Polare stratosphärische Wolken: Lidar-Beobachtungen, Charakterisierung von Entstehung und Entwicklung

Polar stratospheric clouds: Lidar-observations, Characterization of Formation and Development

Jens Biele

Ber. Polarforsch. 303 (1999) ISSN 0176 - 5027

.

Einige Abbildungen aus dieser Arbeit sind in der farbigen Vollversion auf der AWIhomepage zugänglich: http://www.awi-potsdam.de/www-pot/atmo/psc/psc.html

Meinen Eltern

Jens Biele 1998

Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung Forschungsstelle Potsdam, Telegraphenberg A43 D-14473 Potsdam, Bundesrepublik Deutschland

Die vorliegende Arbeit wurde im April 1998 dem Fachbereich Geowissenschaften der Freien Universität Berlin als Dissertation vorgelegt.

Danksagung

Ich danke

Herrn Prof. Dr. Jürgen Fischer für die Betreuung dieser Arbeit.

Herrn Prof. Dr. Ludger Wöste für die Übernahme des Koreferats.

all denen, die durch Lidar-Messungen zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben: Ingo Beninga, Dr. Roland Neuber, Patrick Scheuch, Hauke Schütt, Wilfried Ruhe und last but not least Jens Warming.

Dr. Roland Neuber für die hervorragende "online"-Betreuung am AWI und ganz besonders für seine Geduld.

Dr. Peter von der Gathen, ohne dessen Hilfsbereitschaft und sein offenes Ohr für meine vielen Fragen die Programmierung vieler Auswertealgorithmen mich zur Verzweiflung getrieben hätte; Dr. Georg Beyerle für seine zahlreichen und hervorragenden *Matlab*-Programme, auf denen ich aufbauen konnte; Wilfried Ruhe für seine Unterstützung bei der C-Programmierung; meinen DoktorandengenossInnen Kerstin Stebel, Edo Becker, Markus Rex, Christoph Abegg und Carsten Wedekind für viele gute Diskussionen und manche Hilfe.

Allen Menschen, die mir in Ny-Ålesund begegnet sind und die mich auf unterschiedliche Weise unterstützt haben; insbesondere Svein-Arne Stiberg.

Thomas Peter, Sakis Tsias und Ken Carslaw vom MPI für Luftchemie in Mainz haben mir in der Endphase der Auswertung sehr geholfen. Schließlich möchte ich mich bei den Mitarbeitern des AWI Potsdam für das gute Arbeitsklima und die vielfältige persönliche Unterstützung bedanken.

Umarmt sei Henrike Neumann, ohne deren sorgfältiges Korrekturlesen, ihre Unterstützung und Liebe diese Arbeit so nicht hätte entstehen können.

Diese Arbeit wurde unterstützt durch das Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie und durch das Projekt DG XII (ES-MOS/Arctic I & II, European Stratospheric Monitoring Stations in the Arctic) der Kommission der Europäischen Union.

Zusammenfassung

Die zentrale Rolle von polaren stratosphärischen Wolken (PSCs) für die chemische Ozonzerstörung in hohen Breiten ist seit etwa zehn Jahren bekannt. Zur Vorhersage des Ozonverlustes werden daher genaue PSC-Modelle benötigt, d.h. Informationen über Bildungszeit, geographischen Ort, Höhe, Oberflächendichte und Zusammensetzung, Phase der Wolkenpartikel und die Dauer der PSC-Ereignisse.

Entstehung, Entwicklung und physikalisch-chemische Eigenschaften von PSCs zu bestimmen ist das Thema dieser Arbeit; das Motiv ist, den chemischen Ozonabbau im Zusammenspiel von PSC-, chemischen und Klimamodellen besser als bisher zu beschreiben und zu prognostizieren.

Zur systematischen Beobachtung von PSCs eignen sich Lidar-Systeme hervorragend. Das Mehrwellenlängen-Lidar in Ny-Ålesund auf Spitzbergen (79° N, 12° O) liegt, wie die meteorologische Datenanalyse der letzten acht Winter (1989/90 bis 1996/97) ergab, zumeist im Zentrum des arktischen Wirbels. An durchschnittlich 25% aller Meßtage (Winter 95/96 und 96/97: 63%) wurden PSCs beobachtet, die nicht von lokalen orographischen Effekten beeinflußt sind und damit als repräsentativ für das arktische Wirbelzentrum gelten können.

Aus der Analyse der Meßdaten unter Zuhilfenahme von lokalen Vertikalprofilen der Temperatur sowie von Rückwärtstrajektorien der untersuchten Luftmassen ergibt sich für die Bildung und Existenz von flüssigen (Typ Ib) PSCs, daß eine Stratosphärentemperatur T von 3 bis 4 K unterhalb der NAT-Existenztemperatur T_{NAT} eine notwendige und hinreichende Bedingung ist.

Die Bildung von festen (Typ Ia) PSC-Partikeln ist offenbar wesentlich komplizierter: es gilt $T - T_{NAT} \leq 0$ K als notwendige, jedoch nicht hinreichende Bedingung; es wird gezeigt, daß eine Herkunft der Luftpakete aus Richtung Grönland mit $T - T_{NAT} \leq$ 0 K während des Transports nach Ny-Ålesund stark positiv mit dem Auftreten von festen Partikeln korreliert. Dies wird mit der Wellenaktivität an den grönländischen Küsten gedeutet, wobei die Luftmassen durch Hebung kurzzeitig tief unter die synoptische Temperatur abkühlen und Partikel gefrieren können. Es wird weiterhin gezeigt, daß lang andauernde tiefe Temperaturen vor der Beobachtung oft eine externe Mischung aus festen und flüssigen Teilchen erzeugen, Partikel, die unabhängig voneinander existieren. Hier greift auch die klassische empirische Unterscheidung von PSCs in Ia- und Ib-Wolken nicht mehr.

Es wird gelegentlich ein Sondertyp, Id genannt, beobachtet, der nur mit der weitgehenden Kondensation von HNO₃ in feste Partikel erklärt werden kann. Normalerweise kondensiert nur maximal etwa 10% der verfügbaren Salpetersäure in den festen Aerosolen.

Typ II–PSCs (Eiswolken) konnten nicht beobachtet werden.

Die PSC-Entwicklung in den beiden untersuchten kalten stratosphärischen Wintern 1995/96 und 1996/97 kann anhand der meteorologischen Situation befriedigend erklärt werden.

-

Summary

The key role of Polar Stratospheric Clouds (PSCs) for chemical ozone destruction at high latitudes is well known. Predicting ozone loss requires accurate modelling of PSC properties, i.e. the formation time, the geographical location, the altitude, the surface area density and chemical composition, the physical phase of the cloud particles as well as the duration of PSC events.

This thesis investigates the formation, development and chemical/physical properties of PSCs; the motive is a better modelling and prediction of chemical ozone destruction combining PSC-models, chemical and climate models.

Lidar systems are well suited for the systematic ranging of PSCs.

According to meteorological data analysis of eight winters (1989/90 to 1996/97), the multiwavelength Lidar in Ny-Ålesund on Spitsbergen (79°N, 12°E) lies in the center of the arctic vortex most of the time. An average of 25% (winters 95–96, 96–97: 63%) of all measurement days show PSCs, which are not disturbed by local orographic effects and should therefore be representative for the Artic vortex center.

The analysis of the Lidar data, using local temperature profiles and back trajectories, shows a rather simple necessary and sufficient condition for the formation of liquid (type Ib) PSCs: the stratospheric temperature T must fall (3...4) K below the condensation temperature T_{NAT} of HNO₃ · 3 H₂O.

The formation of solid (type Ia) particles is much more involved: lidar data show that $T - T_{NAT} \leq 0$ K is a necessary but not sufficient condition; it is shown that back trajectories coming from Greenland while $T - T_{NAT} \leq 0$ K on the way to observation correlate strongly with the occurrence of Ia-layers. This might be explained with frequent mountain wave activity at Greenland's coasts, which have the potential to strongly cool air parcels and thereby trigger the freezing of particles.

It is shown that low temperatures for a long time before observation correlate strongly with the observation of a mixture of independently coexisting solid and liquid particles. Here the usual empirical classification of PSCs in Ia and Ib types must fail.

A few observations show a special type, called Id, which can be explained with near-complete condensation of HNO_3 into solid particles, where normally only a few percent condense. Type II–PSCs (Iceclouds) could not be observed within eight observation winters over Spitsbergen.

PSC-development in the two cold polar stratospheric winters 1995/96 and 1996/97 can be satisfactorily explained with the meteorological situation.

