Phase ist auf allen Höhen oberhalb 400 K ein signifikanter Ozonverlust zu verzeichnen. Der maximale Ozonverlust mit einem Wert von $1,4 \pm 0,5$ ppm wurde während Flug 13 (10.3.) auf 490 K beobachtet.

Abbildung 5.11 zeigt die gemessene Korrelation zusammen mit der Frühwinter-Korrelation von November 2009 als Referenz. Die Berechnung des Ozonverlustes aus dieser Analyse

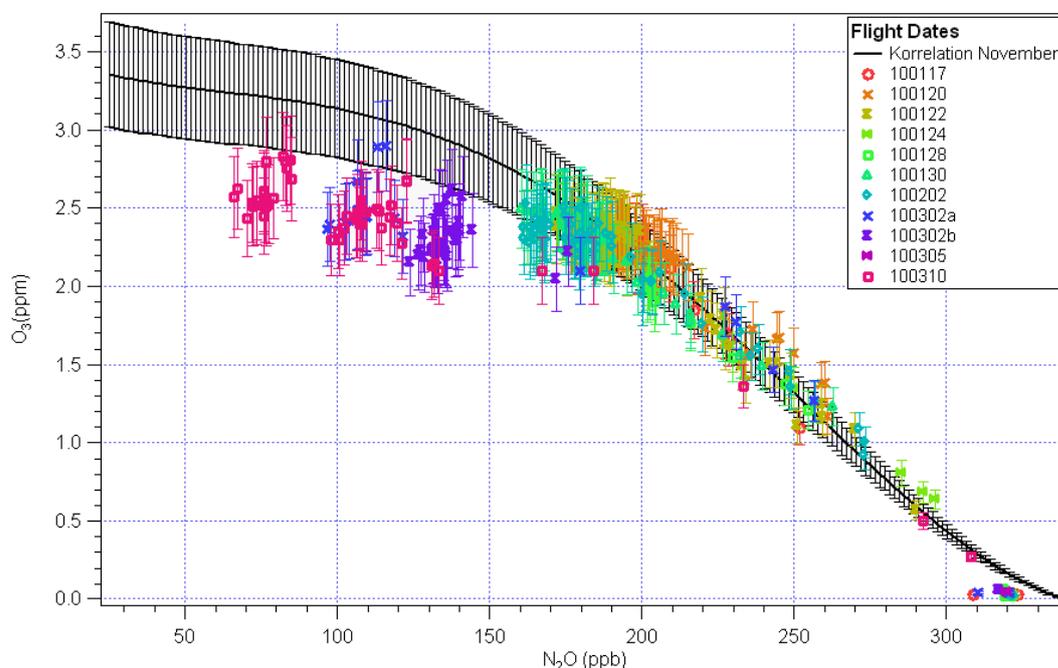


Abbildung 5.11: O₃-N₂O Korrelation gefiltert mit Vortexindex $\geq 0,85$ mit der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenz. Die Farben und Symbole kennzeichnen die einzelnen Flugtage.

ist in den Abbildungen 5.12 und 5.13 als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur dargestellt. Abbildung 5.12 zeigt, dass bei dieser Abschätzung auch Anfang Februar kaum ein signifikanter Ozonverlust zu verzeichnen ist. Als maximaler Wert während der ersten Phase lässt sich während Flug 8 am 2.2. ein Wert von $0,4 \pm 0,3$ ermitteln. Die Daten, die den größten Ozonverlust in dieser Phase kennzeichnen, der jedoch nicht signifikant ist, wurden allesamt während des Fluges am 2.2. gemessen. Im März ergibt sich aus dieser Abschätzung ein maximaler Ozonverlust von $0,8 \pm 0,4$ ppm in einer Höhe von 450 - 470 K. Die Abweichung in der Höhe, in der der maximale Wert des Ozonverlustes gemessen wurde, und die Abweichung bei den bestimmten Maximalwerten sind auf die Änderung der O₃-N₂O-Korrelation durch die Einmischung von Luft aus mittleren Breiten in den Wirbel im Dezember zurückzuführen. Eine Nichtbeachtung dieser Einmischung würde für diesem Winter also zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes um etwa 35% führen. Müller et al. (2005) und Lemmen et al. (2006) ermittelten anhand von Satellitendaten und Modelldaten eine Unterschätzung des Ozonverlustes durch Korrelationsanalyse bei Vernachlässigung von Mischungseffekten in ähnlicher Größenordnung.

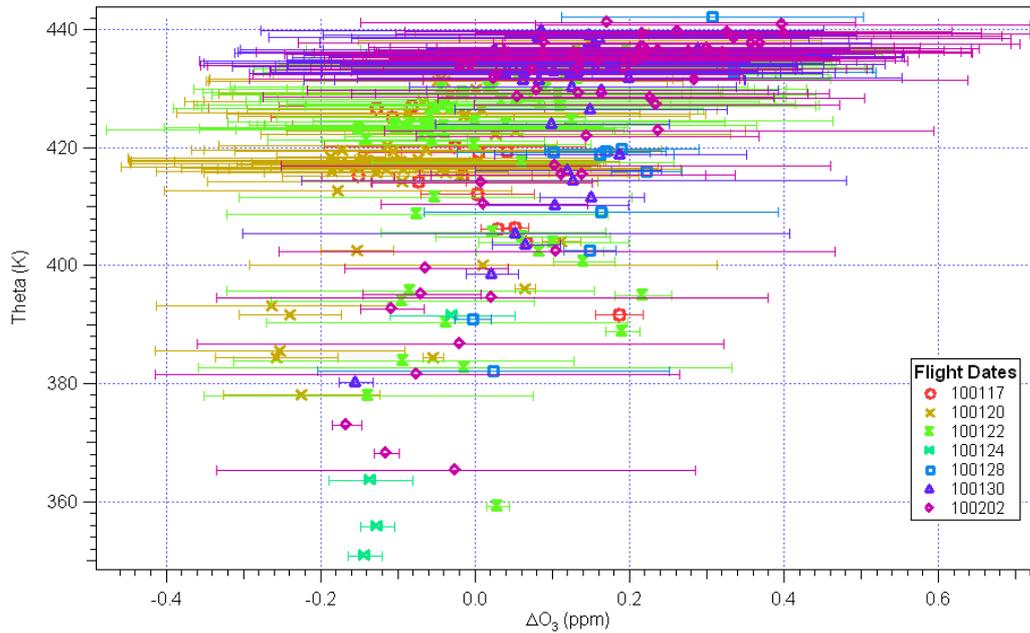


Abbildung 5.12: Ozonverlust für die erste Phase von RECONCILE abgeschätzt mit der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenzkorrelation dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur; die Farben kennzeichnen die unterschiedlichen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$.

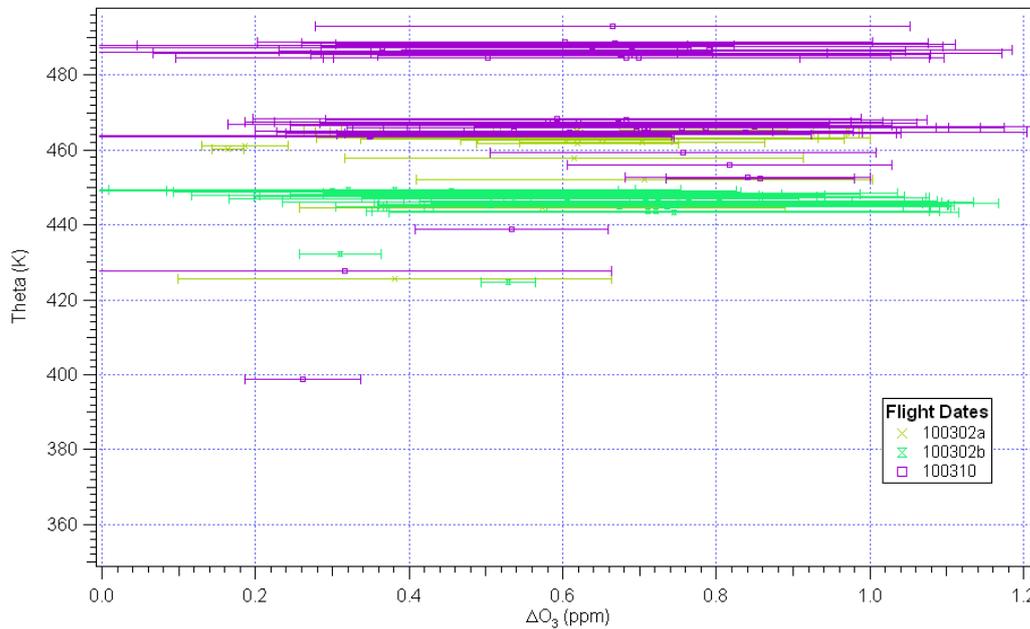


Abbildung 5.13: Ozonverlust für die zweite Phase von RECONCILE abgeschätzt mit der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenzkorrelation dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur; die Farben kennzeichnen die unterschiedlichen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$.

5.3 Ozonverlust in CLaMS

Die vorgestellte Korrelationsanalyse zur Abschätzung des Ozonverlustes wird im folgenden auf die Simulationsergebnisse des CLaMS-Modells angewendet. Anstelle einer Frühwinter-Referenzkorrelation wird in CLaMS das passive Ozon verwendet. Der Einfluss von Ein-

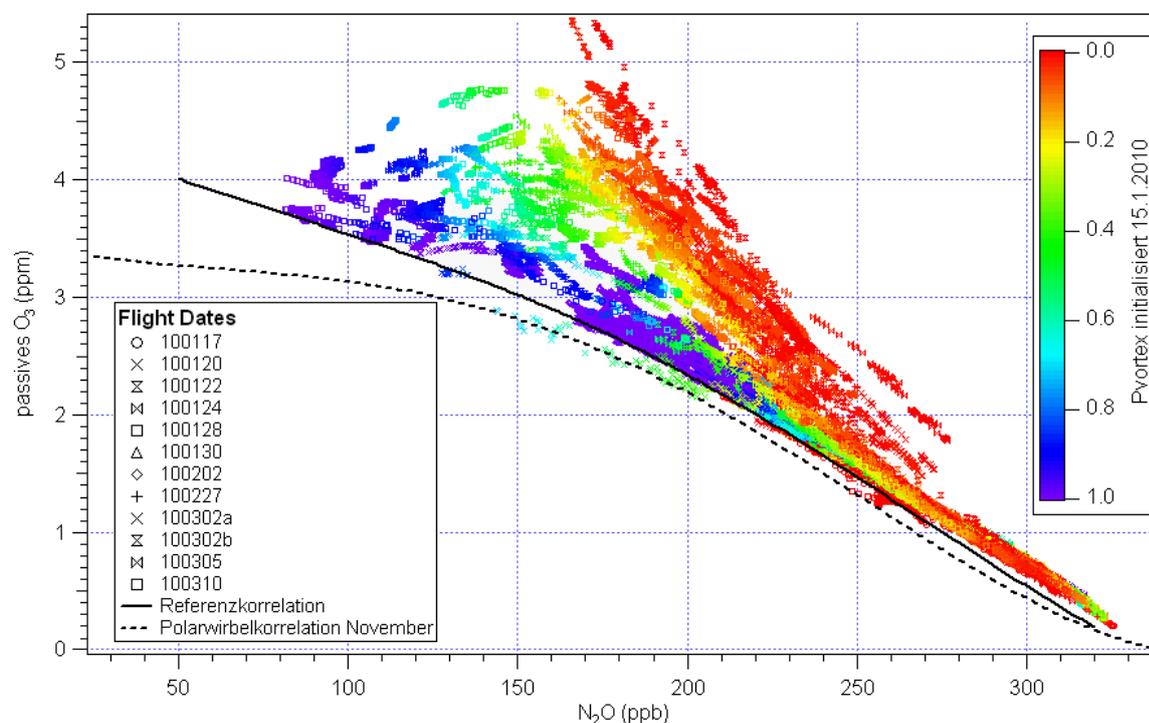


Abbildung 5.14: Referenzkorrelation in CLaMS (passives O₃ vs. N₂O) koloriert nach Pvortex. Als durchgezogene Linie ist die Referenzkorrelation aus ACE-FTS-Daten von Januar eingezeichnet; als gestrichelte Linie ist die Korrelation im Polarwirbel von November eingezeichnet.

mischung sowohl im Dezember, als auch während der RECONCILE-Kampagne, auf die O₃-N₂O-Frühwinterkorrelation ist im passiven Ozon also berücksichtigt. Im Modell wird die Abschätzung also nicht mit einer fixen Referenz durchgeführt, sondern mit einer Referenz für jeden Zeitpunkt, die genauso durch Transport beeinflusst wurde wie O₃. Abbildung 5.14 zeigt die Korrelation zwischen passivem O₃ und N₂O im Modell, verglichen mit der Referenzkorrelation von Januar 2010, sowie der Korrelation im Polarwirbel von November 2009 aus ACE-FTS Daten.

Die Daten mit hohem Pvortex, die unverdünnte Polarwirbelluft beschreiben, werden durch die Januarreferenzkorrelation aus ACE-FTS Daten sehr gut beschrieben. Die Korrelation von November ist zu niedrigeren N₂O-Werten hin verschoben und beschreibt die Polarwirbeldaten des passiven Ozons nicht. Referenz im Modell und die für die Analyse der in-situ Daten verwendete Referenzkorrelation von Januar stimmen also sehr gut überein.

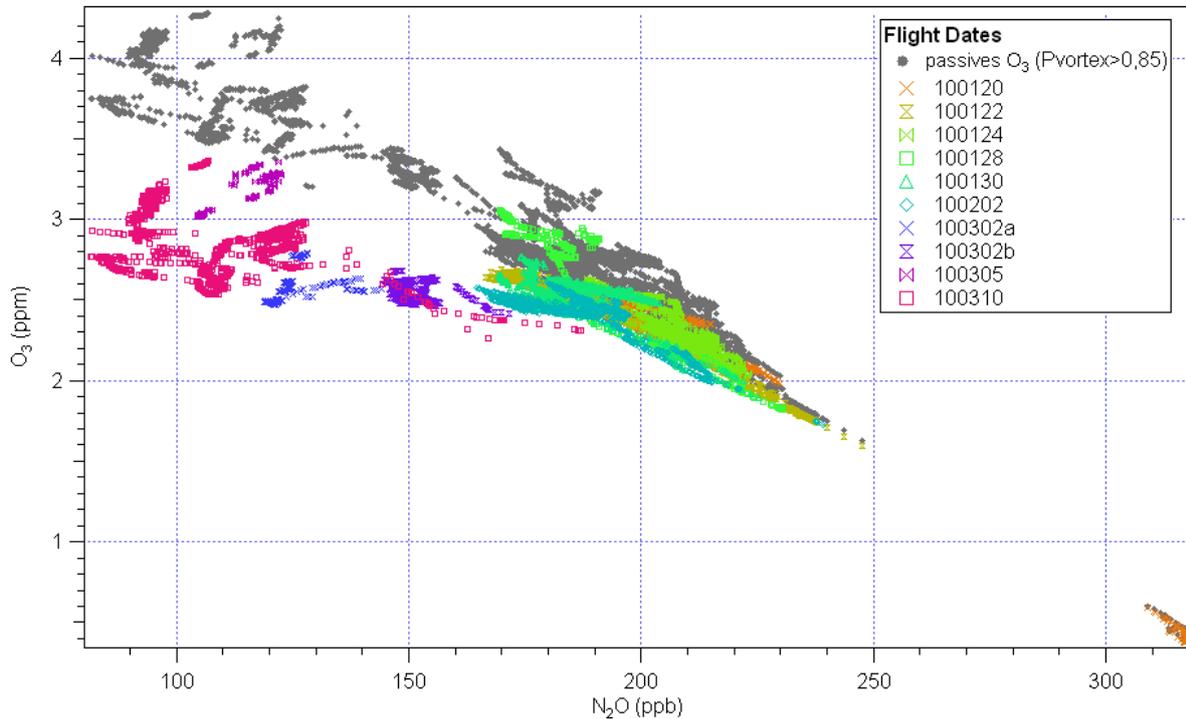


Abbildung 5.15: O_3 - N_2O Korrelation im Polarwirbel ($P_{\text{vortex}} \geq 0,85$) mit der Referenzkorrelation passives O_3 - N_2O (grau). Die O_3 - N_2O -Korrelation ist nach den Flugdaten koloriert.

Der Ozonverlust im Modell bestimmt sich zu jedem Zeitpunkt als die Differenz zwischen passivem Ozon und Ozon. In Abbildung 5.15 ist die O_3 - N_2O Korrelation und die Referenzkorrelation passives O_3 - N_2O entlang der Flüge dargestellt. Beide Korrelationen zeigen nur die Polarwirbel Daten mit $P_{\text{vortex}} \geq 0,85$. Die Abbildungen 5.16 und 5.17 zeigen den Ozonverlust in CLaMS aufgetragen als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur. Im Modell wird der maximale Ozonverlust im März mit 1,1 ppm bei einer potenziellen Temperatur von 490 K simuliert. Ein signifikanter Ozonverlust ist ab Januar oberhalb von 410 K zu verzeichnen.

Verglichen mit der Abschätzung aus den in-situ Daten stimmen der Startzeitpunkt, die Höhe, in der ein signifikanter Verlust zu verzeichnen ist, und die Höhe, in der in dieser Analyse das Maximum des Ozonverlustes beobachtet wird, sehr gut überein. Lediglich die Größe des Ozonverlustes selbst ist nach dieser Analyse in CLaMS mit 0,3 ppm ca. 20% geringer als in der Abschätzung aus den in-situ Daten. Im Rahmen der Unsicherheit der Abschätzung aus den Beobachtungen stimmen die bestimmten Werte für den Ozonverlust überein.

Vergleicht man den für die RECONICLE-Kampagne ermittelten O_3 -Verlust in Beobachtung und Modell direkt miteinander (Abbildung 5.18), sieht man, dass die Werte des Ozonverlustes im Modell für alle Flüge geringer sind. Dargestellt sind in Abbildung 5.18 wiederum nur Daten mit einem Vortexindex $\geq 0,85$. Zur Orientierung ist die 1:1 Linie als

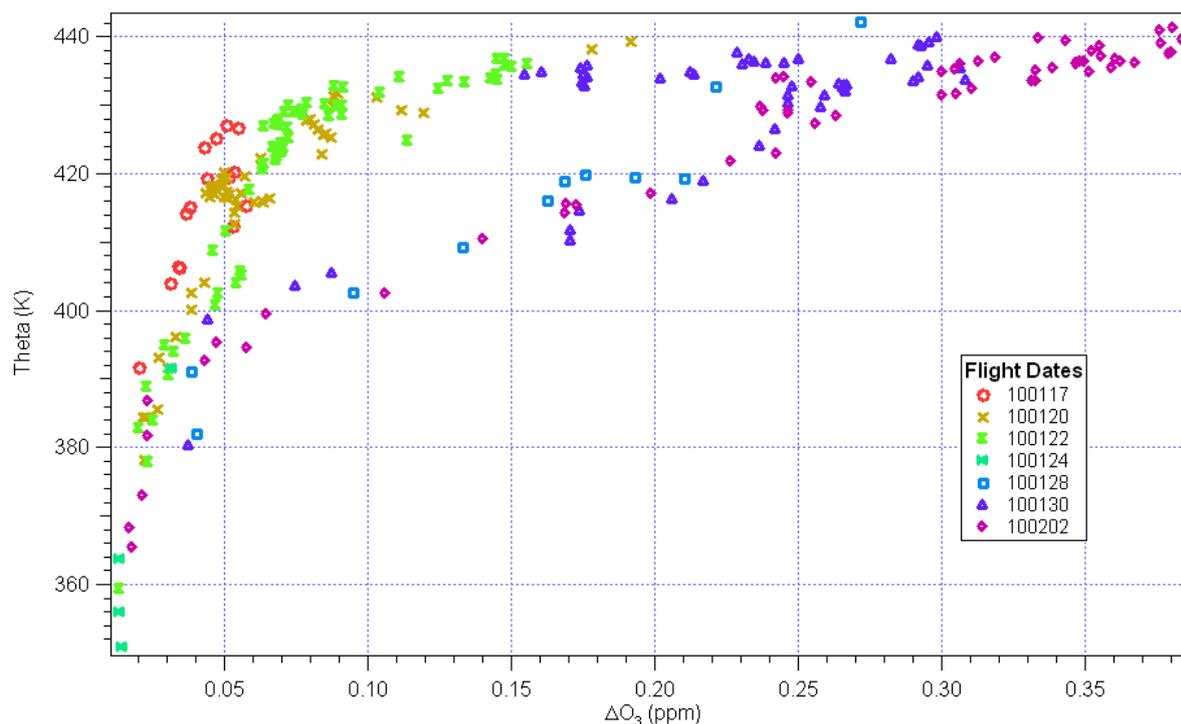


Abbildung 5.16: Ozonverlust in CLaMS aufgetragen als Höhenprofil für die Flüge 1-8; die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten.

gestrichelte Linie eingezeichnet. Diese Linie liegt zwar im Rahmen der Fehler, die die Abschätzung aus den Beobachtungen hat, jedoch liegen alle Datenpunkte deutlich zu niedrigeren Ozonverlusten in CLaMS hin verschoben. Wird im Modell der Ozonverlust tatsächlich unterschätzt, sollten sich die beobachtete und simulierte Korrelation bevor Ozonverlust einsetzt nicht voneinander unterscheiden. Erst wenn der Ozonverlust signifikant wird kommt es dann zu anderen Ozonwerten im Polarwirbel. Abbildung 5.19 zeigt, dass sich die beobachtete und simulierte Korrelation im Januar kaum voneinander unterscheiden (max. 0,2 ppm). Im März dagegen (Abbildung 5.20) werden durch CLaMS höhere O_3 -Werte simuliert als durch FOZAN beobachtet werden (Differenz ca. 0,5 ppm). Kalicinsky (2012) zeigt, dass die Mischungsverhältnisse im Polarwirbel in CLaMS auch signifikant höher sind als die mit CRISTA-NF gemessenen O_3 -Mischungsverhältnisse. Die Abweichung der Mischungsverhältnisse im Modell zu den bei RECONCILE mit verschiedenen Instrumenten gemessenen ist vermutlich Folge einer Unterschätzung der Chloraktivierung im Modell, die zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes führt [Kalicinsky, 2012]. Ähnliche Beobachtungen wurden auch von Wohltmann et al. (2012) für das Lagrange Chemie- und Transportmodell ATLAS gemacht, welches den Ozonverlust im Vergleich zu Messungen ebenfalls unterschätzt.