Inhaltsverzeichnis

Ζι	Isam	menfas	sung	iv
Sι	ımma	ary		vi
Ve	erzeic	chnis de	er Symbole	x
1.	Einf	ührung		1
	1.1.	Gegen	stand und Zielsetzung der Arbeit	1
	1.2.	Dynar	nische Prozesse	2
		1.2.1.	Potentielle Temperatur, Adiabatische und Diabatische Prozesse	2
		1.2.2.	Potentielle Wirbelstärke	4
		1.2.3.	Der Polarwirbel	5
	1.3.	Aspek	te der Aerosolphysik	7
		1.3.1.	Größenspektren	7
		1.3.2.	Entstehungs- und Entwicklungsprozesse von Aerosolen	8
	1.4.	Strato	sphärische Aerosole	11
		1.4.1.	Das Hintergrundaerosol	11
		1.4.2.	Vulkanisches Aerosol	12
		1.4.3.	Polare stratosphärische Wolken	13
2.	Stre	u- und	Lidar-Theorie	21
	2.1.	Stokes	-Vektoren und Müller-Matrizen	21
	2.2.	Molek	ülstreuung	23
		2.2.1.	Rayleigh-Streuquerschnitt	23
		2.2.2.	Streu- und Extinktionskoeffizienten	26
		2.2.3.	Linienbreiten	26
	2.3.	Partik	el-Streuung	27
		2.3.1.	Mie-Streuung	27
		2.3.2.	Streuung an asphärischen Partikeln	28
	2.4.	Die Li	dar-Gleichungen	32
		2.4.1.	Lidar-Gleichung für unpolarisiertes Licht	32
		2.4.2.	Lidar-Gleichung für polarisiertes Licht	33
		2.4.3.	Rückstreuverhältnis	35
		2.4.4.	Korrektur der Spurengasabsorption	36

		2.4.5.	Raman–Lidargleichung	36
3.	Inst	rument	und Methode	38
	3.1.	Ferner	kundung mit Lidar	40
	0.1	3.1.1.	Geschichte der Lidar-Beobachtungen in Nv-Ålesund	41
	3.2.	Beschr	eibung des Instruments	43
		3.2.1.	Laser	48
		3.2.2.	Sende- und Empfangsoptik	51
		3.2.3.	Mehrwellenlängendetektor 95/96 und 96/97	53
		3.2.4.	Trigger- und Datenaufnahmesystem	57
		3.2.5.	Software	58
	3.3.	Metho	den zur Datenauswertung	59
		3.3.1.	Rohdatenerfassung und -aufbereitung	60
		3.3.2.	Berechnung der Depolarisation	70
		3.3.3.	Berechnung der Rückstreukoeffizienten nach der Klett-Methode	72
		3.3.4.	Die Problematik der räumlichen und zeitlichen Mittelung	75
		3.3.5.	Fehlerberechnung	77
		3.3.6.	Validation	78
	3.4.	Abgele	itete Größen	79
		3.4.1.	Aerosoldepolarisation	79
		3.4.2.	Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreuung	80
		3.4.3.	Bestimmung von Größenverteilungen aus optischen Daten	81
		3.4.4.	Integralgrößen: Oberflächen- und Volumendichten der Aerosole	82
		3.4.5.	Sonstige Größen	83
	3.5.	Sonstig	ge Daten	88
		3.5.1.	Radio- und Ozonsondenprofile	88
		3.5.2.	Ny-Ålesund Referenzatmosphäre	90
		3.5.3.	Meteorologische Felder: ECMWF-Daten und Trajektorien	92
		3.5.4.	Spurengasprofile	93
		3.5.5.	Existenztemperaturen der verschiedenen Aerosole	96
		3.5.6.	In situ - Partikelsonden	103
4.	Erge	bnisse	1	.06
	4.1.	Stratos	phärendynamik im arktischen Wirbel	106
		4.1.1.	Dynamik des Polarwirbels	107
		4.1.2.	Lage von Ny-Ålesund relativ zum arktischen Wirbel	109
		4.1.3.	Fazit	111
	4.2.	Meßsta	tistik	111
	4.3.	Aeroso	lmessungen: Das Hintergrund-Aerosol	113
	4.4.	Aeroso	lmessungen: PSC-Beobachtungen	114
		4.4.1.	Zusammenfassende Darstellung	114
		4.4.2.	Diskussion	124
		4.4.3.	Typische zeitliche Entwicklung	125

	٠	٠	٠
v	1	1	1

	4.4	.4. Klassifikation und Vergleich mit Modellrechnungen	127
	4.5. Ub	erprüfung von mikrophysikalischen Modellen	. 135
	4.5	.1. Existenz von SAT in der Stratosphäre	. 136
	4.5	.2. Ausreichende Bedingung für die Bildung von STS-PSCs	. 138
	4.5	.3. Heterogenes Gefrieren?	. 138
	4.6. Be	deutung von kleinskaligen Temperaturvariationen	. 139
	4.7. Tra	ijektorienrechungen	. 140
	4.7	.1. Temperatur-Rückwärtstrajektorien	143
	4.7	.2. Statistische Analyse der Ortskurven	. 145
	4.8. Ob	erflächen- und Volumendichten	. 147
5.	Fazit		150
An	hang		153
Α.	Übersic	nt über die Betriebszeiten des Lidars	154
в.	Übersic	nt über die PSC-Beobachtungen	161
C.	Temper	aturentwicklung über Ny–Ålesund	165
D.	Entwick	lung der Polarwirbel	168
Ε.	Verschie	denes	173
	E.1. Ver	wendete Computerprogramme	173
	E.2. Re:	erenzatmosphäre NARA97	174
	E.3. Ko	rrektur der polarisationsabhängigen Größen	176
Lit	eraturve	rzeichnis	180

Verzeichnis der Symbole

Verzeichnis der Variablen

.

α	Extinktionskoeffizient
$lpha^{ m Aer}$	Aerosol-Extinktionskoeffizient
$lpha_{ m Abs}^{ m Mol}$	Molekül-Absorptionskoeffizient
α^{Ray}	${\it Rayleigh-Extinktionskoeffizient}$
eta	Rückstreukoeffizient
eta^{Aer}	Aerosol-Rückstreukoeffizient
$eta^{ ext{Mol}}$	Rayleigh-Rückstreukoeffizient
с	Lichtgeschwindigkeit
δ	Volumendepolarisation
$\delta^{\rm Aer}$	Aerosoldepolarisation
$\delta^{ ext{Ray}}$	durch Rayleigh–Streuung an Luftmolekülen
	verursachte Volumendepolarisation
η	Wellenlängenexponent der Aerosolrückstreuung
L^{Aer}	Aerosol–Streuverhältnis
$L^{\rm Mie}$	Mie–Streuverhältnis
L^{Ray}	Rayleigh-Streuverhältnis
λ	Wellenlänge
m	Brechungsindex
N^{Mol}	Molekülteilchendichte
dN^{Aer}/dr	Größenverteilung der Partikel
р	Druck

х

PV	Potentielle Wirbelstärke
Q^{Bck}	Mie-Rückstreueffizienz
Q^{Ext}	Mie-Extinktionseffizienz
\bar{r}	Modenradius
R	Rückstreuverhältnis
S/N	Signal-zu-Rausch-Verhältnis
S	Oberflächendichte der Aerosole
$\sigma_{ m Abs}$	${ m Molek\"ul-Absorptionskoeffizient}$
$d\sigma^{\rm Ray}/d\Omega$	differentieller Rayleigh–Streuquerschnitt
$d\sigma_\pi^{\rm Ray}/d\Omega$	differentieller Rayleigh–Rückstreuquerschnitt
t	Laufzeit des Lichtes
T	Temperatur
$T_{\mathbf{X}}$	Koexistenztemperatur von X (X: Eis, STS, NAT, SAT)
$ au_L$	Pulslänge des Lasers
$ au_D$	Integrationszeit des Detektors
θ	Potentielle Temperatur
V	Volumendichte der Aerosole
x	Größenparameter
z	geometrische Höhe
z_T, z_0	Tropopausenhöhe, Beobachtungshöhe
Ζ	Zählrate
Z^s	Signalzählrate
Z^u	Untergrundzählrate

Verzeichnis chemischer Abkürzungen

- NAT Salpetersäuretrihydrat (nitric acid trihydrate)
- NAD Salpetersäuredihydrat (nitric acid dihydrate)
- SAT Schwefelsäuretetrahydrat (sulfuric acid tetrahydrate)
- STS unterkühlte ternäre Lösung (supercooled ternary solution)

Verzeichnis der Akronyme

AASE	Airborne Arctic Stratospheric Expedition
AWI	Alfred–Wegener–Institut für Polar– und Meeresforschung
DIAL	Differential Absorption Lidar
EASOE	European Arctic Stratospheric Ozone Experiment
ECMWF	European Center for Medium–Range Weather Forecasts
ESMOS/Arctic	European Stratospheric MOnitoring Stations in the Arctic
LIDAR	Light Detection and Ranging
LIMS	Limb Scanning Infrared Monitor of the Stratosphere
NDSC	Network for the Detection of Stratospheric Change
PSC	Polar Stratospheric Cloud
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SAM	Stratospheric Aerosol Measurement
SAOZ	Systeme d'Analyse par Observaton Zenithale
SESAME	Second European Stratospheric Arctic and Midlatitude
	Experiment
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrophotometer
WMO	World Meteorological Organization

1.1. Gegenstand und Zielsetzung der Arbeit

Seit mehreren Jahren ist unstrittig, daß Polare Stratosphärische Wolken (PSCs)¹ eine Schlüsselrolle bei der stratosphärischen Ozonzerstörung spielen. PSCs treten in der winterlichen polaren Stratosphäre bei sehr tiefen Temperaturen auf und führen unter den gegenwärtig durch anthropogene Einflüsse stark erhöhten Konzentrationen an Chlor- und Bromverbindungen zu großräumigem chemischem Ozonabbau [WMO, 1994; Rex, 1997].

Die polaren stratosphärischen Wolken bereiten die winterliche Stratosphäre auf zwei Arten für die nachfolgende chemische Ozonzerstörung vor:

- Heterogene chemische Reaktionen an der Oberfläche der Aerosolpartikel wandeln sog. Chlor- und Brom-Reservoirverbindungen (Salzsäure HCl, Chlornitrat ClONO₂) in potentiell ozonzerstörende Radikale um. Die Raten dieser heterogenen Reaktionen sind um Größenordnungen höher als die Raten aller denkbaren homogenen Reaktionen in der Gasphase.
- Die genannten heterogenen Reaktionen sowie die Kondensation von HNO₃ bei der Bildung der Partikel entfernen Salpetersäure aus der Gasphase. Reaktiver Stickstoff würde sonst die O₃-Zerstörung in der unteren Stratosphäre reduzieren, weil Chlor-Radikale auf dem Weg der Rückreaktion wieder in Reservoirspezies verwandelt würden [Solomon, 1988, 1990; WMO, 1991, 1994]. Durch Sedimentation der PSC-Partikel kann eine irreversible Denitrifizierung und Dehydrierung bewirkt werden. Dies ist in Einzelfällen auch in der Arktis bereits nachgewiesen worden [Höpfner et al., 1996; Vömel et al., 1997].

Die Raten der heterogenen Reaktionen hängen stark von der Temperatur, der Zusammensetzung und der Phase der Teilchen ab [Molina *et al.*, 1993; Ravishankara und Hanson, 1996]; für eine effektive Denitrifizierung müssen relativ große feste Partikel vorliegen.

 $^{^1\}mathrm{Mit}$ der im Deutschen eingebürgeten englischen Abkürzung PSC = Polar Stratospheric Cloud bezeichnet

Damit ergibt sich:

Um den genauen Einfluß von PSCs auf den chemischen Ozonabbau verstehen (und realistisch modellieren) zu können, muß die Natur der Teilchen und ihr Bildungsprozeß bekannt sein.

PSC-Beobachtungen verfolgen zur Zeit zwei Ziele: einmal die Überprüfung mikrophysikalischer Modelle zur PSC-Bildung und -Entwicklung, zum anderen die Bereitstellung von Beobachtungsdaten als Input für z.B. Chemical-Box-Modelle der Ozonchemie (hierfür werden insbesondere Oberflächen- und Volumendichten, die Phase und die Zusammensetzung benötigt).

Das Fernziel all dieser Bemühungen ist die Vorhersagbarkeit von PSCs (und dann der Ozonzerstörung) anhand meteorologischer Daten und in Klimamodellen. Besonders interessant ist hier die Kopplung des anthropogenen "Treibhauseffekts" mit der PSC-Bildung: Eine Erwärmung der Erdoberfläche durch erhöhte Konzentrationen an Treibhausgasen korrespondiert (aus Strahlungsbilanzgründen) mit einem Abkühlungstrend der Stratosphäre, was zu vermehrtem Auftreten von PSCs und damit verstärktem Ozonabbau führen kann [Shindell *et al.*, 1998; Salawitch, 1998].

1.2. Dynamische Prozesse

Die Dynamik der polaren Stratosphäre während der Polarnacht ist bestimmt von einem starken Westwindband im Höhenbereich oberhalb von etwa 15 km. Das Maximum der zonalen Geschwindigkeitskomponente dieses Starkwindsystems befindet sich auf einer geographischen Breite von etwa 60°. Es markiert die Grenze des Polarwirbels, der im folgenden auch als Vortex bezeichnet wird. Die Windströmung erschwert oder verhindert sogar den Transport von Luftpaketen über die Wirbelgrenzen hinweg und führt damit zu einer *Isolation* polarer Luftmassen.

Bevor ich näher auf Ursachen für die Entstehung des Polarwirbels und seine Auswirkungen eingehe, werden in den folgenden Abschnitten zwei Größen, die potentielle Temperatur θ und die potentielle Wirbelstärke Q, definiert. Es zeigt sich nämlich, daß die geometrische Höhe und die geographische Breite ungeeignete Koordinaten für die Diskussion dynamischer Prozesse in der polaren Stratosphäre sind. Die Position des Wirbelzentrums weicht oft erheblich vom geographischen Pol ab. Trajektorien von Luftpaketen verlaufen in der Regel nicht in konstanter geometrischer Höhe. Die Darstellung dynamischer Vorgänge als Funktion von θ und Q ermöglicht eine dem Problem angemessenere Beschreibung [Hoskins *et al.*, 1985].

1.2.1. Potentielle Temperatur, Adiabatische und Diabatische Prozesse

Die potentielle Temperatur θ ist *per definitionem* die Temperatur, die ein Luftpaket besitzt, nachdem es adiabatisch, also ohne Zu- oder Abfuhr von Wärmeenergie, von

pot. Temperatur	Höhe	Standardabweichung
[K]	[km]	[km]
300	7,9	0,3
325	10,4	0,6
350	12,1	0,6
375	13,8	0,6
400	15,5	0,6
425	17,1	0,6
450	18,5	0,6
475	19,8	0,6
500	20,9	0,7
550	22,8	0,9
600	24,5	1,2
650	25,9	1,6
700	27,3	1,9

Tabelle 1.1.: Zusammenhang zwischen potentieller Temperatur und Höhe für die Wintermonate (NDJFM) 95/96 und 96/97 in der polaren Stratosphäre über Ny-Ålesund. Als Maß für die Variabilität ist zusätzlich die Standardabweichung des Mittels der geometrischen Höhenwerte angegeben.

der Temperatur T und dem Druck p auf einen Referenzdruck p_0 komprimiert oder expandiert worden ist [Andrews, 1987; Rogers und Yau, 1989],

$$\theta = T \left(\frac{p_0}{p}\right)^{1-1/\kappa}$$

Hier bezeichnet κ den Quotienten c_p/c_v , also das Verhältnis der spezifische Wärme von Luft bei konstantem Druck und bei konstantem Volumen. Konventionell wird der ideale Wert $\kappa = 7/5$ benutzt, obwohl κ etwas von Temperatur und Druck abhängt [D'Ans und Lax, 1967, Tab. 214503]. Der Referenzdruck beträgt $p_0 = 1000$ hPa. Adiabatische Transportprozesse finden auf Flächen konstanter potentieller Temperatur statt; diese Flächen werden als Isentropen bezeichnet.

Da in einer statisch stabilen Atmosphäre die potentielle Temperatur monoton mit der Höhe zunimmt, kann man θ als Höhenvariable interpretieren. Tabelle 1.1 gibt einen Überblick über die Höhenbereiche, in denen bestimmte Niveaus der potentiellen Temperatur in der polaren Stratosphäre während der Wintermonate zu finden sind; Abb. 1.1 gibt einen Eindruck von der Variabilität des Zusammenhangs zwischen geometrischer Höhe und θ . Beispielsweise entspricht eine potentielle Temperatur von 400 K — in Abhängigkeit von der vorliegenden meteorologischen Situation — einer geometrischen Höhe im Bereich zwischen 14 und 17 km, 500 K einer Höhe zwischen 20 und 22 km und 600 K einer Höhe zwischen 23 und 26,5 km.



Abbildung 1.1.: Zusammenhang zwischen potentieller Temperatur θ und geometrischer Höhe z für alle Radiosondenprofile in den beiden Meßwintern.

1.2.2. Potentielle Wirbelstärke

Ein quantitatives Maß für die polare Zirkulation ist die isentrope potentielle Wirbelstärke Q. Sie ist in der hydrostatischen Näherung gegeben durch [Houghton, 1977; Hoskins *et al.*, 1985]

$$Q = -g \frac{\partial \theta}{\partial p} \left(f + \zeta_{\theta} \right) , \qquad (1.1)$$

wobei $f = 2\omega \sin(\phi)$ den Coriolis-Parameter², und $\zeta_{\theta} = (\nabla \times \vec{u})_{\theta}$ die θ -Komponente der Rotation des Windfeldes \vec{u} bezeichnet. Die Einheit von Q ist nach Gl. 1.1 [K m² s⁻¹ kg⁻¹]. Ich werde im folgenden für 10⁻⁶ K m² s⁻¹ kg⁻¹ die Abkürzung 1 PVU (potentielle Wirbelstärkeneinheit) benutzen. Die potentielle Wirbelstärke ist für adiabatische, reibungsfreie Transportprozesse eine Erhaltungsgröße. Q ist daher dem Mischungsverhältnis einer chemischen Substanz vergleichbar, für die keine Quellen oder Senken vorhanden sind.

Anhand von Druck-, Temperatur- und Windfeldern kann die potentielle Wirbelstärke nach Gl. 1.1 berechnet und auf Isentropen graphisch dargestellt werden [Hoskins et al., 1985; Knudsen et al., 1992]. Diese Stratosphärenkarten zeigen während der Polarnacht eine in der Regel monotone Zunahme der potentiellen Wirbelstärke mit abnehmender Distanz zum Wirbelzentrum. In der Zone, in der die höchsten zonalen Windgeschwindigkeiten auftreten, nimmt das Betragsquadrat des Gradienten von Q — ermittelt auf der Fläche konstanter potentieller Temperatur

 $^{^{2}\}omega$ ist die Winkelgeschwindigkeit der Erdrotation und ϕ die geographische Breite

— maximale Werte an. Man definiert daher die Wirbelgrenze als den Bereich, in dem dieser Meridionalgradient von *Q* maximal wird. In erster Näherung kann man davon ausgehen, daß auf der 435 K-Isentrope die Wirbelgrenze bei etwa 21 PVU, auf 475 K bei etwa 33 PVU und auf 550 K bei etwa 71 PVU zu finden ist [Knudsen *et al.*, 1992; Rummukainen *et al.*, 1994; Dameris *et al.*, 1995].