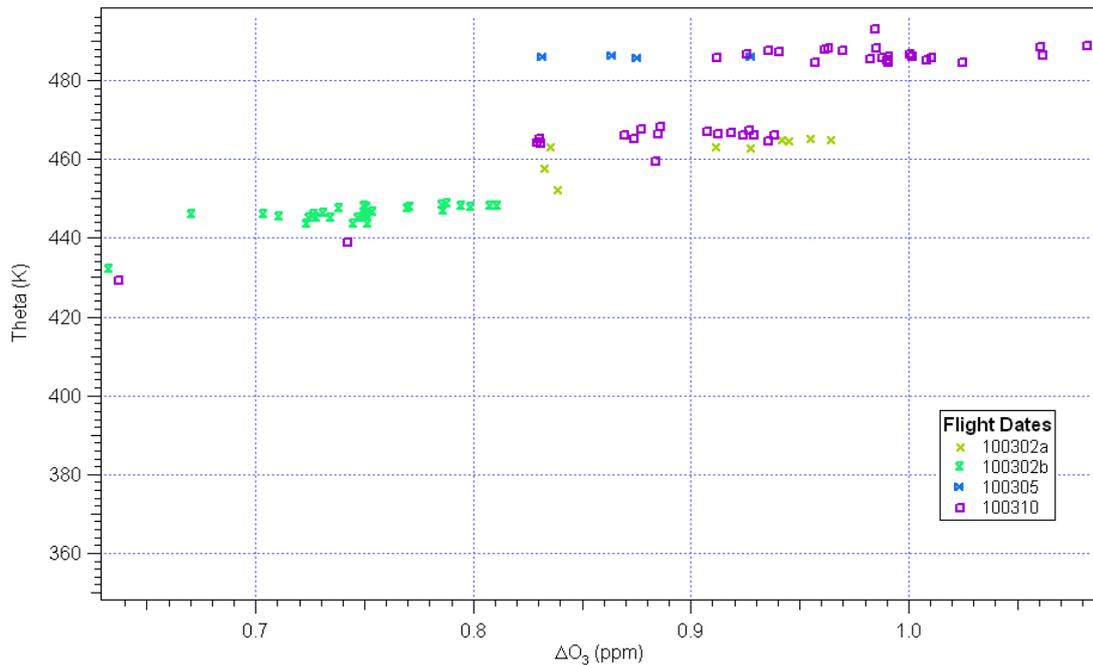


Abbildung 5.17: Ozonverlust in CLaMS aufgetragen als Höhenprofil für die Flüge 9-13; die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten.

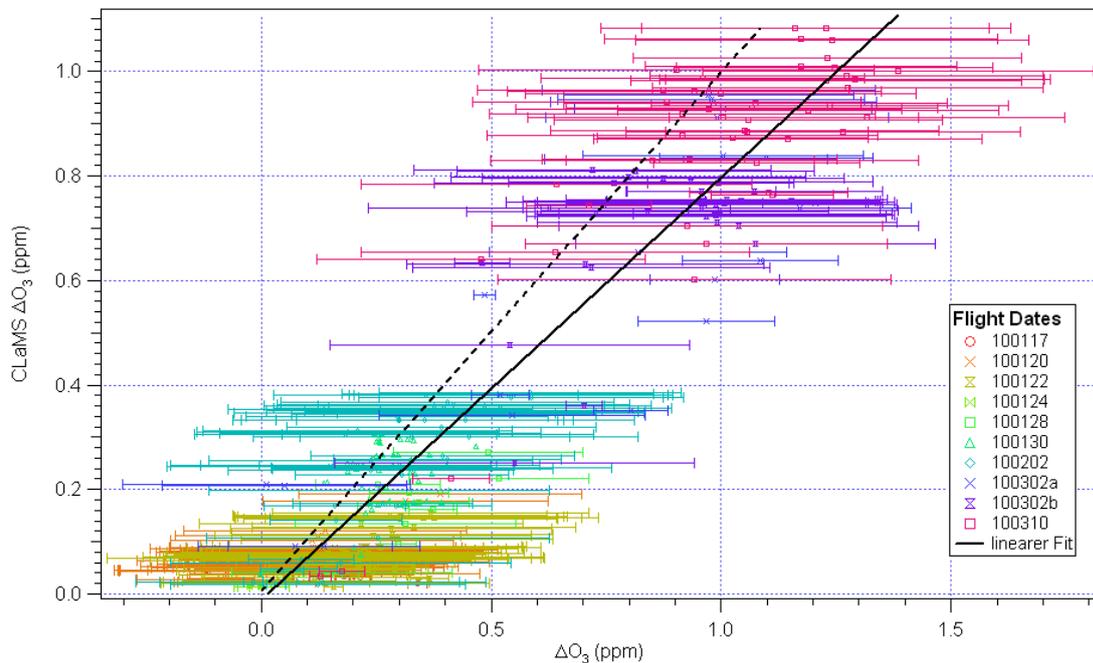


Abbildung 5.18: Vergleich zwischen dem O₃-Verlust bestimmt aus FOZAN und HAGAR und dem simulierten. Dargestellt sind alle Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$. Als durchgezogene Linie eingezeichnet der lineare Fit der Daten; die gestrichelte Linie stellt die 1:1 Korrelation dar.

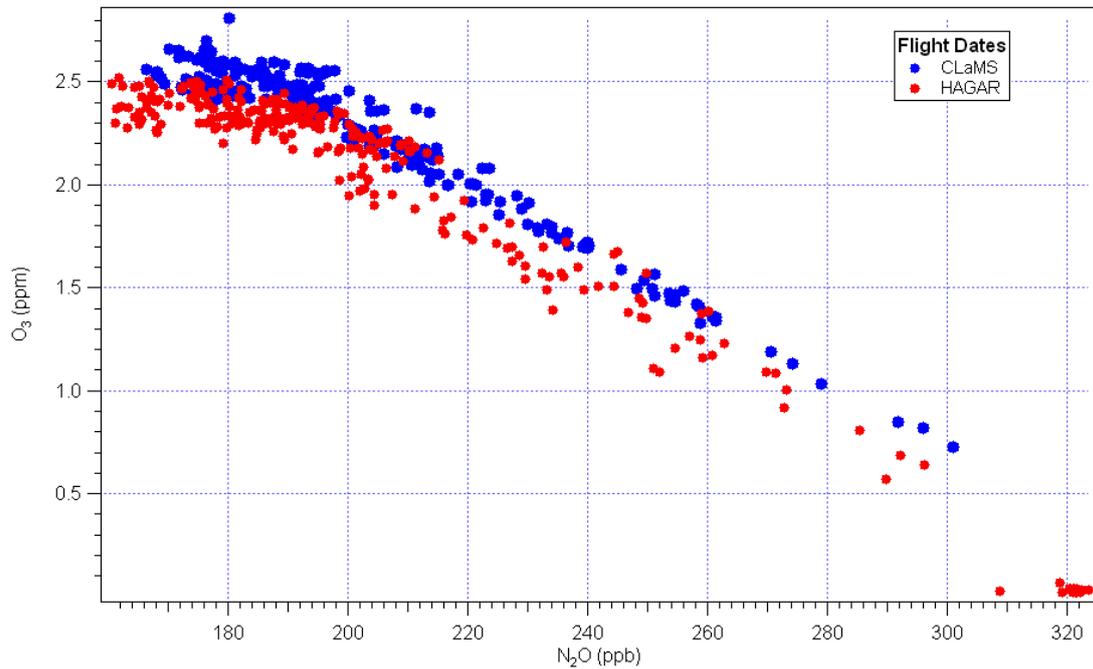


Abbildung 5.19: Vergleich zwischen der O_3 - N_2O -Korrelation für die Flüge 1-8 (gefiltert Vortexindex $\geq 0,85$) gemessen mit HAGAR und FOZAN (rot) und der O_3 - N_2O -Korrelation in CLaMS (blau)

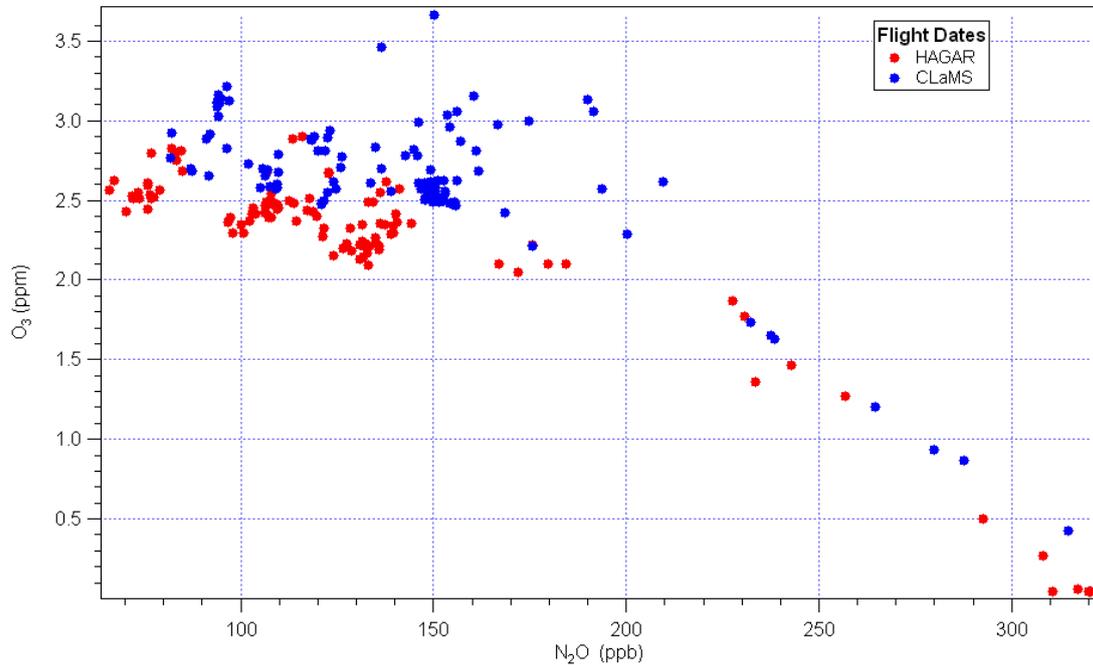


Abbildung 5.20: Vergleich zwischen der O_3 - N_2O -Korrelation für die Flüge 9-13 (gefiltert Vortexindex $\geq 0,85$) gemessen mit HAGAR und FOZAN (rot) und der O_3 - N_2O -Korrelation in CLaMS (blau)

5.4 Fazit

Aus der Entwicklung der O_3 - N_2O -Korrelation konnte der chemische Ozonverlust im Kampagnenzeitraum abgeschätzt werden, nachdem alle notwendigen Bedingungen überprüft wurden. Die Ergebnisse aus dieser Abschätzung wurden dann mit dem durch CLaMS simulierten Ozonverlust verglichen:

- Im frühen Polarwirbel im November hatte sich bereits eine kompakte Korrelation ausgebildet, die jedoch durch starke Einmischungen im Zuge des „stratospheric warming“ im Dezember verändert wurde. Es konnte jedoch gezeigt werden, dass sich im Januar nach der Rekombination und vor Beginn des Ozonverlustes wieder eine kompakte Korrelation ausgebildet hat, die die korrekte Referenz für die Analyse bildet.
- Anhand der Korrelation zwischen passivem Ozon und N_2O konnte gezeigt werden, dass mit Hilfe des Vortexindex von Einmischung während der Kampagne beeinflusste Luftmassen herausgefiltert werden konnten. Damit kann auch die zweite Bedingung zur Durchführung dieser Analyse, nämlich die, dass alle Änderungen der Korrelation nur auf den chemischen Ozonverlust zurückzuführen sind, erfüllt werden.
- Signifikanter Ozonverlust konnte in der ersten Phase der Kampagne erst bei Flug 8 am 2.2. auf ca. 420 K beobachtet werden. Das bedeutet, dass signifikanter Ozonverlust im vermessenen Höhenbereich erst Anfang Februar einsetzte.
- In der zweiten Phase der Kampagne konnte oberhalb von 400 K auf allen Höhen ein signifikanter Ozonverlust beobachtet werden. Der Maximalwert des Ozonverlustes wurde mit $1,4 \pm 0,5$ ppm während Flug 13 am 10.3. auf 490 K bestimmt.
- Die Verwendung der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenz führt zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes um etwa 35%.
- Die Abschätzung des Ozonverlustes im CLaMS Modell liefert einen maximalen Wert von 1,1 ppm auf 490 K. Der Vergleich des gesamten Ozonverlustes zwischen Modell und Beobachtungen zeigt, dass im Modell überall niedrigere Werte (ca. 20%) bestimmt werden, die jedoch im Rahmen der Fehler der Abschätzung aus den Beobachtungen mit dieser übereinstimmen. Ein Indiz für eine Unterschätzung des Ozonverlustes durch CLaMS ergibt sich aus der unterschiedlichen Entwicklung der O_3 - N_2O -Korrelationen in Modell und Beobachtung. Während die Korrelationen im Januar dicht beieinander liegen, unterscheiden sie sich im März deutlicher voneinander. Eine ähnliche Unterschätzung des Ozonverlustes im Modell gegenüber Messungen zeigen Wohltmann et al. (2013) für das Lagrange Chemie- und Transport Modell ATLAS.

Kapitel 6

Synthese und Schlussfolgerungen

Die in dieser Arbeit verwendeten Messungen langlebiger Spurengase wurden mit dem HAGAR-Instrument an Bord der Geophysica im Rahmen der RECONCILE-Kampagne ausgehend von Kiruna, Schweden, zwischen dem 17.1.2010 und 10.3.2010 vorgenommen (s. Kapitel 2). Studien in der Vergangenheit haben gezeigt, dass hochaufgelöste, präzise Messungen langlebiger Spurengase sehr gut zur Untersuchung kleinskaliger Strukturen im Bereich des Polarwirbels und zur Analyse von Mischungsprozessen über die Wirbelgrenze hinweg geeignet sind [z.B. Greenblatt et al., 2002; Ray et al., 2002; Jost et al., 2002; Ivanova et al., 2008; Plumb et al., 2000; Plumb, 2007; Referenzen darin]. In dieser Studie wurden diese Messungen zur Untersuchung von Transport- und Mischungsprozessen in der arktischen Polarregion, insbesondere über die Polarwirbelgrenze hinweg, und zur Abschätzung des Ozonverlustes im Polarwirbel verwendet. Der arktische Winter 2009/2010 ist aus dynamischer Sicht sehr interessant, da es in seinem Verlauf zweimal (Mitte Dezember und Mitte Februar) zu einer Wirbelteilung mit anschließender Rekombination der Wirbelfragmente, die jeweils durch Einschluss von Luft aus der „surf zone“ in den Wirbel begleitet wurde, kam.

Greenblatt et al. (2002) leiteten aus den Messungen von N_2O eine Größe ΔN_2O ab, welche sie dann zur Definition der Polarwirbelgrenze verwenden. Jost et al. (2002) verwendeten dieses ΔN_2O zusätzlich im Rahmen einer Korrelationsanalyse langlebiger Spurengase zur Detektion kleinskaliger Mischungsprozesse im Polarwirbel. Ivanova et al. (2008) verwenden das ΔN_2O im antarktischen Polarwirbel als quasi-lagrange Meridionalcoordinate zur Untersuchung der chemischen Struktur im Bereich der Wirbelgrenze. In Kapitel 3 der vorliegenden Studie wurde aus dem ΔN_2O ein Index berechnet, der eine höhenunabhängige Auskunft über die charakteristische Herkunftsregion der vermessenen Luftmassen liefert und zugleich als Proxy für den Anteil von Polarwirbelluft an der untersuchten Luftmasse dient. Auf Grund seiner Definition anhand von gemessenen, charakteristischen N_2O -Vertikalprofilen gibt der Vortexindex die charakteristische Herkunft einer Luftmasse bezogen auf den Polarwirbel anhand ihrer chemischen Zusammensetzung an (vgl. Kapitel 3.2). Die Identifikation von meridionalen Transport durch den Vortexindex erfolgt durch Betrachtung der meridionalen Verteilung des Vortexindex relativ zur Wirbelgrenze definiert

nach Nash et al. (1996). Während sich Spurengasmischungsverhältnisse und somit auch der Vortexindex nach meridionalen Transport nur sehr langsam durch Mischung an die Umgebungsluft anpassen passt sich die PV, anhand derer Nash et al. (1996) die Wirbelgrenze definieren, vergleichsweise schnell an die neue dynamische Situation an. Die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) kennzeichnet also die momentane dynamische Wirbelgrenze, während durch den Vortexindex die charakteristische Herkunft der Luftmassen gekennzeichnet wird, sofern diese noch nicht durch vollständige Vermischung unkenntlich geworden ist. Der Vortexindex ist insofern vor allem ein Indikator für Transporte, die noch nicht lange (in der Regel einige Tage bis wenige Wochen) zurückliegen.

Wenn zusätzliche Informationen über die tatsächliche Herkunft der Luft (z.B. aus Simulationen) vorliegen, geben die Werte des Vortexindex auch einen Hinweis auf eine eventuelle Vermischung der beobachteten Luftmasse. Die eigentliche Mischungsanalyse wird in dieser Arbeit indes mit Hilfe einer Korrelationsanalyse durchgeführt. Das Verfahren wurde z.B. bei Ray et al. (2002), Jost et al. (2002) oder Plumb (2007) vorgestellt.

Mit Hilfe dieser beiden Analysemethoden konnten verschiedene Transport- und Mischungsprozesse in der arktischen Polarregion im Winter 2009/2010 analysiert werden. Die meridionale Verteilung des Vortexindex relativ zur Wirbelgrenze zeigt, wie erwartet, dass oberhalb von 410 K die „surf zone“ und der Polarwirbel durch eine Transportbarriere voneinander getrennt sind. Unterhalb von 410 K wurden verstärkte Meridionaltransporte und im Januar auch ein Ausfluss von Luftmassen aus dem Wirbel heraus beobachtet. Ähnliche Beobachtungen wie diese wurden im gleichen Höhenbereich in anderen Wintern gemacht [z.B. Manney et al., 1994; Werner et al., 2010].

Die Trennung zwischen Polarwirbel und „surf zone“ zeigt sich ebenfalls in der gemessenen F11-N₂O-Korrelation, so wie bei z.B. Ray et al. (2002) und Plumb (2007) beschrieben. Die Daten, die nach dem Vortexindex eine Wirbelsignatur haben, bilden eine kompakte Korrelation, die sich von der, durch Daten mit „surf zone“ Signatur gebildeten, Korrelation außerhalb des Polarwirbels signifikant unterscheidet. Plumb et al. (2002) zeigen anhand einer Modellstudie, dass die Ausbildung einer separaten charakteristischen Polarwirbelkorrelation durch eine schwache kontinuierliche Mischung über die Wirbelgrenze möglich ist. Die meridionale Verteilung des Vortexindex konnte legt nahe, dass die in einem ca. 3-5° breiten Bereich an der Wirbelgrenze, außerhalb des Wirbels, gemessenen Luftmassen aus einer Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus der „surf zone“ bestehen. Die Region schneller Mischung in der „surf zone“ wird offenbar, wie in der Modellstudie von Haynes und Shuckburgh (2000) beschrieben, an der Transportbarriere zum Polarwirbel hin von einer Region langsamer Mischung abgelöst. Die Abwesenheit systematischer Gradienten des Vortexindex innerhalb des Wirbels deutet indes darauf hin, dass anders als in der Modellstudie diese Region langsamer Mischung nur einen Übergangsbereich darstellt, also eine typische Transportbarriere. Messungen in diesem Bereich, erweitert bis ca. 3-5° in den Wirbel hinein, zeigen vielfach auch Mischungssignaturen in der F11-N₂O-Korrelation (vgl. Abschnitt 4.2.2). Da diesen Mischungssignaturen jedoch keine größeren Transporte zugeordnet werden konnten, handelt es sich wohl um kleinskalige Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus der „surf zone“ über die Transportbarriere hinweg. Eine solche

kleinskalige Mischung konnte während verschiedener Flüge zwischen Januar und März beobachtet werden. Es handelt sich daher vermutlich um einen kontinuierlichen Prozess.