1.2.3. Der Polarwirbel

Mit Beginn der Polarnacht geht der solare Energieeintrag zurück und die Stratosphäre kühlt sich ab. Als Folge der Abkühlung sinken die stratosphärischen Luftschichten und es bildet sich ein meridionaler Druck- und Temperaturgradient aus. Die Komprimierung der Luftpakete während des Absinkens führt wiederum zu einer Temperaturerhöhung, die dem Auskühlen entgegenwirkt. Unterhalb von 30 km stellt sich ein neues Strahlungsgleichgewicht ein und die Absinkbewegung geht zurück [Schoeberl und Hartmann, 1991], vgl. Abbildung 1.2. Unter dem Einfluß der Coriolis-Kraft werden die Luftpakete, die der meridionalen Druckgradientenkraft folgen, nach Osten abgelenkt. In der mittleren und oberen Stratosphäre entsteht eine Zone starker Westwinde mit Windgeschwindigkeiten von über 100 m/s [Schoeberl und Hartmann, 1991; Schoeberl *et al.*, 1992], mit anderen Worten, es bildet sich eine winterliche Zyklone von der oberen Troposphäre bis in die Mesosphäre. Der Bereich des Starkwindbands definiert die Grenzen des Polarwirbels.

Die innerhalb des Wirbels aus der oberen Stratosphäre und Mesosphäre absinkenden Luftmassen führen die in ihnen enthaltenen Spurengasmischungsverhältnisse mit sich. Zwar sind außerhalb des Wirbels die Absinkraten u.U. größer, da die Luft wärmer ist und damit die erreichbaren Abkühlraten größer sind, jedoch führt hier die Aktivität planetarischer Wellen zu einer stärkeren meridionalen Durchmischung als innerhalb des Vortex und verhindert vertikale Verschiebungen von Mischungsverhältnissen.

Beide Prozesse, die Absinkbewegung innerhalb und die Durchmischung außerhalb des Wirbels, verursachen eine scheinbare vertikale Verschiebung von etwa 2–3 km während der Wintermonate [Schoeberl und Hartmann, 1991; Rosenfield *et al.*, 1994]. Der Polarwirbel der Südhemisphäre ist in der Regel stärker ausgeprägt als der arktische Vortex. Er überdeckt eine größere Fläche, es werden tiefere Temperaturen beobachtet und die polare Zirkulation ist über einen längeren Zeitraum hin stabil. Die Ursachen für die Labilität des arktischen Wirbels sind Störungen der arktischen Zirkulation durch planetarische Wellen. Diese periodischen Dichteschwankungen sind troposphärischen Ursprungs. Sie werden durch Gebirgszüge angeregt und breiten sich in die Stratosphäre aus. Aufgrund der mit der Höhe abnehmenden Luftdichte nimmt die Amplitude der Welle während ihrer Ausbreitung exponentiell zu und führt schließlich zu einer lokalen Instabilität der Atmosphäre mit der Folge der Dissipation der Wellenenergie [McIntyre und Palmer, 1983]. Eine derartige Störung ist in der Regel von Temperaturerhöhungen begleitet. So ist beispielsweise im Januar 1992 in der arktischen Stratosphäre eine Temperaturerhöhung von mehr als 50 K



Abbildung 1.2.: Berechnetes integrales Absinken der Luftmassen im arktischen Vortex; Bezugszeitpunkt ist der 1. Januar. Nach Rex [1997].

innerhalb weniger Tage beobachtet worden [Naujokat *et al.*, 1992]. Reicht die Temperaturerhöhung aus, um das Vorzeichen des meridionalen Temperaturgradienten umzukehren und wechselt darüberhinaus die vorherrschende zonale Luftströmung ihre Richtung, spricht man von einer Stratosphärenerwärmung [Naujokat *et al.*, 1992].

Große Stratosphärenerwärmungen treten in unregelmäßigen Abständen auf. Es ist bisher noch nicht im Detail verstanden, welche Faktoren für ihre Entstehung eine Rolle spielen. Man vermutet jedoch, daß die polare Stratosphäre für einen Zusammenbruch der polaren Zirkulation konditioniert sein muß. Auch gibt es Hinweise auf einen Zusammenhang mit der *quasi biannual oscillation*, einem Wechsel der vorherrschenden Windrichtung in der tropischen Stratosphäre mit einer Periode von etwa zwei Jahren und mit dem Sonnenzyklus [Labitzke und van Loon, 1988].

Aufgrund der unterschiedlichen Orographie der Antarktis sind Störungen der polaren Zirkulation durch planetarische Wellen in der Südhemisphäre von geringerer Bedeutung als in der Arktis. Der Temperaturhaushalt des antarktischen Wirbels ist daher in erster Linie strahlungsdominiert. Dies hat zur Folge, daß der antarktische Vortex bis mindestens Anfang oder Mitte Oktober bestehen bleibt. Der Wirbel stabilisiert den chemisch gestörten Zustand der Stratosphäre solange, bis die im Oktober beginnende solare Einstrahlung den katalytischen Ozonabbau beginnen kann [Anderson *et al.*, 1991]. In der Arktis dagegen führen Störungen der polaren Zirkulation oft bereits im Februar zum Einfließen von Luft subpolarer Herkunft. Den ganzen Winter hindurch wird jedoch (Dynamik!) ozonreiche Luft aus den Tropen zu den Polargebieten transportiert, was zu einem klimatologischen Frühjahrsmaximum der Ozonsäulendichten führt.

1.3. Aspekte der Aerosolphysik

Ich stelle hier zunächst kurz einige Begriffe der Aerosolphysik vor, soweit sie für diese Arbeit von Bedeutung sind. Detailliert werden diese Themen z.B. in [Beyerle, 1994] beschrieben.

1.3.1. Größenspektren

Die Größe atmosphärischer Aerosolpartikel variiert über mehr als vier Größenordnungen. Sie reicht von einigen zehn Nanometern bis zu mehreren hundert Mikrometern. Aus thermodynamischen Gründen ist der Bereich, in dem stabile Teilchen auftreten können, zu kleinen Radien hin beschränkt; kontinuumsmechanische Prozesse begrenzen den Größenbereich zu großen Radien hin. Hierauf wird im folgenden noch genauer eingegangen werden.

Die Untersuchungen am stratosphärischen Aerosol Ende der fünfziger Jahre führte Junge und Mitarbeiter dazu, das partikuläre Material in drei Größenklassen einzuteilen [Junge *et al.*, 1961],

- Aitken-Kerne oder Nukleationsteilchen mit Radien kleiner als 0,1 μm ,
- große Teilchen mit Radien zwischen 0,1 und 1 μm und
- Riesenteilchen mit Radien größer als 1 μm .

Für quantitative Aussagen über Oberflächen- oder Massendichten ist die Kenntnis der Teilchenzahl in diesen drei Größenklassen nicht ausreichend. Man benötigt Informationen über das Größenspektrum. Das Partikelgrößenspektrum oder die Partikelgrößenverteilung dN^A/dr ist definiert als die Anzahl der Partikel im infinitesimalen Radiusintervall [r, r + dr] [Seinfeld, 1986]. dN^A/dr wird in der Regel durch Anpassen von Meßwerten $\Delta N(r)/\Delta r$ an eine analytische Funktion bestimmt. Ausgeprägte Maxima der Funktion dN^A/dr bezeichnet man als Moden. Ist die Verteilung von einem Maximum dominiert, spricht man von einer monomodalen Verteilung, ein bioder trimodales Spektrum besitzt zwei bzw. drei Maxima.

In der Literatur findet sich eine große Zahl unterschiedlicher Verteilungsfunktionen dN^A/dr (z.B. [Junge *et al.*, 1961; Pinnick *et al.*, 1976; Pruppacher und Klett, 1978; Thomason, 1991]). Ich erwähne hier nur die Lognormal-Verteilung, da sie für die Beschreibung stratosphärischer Aerosole sehr verbreitet ist und in der vorliegenden Arbeit ausschließlich verwendet wird,

$$\frac{dN^A}{dr} = \frac{\mathcal{N}^A}{\sqrt{2\pi} r \ln(s)} \exp\left(-\frac{\ln^2(r/\bar{r})}{2\ln^2(s)}\right) . \tag{1.2}$$

 \mathcal{N}^A ist die Gesamtteilchenzahldichte und \bar{r} der Modenradius (genauer: Medianradius). *s* bezeichnet man als die geometrische Standardabweichung, sie ist ein Maß für die Breite der Verteilung; monodisperse Aerosole haben die Eigenschaft s = 1. Die verbreitete Anwendung der Lognormal-Verteilung gründet sich nicht darauf, daß sie tatsächliche Größenverteilungen viel besser als andere Funktionen beschreibt, sondern basiert auf ihrer einfachen mathematischen Handhabbarkeit. Die Funktion ist integrierbar für alle Radien und die *k*-ten Momente der Verteilung lassen sich in einer einfachen analytischen Form darstellen [Reist, 1984],

$$\int_{0}^{\infty} dr \, r^k \, \frac{dN^A}{dr} = \mathcal{N}^A \, \bar{r}^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \, \ln^2(s)\right) \,. \tag{1.3}$$

Außerdem lassen sich beliebige reale Größenverteilungen immer durch eine Summe von Lognormal-Verteilungen darstellen; den einzelnen Summanden entsprechen physikalisch *Moden* der Verteilung.

Die Form flüssiger Teilchen wird in der Regel in ausreichender Genauigkeit durch Sphären beschrieben. Feste Partikel können amorphe Strukturen oder komplexe Kristallformen entwickeln, die von der Kugelform stark abweichen [Pruppacher und Klett, 1978]. Für die Beschreibung dieser asphärischen Teilchen führt man Äquivalentradien ein, die sich von Sphären gleicher Volumina, gleicher Massen oder gleichen aerodynamischen oder optischen Verhaltens ableiten.

1.3.2. Entstehungs- und Entwicklungsprozesse von Aerosolen

Nukleation

Die Entstehung eines Aerosolpartikels aus der Gasphase bezeichnet man als Nukleation. Eine Voraussetzung für das Einsetzen der Nukleation ist das Vorhandensein einer Übersättigung, d.h. der Partialdruck p des betreffenden Gases muß größer als der Sättigungsdampfdruck p^s sein. Das Verhältnis $S = p/p^s$ bezeichnet man als Übersättigungsverhältnis oder kurz Übersättigung.

- Nukleationsrate: Die Wahrscheinlichkeit für das Entstehen eines Teilchens pro Volumen- und Zeiteinheit wird durch die Nukleationsrate J angegeben [Pruppacher und Klett, 1978]. Per definitionem wird eine Nukleationsrate $J \ge 1 \text{ cm}^{-3} \sec^{-1}$ mit einsetzender Teilchenbildung identifiziert. Der genaue Zahlenwert ist nicht relevant, da J sehr empfindlich von den Partialdrücken des kondensierenden Gases abhängt. Beispielsweise nimmt die Nukleationsrate von H₂O-Tröpfchen bei einer Temperatur von 261 K um etwa fünf Größenordnungen zu, wenn die Übersättigung von S = 5 auf S = 6 zunimmt [Pruppacher und Klett, 1978].
- Homogene Nukleation: Mit homogener Nukleation oder Selbstnukleation bezeichnet man die Kondensation aus der Gasphase ohne die Gegenwart von Nukleationskeimen. Homogene Nukleation spielt bei der Entstehung stratosphärischer Aerosole nur unter extremen Bedingungen, wie z.B. tiefen Temperaturen oder hohen Spurengaskonzentrationen, eine Rolle [Hamill *et al.*, 1982].

- Heterogene Nukleation: Während homogene Nukleation sehr hohe Übersättigungen benötigt, bevor Teilchenwachstum einsetzen kann, erlaubt das Vorhandensein von Kondensationskernen Partikelentstehung schon bei Übersättigungen von wenigen Prozent über eins. Man bezeichnet diesen Fall als heterogene Nukleation [Pruppacher und Klett, 1978]. Hierbei hängt die Definition des Kondensationskerns vom betrachteten Aerosol ab. Beispielsweise dienen Ionencluster oder Mikrometeore offenbar als Nukleationskeime für das stratosphärische H₂SO₄-Hintergrundaerosol [Arnold, 1980]. Bei der Entstehung von polaren stratosphärischen Wolken fungieren nun die H₂SO₄-Aerosole ihrerseits als Kondensationskerne.
- Gefrierprozesse: Neben der Kondensation aus der Gasphase spielt in der Stratosphäre auch der Gefrierprozess eine Rolle, der flüssige in feste Partikel überführt. Auch hier kann wieder zwischen homogenem Gefrieren eines Tröpfchens und heterogenem Gefrieren an einen sog. Gefrierkeim unterschieden werden. Die Nukleationsraten einiger stratosphärisch wichtiger Substanzen werden zur Zeit im Labor untersucht [Krämer *et al.*, 1996, 1998*a*,*b*]; ich werde später darauf zurückkommen.

Kondensation und Verdunstung

Ist durch heterogene oder homogene Nukleation ein Teilchen entstanden, dessen Radius den sog. kritischen Radius r^\star

$$r^{\star} = \frac{2\sigma m}{\rho \, k \, T \, \ln(S)} \tag{1.4}$$

übersteigt, wächst es durch Kondensation weiter an, andernfalls verdunstet es. In Gl. 1.4 ist S das Übersättigungsverhältnis und T die Temperatur; σ , m und ρ bezeichnen die Oberflächenspannung, Molekülmasse und Massendichte der Flüssigkeit, k ist die Boltzmann-Konstante.

Sedimentation

Neben Teilchenverlust durch Verdunstung ist Sedimentation eine weitere Senke für stratosphärische Aerosole. Die Sedimentationsgeschwindigkeit v_s ist proportional zur Dichte des Teilchens ρ und proportional zum Quadrat des Teilchenradius r.

In der Abbildung 1.3 aus [Stebel, 1998] sind die Fallgeschwindigkeiten für Teilchen, die in erster Näherung als sphärisch angenommen werden, als Funktion des Teilchenradius für drei verschiedene Höhen (10, 20 und 30 km) dargestellt. Die Angaben gelten für 75 prozentige Schwefelsäure, NAT, STS und Eis (mit Dichten aus Drdla *et al.* [1993]; Carslaw *et al.* [1995b]). Ein Schwefelsäuretröpfchen mit einem Radius von 0.05 μ m sedimentiert aus 20 km Höhe lediglich 5 cm pro Tag. Wachsen die stratosphärische Aerosolteilchen auf 1 – 10 μ m an (z.B. PSCs des Typs II), können



Abbildung 1.3.: Fallgeschwindigkeiten für Teilchen – die in erster Näherung als sphärisch angenommen werden – als Funktion des Teilchenradius, für verschiedene Höhen (10, 20 und 30 km).

sie von einigen 10 Metern bis zu einigen Kilometern pro Tag sedimentieren. Hierdurch kann es zur Denitrifizierung oder Dehydrierung bestimmter Höhenbereiche der Stratosphäre kommen.

Koagulation

Aerosolpartikel sind nicht nur der Wechselwirkung mit Molekülen der sie umgebenden Atmosphäre ausgesetzt, sondern sie kollidieren aufgrund ihrer Eigenbewegung auch miteinander. In der Regel verläuft ein hoher Prozentsatz dieser Kollisionen inelastisch und führt zur Bildung neuer Teilchen, die aus den beiden Stoßpartnern bestehen. Diesen Prozeß bezeichnet man als Koagulation (z.B. [Pruppacher und Klett, 1978; Hinds, 1982]).

Die Wahrscheinlichkeit für die Koagulation eines kleinen mit einem großen Partikel ist höher als die gleich großer Teilchen. Im ersteren Fall bewirkt die hohe Mobilität des einen und die große Oberfläche des anderen Stoßpartners eine hohe Kollisionsrate. Koagulation führt daher im Größenspektrum zu einem Verschwinden von Moden bei kleinen Radien, während sich der Radius des größeren Teilchens kaum ändert. In der Stratosphäre beeinflußt Koagulation das Größenspektrum nur geringfügig, da die Teilchendichten von großen Partikeln wenige cm⁻³ nicht übersteigen. Nach Modellrechnungen von Toon *et al.* [1989] ist die Koagulationsrate von 0,1 und 0,5 μ m-Partikeln mit Teilchen, die nicht größer als 100 μ m sind, auf einer Zeitskala von Tagen vernachlässigbar gering.

1.4. Stratosphärische Aerosole

Bevor ich näher auf polare stratosphärische Wolken eingehe, werde ich kurz die wichtigsten Fakten zu den beiden anderen durch Lidar meßbaren Aerosoltypen, dem Hintergrund- und dem vulkanischen Aerosol, skizzieren.

1.4.1. Das Hintergrundaerosol

Man findet in einer Höhe von 7–10 km oberhalb der Tropopause (d.h. in 80°N: ca. 16-19 km Höhe) eine permanent vorhandene stratosphärische Aerosolschicht, nach ihrem Entdecker auch Junge-Schicht genannt [Junge et al., 1961]. Die Abgrenzung zum vulkanischen Aerosol ist schwierig, da beide Partikeltypen ähnliche Eigenschaften aufweisen. Langzeitbeobachtungen [Jäger et al., 1997, z.B.] zeigen jedoch, daß die Aerosolbeladung auch in langen vulkanisch ruhigen Zeitperioden nicht gegen Null tendiert; außerdem hat das Partikelspektrum nur für große Teilchen ($\bar{r} > 0, 1 \mu m$) ein Maximum im genannten Höhenbereich (1–10 Teilchen/cm³), während das Massenmischungsverhältnis für Teilchen in der Nukleationsmode ($\bar{r} < 0, 1 \mu m$) mit der Höhe stark abnimmt. Dies deutet auf eine Quelle in der Troposphäre hin. Als Quelle für das stratosphärische H₂SO₄-Hintergrundaerosol kommen nur schwefelhaltige Gase in Betracht, die über eine ausreichende troposphärische Lebensdauer verfügen, damit vertikale Transportprozesse sie in die Stratosphäre eintragen können. In Phasen geringer vulkanischer Aktivität ist die dominierende Quelle Carbonylsulfid, OCS. Carbonylsulfid wird photochemisch in Schwefeldioxid überführt, dieses oxidiert unter dem Einfluß des OH-Radikals zu H₂SO₄. Der direkte Eintrag von troposphärischem Schwefeldioxid in die Stratosphäre ist vernachlässigbar, da SO₂ bereits in der Troposphäre zu H₂SO₄ oxidiert und vom Niederschlag ausgewaschen wird. Eine wichtige Ausnahme sind energiereiche Vulkaneruptionen, die SO₂ direkt in die Stratosphäre eintragen. Dies wird im folgenden Abschnitt diskutiert.