Betrachtet man die Entwicklung der charakteristischen Polarwirbelkorrelation, zeigt sich dass diese zwischen Januar und März kompakt erhalten geblieben ist. In diesem Zeitraum kam es also, trotz der Intrusionen von Luft aus der „surf zone“ in den rekombinierten Wirbel, zu keiner signifikanten Verdünnung der Polarwirbelluft.

Die vergleichenden Analysen mit den Simulationen des CLaMS Modells zeigen, dass die Transportbarriere mit ihren kleinskaligen Mischprozessen durch das Modell gut dargestellt wird. Die simulierte Korrelation im Polarwirbel zeigt dagegen unterhalb von 445 K eine signifikante Verdünnung der Polarwirbelluft, was auch durch die passiven Tracer im Modell bestätigt wird. Ein solcher Unterschied zwischen Modell und Beobachtung kann durch eine schnellere Mischung im Modell als in der Realität zustande kommen oder aber in der schlechteren räumlichen Auflösung des Modells gegenüber den Messungen begründet sein.

Einzelne Transport- und Mischungsereignisse wurden in Kapitel 4 mit den vorgestellten Analysemethoden detaillierter untersucht. Im Januar konnten durch den Vortexindex drei Transporte von Luft in den Polarwirbel identifiziert werden. Die weitere Analyse zeigte, dass diese Luftmassen teils im Zuge des Wirbelsplits und der Rekombination im Dezember in den Wirbel gelangt sind. Dort haben sie sich in den 3-4 Wochen bis zur Beobachtung nicht vollständig mit der ursprünglichen Luft des Polarwirbels vermischt, so dass sie durch den Vortexindex noch zu identifizieren waren.

Eines dieser Transportereignisse ist auf ein relativ kleines Filament zurückzuführen, das sich erst wenige Tage zuvor vom Wirbelrand nach innen hin ablöste. Die Ablösung solcher filamentärer Strukturen in den Wirbel hinein ist verschiedentlich beobachtet worden, tritt jedoch sehr viel seltener auf als die Ablösung von Wirbelfilamenten in die „surf zone“ [Waugh und Polvani, 2009].

Im März konnte mit Hilfe des Vortexindex Luft mit „surf zone“-Signatur innerhalb des Wirbels, ca. 10° von der Wirbelgrenze entfernt identifiziert werden. Diese Luftmasse konnte einem Filament zugeordnet werden, welches im Zuge der Rekombination des Wirbels Anfang März zwischen den Wirbelfragmenten eingeschlossen wurde. Ähnlich wie bei Jost et al. (2002) kann auch hier dem Filament eine Mischungssignatur in der F11-N₂O-Korrelation zugewiesen werden. Die Analyse dieser Mischungssignatur zeigt dabei, dass die Luft im Zentrum des Filamentes noch unvermischt erhalten war. Mischung zwischen Polarwirbelluft und Luft aus der „surf zone“ konnte nur am westlichen Rand des Filamentes beobachtet werden.

In den Simulationen des CLaMS Modells liegt das Filament geographisch an der selben Position wie in den Beobachtungen, ist jedoch im Querschnitt (hier longitudinal) weiter ausgedehnt. Auch in der Simulation lässt sich diesem Filament eine Mischungssignatur in der F11-N₂O-Korrelation zuordnen. Im Gegensatz zu der Beobachtung liegen hier jedoch alle Datenpunkte des Filamentes auf der Mischungslinie. Das bedeutet, dass das Filament im Modell, auch im Zentrum bereits stärker vermischt ist als in der Beobachtung. Auch dies ist wieder ein Anzeichen für eine zu schnelle Mischung seitens des Modells.

Eine weitere auffällige Signatur in der Transportanalyse stellten subtropische Luftmassen dar, die bei ca. 60°N gemessen wurden. Diese Luftmassen sind zwei filamentären Strukturen zuzuordnen die sich aus einem tropischen Streamer entwickelt haben. Dieser Streamer löste sich, ähnlich wie in Riese et al. (2002) beschrieben, aus den Tropen und wurde mit der Rotation des Wirbels nach Norden transportiert. Den beobachteten filamentären Strukturen lassen sich wiederum Mischungslinien zwischen den F11-N₂O-Korrelationen in der „surf zone“ und den Tropen zuordnen. Das bedeutet, dass der Streamer und die daraus resultierenden filamentären Strukturen auf ihrem Transport mit der umgebenden Luft in der „surf zone“ vermischt wurden.

In der simulierten F11-N₂O-Korrelation deuten die Mischungslinien auf eine Vermischung dieser subtropischen Luftmassen auch mit Polarwirbelluft hin, die teilweise durch die simulierten passiven Tracer bestätigt wird. Da eine solche Vermischung nicht beobachtet werden konnte, kann dies als weiteres Indiz für eine weitreichende und damit zu schnelle Mischung im Modell sein. Eine weitere Erklärung für diesen Unterschied kann wiederum auch die schlechtere räumliche Auflösung des Modells sein, bei der durch Interpolationen der Eindruck einer zu schnellen Mischung erweckt wird.

Der Vortexindex bietet neben der Transportanalyse und den zusätzlichen Informationen bei der Korrelationsanalyse auch die Möglichkeit den isentropen Transport im Modell zu validieren. Gegenüber einer Validierung durch die Mischungsverhältnisse von Spurengasen, hat der Vortexindex den Vorteil, Aussagen weitgehend unabhängig von der Modellinitialisierung und dem Vertikaltransport im Modell treffen zu können. Eine solche Validierung wurde für den isentropen Transport im CLaMS Modell zwischen Januar und März 2010 durchgeführt. Generell ist die Übereinstimmung zwischen dem simulierten und beobachteten Vortexindex im Rahmen von 0,2 im Mittel ohne erkennbare Abweichung. Außerhalb des Polarwirbels kommt es im März jedoch zu größeren Abweichungen (bis max. 0,6) in einzelnen Strukturen, die wohl auf leichte geographische Fehlplatzierungen von Filamenten in der „surf zone“ im Modell zurückzuführen sind.

Nach dem erstmals von Proffitt et al. (1990; 1993) vorstellten Verfahren wurde in Kapitel 5 eine Abschätzung des Ozonverlustes im Polarwirbel während RECONCILE mit Hilfe einer Analyse der Korrelation zwischen O₃ und N₂O durchgeführt. Die verwendeten O₃-Daten wurden während der RECONCILE-Kampagne mit dem FOZAN-Instrument an Bord der Geophysica gemessen. Eine solche Analyse kann sinnvoll durchgeführt werden, wenn sich im Polarwirbel eine kompakte Korrelation ausgebildet hat und alle Änderungen dieser Korrelation im Analysezeitraum auf den chemischen Ozonverlust und nicht auf dynamische Einflüsse zurückzuführen sind [Müller et al., 2005]. In Kapitel 5 konnte zunächst gezeigt werden, dass diese Bedingungen im Winter 2009/2010 erfüllt waren, wenn man als Referenzkorrelation die Korrelation im Polarwirbel von Anfang Januar zugrunde legt und die in-situ gemessenen Daten mit Hilfe des Vortexindex so filtert, dass durch Mischung beeinflusste Luft ausgeschlossen wird. Die Referenzkorrelation wurde aus ACE-FTS Daten

bestimmt. Die Verwendung einer durch Mischung beeinflussten Referenzkorrelation würde zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes führen [Müller et al., 2005]. Das Herausfiltern der reinen Polarwirbelluftmassen ist notwendig, da es bei Betrachtung von Luftmassen, die im Messzeitraum durch Mischung beeinflusst wurden, ebenfalls zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes kommen würde. Aus der Korrelationsanalyse konnte ein maximaler Ozonverlust in einer Höhe von 490 K mit einem Wert von $1,4 \pm 0,5$ ppm bestimmt werden. Ein signifikanter Ozonverlust setzte ab Ende Januar oberhalb von 420 K ein.

Müller et al. (2005) und Tilmes et al. (2003) zeigen, dass eine Nichtberücksichtigung von Mischungsprozessen bei der Abschätzung des Ozonverlustes aus einer Korrelationsanalyse langlebiger Spurengase zu einer Unterschätzung des chemischen Ozonverlustes führt. Lemmen et al. (2006) zeigen, dass eine solche Nichtberücksichtigung bei dieser Analysemethode für Modelldaten zu einer Unterschätzung von ca. 10% führt. Die gleiche Abschätzung mit der Korrelation im Polarwirbel von November, die durch die Einmischung im Zusammenhang mit dem Split und der Rekombination im Dezember (vgl. Kapitel 3.1) verändert wurde, als Referenz zeigte, dass eine Nichtberücksichtigung der Einmischung in diesem Winter zu einer Unterschätzung des Ozonverlustes um ca. 35% führen würde.

Eine Abschätzung des Ozonverlustes aus der Differenz zwischen O_3 und passivem O_3 erfolgte auch für die Daten des CLaMS - Modells. Im Modell wird der maximale Ozonverlust im Vergleich zu den Messungen um 0,3 ppm unterschätzt. Diese Unterschätzung des Ozonverlustes resultiert vermutlich aus einer Unterschätzung der Chloraktivierung im Modell, sie liegt aber noch im Rahmen der Unsicherheiten dieser Abschätzung.

Die Bestimmung des Ozonverlustes in der Arktis liefert, bedingt durch die Dynamik, für verschiedene Winter sehr unterschiedliche Ergebnisse. So ergab sich für den Winter 1999/2000, zwischen 430 K und 460 K ein Ozonverlust zwischen 1,0 ppm und 1,5 ppm [Rex et al., 2002]. Für den Winter 2004/2005 wurde in einem vergleichbaren Höhenbereich ein Ozonverlust von 60% beobachtet [von Hobe et al., 2006], im Winter 2010/2011 sogar ein Verlust von 80% [Manney et al., 2011]. Der für den Winter 2009/2010 bestimmte Ozonverlust von 36% ist somit ein moderater Ozonverlust, der für die Arktis, je nach dynamischer Situation, jedoch nicht ungewöhnlich niedrig ist.

Diese Studie zeigt also, dass Dynamik in der Arktis zu signifikanten Transport- und Mischungsprozessen über die Polarwirbelgrenze hinweg führen kann. Durch den mit diesen Prozessen einhergehenden Zufluss von O_3 in den Polarwirbel, bestimmt die Dynamik somit auch entscheidend den von Winter zu Winter variierenden O_3 -Verlust in der Arktis.



Anhang A

Kalibration

A.1 Laborkalibration

Die während des Fluges in regelmäßigen Abständen gemessenen Kalibrationsgase (im folgenden als Arbeitsstandards bezeichnet) sind keine Absolutstandards. Über eine Laborkalibration mit Absolutstandards werden die Arbeitsstandards gegen die zertifizierten Absolutstandards einkalibriert. In der folgenden Tabelle sind die von NOAA bestimmten Mischungsverhältnisse der Absolutstandards angegeben. Des weiteren wird mit den La-

Tabelle A.1: Mischungsverhältnisse der Absolutstandards.

	NOAA I	NOAA II	NOAA III	NOAA IV
N ₂ O [ppb]	350,24±0,08	237,00±0,20	162,28±0,11	86,47±0,16
SF ₆ [ppt]	12,07±0,05	9,76±0,03	6,99±0,02	3,08±0,02
F12 [ppt]	531,9±1,5	389,0±0,8	279,8±0,9	154,1±0,6
F11 [ppt]	244,1±0,5	176,1±1,1	121,3±0,6	67,7±0,6
H1211 [ppt]	4,26±0,01	3,09±0,01	2,09±0,01	1,07±0,02
CO ₂ [ppm]	442,52±0,02	409,27±0,02	381,18±0,02	378,56±0,02
CH ₄ [ppb]	1995,6±1,5	1354,2±3,0	935,7±3,0	526,4±3,0

borkalibrationen eine Detektorkennlinie aufgenommen, die die Nicht-Linearität der ECD beschreibt. Durch Vergleich der einzelnen Laborkalibrationen miteinander kann die Stabilität der Arbeitsstandards und der Messungen mit HAGAR geprüft werden.

Die Laborkalibrationen der früheren Kampagnen wurden gegen einen Absolutstandard und eine Verdünnungsreihe durchgeführt, die Laborkalibrationen für RECONCILE wurden gegen 4 Absolutstandards durchgeführt. Dies machte eine Änderung der bisherigen Makros zu Auswertung der Kalibrationen notwendig.

A.1.1 Makro für die Auswertung der Laborkalibrationen

Um zeitgleich mit dem GC auch das LI-COR kalibrieren zu können, welches zur Kalibration zwei Standards braucht, wird die Kalibration für jede Flasche nach folgendem Muster durch geführt: 22 11 22 4444 22 11 22 4444, wobei 2 für den Absolutstandard 1 (Cal), 1 für den Absolutstandard 2 (Span) und 4 für die zu kalibrierende Flasche steht.

Zunächst wird für die Absolutstandards die ermittelte Detektorrespons gegen die Konzentration aufgetragen. An diese Punkte wird eine quadratische Funktion der Form

$$y = a * (\chi - \chi_s)^2 + b * (\chi - \chi_s) + c + 1 \quad (\text{A.1})$$

angefittet, wobei χ die Konzentration der jeweiligen Flasche, χ_s die Konzentration des als Referenzstandard verwendeten Absolutstandards (Cal) und a und b die Fitparameter sind. Für den konstanten Fitparameter gilt: $c = 0$. Die Durchführung einer Koordinatentransformation $x = \chi/\chi_s \rightarrow \chi = x * \chi_s$ liefert folgende Gleichung:

$$\begin{aligned} y &= a(x\chi_s - \chi_s)^2 + b(x\chi_s - \chi_s) + 1 \\ \Leftrightarrow y &= a\chi_s^2 * (x - 1)^2 + b\chi_s * (x - 1) + 1 \\ \Rightarrow y &= a' * (x - 1)^2 + b' * (x - 1) + 1 \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

mit den neuen Fitparametern $a' = a * \chi_s^2$ und $b' = b * \chi_s$. Um nun die Konzentrationen der zu kalibrierenden Flaschen, deren Detektorrespons durch die Kalibration bekannt ist, zu bestimmen wird die Nullstelle des Polynoms (A.2) unter sinnvollen Randbedingungen berechnet:

$$0 = a' * (x - 1)^2 + b' * (x - 1) + c + 1 - y$$

Ausmultiplizieren liefert:

$$\begin{aligned} 0 &= a' * x^2 - 2a'x + a' + b'x - b' + c + 1 - y \\ &= a' * x^2 + (b' - 2a') * x + a' - b' + c + 1 - y \\ &\Rightarrow 0 = \tilde{a} * x^2 + \tilde{b} * x + \tilde{c} \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

mit $\tilde{a} = a'$, $\tilde{b} = b' - 2a'$ und $\tilde{c} = c + a' - b' + 1 - y = a' - b' + 1 - y$.

Die Lösung des Polynoms A.3 mit den neuen Parametern a^* , b^* und c^* ist x. Mit Hilfe der bekannten Referenzstandardkonzentration χ_s kann daraus die gesuchte Konzentration χ berechnet werden.

Mit den auf diese Weise ermittelten Konzentrationen der Arbeitsstandards können die Außenluftkonzentrationen berechnet werden.

Die benötigte Nicht-Linearität des ECD wird durch den Fit (Gleichung (A.1)) beschrieben.

A.1.2 Ergebnisse der Laborkalibration

Im Umfeld der RECOFILE-Kampagne sind drei Laborkalibrationen durchgeführt worden. In der folgenden Tabelle A.2 sind die Ergebnisse dieser Kalibrationen für die Arbeitsstandards Cal und Span aufgeführt.

Tabelle A.2: Ergebnisse der Laborkalibrationen für Cal und Span

	091222 Cal	100728 Cal	101007 Cal	091222 Span	100728 Span	101007 Span
CH ₄ [ppb]	1856,440±6,19	1835,110±10,575		1002,680±7,701	947,181±3,945	
SF ₆ [ppt]	5,780±0,043	5,550±0,042	5,825 ± 0,026	3,732±0,066	3,647±0,019	3,712±0,026
H ₂ [ppb]	519,620 ±2,578	519,620± 3,502		268,013±1,970	276,329±4,482	
N ₂ O [ppb]	318,950	318,950	318,950	158,044±0,158	158,380±0,187	157,422±2,072
F12 [ppt]	540,656± 0,650	536,630± 0,944	537,845±1,763	262,827±0,350	258,225±0,573	259,382±1,050
H1211 [ppt]	5,311±0,057	5,321± 0,042	5,374 ±0,125	2,389±0,081	2,318±0,043	2,388±0,093
F11 [ppt]	253,675± 0,562	254,870± 0,291	252,821± 0,685	116,070±0,304	113,720±1,892	114,030±1,299
CO ₂ [ppm]	392,46± 0,05	392,29 ±0,08	391,96± 0,23	372,75±0,05	372,25±0,17	372,10±0,65

Im Rahmen der Laborkalibration wurden neben den Arbeitskalibrationsgasen Cal und Span noch weitere alte Standards vermessen, um so die Stabilität der HAGAR-Messungen bestimmen zu können und gesicherte Werte für den, für die Kampagne neu hergestellten Span, angeben zu können. Durch Vergleiche der Ergebnisse dieser Laborkalibrationen mit den Ergebnissen der Laborkalibrationen im Rahmen früherer Kampagnen, für die alten Standardgase konnte festgestellt werden, dass das von NOAA für N₂O angegebene Mischungsverhältnis des Absolutstandards NOAA I (s. Tabelle A.1) zu hoch sein muss. Bei der Auswertung der Laborkalibrationen für N₂O wurde daher, anstelle des NOAA I Wertes, der für die AMMA-Kampagne ermittelte, Wert des Cal als oberer Fixpunkt für den quadratischen Fit verwendet. Der Absolutstandard NOAA I wird für N₂O wie ein Arbeitsstandard behandelt und sei Mischungsverhältnis bestimmt. Die Ergebnisse für den N₂O-Wert des NOAA I aus den drei Laborkalibrationen für RECONCILE und den zwei Laborkalibrationen für ESSENCE sind in der folgenden Tabelle A.3 aufgelistet.

Tabelle A.3: N₂O Konzentrationen für NOAA I

Kalibrationsdatum	Konzentration [ppb]
20100728	342,325 ± 0,310
20101007	342,319 ± 1,018
20111004	340,006 ± 2,572
20111007	338,190 ± 0,950

Wie in Tabelle A.1 ersichtlich, liegen für die Absolutstandards keine H₂-Mischungsverhältnisse vor. Die Bestimmung der H₂-Mischungsverhältnisses des neu hergestellten Spans wurde daher mit den bei der AMMA -Kampagne verwendeten Arbeitsstandards durchgeführt. Die Unterschiede in den Mischungsverhältnissen bei SF₆ in den Kalibrationen vom 22.12.2009 und 28.7.2010 sind auf unterschiedlich stark konzentriertes Dopinggas (N₂O) zurückzuführen. Um den Einfluss des Dopinggases auf den SF₆-Peak zu eliminieren wurde die Kalibration am 7.10.2010 ohne Doping des ersten Chromatographiekanals durchgeführt, weshalb für diese Kalibration keine Werte für CH₄ und H₂ vorliegen. Die Spurengas-Mischungsverhältnisse der Arbeitsstandards, die für die Prozessierung der Flugdaten verwendet wurden sind in Tabelle A.4 aufgelistet. Die Werte beider Arbeitsstandards für F12, F11, H1211* und der Span-Wert von N₂O wurden durch Mittelwertbildung über die drei Kalibrationen, der Span-Wert von H₂ durch Mittelwertbildung über die zwei Laborkalibrationen ermittelt. Als Cal-Werte für N₂O und H₂ wurde der für die AMMA-Kampagne ermittelte Wert verwendet. Die verwendeten SF₆-Mischungsverhältnisse stammen aus der Kalibration vom 7.10.2010 und für CH₄ aus der Kalibration vom 28.7.2010. Da die Dopinggaskonzentration auch einen Einfluss auf CH₄ hat wurde die Kalibrationen verwendet die mit der selben Dopinggaskonzentration durchgeführt wurde wie die Kampagne. Die Nicht-Linearitätskurven werden für alle Substanzen außer SF₆ aus der Kalibration vom 28.7.2010 genommen, für SF₆ wird die Kurve aus der Kalibration am 7.10.2010 verwendet. Für CO₂ wird für den Cal die Kalibration vom 28.7.2010 verwendet, ihr Wert stimmt mit dem für dieses Gas bestimmten Wert für die AMMA-Kampagne und den Messungen mit

Tabelle A.4: Konzentration der Arbeitsstandards für RECONCILE

	Cal	Span
CH ₄ [ppb]	1835,110	947,181
SF ₆ [ppt]	5,825	3,712
H ₂ [ppb]	519,62	272,171
N ₂ O [ppb]	318,95	157,949
F12 [ppt]	538,384	260,145
F11 [ppt]	253,789	114,67
H1211* [ppt]	5,302	3,712
CO ₂ [ppm]	392,29	272,73 (372,85)

einem anderen LI-COR überein. Für den Span wird der Mittelwert über die drei Labor-kalibrationen gebildet. Die Einzelmessungen stimmen in Rahmen der Fehler überein und die Messungen von Gasen vergleichbarer, bekannter Konzentration zeigen eine gute Messgenauigkeit. Für die zweite Phase der Kampagne wird der in Klammern angegebene aus den Kampagnenkalibrationen ermittelte Wert verwendet (siehe Abschnitt A.2.2). Das angegebene Mischungsverhältnis H1211* ist das Mischungsverhältnis, dass dem Peak H1211 + F114 im Chromatogramm zugewiesen wird (Details siehe Abschnitt A.1.3).