Es bilden sich in wenigen Wochen schließlich H_2SO_4 -Tröpfchen [Turco, 1985]. Die Bildung dieser Aerosole muß durch heterogene Nukleation geschehen, da experimentell [Krämer *et al.*, 1998*a*] für Tröpfchen mit einem H_2SO_4 -Anteil von mehr als 55% auch bei sehr tiefen Temperaturen (< 160*K*) keine homogene Nukleation beobachtet wird. Schwefelsäuretröpfchen befinden sich im Gleichgewicht mit dem in der Gasphase vorhandenen Wasser, d.h. die Anzahl der pro Zeiteinheit kondensierenden H_2O -Moleküle entspricht der pro Zeiteinheit verdunstenden Moleküle. Abschätzungen für diesen Prozeß ergeben eine Zeitkonstante in der Größenordnung weniger Sekunden [Steele und Hamill, 1981]. In Abhängigkeit von Wasserdampfpartialdruck und Temperatur stellt sich unter Annahme typischer Stratosphärenbedingungen eine H_2SO_4 -Konzentration zwischen 60 und 85% ein [Steele und Hamill, 1981].

Sedimentation in die Troposphäre stellt die Senke für das Hintergrundaerosol dar. Die Zeitskala für diesen Prozeß liegt größenordnungmäßig bei etwa 10 Jahren (vgl. Abb. 1.3, typischer Radius $0,1\mu m$).

Als von vulkanischem Aerosol ungestörte Perioden können die Jahre 1979, 1989-91





und wieder ab Winter 1996/97 angesehen werden (s.a. [Wedekind, 1997]). Ein langsamer anthropogener Anstieg der Hintergrundaersolbeladung kann nach neuesten Analysen verneint werden [*ebendort*]. Die Größenverteilung der wesentlichen Mode des ungestörten Hintergrundaersols kann nach Zhao *et al.* [1995] durch eine Lognormalverteilung mit den Parametern $\bar{r} = 0.08 \mu m$, $\sigma = 1,8$ und $\mathcal{N}^A = 15 \text{cm}^{-3}$ befriedigend dargestellt werden.

Für die in dieser Arbeit diskutierten Aerosolmessungen ist die Größenordnung der durch das Hintergrundaerosol verursachten Aerosolstreuung interessant; hierzu wurden die in mittleren Breiten gemessenen Aerosolrückstreukoeffizienten (nach Wedekind [1997]) in Rückstreuverhältnisse R umgerechnet und in Fig. 1.4 dargestellt. Für die beiden Meßwinter 1995/96 und 1996/97 sind danach maximale Rückstreuverhältnisse von 1,1 zu erwarten. Eigene Messungen des Hintergrundaerosols werden in Abschnitt 4.3 vorgestellt.

1.4.2. Vulkanisches Aerosol

Der stratosphärische Aerosolhaushalt wird zumindest sporadisch durch den Eintrag vulkanischen Materials beeinflußt. Die Injektion von Schwefeldioxid in die untere und mittlere Stratosphäre führt zur Bildung von Schwefelsäureaerosolen, wobei der Mechanismus und die Zusammensetzung der H_2SO_4 -Partikel denen des Hintergrundaerosols analog sind.

In der Abbildung 1.5 ist eine Übersicht über die globale optische Dicke des stratosphärischen Aerosols im Zeitraum zwischen 1883 und 1990 gegeben nach Sato *et al.* [1993] Die Eruptionen des Mt. Pinatubo (Nr. 9 in der Abbildung) führten am 15. und 16. Juni 1991 zu einem Anstieg der optischen Dicke um mehr als eine Größenordnung.



Abbildung 1.5.: Zeitliche Entwicklung der global gemittelten optischen Dicke (Aerosolanteil) der Atmosphäre bei einer Wellenlänge von 550 nm nach [Sato et al., 1993]. Eruption Nr. 2: Kratatau (1883), Nr. 8: El Chichon (1982), Nr. 9: Mt. Pinatubo (1991).

Der Anstieg des stratosphärischen Aerosolgehalts modifizierte das Strahlungsfeld und die Dynamik der Erdatmosphäre (vgl. Stebel [1998]). Die vulkanische Aerosolschicht beeinflußte troposhärische und stratosphärische Temperaturen; die chemische Zusammensetzung – in erster Linie der Stratosphäre – wurde verändert [Hansen *et al.*, 1996; Hofmann *et al.*, 1994; Koike *et al.*, 1994]. So wurde beispielsweise ein verstärkter Abbau des stratosphärischen Ozons beobachtet [Rosenfield *et al.*, 1997]. Vulkanische Aerosole sind ein kritischer Faktor in der Ozonchemie der mittleren Breiten (in den Polargebieten überwiegen die PSC-Effekte). Es ist jedoch das anthropogene Chlor, das das Vorzeichen der Ozonveränderung bestimmt! Ohne Belastung der Stratosphäre durch anthropogenes Chlor würde vulkanisches Aerosol die Ozondichte sogar erhöhen [Tie und Brasseur, 1995].

Zum aktuellen Zeitpunkt ist das vulkanische Schwefelsäureaerosol fast vollständig wieder aus der Stratosphäre entfernt [Stebel, 1998], [Wedekind, 1997] und spielt für die hier diskutierten PSC-Beobachtungen unmittelbar keine Rolle; festzuhalten bleibt, daß PSCs erst nachgewiesen werden können, wenn ihr maximales Rückstreuverhältnis das Rückstreusignal des Hintergrundaerosols signifikant übersteigt, mit anderen Worten, wenn $R \gtrsim 1, 1$.

1.4.3. Polare stratosphärische Wolken

Schon seit mindestens dem letzten Jahrhundert sind "Perlmutterwolken" beschrieben worden, insbesondere in Skandinavien (Eine Zusammenstellung der Beobach-

tungen seit 1870 geben Stanford und Davis [1974]). Diese sehr auffälligen, häufig farbigen und mit bloßem Auge sichtbaren Wolken können beobachtet werden, wenn sich die Sonne knapp unter dem Horizont befindet und Sonnenlicht unter einem flachen Winkel auf die Unterseite der Wolken fällt. Bereits Anfang des Jahrhunderts wurden Wolkenhöhen mittels Triangulation bestimmt [Størmer, 1929]. Mit typischen Höhen um 25 km sind Perlmutterwolken eindeutig den polaren stratosphärischen Wolken zuzuordnen³. Erst seit Anfang der achtziger Jahre dieses Jahrhunderts wurde durch satellitengestütze Messungen der stratosphärischen Extinktion eine systematische Beobachtung der PSC-Häufigkeit möglich [Mc Cormick *et al.*, 1982, 1993]. Polare stratosphärische Wolken wurden demnach während der Winterhalbjahre an ca. 30% aller Tage in der Antarktis und an ca. 5% aller Tage in der Arktis beobachtet.

Einzelne PSC-Partikel sind *in situ* noch nie analysiert worden; indirekte Rückschlüsse auf die Form der Partikel lassen die Messungen von Iwasaka *et al.* [1993] zu, die mit einem Elektronenmikroskop die "Abdrücke" von Partikeln auf Carbonbzw. Nitronfilmen analysiert haben. Es wurden zwei Arten von Nitrat-haltigen Aerosolteilchen beobachtet, von denen die eine Art kristallin zu sein schien und die zweite Spezies flüssig.

In den letzten drei arktischen Wintern (1994/95 bis 1996/97) bildeten polare stratosphärische Wolken (PSCs) den Hauptanteil des stratosphärischen Aerosols in der Arktis.

PSC-Typen

Die erste Klassifikation von PSC-Typen stammt von Browell *et al.* [1990]. Die arktischen flugzeuggetragenen Lidarmessungen ließen sich in drei Klassen einteilen: siehe Tabelle 1.2.

Die Wellenlängenabhängigkeit von Rückstreuverhältnis und Aerosoldepolarisation wird dabei wie folgt angenommen (Definitionsgleichung für α und β): $R - 1 \propto \lambda^{4-\alpha}$ bzw. $\delta^{Aer} \propto \lambda^{-\beta}$ und wurde von *Browell* et al. aus den Rückstreudaten des Wellenlängenpaars (603,1064) nm berechnet. Umgerechnet auf die in dieser Arbeit verwendete Lidarwellenlänge von 532 nm ergeben sich in Tabelle 1.2 die Werte in Klammern.

Zusammenfassend läßt sich diese klassische Einteilung wie folgt beschreiben: Ia-Partikel sind offenbar größer, von geringerer Konzentration, liefern niedrigere Rückstreuverhältnisse und sind asphärisch; Ib-Partikel scheinen kleiner zu sein, die Anzahldichte ist höher, sie liefern größere Rückstreuverhältnisse und sind sphärisch oder nahezu sphärisch. Typ-II-Partikel sind sehr groß, stark depolarisierend und das Rückstreuverhältnis kann Werte von über 100 erreichen.

Im Laufe der Zeit sind noch andere "Typen" hinzugekommen:

³Wegen der großen optischen Dichte muß es sich um Wassereis- (Typ II) PSCs handeln, die oft in Leewellen der skandinavischen Gebirge auftreten.

Typ	R		α	δ^{Aer} [%]		β
	603 nm (532 nm)	1064 nm		603 nm (532 nm)	1064 nm	
Ia	1,2-1,5(1,1-1,4)	2-5	0,4	30-50	30-50	≈ 0
Ib	3-8(2,5-7,5)	5-20	2-3	0,5-2,5	<4	-
II	>10(>7)	>20	<0,8	>10	>10	≈ 0

Tabelle 1.2.: Klassifizierung von PSC-Typen aus Lidar-Messungen nach Browell et al. [1990]. Es bedeuten R Rückstreuverhältnis, δ^{Aer} Aerosoldepolarisation; α und β kennzeichnen die Wellenlängenabhängigkeit von Rückstreuverhältnis und Aerosoldepolarisation und werden im Text erklärt. Die Werte in Klammern (für 532 nm) wurden berechnet. Typ I-Wolken werden nur für $T < T_{\rm NAT}$ und Typ II-Wolken nur für $T < T_{\rm lce}$ beobachtet.

Ic Tabazadeh und Toon [1996] beschrieben in situ-Messungen von Aerosolvolumina und -zusammensetzung in PSCs, die im Januar 1989 im Rahmen der AASE-Kampagne (auf ER-2) beobachtet wurden. Es handelt sich hierbei nicht um Lidarmessungen, sondern um Messungen des Aerosolgrößenspektrums mit einem Partikelzähler und um Analysen der Gasphasenzusammensetzung. Die Daten einiger Meßflüge sind weder mit NAT/NAD-Wolken noch mit PSCs aus STS-Teilchen noch mit Mischungen beider Partikelsorten verträglich; die Autoren postulieren deshalb die Existenz eines weiteren Teilchentyps, der als wasserreiche metastabile feste HNO₃-Phase charakterisiert werden kann. Wasserreich heißt, daß etwa 5 bis 16 Moleküle H₂O pro HNO₃-Molekül vorliegen müssen, um die beobachteten Zusammensetzungen zu erklären. Metastabil deshalb, weil derartige amorphe Teilchen im Gleichgewicht in die thermodynamisch stabilen Hydrate NAT (oder NAD) übergehen müssen, was auch ein möglicher Bildungsweg der "klassischen" I a-Partikel (NAT) wäre. Diese Interpretation der ER-2-Daten wird von Peter [1997] kritisiert. Außerdem sind die (Lidar-)optischen Daten der postulierten Ic-Partikel nicht bekannt, so daß ich sie hier nicht weiter betrachten werde.

M Bezeichnung von Rosen *et al.* [1997] für mit Rückstreusonden beobachtete Partikel, die aufgrund der Klassifizierung nach R(940 nm) und Farbindex weder sicher als I a noch als I b-PSCs separiert werden können. Vermutlich eine Mischung (M="Mixed") beider Typen.

Ix Shibata *et al.* [1997] beschrieben nach ihren Lidar-Messungen im Januar 1995 in Ny-Ålesund einen PSC-Typ mit R=(5...8), $\delta^{\text{Aer}} < 0.005$ und $\eta > -0, 5$; dies deutet auf große ($\bar{r} \ge 0, 4\mu m$) flüssige Partikel. Die beobachtete Temperatur in den "Ix"-Schichten war extrem kalt: <190 K und nur wenig oberhalb des Frostpunktes. Die Autoren modellieren das Partikelgrößenspektrum mit dem STS-Modell von Tabazadeh *et al.* [1994*b*] und kommen zu dem Schluß, daß die beobachteten Aerosole größer sind als sie das Modell vorhersagt und daß sie mehr Wasser enthalten müssen als NAT oder STS.

Id Kürzlich beschrieben Peter *et al.* [1997] die Lidarmessung einer 400 km langen PSC südlich von Spitzbergen am 31.12.1996 mit R=2,5 und $\delta^{Aer} = 0, 15$; diese Kombination paßt eindeutig nicht in die Ia/Ib-Klassifikation von Browell. Ähnli-

che Beobachtungen beschreiben Mehrtens [1998] vom ALOMAR-Lidar in Andøya (69°N, 16°O) und Wedekind [1997] aus Sodankylä/Finnland; diese Messungen werden in Abschnitt 4.4.4 vorgestellt und zusammen mit vergleichbaren eigenen Beobachtungen aus Ny-Ålesund diskutiert. Der (vorläufige) Name "Id" stammt von Wedekind [1997]. Alle diese Beobachtungen zusammengefaßt (wenn sie denn die gleichen Partikel beschreiben) führen auf die Klassifikation Id mit R=(1,4...3,4), $\delta^{Aer} = (0,1...0,25)$.

Mikrophysikalische Modelle

Es steht außer Frage, daß Typ II–PSCs hauptsächlich aus Wassereis bestehen müssen; nur H_2O liefert genügend kondensierbare Materie, um die hohen Rückstreuverhältnisse zu erklären. Die Partikel in PSCs vom Typ II enthalten wahrscheinlich neben Wassereis auch Spuren von HNO₃, entweder in Form von NAT-Kernen, auf denen das Eis durch Depositionsnukleation entstanden ist, oder als individuelle NAT-Cluster im Falle der Co-Kondensation mit Wassereis. Ähnlich können auch Spuren von HCl und anderen Spurengasen co-kondensieren.

Tabazadeh *et al.* [1997] haben die Nukleation von Eispartikeln thermodynamisch betrachtet: danach kann die Nukleation von Eis auf flüssigen, hauptsächlich aus bestehenden Hintergrundaerosolen nur 2–3 K unterhalb des Frostpunktes $T_{\rm Ice}$ erfolgen. Zur Aktivierung eines signifikanten Anteils der Kondensationskeime sind zusätzlich Abkühlungsraten von > 500 K/d erforderlich, wie sie offenbar nur in kalten Leewellen vorkommen können. Beobachtungen [Rosen *et al.*, 1997] zeigen indes, daß die Wahrscheinlichkeit, PSC II zu beobachten, innerhalb von ±1 K von $T_{\rm Ice}$ dramatisch ansteigt (von ≈ 0.05 auf ≈ 0.95), was eine vorangegangene Unterkühlung jedoch nicht ausschließt.

Die Entstehung der Typ I–PSCs ist weniger klar. Ursprünglich wurde vorgeschlagen [Toon *et al.*, 1990], daß Ia-PSCs durch Nukleation von NAT auf (gefrorenen) Hintergrundaerosol–Partikeln entstehen. Die geringen Übersättigungen in Luftmassen mit kleiner Kühlrate führen dazu, daß nur ein kleiner Bruchteil der Partikel als aktive Keime dienen kann; das Wachstum von wenigen großen Teilchen ist die Folge. Schnelle Abkühlung würde zu höheren Übersättigungen führen und damit zur Kondensation von NAT auf einer größeren Anzahl oder auf allen vorhandenen Partikeln, was umgekehrt zu den kleineren Radien der Ib-Partikel führen sollte. Die sehr kleine Depolarisation der Ib-Partikel kann damit erklärt werden, daß die Teilchen kleiner als $\approx 0, 2\mu m \sin^4$.

Dieses einfache Szenarium kann aber aus mehreren Gründen nicht aufrechterhalten werden. Erstens können gefrorene Hintergrundaerosole nach Laborbeobachtungen i.A. ausgeschlossen werden [Krämer *et al.*, 1998*a*], zweitens würden mesoskalige Temperaturfluktuationen (MTF) effektiv dazu führen, daß die meisten Luftpakete hohe Abkühlraten erführen [Murphy und Gary, 1995]. Drittens ist nach neueren

⁴Die Empfindlichkeit der Depolarisation auf asphärische Teilchen wird dann bei den üblichen Lidarwellenlängen sehr klein, vgl. Kapitel 2.3.2.

Beobachtungen auszuschließen, daß die Partikel in Ib-PSCs asphärisch, d.h. fest, sind (die beobachteten Radien sind zu groß, um eine verschwindende Aerosoldepolarisation bei optischen Wellenlängen zu bewirken). Es ist allgemein akzeptiert, daß Typ I-PSCs größtenteils aus Salpetersäure und Wasserdampf (sowie der Schwefelsäure des Hintergrundaerosols) entstehen, den beiden kondensierbaren Gasen, die in der Stratosphäre in ausreichender Menge zur Verfügung stehen.

Anfangs ist vorgeschlagen worden, daß Typ I-PSCs aus Salpetersäuretrihydrat, $HNO_3 \cdot 3H_2O$ (NAT) bestehen, einem festen Kristall [Toon *et al.*, 1986; Crutzen und Arnold, 1986]. Dieser Vorschlag ist zunächst einmal durch den Nachweis von HNO_3 in PSCs gestützt worden [Fahey *et al.*, 1989], zum anderen durch Laboruntersuchungen [Hanson und Mauersberger, 1988*a*], die zeigen, daß NAT bei etwa denselben Temperaturen entstehen könnte, bei denen PSCs beobachtet werden.