A.1.3 H1211-Korrektur

Der H1211-Peak ist bei den verwendeten Chromatographieparametern überlagert durch einen F114-Peak. Zur Bestimmung der H1211-Mischungsverhältnisse muss der Beitrag von F114 zu diesem Peak korrigiert werden. F114 hat eine atmosphärische Lebensdauer von 300 Jahren [WMO, 2010] und wird in der Troposphäre und unteren Stratosphäre nicht abgebaut. Der Beitrag den F114 zu dem gemessenen Peak kann also als konstant angesehen werden. Die Mischungsverhältnisse von H1211 gehen im Polarwirbel hingegen auf 0 zurück. Um den Korrekturterm zu bestimmen wird wie folgt vorgegangen. Zunächst werden mit dem H1211 Mischungsverhältnis der Absolutstandards, wie für alle anderen Spezies auch, die Mischungsverhältnisse in den Arbeitsstandards und der Flüge berechnet. Für die Flüge, insbesondere im März, bei denen Messungen im Polarwirbel durchgeführt wurden, wird dann ein Korrekturterm ermittelt, der von den Mischungsverhältnissen subtrahiert, diese im Polarwirbel auf 0 bringt. Dieser Korrekturterm beschreibt also den Anteil von F114 am gemessenen Peak. Da aber auch in den Standards H1211 und F114 vorkommen, wird also auch bei den Standardmessungen der Peak H1211 + F114 betrachtet. Um das zu berücksichtigen wird dann der ermittelte Korrekturterm anteilig je nach Verdünnungsgrad des Absolutstandards auf das H1211-Mischungsverhältnis aufaddiert. Mit diesem H1211* (= H1211 + F114) werden dann die H1211*-Mischungsverhältnisse der Arbeitsstandards (vgl. Tabelle A.4) und der Flüge berechnet. Für die Flüge wird dann der Korrekturterm wieder subtrahiert um das H1211-Mischungsverhältnis zu erhalten. Dieses Verfahren wird iterativ so lange durchgeführt, bis ein Korrekturterm gefunden wurde, der die H1211 Mi-

schungsverhältnisse sinnvoll korrigiert. Die Korrektur wird mit Hilfe der H1211-N₂O (oder H1211-F12) Korrelation überprüft.

A.2 Kampagnenkalibrationen

Wie oben beschrieben, werden während eines Fluges regelmäßig Kalibrationsgase vermessen. Die dazu mitgeführten Kalibrationsgase sind Abfüllungen der Arbeitsstandards Cal und Span und werden im folgenden als Flugstandards bezeichnet. Da beim Abfüllen der Arbeitsstandards in die Flugflaschen Fehler auftreten können und die Gase in den Flugflaschen driften können, werden über den Kampagnenzeitraum regelmäßig Kalibrationen der Flugstandards gegen die Arbeitsstandards durchgeführt, die ihrerseits gegen die Absolutstandards kalibriert sind. Des weiteren kann so die Stabilität der Messungen im Kampagnenzeitraum kontrolliert werden.

A.2.1 Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den GC

In den folgenden Grafiken sind die Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen des GC für die beiden Flugstandards dargestellt. In jeder Kalibration wurden pro Standard 10 GC-Zyklen betrachtet und über diese 10 Messungen gemittelt.

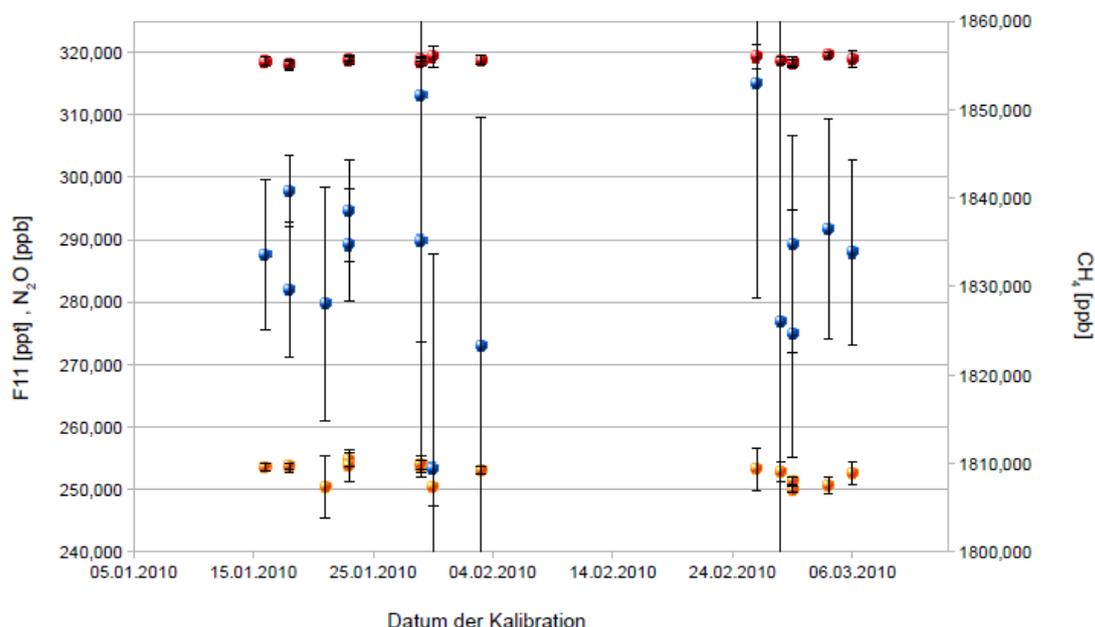


Abbildung A.1: Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Cal für N₂O (blau), CH₄ (rot) und F11 (orange). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.

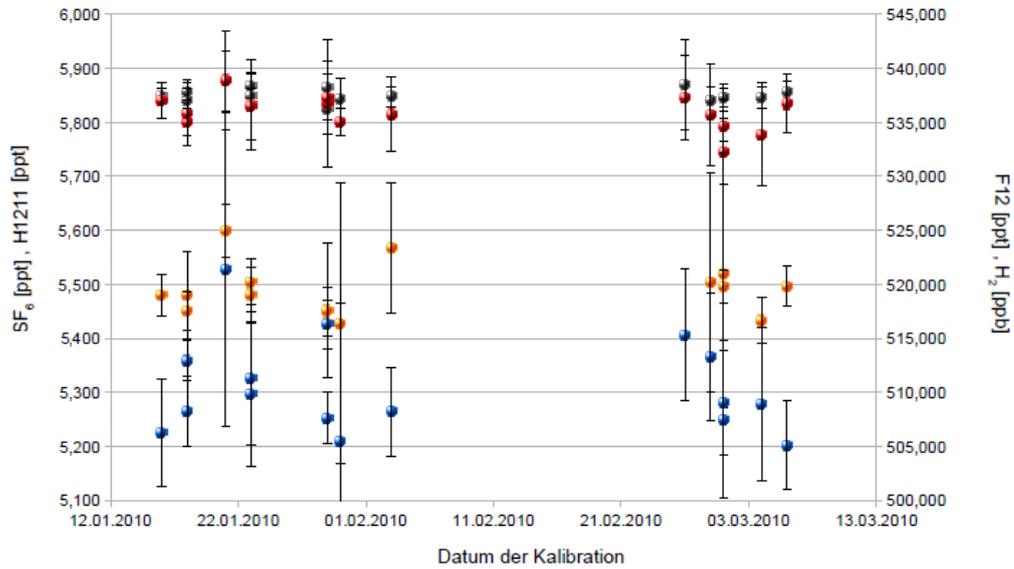


Abbildung A.2: Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Cal für H₂ (orange), H1211 (blau), F12 (grau) und SF₆ (rot). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.

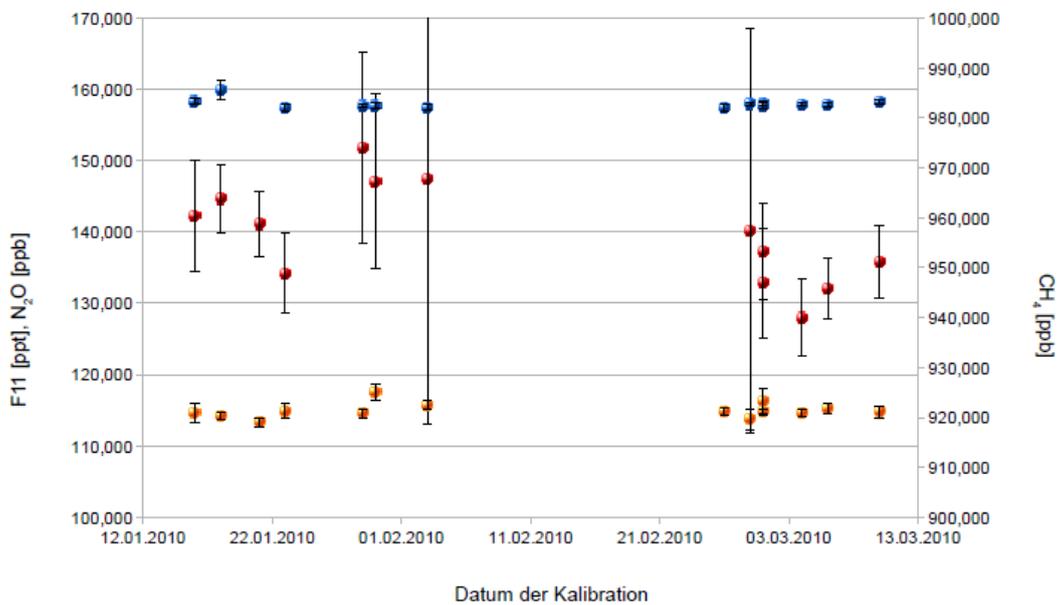


Abbildung A.3: Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Span für N₂O (blau), CH₄ (rot) und F11 (orange). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.

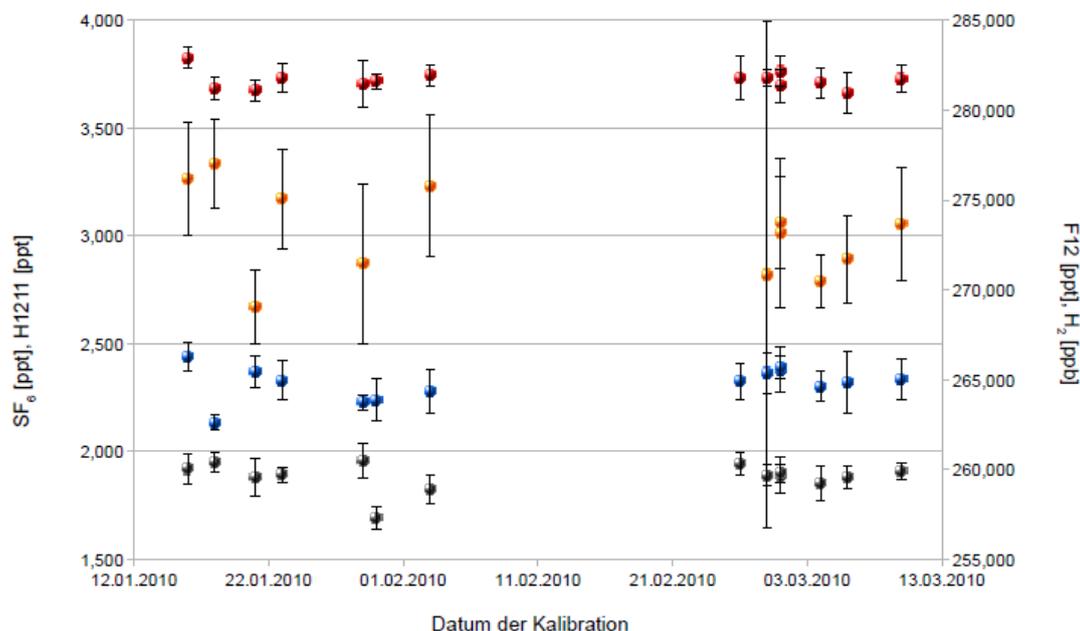


Abbildung A.4: Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Span für H₂ (orange), H1211 (blau), F12 (grau) und SF₆ (rot). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.

Jeder der hier gezeigten Datenpunkte ist der Mittelwert über 10 GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung dieser 10 Messungen an. Die auftretenden Schwankungen liegen für beide Kalibrationsgase und alle Spezies im Rahmen der Fehlerbalken. Die sehr großen Fehlerbalken für CH₄ und H₂ am Ende der ersten Phase und zu Beginn der zweiten Phase sind bedingt durch sehr stark verdünntes N₂O-Dopinggas während dieser Messungen.

Da für keine Spezies signifikante Trends über den Kampagnenzeitraum oder eine Abhängigkeit vom Befüllen der Flugflaschen festgestellt wurde wurden für die Prozessierung der Flugdaten die, aus den Laborkalibrationen für die Arbeitsstandards bestimmten, Mischungsverhältnisse herangezogen. Eine systematische Drift der Mischungsverhältnisse über den Kampagnenzeitraum kann nicht festgestellt werden.

A.2.2 Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für das LI-COR

In den Graphiken A.5 und A.6 sind die Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für die Flugstandards Cal und Span dargestellt. Die dargestellten Punkte sind jeweils eine Mitte-

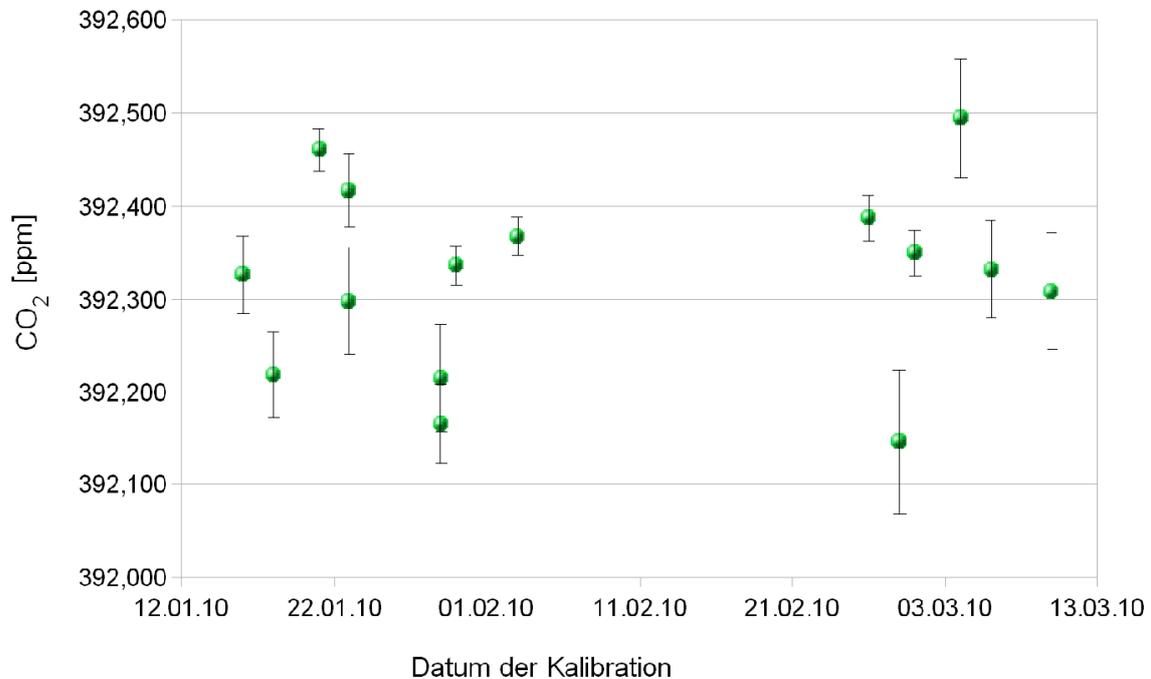


Abbildung A.5: Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Cal für CO₂. Die einzelnen Punkte stellen jeweils eine Mittelung über 15 min dar, die Fehlerbalken kennzeichnen die Standardabweichung.

lung über 15 min (10 GC -Zyklen), die Fehlerbalken kennzeichnen die Standardabweichung. Die Messungen des Flugcal zeigen keine Driften über den Kampagnenzeitraum hinweg. Sie schwanken im Rahmen der Fehler um den nominellen Wert von 392,29 ppm. Die Schwankungsbreite beträgt 0,25 ppm.

Bei den Messungen des Flugspan ist erkennbar, dass die Änderung der Kalibrationsmethode weg von 2 Arbeitsspanmessungen zu Beginn und Ende der gesamten Messreihe hin zu Arbeitsspanmessungen nach Messung jedes zu kalibrierenden Gases Auswirkungen auf die Daten hat. Bei der Kalibration mit nur je einem Spanpunkt zu Beginn und Ende der gesamten Kalibration können eventuell auftretende Driften über den Messzeitraum nicht berücksichtigt werden, die Messungen haben daher eine größere Ungenauigkeit. Daher werden die Kalibrationen der ersten Phase nicht berücksichtigt und für die Auswertung der Flüge der nominelle Wert von 372,73 ppm verwendet. Die Kampagnenkalibrationen in dieser Phase zeigen aber auch keinen signifikanten Trend und ihr Mittelwert stimmt im Rahmen seines Fehlers mit dem nominellen Wert überein. Die Kampagnenkalibrationen der zweiten Phase stimmen in sich sehr gut überein weichen aber vom nominellen Wert ab. Eine mögliche Erklärung für diese Abweichung ist ein Abfüllfehler beim Befüllen der

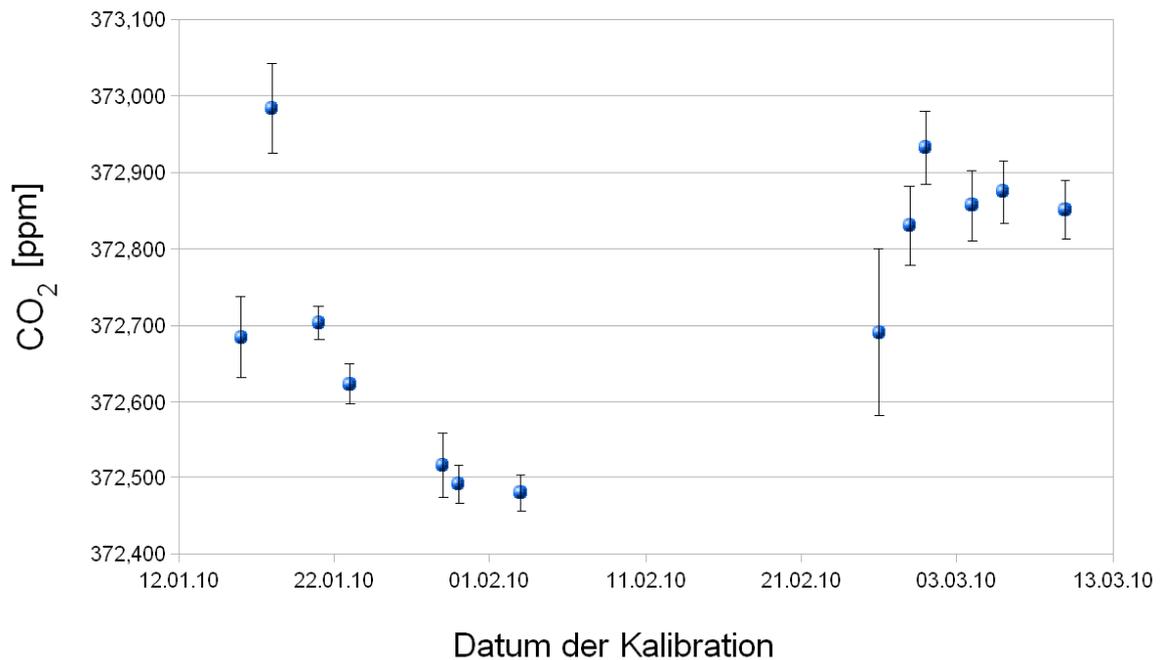


Abbildung A.6: Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Span für CO₂. Die einzelnen Punkte stellen jeweils eine Mittelung über 15 min dar, die Fehlerbalken kennzeichnen die Standardabweichung.

Flugflasche. Auf Grund der guten Präzision dieser Messungen wird zur Auswertung der Flüge der zweiten Phase der Mittelwert der Kampagnenkalibrationen $372,85 \pm 0,1$ ppm der zweiten Phase verwendet.

Anhang B

CO₂-Fehler

Die Unsicherheit der CO₂-Messungen setzt sich hauptsächlich aus 3 Einzelfehlern zusammen: 1. Elektronisches Rauschen, 2. langsame Schwankungen des LI-COR (auf Zeitskalen von Minuten, die durch die Kalibrationen im 15-Minutentakt nicht korrigiert werden können) und 3. Fehler der Laborkalibrationen für Flugkalibrationsgase. Das elektronische Rauschen wird anhand des Signals während der regelmäßigen Cal-Messungen bestimmt. Ein Maß für die langsameren Schwankungen ergibt sich aus den Schwankungen einer rechnerischen Größe \tilde{P} (mit Einheit hPa), die sich aus den Cal- und Span-Kalibrationen während des Fluges bestimmen lässt (vgl. Riediger, 2000). Der Fehler der CO₂-Mischungsverhältnisse der Flugkalibrationsgase wird anhand der Reproduzierbarkeit der regelmäßigen Kalibrationen dieser Gase während der Kampagne gegen einen Arbeitsstandard bestimmt (siehe A.2). Es wird dabei durch Fehlerfortpflanzung ein Fehler aus den Kalibrationen für Cal und Span ermittelt. Die drei berechneten Fehlerterme werden mittels Gaußscher Fehlerfortpflanzung zu einem Gesamtfehler aufaddiert. Die einzelnen Beiträge zum Gesamtfehler und der Gesamtfehler sind in der folgenden Tabelle aufgeführt. Der Fehler der Flugflaschen wurde aus den Kampagnenkalibrationen ermittelt und ist die Standardabweichung der Flugcal-Messungen in diesen Kalibrationen.

Tabelle B.1: Unsicherheiten der CO₂ Messungen und die sich daraus ergebende Gesamtunsicherheit für die einzelnen Flüge

	Druckfehler [ppm]	Rauschen [ppm]	Rauschen gefiltert [ppm]	ges. Fehler [ppm]	ges. Fehler gefiltert [ppm]	Fehler inkl. Flugflaschen [ppm]	Fehler inkl. Flugflaschen gefiltert [ppm]
1	0,29	0,10	0,07	0,30	0,30	0,32	0,31
2	0,25	0,07	0,06	0,26	0,26	0,28	0,28
3	0,14	0,13	0,08	0,19	0,16	0,22	0,19
4	0,16	0,13	0,08	0,20	0,18	0,23	0,21
6	0,06	0,16	0,05	0,17	0,08	0,19	0,13
7	0,05	0,09	0,07	0,10	0,08	0,14	0,13
8	0,07	0,05	0,05	0,09	0,09	0,14	0,13
9	0,09	0,05	0,04	0,10	0,10	0,14	0,14
10	0,06	0,05	0,05	0,08	0,08	0,13	0,13
11	0,04	0,05	0,05	0,07	0,07	0,12	0,12
12	0,05	0,09	0,06	0,11	0,08	0,15	0,13
13	0,06	0,13	0,06	0,14	0,09	0,17	0,13

Anhang C

Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS)

Das „Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere“ (CLaMS) wird vom Institut für Chemie und Klimaforschung Bereich Stratosphäre (IEK-7) des Forschungszentrums Jülich, zunächst als zweidimensionales Chemie-Transport-Modell [McKenna 2002a, McKenna 2002b] seit 2004 als dreidimensionales Chemie-Transport-Modell [Konopka et al., 2004] betrieben. Das Modell basiert auf isentropen Flächen. Der Spurengastransport in CLaMS erfolgt nach einem lagrangeschen Transportschema und bietet damit die Möglichkeit zur Auflösung kleinskaliger Strukturen, die von eulerschen Modellen auf Grund numerischer Diffusion nicht wiedergegeben werden können [McKenna et al., 2002a]. Ausgangspunkt der Simulationen ist ein räumlich quasi-gleichmäßig verteiltes Ensemble von Luftpaketen auf einem zeitabhängigen irregulären Gitter. Der Transport der Luftpakete im Modell erfolgt in zwei Schritten, durch Advektion und durch Mischung. Beim advektiven Teil des Transportes bewegen sich die Luftpakete entlang von Trajektorien, die unter Verwendung von meteorologischen Windfeldern berechnet werden. In den in dieser Arbeit verwendeten Simulationen werden dazu ECMWF-ERA-40 Reanalysedaten des European Center for Medium-range Weatherforecast (ECWMF) verwendet. In der Erweiterung auf drei Dimensionen wird die Vertikalbewegung in CLaMS durch Strahlungstransport berechnet [Konopka et al., 2004]. Nach jedem Zeitschritt wird die neue Verteilung der Luftpakete berechnet. Nach einiger Zeit kann es zu Clusterbildung oder Dispersion der Luftpakete kommen. Um das zu verhindern wird nach jedem Advektionsschritt der Abstand zwischen den benachbarten Luftpakete berechnet und mit einer kritischen Minimal- und Maximaldistanz verglichen. Ist der Abstand zweier Luftpakete zu einander kleiner als diese kritische Minimaldistanz werden die beiden Luftpakete gelöscht und ein neues mit den gemittelten Eigenschaften der vorherigen gebildet. Das bedeutet die beiden Luftpakete wurden miteinander vermischt. Wird der Abstand zweier benachbarter Luftpakete größer als die Maximaldistanz wird zwischen den beiden Luftpaketen ein neues Luftpaket gebildet, welches ebenfalls die gemittelten Eigenschaften der beiden Ausgangsluftpakete enthält. Durch diesen dynamischen Gitteralgorithmus wird das quasi-gleichmäßige Gitter erhalten und Mischungsprozesse zwischen den Luftpaketen werden simuliert. Die kritischen Distanzen

sind hauptsächlich vom sog. Lyapunov-Exponenten abhängig [vgl. McKenna 2002a; Konopka, 2004]. Der Lyapunov-Koeffizient beschreibt eulersche Flussänderungen, wie horizontale Deformation oder horizontale Scherung. Ein kleiner Wert des Lyapunov-Koeffizienten bedeutet starke Mischung im Modell und umgekehrt. In dieser Arbeit wurden Simulationen mit einem Lyapunov-Koeffizienten von $1,5 \text{ Tag}^{-1}$ verwendet.

Die Verwendung der sog. hybriden potenziellen Temperatur ζ , die in der Stratosphäre identisch mit der potenziellen Temperatur Θ ist und deren Isolinien in der Troposphäre parallel zu den Isobaren verlaufen, erlaubt die Erweiterung des Modells um die Tropopausenregion und die Troposphäre [Konopka et al., 2007].

Neben der Dynamik der Stratosphäre wird in CLaMS mit Hilfe eines Chemiemoduls auch die Chemie der Stratosphäre simuliert [McKenna, 2002b]. Das aktuell verwendete Chemiemodul ist eine Weiterentwicklung des bei McKenna et al. (2002b) beschriebenen und enthält 48 Spezies und 144 Reaktionen. Die Initialisierung der chemischen Spurengase erfolgt über Höhenprofile gemessen von Satelliteninstrumenten wie ACE-FTS, MLS (Microwave Limb Sounder; Waters et al., 2006) und MIPAS-ENV (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding-Envisat; Fischer et al., 2008). Spurengase die von diesen Instrumenten nicht gemessen werden, werden über Korrelationen mit z.B. N_2O initialisiert. Die Initialisierung für alle verwendeten Läufe erfolgte sowohl für die Chemie als auch die Dynamik am 1.12.2009. Zusammen mit den chemischen Tracern werden, je nach dem modified potential vorticity (mPV) Wert an der Startposition, verschiedene passive dynamische Tracer initialisiert, die während der Simulation Advektion und Mischung durchlaufen aber keinen chemischen Prozessen unterliegen [Günther et al., 2008].

Anhang D

Größen zur quantitativen Beschreibung der Atmosphäre

D.1 Potentielle Temperatur

Ausgangspunkt für die formale Herleitung (nach Wallace und Hobbs, 2006) der potentiellen Temperatur ist der erste Hauptsatz der Thermodynamik:

$$ds = C_p dT - \alpha dp \quad (\text{D.1})$$

wobei S die Entropie eines Luftpaketes mit dem Volumen und der Temperatur T ist, C_p die Wärmekapazität des Luftpaketes bei konstantem Druck und α das spezifische Volumen von 1kg Gas bei einem Druck p und einer Temperatur T ist. Durch einsetzen der idealen Gasgleichung in Gleichung D.1 erhält man:

$$dS = \frac{C_p}{R} \frac{dT}{T} - \frac{dp}{p} \quad (\text{D.2})$$

Für eine adiabatische Bewegung des Luftpaketes gilt: $dS = 0$. Durch Integration von Gleichung D.2 in den Grenzen p_0 und p bzw. θ und T wird aus D.2 die Poisson Gleichung:

$$\frac{T}{p^{R/C_p}} = \text{const} \quad (\text{D.3})$$

Als potentielle Temperatur wird nun die Größe

$$\Theta = T * \left(\frac{p_0}{p} \right)^{R/C_p} \quad (\text{D.4})$$

definiert, wobei p_0 in der Regel der Standarddruck ist. Auf isentropen Flächen ist die potentielle Temperatur also eine Erhaltungsgröße. Anschaulich ist die potentielle Temperatur Θ die Temperatur, die ein Luftpaket der Temperatur T und des Druckes p annehmen wür-

de, wenn es adiabatisch auf NN gebracht würde. Da die Stratosphäre stabil geschichtet ist nimmt Θ in der Stratosphäre monoton mit zunehmender Höhe zu kann als Höhenkoordinate verwendet werden.

D.2 Potential vorticity PV

Die Definition der potential vorticity PV erfolgt nach Ertel (1942). Unter der Annahme, dass ein adiabatischer und reibungsfreier Fluss betrachtet wird lautet Kelvins Zirkulationstheorem wie folgt:

$$\frac{d}{dt} ((\xi + f)\delta A_\theta) = 0 \quad (\text{D.5})$$

mit dem Coriolisparameter $f = 2\Omega \sin(\phi)$, wobei Ω die Winkelgeschwindigkeit der Erde ist, und der relativen vorticity $\xi = \lim_{A \rightarrow 0} \left(\oint \vec{v} d\vec{l} \right) / A = \frac{\delta C}{\delta A}$. Da in diesem System die Masse erhalten bleiben muss, gilt auf einer konstanten Θ - Fläche $\delta A = -g * \frac{\partial \Theta}{\partial p}$. Einsetzen liefert

$$\frac{d}{dt} \left((\xi + f) * \left(-g * \frac{\partial \Theta}{\partial p} \right) \right) = 0 \quad (\text{D.6})$$

Der Ausdruck

$$(\xi + f) * \left(-g * \frac{\partial \Theta}{\partial p} \right) \equiv PV \quad (\text{D.7})$$

ist dabei definiert als potentielle vorticity.

Die potentielle vorticity PV ist also eine Erhaltungsgröße für adiabatische und reibungsfreie Bewegungen. In der Stratosphäre bleibt sie für etwa 10 Tage erhalten [Holton, 2004 Kapitel 4]. Auf Grund der PV-Erhaltung für Bewegungen entlang einer isentropen Fläche, enthält das PV-Feld auf einer konstanten Θ - Fläche wichtige Informationen über die Dynamik der Atmosphäre, beispielsweise wird über den Gradienten im PV-Feld die äußere Grenze des Polarwirbels bestimmt.

Durch den Term $\frac{\partial \Theta}{\partial p}$ ist die PV eine höhenabhängige Größe und dadurch für viele Anwendungen eine komplizierte Größe. Um die Höhenabhängigkeit zu eliminieren wird die PV skaliert und man erhält die modified PV [Lait,1994, Müller und Günther, 2003]:

$$\Pi_\epsilon = \left(\frac{\Theta}{\Theta_0} \right)^{-\epsilon} PV \quad (\text{D.8})$$

Θ_0 ist eine Konstante um die potentielle Temperatur zu skalieren und hat in der Regel einen Wert zwischen 400 K und 500 K. Der Parameter ϵ wird so gewählt, dass der exponentielle Anstieg von $\partial \Theta / \partial p$ mit zunehmender Höhe kompensiert wird. Für eine isotherme Atmosphäre kompensiert $\epsilon = 9/2$ exakt den exponentiellen $\partial \Theta / \partial p$ Anstieg von PV (Müller und Günther, 2003].

D.3 Äquivalente Breite

PV-Isoplethen, werden sowohl durch dynamische Prozesse wie Rossby und planetare Wellen als auch diabatische Prozesse, also Strahlungsheizung oder- kühlung beeinflusst [Holton, 2004 Kapitel 4; McIntyre und Palmer, 1983; Nash, 1996]. Stellt man die PV-Isoplethen in geographischen Breiten- und Längenkoordinaten dar, sieht man dass sie keine Kreise um Nord- oder Südpol bilden, sondern stark deformierte komplizierte Muster zeigen. Zur besseren Darstellbarkeit regularisiert man die PV-Isoplethen indem man wie folgt eine äquivalente Breite (engl. equivalent latitude) definiert [Butchart und Remsberg, 1986]:

$$\varphi_e = \varphi_e(\Theta, P^*, t) = 90^\circ \cdot \left(1 - \frac{1}{A_{eq}} \int_{\Theta=const} \Theta(P - P^*) dA \right) \quad (D.9)$$

Die Integration zur Regularisierung erfolgt über ein Raumelement dA einer isentropen Fläche, $\Theta(x)$ ist eine Stufenfunktion, die als $\Theta(x)=1$ für $x \geq 0$ und 0 für $x < 0$ definiert ist und $A_{eq} = 2\pi R^2$ wobei R der Erdradius ist. φ_e ist also die relative Fläche der durch die Isolinie $P = P^*$ eingeschlossenen isentropen Fläche, normalisiert durch A_{eq} und angegeben in $^\circ N$ bzw. $^\circ S$ analog zur geographischen Breite. Die angegebene Gleichung D.9 gilt in dieser Form für die Nordhemisphäre, für die Südhemisphäre muss vor die 90° ein negatives Vorzeichen und das Argument der Stufenfunktion muss durch $P^* - P$ ersetzt werden.

φ_e erlaubt nun die Darstellung der asymmetrischen Isoplethen als zonal symmetrische Konturen auf einer isentropen Fläche unter Erhaltung der durch die Isoplethen eingeschlossenen Fläche. Damit ist φ_e , wie Θ , eine quasi-isentrope Erhaltungsgröße und φ und Θ bilden eine wohldefinierte Koordinatenbasis zur Analyse dynamischer Prozesse in der Stratosphäre.

D.3.1 Nash Kriterium für die Polarwirbelgrenze

Eine klassische Definition der Polarwirbelgrenze erfolgt nach dem von Nash (1996) aufgestellten Kriterium über eine Analyse der PV. Die Wirbelgrenze ist hier definiert als der Ort des maximalen Gradienten in der potential vorticity, bestimmt durch die Bedingung

$$\frac{\partial^2 PV}{\partial \varphi_e^2} \Big|_{\varphi_e = \varphi_e^{v.e.}} = 0 \quad (D.10)$$

Zusätzlich muss in der Nähe dieses Ortes auch ein Maximum der lokalen Windgeschwindigkeit liegen. Die Orte der inneren $\varphi_e^{i.v.e.}$ und äußeren $\varphi_e^{o.v.e.}$ Wirbelgrenze werden über die Wendepunkte

$$\frac{\partial^3 PV}{\partial \varphi_e^3} \Big|_{\varphi_e = \varphi_e^{i.v.e.}} = \frac{\partial^3 PV}{\partial \varphi_e^3} \Big|_{\varphi_e = \varphi_e^{o.v.e.}} = 0 \quad (D.11)$$

bestimmt.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Schematische Darstellung der globalen Zirkulation in der mittleren Atmosphäre. Die Brewer-Dobson-Zirkulation ist dargestellt durch die dicken weißen Pfeile; die orangefarbenen Pfeile stellen die Mischung entlang isentroper Flächen dar. Die vertikalen grünen Streifen kennzeichnen die Transportbarrieren in den Tropen und am Winterpol. Die horizontale blaue Linie kennzeichnet die Tropopause [Schmidt et al., 2001].	2
1.2	Geographische Verteilung des Gradienten der N_2O -Mischungsverhältnisse mit der äquivalenten Breite aus CLaMS am 24.12.2009. Als schwarze Linie eingezeichnet ist die Position der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) für diesen Tag, die gestrichelten Linien kennzeichnen die Positionen der inneren und äußeren Wirbelgrenze (siehe C.3.1). Die dünnen Linien stellen Isolinien der mPV dar (Details siehe C.2).	7
1.3	(a) Schematische Darstellung der Tracer - Isoplethen in den Tropen, mittleren Breiten und dem Polarwirbel für verschiedene potenzielle Temperaturen θ (siehe C.1); (b) Schematische Darstellung der sich ausbildenden Korrelationskurven bei Auftragung der Mischungsverhältnisse χ_1 und χ_2 zweier langlebiger Spurengase in den einzelnen durch Transportbarrieren getrennten Bereichen der Stratosphäre [Plumb, 2007].	8
1.4	(a) Mischung zwischen Luft aus mittleren Breiten und Polarwirbelluft im geographischen Raum und (b) in Tracerkoordinaten als Mischungslinien zwischen Korrelationskurven; (c) Mischung innerhalb des Polarwirbels im geographischen Raum und (d) als Mischungslinien zwischen Korrelationskurven im Tracerraum [Ray et al., 2002].	9
2.1	Gaslaufplan für HAGAR. Der Weg des Trägergases Stickstoff ist in schwarz eingezeichnet, die der Kalibrationsgase in blau (Cal) und gelb/grün (Span) und der des Probenflusses in rot [Werner, 2007].	16
2.2	Flugrouten der RECONCILE- und PREMIER-EX-Kampagne [von Hobe et al., 2012].	21
2.3	M55-Geophysica beim Start, Kiruna, Schweden Februar 2010.	24

2.4	Direkter Vergleich der korrigierten (blaue Rauten) und unkorrigierten (rote Rauten) N ₂ O-Daten für Flug 6. Die grünen Dreiecke kennzeichnen die Spannungsmessungen, die blauen die Calmessungen, die Cal-to-Pump-Messungen sind als schwarze Kreise dargestellt. In rot ist der Pumpenfluss eingezeichnet, mit dem der Offset zwischen Cal und Cal-to-Pump skaliert wird.	28
2.5	Lineare Korrektur der Flussabhängigkeit des LI-COR-Signals. In schwarz ist der Fluss durch das LI-COR eingezeichnet, in rot das LI-COR-Originalsignal und blau das flusskorrigierte LI-COR-Signal.	29
2.6	Flussabhängige Korrektur der CO ₂ Abreicherung. In rot ist das LI-COR-Originalsignal, in blau ist das korrigierte Signal dargestellt. Mit eingezeichnet sind die zur Korrektur benötigten Flüsse, der Pumpenfluss in grün, der Fluss während der Cal-to-Pump-Messungen in schwarz. In pink ist das LI-COR Signal der Cal-to-Pump Messungen eingezeichnet, in gelb ist das LI-COR Signal der Cal-Messungen eingezeichnet.	31
3.1	Entwicklung des arktischen Polarwirbels im Winter 2009/2010 anhand des PV-Feldes bei einer potenziellen Temperatur von 430 K. Die pinkfarbene Linie kennzeichnet die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996). Ab dem 17.1.2010 in weiß eingezeichnet der projizierte Flugpfad der Geophysica für den jeweiligen Tag.	35
3.2	Verteilung der N ₂ O-Mischungsverhältnisse auf der Nordhemisphäre (>40°N) für den 17.1., 10.2. und 10.3.2010 wie sie durch CLaMS auf einer potenziellen Temperatur von 450 K simuliert wurden. In pink ist die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) eingezeichnet.	36
3.3	N ₂ O Höhenprofile (Höhenkoordinate: potenzielle Temperatur Θ) für die Flüge 1 - 4 (a), 6 - 8 (b) und 9 - 13 (c) mit den jeweiligen Polarwirbelreferenzprofilen (durchgezogene Linie) und dem Profil in mittleren Breiten (gestrichelte Linie) koloriert nach dem Vortexindex.	39
3.4	Direkter Vergleich des Vortexindex und des CLaMS Vortexindex oberhalb von 400 K. Die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugtage, in schwarz ist der lineare Fit zwischen den beiden Indizes eingezeichnet.	42
3.5	Direkter Vergleich des CLaMS Vortexindex und des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, farblich gekennzeichnet sind die einzelnen Flugtage. Die Modelldaten sind reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte; dargestellt sind nur Daten oberhalb von 400 K.	43
3.6	Polaufsicht (40°-90°N) des passiven Tracers Pvortex auf 430K, initialisiert im Dezember, für drei Tage, die jeweils einen der Zeitabschnitte repräsentieren, in denen die jeweiligen Polarwirbelreferenzprofile zur Berechnung des Vortexindex definiert wurden. In pink ist die Lage der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996) eingezeichnet.	44

3.7	Direkter Vergleich des CLaMS Vortexindex und des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, für die Flüge 1-8 oberhalb von 400 K. Farblich gekennzeichnet ist die Höhe Theta. Die Modelldaten sind reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte.	45
3.8	links: Polaufsicht des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, am 15.1.2010. mittig: Polaufsicht des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, am 15.1.2010. rechts: Polaufsicht des Vortexindex, veranschaulicht durch das N ₂ O-Feld am 15.1.2010. In pink ist in allen Abbildungen die Wirbelgrenze nach Nash dargestellt, alle Abbildungen zeigen 40°-90°N auf 430 K.	46
3.9	Direkter Vergleich des CLaMS Vortexindex und des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, für die Flüge 9-13 oberhalb von 400 K. Farblich gekennzeichnet ist die Höhe Theta. Die Modelldaten sind reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte. Die schwarze Linie kennzeichnet den linearen Fit der Daten.	47
3.10	Geographische Verteilung des Vortexindex zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg für die Flüge 1-8. Gekennzeichnet sind drei Datenbereiche, die einen Transport von Luftmassen in den Wirbel anzeigen. . . .	49
3.11	Geographische Verteilung des Vortexindex zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg für die Flüge 9 - 13 mit Kennzeichnung der drei beobachteten Transportereignisse. Die Farbskala berücksichtigt hier auch negative Werte für den Vortexindex zur Identifikation der subtropischen Luftmassen.	51
3.12	Abhängigkeit des Vortexindex von der äquivalenten Breite bezogen auf die Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996). Farblich gekennzeichnet ist die Höhe Theta. Dargestellt ist nur der Höhenbereich oberhalb von 420 K.	52
3.13	Geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg, für die Flüge 1-8. Die CLaMS Datenpunkte sind auf die Messpunkte von HAGAR reduziert; gekennzeichnet sind die Daten, die einen Transport von Luft in den Wirbel anzeigen.	53
3.14	Geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Dezember, zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg, für die Flüge 1-8. Die Anzahl der CLaMS Datenpunkte ist auf die Zahl der Messpunkte von HAGAR reduziert. Die Kreise kennzeichnen die Daten, die nach der Transportanalyse durch den Vortexindex die Transportereignisse 2 und 3 repräsentieren.	54
3.15	Geographische Verteilung des passiven Tracers Pvortex, initialisiert im Januar, zur Diagnose von Transport über die Wirbelgrenze hinweg, für die Flüge 9 - 13. Die CLaMS Datenpunkte sind auf die Messpunkte von HAGAR reduziert. Gekennzeichnet sind die zwei beobachteten Transportereignisse. . .	55

3.16	Geographische Verteilung der Differenz zwischen dem HAGAR Vortexindex und dem CLaMS Vortexindex für die erste Phase oben und für die zweite Phase unten zur Validierung des meridionalen Transportes.	57
3.17	F11-N ₂ O Korrelation für die Flüge 1-8. Die Polarwirbeln (Vortexindex $\geq 0,8$) und die Daten aus der „surf zone“ (Vortexindex $\leq 0,7$) wurden jeweils angefügt, die gestrichelte Linie beschreibt den Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation für die Flüge 1-8 (Vortexindex $\geq 0,8$), die durchgezogene Linie den Fit der Korrelation in der „surf zone“ (Vortexindex $0,2-0,7$ für alle 13 Flüge).	58
3.18	F11-N ₂ O Korrelation für die Flüge 9 - 13. Als gestrichelte Linie eingezeichnet der Fit, der die Korrelation in der „surf zone“ beschreibt (Vortexindex $0,2-0,7$ für alle 13 Flüge), als durchgezogene Linie eingezeichnet ist der Fit (Vortexindex $\geq 0,8$), der die charakteristische Polarwirbelkorrelation während der Flüge 9 - 13 beschreibt.	60
3.19	Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation der Flüge 1 - 8 (pink), Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation der Flüge 9 - 13 (blau), Fit der Korrelation in der „surf zone“ (grün), jeweils aus HAGAR-Daten, Fit der tropischen Korrelation (rot) aus ACE-FTS Daten mit den vermuteten Mischungslinien zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der „surf zone“ Korrelation sowie der „surf zone“ Korrelation und der tropischen Korrelation (schwarz).	61
3.20	F11-N ₂ O Korrelation in CLaMS. Die CLaMS Datenpunkte sind auf den Flugpfad der Flüge 1 - 8 interpoliert und auf die HAGAR Messzeitpunkte reduziert. Die durchgezogene Linie beschreibt den Fit der Daten mit $P1 \geq 0,7$, und damit die Korrelation in der „surf zone“, die gestrichelte Linie den Fit der Daten mit $Pvortex \geq 0,8$, also die charakteristische Polarwirbelkorrelation.	62
3.21	F11-N ₂ O Korrelation in CLaMS für die Flüge 9-13. Die CLaMS Datenpunkte sind reduziert auf die HAGAR Messzeitpunkte. Die gestrichelte Linie beschreibt die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Modell für Phase 2 ($Pvortex \geq 0,8$; oberhalb von 170 ppb N ₂ O durch Daten $Pvortex \geq 0,8$ aus Phase 1 ergänzt), die durch gezogene Linie die Korrelation in der „surf zone“ ($P1 \geq 0,7$), und die gepunktete Linie einen Fit der Daten mit einem Anteil aus niedrigen Breiten von mehr als 20%.	63
3.22	Polarwirbelkorrelation („ Δ Equivalent latitude“ ≥ 0) zwischen F11 und N ₂ O für die Phase 1 von RECONCILE in grau und die Phase 2 koloriert nach dem Vortexindex. Als durchgezogene Linie ist pink die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Januar dargestellt, in schwarz die charakteristische Polarwirbelkorrelation im März.	64

3.23	Charakteristische Polarwirbelkorrelation in CLaMS (gefiltert „ Δ Equivalent latitude“ ≥ 0) zwischen F11 und N ₂ O für die Phase 1 von RECONICLE in grau und die Phase 2 koloriert nach Pvortex. Als Linie in pink ist die charakteristische Polarwirbelkorrelation im Modell für die Phase 1 dargestellt. Die schwarze Linie zeigt den Fit der Daten mit Pvortex $\geq 0,8$ aus der zweiten Phase.	65
4.1	Geographische Verteilung des passiven Tracers P1 (mittlere Breiten), initialisiert am 1.12.2009, zur Identifikation der Herkunft der im Dezember eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt.	70
4.2	Geographische Verteilung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten), initialisiert am 1.12.2009, zur Identifikation der Herkunft der im Dezember der eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt	70
4.3	Ausschnitt aus dem P2 Feld in CLaMS initialisiert im Dezember für den 24.1. auf 430 K (a) und 28.1. auf 450K (b). In pink ist jeweils die Wirbelgrenze nach Nash eingezeichnet, in weiß der Flugpfad der Geophysica am jeweiligen Tag.	71
4.4	P2 Feld in CLaMS initialisiert im Dezember für den 24.1. auf 430 K (links oben) und den 28.1. auf 450 K (rechts oben) und P1 Feld in CLaMS initialisiert im Dezember für den 24.1. auf 430K (links unten) und den 28.1. auf 450 K (rechts unten). In pink ist jeweils die Wirbelgrenze nach Nash eingezeichnet.	72
4.5	Gemessene F11-N ₂ O-Korrelation innerhalb des Polarwirbels (gefiltert nach der Wirbelgrenze nach Nash et al. (1996)) während der Flüge 1 - 8. Die Farben kennzeichnen die Höhe Theta. Die Polarwirbeln wurden mit „ Δ Equivalent latitude“ aus dem Datensatz herausgefiltert.	73
4.6	Geographische Verteilung des passiven Tracers P1 (mittlere Breiten), initialisiert am 15.1.2010, zur Identifikation der Herkunft der seit Mitte Januar in den Wirbel eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt.	74
4.7	Geographische Verteilung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten), initialisiert am 15.1.2010, zur Identifikation der Herkunft der seit Mitte Januar in den Wirbel eingetragenen Luft. Jeder Modelldatenpunkt in dieser Abbildung entspricht einem HAGAR-Messpunkt	75
4.8	P2-Feld in CLaMS entlang des Flugpfades für Flug 1 auf 430 K. In weiß eingezeichnet ist der Flugpfad, in pink die Wirbelgrenze nach Nash.	76
4.9	Entwicklung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten) initialisiert am 15.1.2010 zwischen dem 15.1. und 17.1.2010 auf einer Höhe von 430 K. Die pinkfarbene Linie kennzeichnet die Wirbelgrenze nach Nash.	76
4.10	Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des Vortexindex innerhalb des Polarwirbels für die Flüge 9 - 13.	77

4.11	Ausschnitt (50° - 80° N; 10° W- 30° O) aus dem N_2O -Feld in CLaMS am 10.3.2010 auf einer potenziellen Temperatur von 470 K mit dem projiziertem Flugpfad in weiß und der Wirbelgrenze nach Nash in pink.	78
4.12	Entwicklung des Polarwirbels zwischen dem 28.2. und 10.3.2010 auf 470 K an Hand des N_2O -Feldes in CLaMS. Die weißen Pfeile kennzeichnen das vermessene Filament.	79
4.13	(a):Vortexindex und CLaMS Vortexindex als Funktion der geographischen Länge für den Flugabschnitt in Richtung Westen. (b): Passive Tracer Pvortex, P1 und P2 als Funktion der geographischen Länge für den Flugabschnitt in Richtung Westen. Die mit Buchstaben gekennzeichneten Datenpunkte sind der jeweiligen Mischungslinie oberhalb der F11- N_2O Korrelation zuzuordnen.	80
4.14	Ausschnitt aus der F11- N_2O -Korrelation. Als Datenpunkte dargestellt nur die Daten, die im Polarwirbel, mehr als 5° von der Wirbelgrenze entfernt, gemessen wurden („ Δ equivalent latitude“ $\geq 5^{\circ}$). Die charakteristische Polarwirbelkorrelation im März wird durch ihren Fit dargestellt, ebenso wie die charakteristische Korrelation in der „surf zone“.	82
4.15	Ausschnitt aus der simulierten F11- N_2O -Korrelation. Als Datenpunkte dargestellt nur die Daten, die im Polarwirbel, mehr als 5° von der Wirbelgrenze entfernt, liegen („ Δ equivalent latitude“ $\geq 5^{\circ}$). Die charakteristische Polarwirbelkorrelation im März wird durch ihren Fit dargestellt, ebenso wie die charakteristische Korrelation in „surf zone“. Die Zahl der Datenpunkte im Modell wurde auf die HAGAR Messzeitpunkte reduziert. Durch die Buchstaben werden die Datenpunkte der Mischungslinie gekennzeichnet, die der Durchquerung des Filamentes beim Flug in Richtung Westen zuzuordnen sind; mit einem Pfeil ist der Datenpunkt markiert der aus einer erneuten Durchquerung des Filamentes im Sinkflug resultiert.	84
4.16	Ausschnitt aus der am 10.3. beobachteten F11- N_2O -Korrelation. Dargestellt sind nur Daten, die in einem 10° breiten Bereich um die Wirbelgrenze herum gemessen wurden (-5° < „ Δ equivalent latitude“ < 5°). Die farbliche Kodierung gibt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash an; die Größe der Symbole gibt die potenzielle Temperatur Theta an.	85
4.17	Vortexindex und CLaMS Vortexindex als Funktion der geographischen Länge in der Nähe des Umkehrpunktes des Flugpfades für Flug 13 am 10.3.2010. Die Buchstaben kennzeichnen die Datenpunkte, die den Mischungssignaturen in den Abbildungen 4.16 und 4.18 zuzuordnen sind.	86
4.18	Ausschnitt aus der simulierten F11- N_2O -Korrelation für den 10.3.2010. Dargestellt sind nur Datenpunkte aus einem 10° breiten Bereich an der Wirbelgrenze (-5° < „ Δ equivalent latitude“ < 5°). Die farbliche Kodierung gibt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash an; die Größe der Symbole gibt die potenzielle Temperatur Theta an.	87

4.19	Ausschnitt aus der beobachteten F11-N ₂ O-Korrelation für die Flüge 1-13. Dargestellt sind nur Daten, die in einem 10° breiten Bereich um die Wirbelgrenze herum gemessen wurden ($-5^\circ < \Delta \text{ equivalent latitude} < 5^\circ$). Die farbliche Kodierung gibt die äquivalente Breite relativ zur Wirbelgrenze nach Nash an.	88
4.20	Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des Vortexindex zur Identifikation der subtropischen Luftmassen (Transportereignis 2) und der Wirbelextrusion (Transportereignis 3). Die Farbskala zur Darstellung des Vortexindex berücksichtigt hier negative Werte, die die subtropischen Luftmassen repräsentieren.	89
4.21	Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers Pvortex zur Identifikation von Transport und Mischung außerhalb des Wirbels. . .	90
4.22	Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers P0 (niedrige Breiten) zur Bestimmung des tropischen Anteils an den Luftmassen in den Transportereignissen 2 und 3.	91
4.23	Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers P1 (mittlere Breiten) zur Bestimmung des Anteils von Luft aus mittleren Breiten an den Luftmassen in den Transportereignissen 2 und 3.	91
4.24	Ausschnitt aus der geographischen Verteilung des passiven Tracers P2 (hohe Breiten/äußerer Wirbelrand) zur Bestimmung des Anteils von Luft aus hohen Breiten an den Luftmassen in den Transportereignissen 2 und 3. . .	92
4.25	Ausschnitt aus der F11-N ₂ O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels (Filterkriterium: „ $\Delta \text{ equivalent latitude} \leq -5^\circ$ “) für die Flüge 9 - 13. Die gestrichelte schwarze Linie repräsentiert den Fit der charakteristischen Polarwirbelkorrelation, die durchgezogene Linie den Fit der Korrelation in der „surf zone“. Durch die gepunkteten Linien werden die beiden Mischungslinien zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der „surf zone“-Korrelation bzw. der „surf zone“-Korrelation und der tropischen Korrelation dargestellt.	93
4.26	F11-N ₂ O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels für die Flüge 9 - 13 koloriert nach der potenziellen Temperatur Θ (Filterkriterium: „ $\Delta \text{ equivalent latitude} \leq -5^\circ$ “). Die durchgezogene Linie repräsentiert die Korrelation in der „surf zone“; die gestrichelte Linie repräsentiert die charakteristische Polarwirbelkorrelation. Die gepunkteten Linien stellen die beiden beobachteten Mischungslinien dar.	94
4.27	F11-N ₂ O Korrelation zwischen 20°S und 20°N äquivalenter Breite aus ACE-FTS Daten von Januar-März; in schwarz der Fit der tropischen Daten. . .	95
4.28	F11-N ₂ O-Korrelation aus HAGAR-Daten (Flüge 9-13) koloriert nach der potenziellen Temperatur θ zusammen mit der tropischen Referenzkorrelation aus den ACE-FTS-Daten (Jan-März 2010) in grau. Die blaue Linie stellt die charakteristische Polarwirbelkorrelation dar, die grüne die Korrelation in der „surf zone“ und die rote Linie die tropische Korrelation.	96

-
- 4.29 Ausschnitt aus der F11-N₂O-Korrelation für die Flüge 9 - 13 und der tropischen Korrelation aus ACE-FTS Daten (gesamte Korrelation siehe Abbildung 4.28) mit eingezeichneter Mischungslinie auf 500 K zwischen hohen Breiten und den Tropen. Zusätzlich sind die Satellitendaten im Höhenbereich bis 550 K ebenfalls nach der potenziellen Temperatur θ koloriert. 97
- 4.30 Ausschnitt aus der simulierten F11-N₂O-Korrelation außerhalb des Polarwirbels („ Δ equivalent latitude „ $\leq -5^\circ$) reduziert auf die HAGAR-Messzeitpunkte. Die durchgezogenen Linien repräsentieren die Korrelation in der „surf zone“, die gestrichelte die charakteristische Polarwirbelkorrelation. Oben: Die Farben kennzeichnen Pvortex; die gepunkteten Linien zeigen die Mischungslinien zwischen der charakteristischen Polarwirbelkorrelation und der Korrelation in der „surf zone“. Unten: Die Farben kennzeichnen P0; die gepunktete Linie zeigt die Mischungslinie zwischen den Korrelationen in der „surf zone“ und den Tropen. 98
- 4.31 Ausschnitt zwischen 0°O und 40°O und 58°N und 80°N aus dem N₂O-Feld in CLaMS für die Flüge am 27.2.2010 (a) und 3.5.2010 (b) auf einer potenziellen Temperatur von 500 K. In weiß ist jeweils eine Projektion des Flugpfades auf diese Höhe eingezeichnet. Die Abbildungen (c) und (d) zeigen die Filamente in größerem Zusammenhang. 100
- 4.32 Entwicklung des N₂O-Feldes in CLaMS zwischen dem 16.1. und 5.3.2010 auf einer potenziellen Temperatur von 500 K. 101
- 5.1 O₃-N₂O Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 1.11.2009 - 1.12.2009 koloriert nach äquivalenter Breite mit angefitteter Korrelation im Polarwirbel. Als Linie eingezeichnet ein Polynomfit aller Daten $\geq 75^\circ$ äquivalenter Breite. Die Fehlerbalken am Fit kennzeichnen die Unsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS. 106
- 5.2 O₃-N₂O Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 25.12.2009 - 10.1.2010 im Bereich zwischen 65°N und 90°N äquivalenter Breite koloriert nach äquivalenter Breite mit angefitteter Korrelation im Polarwirbel im Januar. Der Fit beschreibt Daten nördlich von 72°N äquivalenter Breite. Die Fehlerbalken am Fit kennzeichnen die Unsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS. 107
- 5.3 O₃-N₂O Korrelation aus ACE-FTS Daten vom 1.1.2010 - 31.1.2010 zwischen 30°N und 90°N äquivalenter Breite koloriert nach äquivalenter Breite. Die durchgezogene graue Linie repräsentiert die Korrelationen im Polarwirbel von November und die gestrichelte graue Linie die Korrelation in mittleren Breiten. Die durchgezogene Linie repräsentiert die Korrelation im Polarwirbel im Januar. Die Pfeile kennzeichnen Isolinien der potenziellen Temperatur entlang derer zwischen mittleren Breiten und dem Polarwirbel gemischt werden kann. 108

5.4	Minimumtemperatur T_{MIN} zwischen $65^{\circ}N$ und $90^{\circ}N$ auf der 50hPa Druckfläche. Die schwarze Linie kennzeichnet den Mittelwert der Jahre 1989 - 2009, die rote die Entwicklung der Minimumtemperatur von August 2009 - Mai 2010; T_{NAT} : Schwellwerttemperatur zur PSC-Bildung (reproduziert aus [Dörnbrack et al., 2012]).	109
5.5	Vergleich zwischen CLaMS Vortexindex und HAGAR Vortexindex oberhalb von 400 K. Die Farben kennzeichnen die Werte des passiven Tracers Pvortex.	110
5.6	Korrelation im Polarwirbel zwischen passivem Ozon und N_2O (gefiltert „ Δ equivalent latitude“ $>5^{\circ}$) für erste Phase als offene rote Kreise, für die zweite Phase als blaue offene Kreise dargestellt. Die Korrelation im Polarwirbel zusätzlich gefiltert durch CLaMS Vortexindex $\geq 0,85$ ist durch die ausgefüllten Symbole in den jeweiligen Farben gekennzeichnet.	111
5.7	O_3 - N_2O Korrelation aus den Daten der RECONCILE-Kampagne von FOZAN und HAGAR koloriert nach Vortexindex mit der Referenzkorrelation von Anfang Januar. Die Fehlerbalken am Fit geben die Messunsicherheit der Ozonmessungen durch ACE-FTS an.	112
5.8	O_3 - N_2O Korrelation gefiltert mit Vortexindex $\geq 0,85$ mit Referenzkorrelation. Die Farben und Symbole kennzeichnen die einzelnen Flugtage.	113
5.9	Ozonverlust während der ersten Phase von RECONCILE dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur, die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$. . .	113
5.10	Ozonverlust während der zweiten Phase von RECONCILE dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur, die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$. . .	114
5.11	O_3 - N_2O Korrelation gefiltert mit Vortexindex $\geq 0,85$ mit der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenz. Die Farben und Symbole kennzeichnen die einzelnen Flugtage.	115
5.12	Ozonverlust für die erste Phase von RECONCILE abgeschätzt mit der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenzkorrelation dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur; die Farben kennzeichnen die unterschiedlichen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$	116
5.13	Ozonverlust für die zweite Phase von RECONCILE abgeschätzt mit der Korrelation im Polarwirbel von November als Referenzkorrelation dargestellt als Höhenprofil gegen die potenzielle Temperatur; die Farben kennzeichnen die unterschiedlichen Flugdaten. Dargestellt sind nur Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$	116
5.14	Referenzkorrelation in CLaMS (passives O_3 vs. N_2O) koloriert nach Pvortex. Als durchgezogene Linie ist die Referenzkorrelation aus ACE-FTS-Daten von Januar eingezeichnet; als gestrichelte Linie ist die Korrelation im Polarwirbel von November eingezeichnet.	117

5.15	O ₃ -N ₂ O Korrelation im Polarwirbel (Pvortex $\geq 0,85$) mit der Referenzkorrelation passives O ₃ -N ₂ O (grau). Die O ₃ -N ₂ O-Korrelation ist nach den Flugdaten koloriert.	118
5.16	Ozonverlust in CLaMS aufgetragen als Höhenprofil für die Flüge 1-8; die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten.	119
5.17	Ozonverlust in CLaMS aufgetragen als Höhenprofil für die Flüge 9-13; die Farben kennzeichnen die einzelnen Flugdaten.	120
5.18	Vergleich zwischen dem O ₃ -Verlust bestimmt aus FOZAN und HAGAR und dem simulierten. Dargestellt sind alle Daten mit Vortexindex $\geq 0,85$. Als durchgezogene Linie eingezeichnet der lineare Fit der Daten; die gestrichelte Linie stellt die 1:1 Korrelation dar.	120
5.19	Vergleich zwischen der O ₃ -N ₂ O-Korrelation für die Flüge 1-8 (gefiltert Vortexindex $\geq 0,85$) gemessen mit HAGAR und FOZAN (rot) und der O ₃ -N ₂ O-Korrelation in CLaMS (blau)	121
5.20	Vergleich zwischen der O ₃ -N ₂ O-Korrelation für die Flüge 9-13 (gefiltert Vortexindex $\geq 0,85$) gemessen mit HAGAR und FOZAN (rot) und der O ₃ -N ₂ O-Korrelation in CLaMS (blau)	121
A.1	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Cal für N ₂ O (blau), CH ₄ (rot) und F11 (orange). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.	135
A.2	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Cal für H ₂ (orange), H1211 (blau), F12 (grau) und SF ₆ (rot). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.	136
A.3	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Span für N ₂ O (blau), CH ₄ (rot) und F11 (orange). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.	136
A.4	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Span für H ₂ (orange), H1211 (blau), F12 (grau) und SF ₆ (rot). Die Datenpunkte zeigen den Mittelwert der 10 betrachteten GC-Zyklen, die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an.	137
A.5	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Cal für CO ₂ . Die einzelnen Punkte stellen jeweils eine Mittelung über 15 min dar, die Fehlerbalken kennzeichnen die Standardabweichung.	138
A.6	Ergebnisse der Kampagnenkalibrationen für den Flugstandard Span für CO ₂ . Die einzelnen Punkte stellen jeweils eine Mittelung über 15 min dar, die Fehlerbalken kennzeichnen die Standardabweichung.	139

Tabellenverzeichnis

2.1	Parameter des HAGAR - GC während RECONCILE	17
2.2	Übersicht über die wissenschaftlichen Ziele der einzelnen Flüge. Die Uhrzeiten sind in UTC angegeben.	22
2.3	Instrumentierung der Geophysica während RECONCILE	23
2.4	Datenstatus von HAGAR. Für die einzelnen Spezies ist die Präzision in % des troposphärischen Wertes angegeben, für CO ₂ ist der mittlere Fehler der Flüge in ppm angegeben. Die CO ₂ -Korrekturen sind ebenfalls in ppm angegeben.	32
3.1	Grenzen der passiven dynamischen Tracer in mPV [G. Günther, persönliche Mitteilung]	41
A.1	Mischungsverhältnisse der Absolutstandards.	129
A.2	Ergebnisse der Laborkalibrationen für Cal und Span	132
A.3	N ₂ O Konzentrationen für NOAA I	133
A.4	Konzentration der Arbeitsstandards für RECONCILE	134
B.1	Unsicherheiten der CO ₂ Messungen und die sich daraus ergebende Gesamtunsicherheit für die einzelnen Flüge	142

Abkürzungen

ACE-FTS	Atmospheric Chemistry Experiment Fourier Transform Spectrometer
CH ₄	Methan
CLaMS	Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere
CO ₂	Kohlenstoffdioxid
CRISTA-NF	Cryogenic Infrared Spectrometers and Telescope for the Atmosphere- New Frontiers
F11	Freon 11/ Chlorofluorocarbon 11/ Trichloromonofluoromethan (CCl ₃ F)
F12	Freon 12/ Chlorofluorocarbon 12/ Dichlorodifluoromethan (CCl ₂ F ₂)
FOZAN	Fast-Response Chemiluminescent Airborne Ozone Analyzer
H ₂	Wasserstoff
H-1211	Halon-1211/Bromochlorodifluoromethan (CBrClF ₂)
HAGAR	High Altitude Gas Analyzer
mPV	modifizierte potenzielle Wirbelstärke/ modified potential vorticity
N ₂ O	Distickstoffmonoxid (Lachgas)
NAT	Salpetersäuretrihydrat / nitric acid trihydrate
ppm	parts per million
ppb	parts per billion
ppt	parts per trillion
PSC	polare Stratosphärenwolken/ polar stratospheric cloud
PV	potenzielle Wirbelstärke/ potential vorticity
RECONCILE	Reconciliation of essential process parameters for an enhanced predictability of Arctic ozone loss and its climate interactions
SF ₆	Schwefelhexafluorid

Literaturverzeichnis

- Anderson, J.G. and Toon, O.B.: AASEII Airborne Arctic Stratospheric Expedition II: An overview, *Geophys. Res. Lett.*, 20, 22, 2499-2502, 1993
- Bauer R., Engel, A., Franken, H., Klein, E., Kulesa, G., Schiller, C. und Schmidt, U.: Monitoring the vertical structure of the Arctic polar vortex over northern Scandinavia during EASOE: Regular N₂O profile observations, *Geophys. Res., Lett.*, 21, 13, 1211-1214, 1994
- Bernath, P.F., McElroy, C.T., Abrams, M.C., Boone, C.D., Butler, M., Camy-Peyret, C., Carleer, M., Clerbeaux, C., Coheur, P.-F., Colin, R., DeCola, P., DeMaziere, M., Drummond, J.R., Dufour, D., Evans, W.F.J., Fast, H., Fussen, D., Gilbert, K., Jennings, D.E., Llewellyn, E.J., Lowe, R.P., Mahieu, E., McConnell, J.C., McHugh, M., McLeod, S.D., Michaud, R., Midwinter, C., Nassar, R., Nichitu, F., Nowlan, C., Rinsland, C.P., Rochon, Y.J., Rowlands, N., Semeniuk, K., Simon, P., Skelton, R., Sloan, J.J., Soucy, M.-A., Strong, K., Tremblay, P., Turnbull, D., Walker, K.A., Walkty, I., Wardle, D.A., Wherle, V., Zander, R. and Zou, J.: Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): Mission overview, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L15S01, doi:10.1029/2005GL022386, 2005
- Boering, K.A., Daube, B.C., Wofsky, S.C., Loewenstein, M., Podolske, J.R. und Keim, E.R.: Tracer-Tracer relationships and lower stratospheric dynamics CO₂ and N₂O correlations during SPADE, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2567-2570, 1994
- Brewer, W.A.: Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 75, 351-363, 1949
- Carslaw, K., Luo, B., Clegg, S., Peter, T., Brimblecombe, P., and Crutzen, P.: Stratospheric aerosol growth and HNO₃ gas phase depletion from coupled HNO₃ and water vapor uptake by liquid particles, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2479-2482, doi:10.1029/94GL02799, 1994.

- Carli, B., Cortesi, U., Blom, E., Chipperfield, M.P., DeRossi, G. and Redaelli, G.:
Aiborne Polar Experiment - Geophysica Aircraft in Antarctica, Sparc Newsletter 15,
21-24, 2000
- Chapman, S.: A theory of upper atmospheric ozone, Mem. Roy. Soc. 3, 103-109, 1930
- Dobson, G.M.B.: Origin and distribution of the polyatomic molecules in the atmosphere, Proceedings of the Royal Society of London Series A Mathematical and Physical Science, 236, 1205, 187-193, 1956
- Dörnbrack, A., Pitts, M.C., Poole, L.R., Orsolini, Y.J., Nishii, K. and Nakamura, H.: The 2009 - 2010 Arctic stratospheric winter - general evolution, mountain waves and predictability of an operational weather forecast model, Atmos. Chem. Phys., 12, 3659-3675, doi:10.5194/acp-12-3659-2012, 2012
- Drdla, K. und Müller, R.: Temperature thresholds for chlorine activation and ozone loss in the polar stratosphere, Ann. Geophys., 30, 1055-1073, doi:10.5194/anngео-30-1055-2012, 2012
- Ertel, H.: Ein neuer hydrodynamischer Erhaltungssatz, Die Naturwissenschaften 36, 543-544, 1942
- Fahey, D.W. and Hegglin, M.I.: Twenty Questions and Answers About the Ozone Layer: 2010 Update, Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2010, 72 pp. World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland, 2011
- Farman, J.C., Gardiner, B.G. und Shanklin, J.D: Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, Nature, 315, 207 - 210, 1985
- Finnlyson - Pitts, B.J. and Pitts, J.N.: Chemistry of the upper and lower atmosphere, theory, experiments and application, Academic Press, 2000
- Fischer, H., Birk, M., Blom, C., Carli, B., Carlotti, M., von Clarmann, T., Delbouille, L., Dudhia, A., Ehhalt, D., Endemann, M., Flaud, J. M., Gessner, R., Kleinert, A., Koopman, R., Langen, J., López-Puertas, M., Mosner, P., Nett, H., Oelhaf, H., Perron, G., Remedios, J., Ridolfi, M., Stiller, G., and Zander, R.: MIPAS: an instrument for atmospheric and climate research, Atmos. Chem. Phys., 8, 2151-2188, doi:10.5194/acp-8-2151-2008, 2008.

- Greenblatt, J., Jost, H.J., Loewenstein, M., Podolske, J.R., Bui, T.P., Hurst, D.F., Elkins, J.W., Herman, R.L., Webster, C.R., Schauffler, S.M., Atlas, E.L., Newman, P.A., Lait L.R. Müller, M., Engel, A., Schmidt, U.: Defining the polar vortex edge from an N₂O: potential temperature correlation, *J. Geophys. Res.*, 107 (D20), Art. No. 8268 doi:10.1029/2001JD000575 , 2002
- Grooß J.-U., Müller, R., Konopka, P., Steinhorst, H.-M., Engel, A., Möbius, T., Volk, C.M.: The Impact of transport across the polar vortex edge on March ozone loss estimates, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 565-578, 2008
- Günther G., Müller, R., von Hobe, M., Stroh, F., Konopka, P., Volk, C.M.: Quantification of transport across the boundary of the lower stratospheric vortex during Arctic Winter 2002/2003, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 3655-3670, 2008
- Haynes P. und Shuckburgh E.: Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport: 1. Stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 105 (D18), doi:10.1029/2000JD900093, 2000
- von Hobe, M., Ulanovsky, A., Volk, C.M., Grooß, J.-U., Tilmes, S., Konopka, P., Günther, G., Werner, A., Spelten, N., Shur, G., Yushkov, V., Ravegnani, F., Schiller, C., Müller, R. and Stroh, F.: Severe ozone depletion in the cold Arctic winter 2004-05, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L17815, doi:10.1029/2006GL026945, 2006
- von Hobe, M., Bekki, S., Borrmann, S., Cairo, F., D'Amato, F., Dörnbrack, A., Ebersoldt, A., Ebert, M., Engel, I., Frey, W., Grooß, J.-U., Gulde, T., Günther, G., Hösen, E., Homonnai, V., Hoyle, C. R., Jackson, D.R., Jánosi, I.M., Kandler, K., Kalincinsky, C., Khaykin, S.M., Khosrawi, F., Kivi, R., Kuttippurath, J., Laube, J., Lefèvre, F., Lehmann, R., Ludmann, S., Luo, B.P., Marchand, M., Mitev, V., Molleker, S., Müller, R., Oelhaf, H., Olschewski, F., Orsolini, Y., Peter, T., Pfeilsticker, K., Piesch, C., Pitts, M.C., Poole, L.R., Pope, F.D., Ravegnani, F., Rex, M., Riese, M., Röckmann, T., Roiger, A., Scheibe, M., Schlager, H., Siciliani de Cumis, M., Sitnikov, N., Spelten, N., Suminska-Ebersoldt, O., Ulanovski, A., Viciani, S., Volk, C.M., vom Scheidt, M., von der Gathen, P., Wegner, T., Weigel, R., Weinbuch, S., Wienhold, F.G., Wintel, J., Wohltmann, I., Woiwode, W., Young, I., Yushkov, V., Zobrist, B., and Stroh, F.: Reconciliation of essential process parameters for an enhanced predictability of Arctic stratospheric ozone loss and its climate interactions, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 30661-30754, doi:10.5194/acpd-12-30661-2012, 2012
- Holton, J.R., Haynes, P.H., McIntyre, M.E., Douglas, A.R., Rood, R.B., Pfister, L.: Stratosphere - Troposphere Exchange, *Review of Geophysics*, 33, 4, 1995

- Holton, J.R.: An introduction to dynamic meteorology, Fourth edition, Elsevier Academic Press, 2004
- Hoor, P., Fischer, H., Lange, L., Lelieveld, J. und Brunner, D.: Seasonal variations of a mixing layer in the lowermost stratosphere as identified by the CO-O₃ correlation from in-situ measurements, *J. Geophys. Res.*, 107 (D5), doi:10.1029/2000JD000289, 2002
- Ivanova, E.: Evaluation of transport and ozone loss in the antarctic polar vortex by using tracer based coordinates, Dissertation, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2007
- Ivanova, E.V., Volk, C.M., Riediger, O., Klein, H., Sitnikov, N.M., Ulanovskii, A.E., Yushkov, V.A., Ravegnani, F., Möbius, T. und Schmidt, U.: A quasi-Lagrangian coordinate system based on high resolution tracer observations: implementation for the Antarctic polar vortex, *Atmos. Chem. Phys. Diss.*, 8, 16123-16173, 2008
- Jost, H.-J., Loewenstein, M., Greenblatt, J.B., Podolske, J.R., Bui, T.P., Hurst, D.F., Elkins, J.W., Herman, R.L., Webster, C.R., Schauffler, S.M., Atlas, E.L., Newman, P.A., Lait, L.R., Wofsky, S.C.: Mixing events revealed by anomalous tracer relationships in the Arctic vortex during winter 1999/2000, *J. Geophys. Res.*, 107 (D24), doi:10.1029/2002JD002380, 2002
- Kalicinsky, C.: CRISTA - NF observation in the vicinity of the polar vortex, Dissertation, Bergische Universität Wuppertal, 2012
- Knudsen, B.M. und Grooß, J.U.: Northern midlatitude stratospheric ozone dilution in spring modeled with simulated mixing, *J. Geophys. Res.*, 105 (D5), 6885-6890, 2000
- Konopka, P., Grooß, J.U., Günther, G., McKenna, D.S., Müller, R., Elkins, J.W., Fahy, D. and Popp, P.: Weak impact of mixing on chlorine deactivation during SOLVE/THESEO 2000: Lagrangian modeling (CLaMS) versus ER-2 in situ observation, *J. Geophys. Res.*, 108 (D5), 8324, doi:10.1029/2001JD000876, 2003
- Konopka, P., Steinhorst, H.-M., Grooß, J.-U., Günther, G., Müller, R., Elkins, J. W., Jost, H.-J., Richard, E., Schmidt, U., Toon, G., and McKenna, D. S.: Mixing and ozone loss in the 1999-2000 Arctic vortex: Simulations with the three-dimensional Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS), *J. Geophys. Res.*, 109, doi:10.1029/2003JD003792, 2004.

- Konopka, P., Günther, G., Müller, R., dos Santos, F., Schiller, C., Ravegnani, F., Ulanovsky, A., Schlager, H., Volk, C., Viciani, S., Pan, L., McKenna, D. S., and Riese, M.: Contribution of mixing to upward transport across the tropical tropopause layer (TTL), *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3285 - 3308, 2007
- Lait, L.R.: An alternative form for potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 51, 1754 - 1759, 1994
- Lemmen, C., Müller, R., Konopka, P. und Dameris, M.: Critique of the tracer-tracer correlation technique and its potential to analyze polar ozone loss in chemistry-climate models, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2006JD007298, 2006
- Lovelock, J.E.: A Sensitive Detector for Gas Chromatography, *Journal of Chromatography A* Vol.1, doi:10.1016/S0021-9673(00)93398-3, 1958
- Lovelock, J.E.: The Electron Capture Detector - Theory and Practice, *Journal of Chromatography A*, Vol.99 Nr.1, doi:10.1016/S0021-9673(00)90840-9, 1974
- Mahieu, E., Duchatelet, P., Demoulin, P., Walker, K.A., Dupuy, E., Froidevaux, L., Randall, C., Catoire, V., Strong, K., Boone, C.D., Bernath, P.F., Blavier, J.-F., Blumenstock, T., Coffey, M., DeMazière, M., Griffith, D., Hannigan, J., Hase, F., Jones, N., Jucks, K.W., Kagawa, A., Kasai, Y., Mebarki, Y., Mikuteit, S., Nassar, R., Notholt, J., Rinsland, C.P., Robert, C., Schrems, O., Senten, C., Smale, D., Taylor, J., Tétard, C., Toon, G.C., Warneke, T., Wood, S. W., Zander, R. and Servais, C.: Validation of ACE-FTS v2.2 measurements of HCl, HF, CCl₃F and CCl₂F₂ using space-, balloon- and ground-based instrument observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 6199-6221, doi:10.5194/acp-8-6199-2008, 2008
- Manney, G.L., Zurek, R., O'Neill, A. and Swinbank, R.: On the motion of air through the stratospheric polar vortex, *J. Atmos. Sci.*, 51, 2973, 2994, 1994
- Manney, G.L., Krüger, K., Sabutis, J.L., Sena, S.A. and Pawson, S.: The remarkable 2003-2004 winter and other recent warm winters in the Arctic stratosphere since the late 1990s, *J. Geophys. Res.*, 110 (D4), doi:10.1029/2004JD005367, 2005
- Manney, G.L., Schwartz, M.J., Krüger, K., Santee, M.L., Pawson, S., Lee, J.N., Daffer, W.H., Fuller, R.A. and Livesey, N.J.: Aura Microwave Limb Sounder observations of dynamics and transport during the record-breaking 2009 Arctic stratospheric major warming, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L12815, doi:10.1029/2009GL038586, 2009

- Manney, G.L., Santee, M.L., Rex, M., Livesey, N.J., Pitts, M.C., Veefkind, P., Nash, E.R., Wohltmann, I., Lehmann, R., Froidevaux, L., Poole, L.R., Schoeberl, M.R., Haffner, D.P., Davies, J., Dorokhov, V., Gernandt, H., Johnson, B., Kivi, R., Kyrö, E., Larsen, M., Levelt, P.F., Makshtas, A., McElroy, C.T., Nakajima, H., Concepcion Parrondo, M., Tarasick, D.W., von der Gathen, P., Walker, K.A. and Zinoviev, N.S.: Unprecedented Arctic ozone loss in 2011, *Nature*, 478, doi:10.1038/nature10556, 2011
- McElroy, M.B., Salawitch, R.J., Wofsky, S.C. und Logan, J.A.: Antarctic ozone: Reductions due to synergistic interactions of chlorine and bromine, *Nature*, 321, 759-762, 1986
- McIntyre, M.E. and Palmer, T.N.: The surf zone in the stratosphere, *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, 46 (9), pp 825 - 849, 1984
- McKenna, D.S., Konopka, P., Grooß, J.-U., Günther, G., Müller, R., Spang, R., Offermann, D., Orsolini, Y.: A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 1. Formulation of advection and mixing, *J. Geophys. Res.*, 107 (D16), doi:10.1029/2000JD000114, 2002a
- McKenna, D.S., Grooß, J.-U., Günther, G., Konopka, P., Müller, R., Carver, G., Sasno, Y.: A new Chemical Lagrangian Model of the Stratosphere (CLaMS) 2. Formulation of chemistry scheme and initialization, *J. Geophys. Res.*, 107 (D15), doi:10.1029/2000JD000113, 2002b
- McLandsall C. und Shepherd, T.G.: Impact of Climate Change on Stratospheric Sudden Warmings as Simulated by the Canadian Middle Atmosphere Model, *J. of Climate*, 22, DOI:10.1175/2009JCLI3069.1, 2009
- Minschwaner, K., Hoffmann, L., Brown, A., Riese, M., Müller, R. and Bernath, P.F.: Stratospheric loss and atmospheric lifetimes of CFC-11 and CFC-12 derived from satellite observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4253-4263, doi:10.5194/acp-13-4253-2013, 2013
- Molina, L.T. und Molina, M.J.: Production of Cl_2O_2 from self-reaction of the ClO radical, *J. Phys. Chem.*, 91, 433-436, 1987
- Molina, M.J. and Rowland, F.S.: Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalysed destruction of ozone, *Nature*, 249, 1974

- Morgenstern, O., Lee, A.M. und Pyle, J.A.: Cumulativ mixing inferred from stratospheric tracer relationships, *J. Geophys. Res.*, 108 (D5), 8321, doi: 10.1029/2002JD002098 2002
- Müller, R., Crutzen, P.J., Grooß, J.-U., Brühl, C., Russell III, J.M. und Tuck, A.F.: Chlorine activation and ozone depletion in the Arctic vortex: Observations by Halogen Occultation Experiment on the Upper Atmosphere Research Satellite, *J. Geophys. Res.*, 101, 12532 - 12554, 1996
- Müller, R., Schmidt, U., Engel, A., McKenna, D.S. und Proffitt, M.H.: The O₃ - N₂O relationship from balloon - borne observations as a measure of Arctic ozone loss in 1991/92, *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 127, 1389 - 1412, 2001
- Müller R. und Günther G.: A generalized form of Lait's modified potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 60, 2229-2237, 2003
- Müller, R., Tilmes, S., Konopka, P., Grooß, J.-U. und Jost, H.-J.: Impact of mixing and chemical change on ozone-tracer relations in the polar vortex, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3139-3135, 2005
- Müller, R., Tilmes, S., Grooß, J.-U., Engel, A., Oelhaf, H., Wetzell, G., Huret, N., Pirre, M., Catoire, V., Toon, G. und Nakajima, H.: Impact of mesospheric intrusions on ozone-tracer relations in the stratospheric polar vortex, *J. Geophys. Res.*, 112, D23307, doi:10.1029/2006JD008315, 2007
- Müller, R.: A brief history of stratospheric ozone research, *Meteorologische Zeitschrift*, Volume 18, Nr. 1, 2009
- Newmann, P.A., Harris, N.R.P., Adriani, A., Amanatidis, G.T., Anderson, J.G., Braathen, G.O., Brune, W.H., Carslaw, K.S., Craig, M.S., DeCola, P.L., Guirlet, M., Hipskind, R.S., Kurylo, M.J., Küllmann, H., Larsen, N., Megie, G.J., Pommereau, J.P., Poole, L.R., Schoeberl, M.R., Stroh, F., Toon, O.B., Trepte, C.R. and van Roozendaal, M.: An overview of the SOLVE/THESEO 2000 campaign, *J. Geophys. Res.*, 107 (D20), doi:10.1029/2001JD001303, 2002
- Nash, E., Newman, P.A., Rosenfield, J.E. und Schoeberl, M.R.: An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity, *J. Geophys. Res.*, 101 (D5), 1996
- Peter, T.: Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds, *Ann. Rev. Phys. Chem.*, 48, 785 - 822, 1997

- Phillips, M.P., Sievers, R.E., Goldan, P.D., Kuster, W.C. and Fehsenfeld, F.C.: Enhancement of Electron Capture Detector Sensitivity to Nonelectron Attaching Compounds by Addition of Nitrous Oxide to the Carrier Gas, *Anal. Chem*, 51, 1819-1825, 1979
- Plumb, R.A. und Ko, M.K.W.: Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents, *J. Geophys. Res.*, 97 (D9), doi:10.1029/92JD00450, 1992
- Plumb, R.A., Waugh, D.W., Chipperfield, M.P.: The effects of mixing on tracer relationships in the polar vortices, *J. Geophys. Res.*, 105 (D8), 10047-10062, 2000
- Plumb, R.A.: Stratospheric transport, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 80, 793-809, 2002
- Plumb, R.A.: Tracer interrelationships in the stratosphere, *Reviews of Geophysics* 45, RG4005, 2007
- Polvani, L.M. und Plumb, R.A.: Rossby Wave Breaking, Microbreaking, Filamentation and Secondary Vortex Formation: The Dynamics of a Perturbed Vortex, *J. Atmos. Sci.*, 49, 6, doi:10.1175/1520-0469, 1992
- Polvani, L.M., Waugh, D. W., Correa, G. J. P., and Son, S.-W.: Stratospheric Ozone Depletion: The Main Driver of Twentieth-Century Atmospheric Circulation Changes in the Southern Hemisphere, *J. Cli.*, 24, 795-812, 10.1175/2010jcli3772.1, 2011
- Proffitt, M.H., Margitan, J.J., Kelly, K.K., Loewenstein, M., Podolske, J.R. und Chan, K.R.: Ozone loss in the Arctic polar vortex inferred from high altitude aircraft measurements, *Nature*, 347, 31 - 36, 1990
- Proffitt, M.H., Aikin, K., Margitan, J.J., Loewenstein, M., Podolske, J.R., Weaver, A., Chan, K.R., Fast, H. und Elkins, J.W.: Ozone loss inside the northern polar vortex during the 1991 - 1992 winter, *Science*, 261, 1150 - 1154, 1993
- Proffitt, M.H., Aikin, K., Truck, A.F., Margitan, J.J., Webster, C.R., Toon, G.C. and Elkins, J.W.: Seasonally averaged ozone and nitrous oxide in the Northern Hemisphere lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 108 (D3), 4110, doi: 10.1028/2002JD002657, 2003

Ray, E.A., Moore, F.L., Elkins, J.W., Hurst, D.F., Romashkin, P.A., Dutton, G.S. and Fahey, D.W.: Descent and mixing in the 1999 - 2000 northern polar vortex inferred from in situ tracer measurements, *J. Geophys. Res.*, 107 (D20), doi:10.1029/2001JD000961, 2002

RECONCILE - Projektantrag 2008

Rex, M., Salawitch, R.J., Harris, N.R.P., von der Gathen, P., Braathen, G.O., Schulz, A., Deckelmann, H., Chipperfield, M., Sinnhuber, B.-M., Reimer, E., Alfier, R., Bevilacqua, R., Hoppel, K., Fromm, M., Lumpe, J., Küllmann, H., Kleinböhl, A., Bremer, H., von König, M., Künzi, K., Toohey, D., Vömel, H., Richard, E., Aikin, K., Jost, H., Greenblatt, J.B., Loewenstein, M., Podolske, J.R., Webster, C.R., Flesh, G.J., Scott, D.C., Herman, R.L., Elkins, J.W., Ray, E.A., Moore, F.L., Hurst, D.F., Romashkin, P., Toon, G.C., Sen, B., Margitan, J.J., Wennberg, P., Neuber, R., Allart, M., Bojkov, G.C., Claude, H., Davies, J., Davies, W., De Baker, J., Dier, H., Dorokhov, V., Fast, H., Kondo, Y., Kyrö, E., Litynska, Z., Mikkelsen, I.S., Molyneux, M.J., Moran, E., Nagai, T., Nakane, H., Parrondo, C., Ravagnani, F., Skrivankova, P., Viatte, P. and Yushkov, V.: Chemical depletion of Arctic ozone in winter 1999/2000, *J. Geophys. Res.*, 107 (D20), doi:10.1029/2001JD000533, 2002

Rex, M., Salawitch, R. J., von der Gathen, P., Harris, N. R. P., Chipperfield, M. P., and Naujokat, B.: Arctic ozone loss and climate change, *Geophys. Res. Lett.*, 31, doi:10.1029/2003GL018844, 2004

Rex, M., Salawitch, R. J., Deckelmann, H., von der Gathen, P., Harris, N. R. P., Chipperfield, M. P., Naujokat, B., Reimer, E., Allaart, M., Andersen, S. B., Bevilacqua, R., Braathen, G. O., Claude, H., Davies, J., De Backer, H., Dier, H., Dorokhov, V., Fast, H., Gerding, M., Godin-15 Beekmann, S., Hoppel, K., Johnson, B., Kyroe, E., Litynska, Z., Moore, D., Nakane, H., Parrondo, M. C., Risley, A. D., Jr., Skrivankova, P., Stuebi, R., Viatte, P., Yushkov, V., and Zerefos, C.: Arctic winter 2005: Implications for stratospheric ozone loss and climate change, 18 *Geophys. Res. Lett.*, 33, doi:10.1029/2006GL026731, 2006

Richard, E.C., Aikin, K.C., Andrews, A.E., Daube, B.D., Gerbig, C., Wofsky, S.C., Romashkin, P.A., Hurst, D.F., Ray, E.A., Moore, F.L., Elkins, J.W., Deshler, T. und Toon, G.C.: Sever chemical ozone loss in the Arctic polar vortex during winter 1999 - 2000 inferred from in-situ airborne measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 28(11), 2197-2000, 2001

Riediger O.: Entwicklung und Einsatz eines flugzeuggetragenen Instrumentes zur in-situ Messung langlebiger Spurengase in der Stratosphäre, Dissertation, Johann Wolfgang

Goethe Universität Frankfurt am Main, 2000

- Riese, M., Manney, G.L., Oberheide, J., Tie, X., Spang, R. and Küll, V.: Stratospheric transport by planetary wave mixing as observed during CRISTA-2, *J. Geophys. Res.*, 107 (D23), doi:10.1029/2001JD000629, 2002
- Robinson, A.D., Millard, G.A., Danis, F., Guirlet, M., Harris, N.R.P., Lee, A.M., McIntyre, J.D., Pyle, J.A., Arvekius, J., Dagnesjo, S., Kirkwood, S., Nilsson, H., Toohey, D.W., Deshler, T., Goutail, F., Pommerau, J.-P., Elkins, J.W., Moore, F., Ray, E., Schmidt, U., Engel, A. und Müller, M.: Ozone loss derived from balloon - borne tracer measurements in the 1999/2000 Arctic winter, *Atmos. Chem. Phys.* 5, 1423-1436, 2005
- Ross, D.E., Pyle, J.A., Harris, N.R.P., McIntyre, J.D., Millard, G.A., Robinson, A.D. und Busen, R.: Investigation of Arctic ozone depletion sampled over midlatitudes during the Egrett campaign of spring/summer 2000, *Atmos. Chem. Phys.* 4, 1407-1417, 2004
- Salawitch, R.J., Margitan, J.J., Sen, B., Toon, G.C., Osterman, G.B., Rex, M., Elkins, J.W., Ray, E.A., Moore, F.L., Hurst, D.F., Romashkin, P.A., Bevilacqua, R.M., Hopfel, K., Richard, E.C. und Bui, T.P.: Chemical loss of ozone during the Arctic winter of 1999 - 2000: an analysis based on balloon - borne observations, *J. Geophys. Res.* 107(D20), 8269, doi:10.1029/2001JD000620, 2002
- vom Scheidt, M.: Charakterisierung und Einsatz eines Flugzeuggetragenen Messinstruments zur Messung von CO₂, Diplomarbeit, Bergische Universität Wuppertal, 2010
- Schmidt U., Engel, A. und Volk, C.M.: Ist der Ozonabbau gestoppt? Forschung in Frankfurt S.11 - 19, 2001
- Schoeberl M.R. und Hartmann, D.L.: The Dynamics of the Stratospheric Polar Vortex and Its Relation to Springtime Ozon Depletions, *Science*, 251, 49, 1991
- Shepherd, T.G.: Large - scale Atmospheric Dynamics for Atmospheric Chemists, *Chemical Review*, 103(12), 4509 - 4532, doi:10.1021/cr020511z, 2003
- Solomon, S., Garcia, R.R., Rowland, F.S., Wuebbles, D.J.: On the depletion of Antarctic ozone, *Nature*, 321, doi:10.1038/321755a0, 1986
- Solomon, S.: Stratospheric Ozone depletion: A review of concepts and history, *Rev. Geophys.*, 37(3)275 - 316, doi:10.1029/1999RG900008, 1999

Strong, K., Wolff, M.A., Kerzenmacher, T.E., Walker, K.A., Bernath, P.F., Blumenstock, T., Boone, C., Catoire, V., Coffey, M., DeMazière, M., Demoulin, P., Duchatelet, P., Dupuy, E., Hannigan, J., Höpfner, M., Glatthor, N., Griffith, D.W.T., Jin, J.J., Jones, N., Jucks, K., Kuellmann, H., Kuttippurath, J., Lambert, A., Mahieu, E., McConnell, J.C., Mellqvist, J., Mikuteit, S., Murtagh, D.P., Notholt, J., Piccolo, C., Raspollini, P., Ridolfi, M., Robert, C., Schneider, M., Schrems, O., Semeniuk, K., Senten, C., Stiller, G.P., Strandberg, A., Taylor, J., Tétard, C., Toohey, M., Urban, J., Warneke, T. and Woods, S.: Validation of ACE-FTS N₂O measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 4759-4786, doi:10.5194/acp-8-4759-2008, 2008

Strunk M.: An Experimental Study on the Mean Age of Stratospheric Air, Dissertation Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 1997

Tilmes, S., Müller, R., Grooß, J.-U., McKenna, D.S., Russell, J.M., Sasano, Y.: Calculation of chemical ozone loss in the Arctic winter 1996 - 1997 using ozone-tracer correlations: Comparison of Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and Halogen Occultation Experiment (HALOE) results, *J. Geophys. Res.* 108, 4045, doi:10.1029/2002JD002213, 2003

Tilmes, S., Müller, R., Grooß, J.-U. und Russell, J.M.: Ozone loss and chlorine activation in the Arctic winters 1991 - 2003 derived with the tracer - tracer correlations, *Atmos. Chem. Phys.* 4(8), 2181 - 2213, 2004

Tilmes, S., Müller, R., Engel, A., Rex, M. und Russell III, J.M.: Chemical ozone loss in the Arctic and Antarctic stratosphere between 1992 and 2005, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L20812, doi:10.1029/2006GL026925, 2006

Tureo, R., Plumb, A. und Condon, E.: The Airborne Arctic Stratospheric Expedition: Prologue, *Geophys. Res. Lett.*, 17, 313-316, 1990

Ulanovsky, A.E., Yushkov, V.A., Sitnikov, N.M. und Ravegnani, F.: The FOZAN-II Fast-Response Chemiluminescent Airborne Ozone Analyser, *Instrumental and Experimental Techniques* 44, 2, pp.249-256, 2001

Ulanovsky, A.E., Lukyanov, A.N., Yushkov, V.A., Sitnikov, N.M., Volk, C.M., Ivanova, E.V. und Ravegnani, F.: Estimation of the chemical loss of ozone in the Antarctic stratosphere in the 1999 winter-spring season from direct measurements and simulations, *Izv. Atmos. Ocean. Phys.*, 40(6) 695 - 703, 2004

- Vogel, B., Müller, R., Deshler, T., Grooß, J.-U., McKenna, D.S., Müller, M., Toohey, D., Toon, G.C. und Stroh, F.: Vertical profiles of activated ClO and ozone loss in the Arctic vortex during January and March 2000: In situ observation and model simulations, *J. Geophys. Res.*, 108(D22), 8334, doi: 10.1029/2002JD002564, 2003
- Volk, C.M.: Stratospheric transport and lifetimes from airborne in - situ observations, PhD thesis, University of Colorado, Boulder, 1996a
- Volk, C.M., Elkins, J.W., Fahey, D.W., Salawitch, R.J., Dutton, G.S., Gilligan, J.M., Proffitt, Loewenstein, M., Podolske, J.R., Minschwaner, K., Margitan, J.J. and Chan, K.R.: Quantifying Transport Between the Tropical and Mid-Latitude Lower Stratosphere, *Science*, 272, 5269, pp. 1763-1768, doi:10.1126/science.272.5269.1763, 1996b
- Volk, C.M., Elkins, J.W., Fahey, D.W., Dutton, G.S., Gilligan, J.M., Loewenstein, M., Podolske, J.R., Chan, K.R. und Gunson, M.R.: Evaluation of source gas lifetimes from stratospheric observations, *J. of Geophys. Res.*, 102 (D21), 1997
- Walker, K.A., Randall, C.E., Trepte, C.R., Boone, C.D. and Bernath, P.F.: Initial validation comparison for the Atmospheric Chemistry Experiment (ACE), *Geophys. Res. Lett.*, 32, L16S04, doi:10.1029/2005GL022388, 2005
- Wallace, J.M und Hobbs, P.V.: Atmospheric Science: An introductory survey, Second edition, Academic Press, 2006
- Wang, L. und Chen, W.: Downward Arctic Oszillation signal associated with moderate weak stratospheric polar vortex and the cold December 2009, *Geophys. Res. Lett.*, 37, doi:10.1029/2010GL042659, 2010
- Waters, J., Froidevaux, L., Harwood, R., Jarnot, R., Pickett, H., Read, W., Siegel, P., Cofield, R., Filipiak, M., Flower, D., Holden, J., Lau, G., Livesey, N., Manney, G., Pumphrey, H., Santee, M., Wu, D., Cuddy, D., Lay, R., Loo, M., Perun, V., Schwartz, M., Stek, P., Thurstans, R., Boyles, M., Chandra, K., Chavez, M., Chen, G.-S., Chudasama, B., Dodge, R., Fuller, R., Girard, M., Jiang, J., Jiang, Y., Knosp, B., LaBelle, R., Lam, J., Lee, K., Miller, D., Oswald, J., Patel, N., Pukala, D., Quintero, O., Scaff, D., Van Snyder, W., Tope, M., Wagner, P., and Walch, M.: The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOSMLS) on the Aura Satellite, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44, doi:10.1109/TGRS.2006.873771, 2006.
- Waugh, D.W. and Polvani, L.M.: Stratospheric Polar Vortices, *The Stratosphere: Dynamics, Transport and Chemistry*, Geophysical Monograph Series 190,

doi:10.1029/2009GM000887, 2009

Waugh, D. W., Oman, L., Kawa, S.R., Stolarski, R.S., Pawson, S., Douglass, A.R., Newman, P.A. und Nielsen, J.E.: Impacts of climate change on stratospheric ozone recovery, *Geophys. Res. Lett.*, 36, doi:10.1029/2008/GL036223, 2009

Wegner, T., Grooß, J.-U., von Hobe, M., Stroh, F., Suminska-Ebersoldt, O., Volk, C.M., Hösen, E., Mitev, V., Shur., G., und Müller, R.: Heterogeneous chlorine activation on stratospheric aerosols and clouds in the Arctic polar vortex, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 11096-11106, doi:10.5194/acp-12-11095-2012, 2012

Werner A.: Quantifying Transport into the Lowermost Stratosphere, Dissertation Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2007

Werner A., Volk, C. M., Ivanova, E. V., Wetter, T., Schiller, C., Schlager, H. and Konopka, P.: Quantifying transport into the Arctic lowermost stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11623-11639, doi:10.5194/acp-10-11623-2010, 2010

WMO: Scientific Assessment of Ozone Depletion 2010, World Meteorological Organization, Global ozone research and monitoring project, Geneva, Switzerland, 2010

Wohltmann, I., Wegner, T., Müller, R., Lehmann, R., Rex, M., Manney, G.L., Santee, M.L., Bernath, P., Suminska-Ebersoldt, O., Stroh, F., von Hobe, M., Volk, C.M., Hösen, E., Ravagnani, F., Ulanovsky, A. and Yuskov, V: Uncertainties in modeling heterogeneous chemistry and Arctic ozone depletion in the winter 2009/2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 3909-3929, doi:10.5194/acp-13-3909-2013, 2013

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. C. Michael Volk für die Möglichkeit zur Mitarbeit an diesem Projekt, für die Betreuung dieser Arbeit und für die vielfältigen Anregungen, Ratschläge und Diskussionen im Entstehungsprozess dieser Arbeit.

Herrn P.D. Dr. Rolf Müller danke ich für die Bereitschaft sich als Zweitgutachter dieser Arbeit zur Verfügung zu stellen und für seine Unterstützung durch zahlreiche Anregungen.

Ein besonderer Dank gilt auch der Arbeitsgruppe CLaMS des IEK-7 am Forschungszentrum Jülich, insbesondere Herrn Dr. Jens-Uwe Grooß und Herrn Dr. Gebhard Günther für die Bereitstellung der CLaMS Simulationen, die Beantwortung der vielen, während der Arbeit mit den Modellergebnissen, entstandenen Fragen und die zahlreichen Diskussionen über die Mess- und Simulationsergebnisse.

Ferner möchte ich Herrn Dr. Alexey Ulanovsky und Herrn Dr. Fabrizio Ravegnani für die Bereitstellung der FOZAN-Messungen und Frau Dr. Kaley Walker für die Bereitstellung der ACE-FTS Messungen danken.

Das RECONCILE-Projekt wurde durch die EU unter der Projektnummer RECONCILE-226365-FP7-ENV-2008-1 finanziert. Ich danke den Koordinatoren des RECONCILE-Projektes und allen die zum Gelingen der Geophysica-Feldkampagne beigetragen haben.

Im weiteren möchte ich mich bei allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Atmosphärenphysik für das gute Arbeitsklima und bei allen anderen, die hier nicht namentlich genannt wurden mich aber dennoch unterstützt haben, bedanken.

Zuletzt und ganz besonders möchte ich mich bei meinen Eltern und Großeltern für die Unterstützung in jeder Lebenslage bedanken.