Spätere genaue PSC-Beobachtungen zeigten allerdings, daß PSCs normalerweise erst mehrere Kelvin unterhalb des NAT-Frostpunktes (T_{NAT}) beobachtet werden. Diese Diskrepanz könnte damit erklärt werden, daß für die normale Kondensation keine effektiven Nukleationskerne zur Verfügung stehen und hohe Übersättigungen notwendig sind, um Kondensation auf (unbekannten) speziellen Keimen zu erzwingen. Dieses Szenarium wäre mit der Bildung von Ia-PSCs konsistent, hat aber den schwerwiegenden Mangel, daß weder Beobachtungen noch Modellrechnungen die notwendigen Kondensationskeime eindeutig benennen können (mit der Ausnahme von Eispartikeln).

Vor wenigen Jahren wurde klar, daß die Mehrzahl der Ib-PSC-Beobachtungen mit Wolken aus unterkühlten Tröpfchen (supercooled ternary systems, STS) erklärt werden kann [Tabazadeh et al., 1994a; Carslaw et al., 1994]. Diese Modelle sagen ein signifikantes Wachsen des Hintergrundaerosols durch die rasche Aufnahme von HNO₃ und H₂O unterhalb einer einigermaßen wohldefinierten Temperatur $T_{\rm STS}$ voraus, die ca. 4 K unterhalb von $T_{\rm NAT}$ liegt. In einigen Fallstudien ist bereits gezeigt worden, daß die Bildung von PSCs mit Ib-Charakteristik bei $T_{\rm STS}$ erfolgt [Dye et al., 1992; Carslaw et al., 1994; Drdla et al., 1994; Beyerle et al., 1997].

Tabazadeh *et al.* [1996] kritisieren daran, daß die Mehrzahl der Beobachtungen einen PSC-Ib-Einsetzpunkt in einem etwas wärmeren und breiteren Temperaturintervall zeigt.

Koop und Carslaw [1996] beschrieben ein Vielkomponentensystem, bei dem gefrorene Hintergrundpartikel (SAT, $H_2SO_4 \cdot 4H_2O$) sich bei *Abkühlung* durch die Aufnahme von HNO₃ plötzlich verflüssigen (bei $T = T_{SAT-del.}$) und über ein nur 1 K breites Temperaturintervall dramatisch wachsen können. Unterhalb der Verflüssigungstemperatur würden sich die Tröpfchen wie STS verhalten; bei Abkühlung unter den Frostpunkt könnte neben Eis wieder SAT auskristallisieren, das bei nachfolgender Erwärmung bis ca. 215 K stabil wäre und bei der nächsten Abkühlung wieder die Bildung von flüssigen Aerosolen einleiten würde. Da die Verflüssigungstemperatur und die STS-Bildungstemperatur fast identisch sind, $T_{SAT-del.} \approx T_{STS} + 0.8K$, dürfte die experimentelle Unterscheidung dieses Mechanismus' von der Kondensation von STS-Teilchen allerdings schwierig sein.

Die Annahme, daß SAT in der Stratosphäre existiert, ist allerdings interessant. Zhang *et al.* [1995] haben gezeigt, daß NAT von *aktivierten* SAT-Keimen relativ leicht kondensiert, d.h. auf SAT-Keimen, die bereits mindestens einmal mit einer Monolage NAT bedeckt waren. Diese Partikel, falls sie zu Beginn des Winters einmal (z.B. in kalten Leewellen bei Temperaturen unterhalb des Frostpunktes) entstanden sind und aktiviert wurden, können lange überleben (ihr Schmelzpunkt von ca. 210...215 K wird nur selten im arktischen Wirbel überschritten) und immer wieder zur Kondensation von NAT führen; es sei denn, sie verflüssigen sich! Nun haben aber Koop *et al.* [1997] gezeigt, daß aus thermodynamischen Gründen H₂SO₄-Hydrate sich in der Anwesenheit von NAT oder Eis nicht verflüssigen können. Wenn also wirklich aktiviertes gefrorenes Hintergrundaerosol, mit anderen Worten SAT, in der arktischen Stratosphäre entstehen kann, dann sind Keime für die Kondensation von NAT bei moderaten Übersättigungen vorhanden; bei Erwärmung über T_{NAT} bliebe der Keim erhalten, falls die Temperatur nicht über 210...215 K steigt.

Zur Zeit werden nur noch zwei andere Möglichkeiten zur Bildung fester PSC-Teilchen im Temperaturbereich $T_{\rm Eis} < T < T_{\rm NAT}$ diskutiert: Die Kondensation von NAX/SAX⁵ auf Eisteilchen bei $T < T_{\rm Eis}$ und nachfolgender Erwärmung, wobei das NAX/SAX-Partikel übrigbleibt und sich langsam in die thermodynamisch stabilste Form, NAT, umwandelt [Koop *et al.*, 1997]; und das Gefrieren von STS-Teilchen im Nichtgleichgewicht (z.B. durch schnelle Temperaturschwankungen in Leewellen verursacht) zu NAX oder NAD [Meilinger *et al.*, 1995].

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß die mikrophysikalischen Theorien zur Bildung von PSC-Ia-Teilchen sämtlich die Unterschreitung der Frostpunkttemperatur bzw. schnelle Temperaturschwankungen in Leewellen fordern, zumindest zu Beginn des Winters (Erzeugung von aktivierten SAT-Keimen).

Der Einfluß des PSC-Typs auf die Ozonchemie in der Arktis

Obwohl die Physik und Chemie von PSCs gut genug verstanden sind, um das antarktische Ozonloch erklären zu können, ist man noch weit davon entfernt, die komplexe Situation in der Arktis zu verstehen bzw. modellieren zu können. Dieser Unterschied hat meteorologische Gründe: die Chloraktivierung in der extrem kalten antarktischen Stratosphäre ist oft in Sättigung (was die genaue Kenntnis der Partikeltypen relativ unwichtig macht), während in der wärmeren Arktis die Details der PSC-Entstehung und die chemischen Prozesse auf den verschiedenen PSC-Typen von großer Bedeutung sind.

Nach [Sessler *et al.*, 1996; Ravishankara und Hanson, 1996] laufen die Konversionsreaktionen, die die Reservoirgase in reaktives Chlor umwandeln, an flüssigen Aerosolen schneller (etwa eine Größenordnung) ab als an NAT oder SAT. Neben der Reaktionsgeschwindigkeit spielen noch die Oberflächendichte der Partikel und die Höhe, in der die PSCs auftreten, eine Rolle. Wegen der um ca 3 K tieferen Existenztemperatur von flüssigen (STS) Aerosolen ist das Volumen der Atmosphäre, das von Ib-PSCs

⁵NAX: Sammelbegriff für alle HNO₃-Hydrate, SAX: Sammelbegriff für alle H₂SO₄-Hydrate

eingenommen wird, wesentlich kleiner als das Volumen, in dem feste PSCs existieren können. Andererseits treten, wie in dieser Arbeit gezeigt werden wird, Ib-PSCs bei Unterschreitung ihrer Existenztemperatur immer auf, während die Bildung von Ia-PSCs eine komplizierte Funktion der Geschichte des Luftpakets zu sein scheint. Zusammenfassend: feste PSC-Teilchen sind für die Chloraktivierung nicht notwendig, es können (auf flüssigen PSCs) in der Arktis substantielle Mengen aktives Chlor auch ohne die Nukleation von festen PSCs generiert werden.

PSCs und Klima/Strahlungshaushalt

Die Wechselwirkungen von PSCs mit der Solarstrahlung sind von untergeordneter Bedeutung, da sie zumeist nur bei großen Sonnenzenitständen auftreten. Die Erwärmungs- und Abkühlraten am Boden sind von der aufsteigenden thermischen Infrarotstrahlung abhängig [Kinne und Toon, 1990]. Über warmen Gebieten (Ozeanen) erwartet man eine Erwärmung (Überwiegen des Effekts der absorbierten Rückstrahlung), über kalten Flächen (Polarregionen) eine Abkühlung (Überwiegen des Effekts der absorbierten kurzwelligen Strahlung). Der Effekt von PSCs des Typs I auf die radiativen Heizraten in der Stratosphäre ist mit ± 1 K pro Tag vernachlässigbar. PSCs des Typs I können im 70 mbar Niveau zu einer Temperaturänderung zwischen +1 und -0.2 K pro Tag führen. Für orographisch induzierte PSCs wurden +3 bis -0.5 K pro Tag berechnet [Rosenfield, 1993].

Für die Arktis mit vergleichsweise wenigen und kurzlebigen PSCs vom Typ II dürfte der direkte Einfluß auf den Strahlungshaushalt vernachlässigbar sein. Allerdings kann der indirekte Einfluß über den Abbau des stratosphärischen Ozons in der unteren Stratosphäre signifikant sein [ebendort].

Experimentelle Fragen

Mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Lidar-Experiment soll den folgenden experimentellen Fragen nachgegangen werden:

- Wie lassen sich PSCs sinnvoll klassifizieren, d.h. nicht nur phänomenologisch, sondern auch mikrophysikalisch sinnvoll?
- Was ist der Existenztemperaturbereich bzw. die Einsatztemperatur dieser Typen?
- Wie hängt das Auftreten der verschiedenen Typen (außer von der Umgebungstemperatur) von der Temperatur- und sonstigen Vorgeschichte der Luftpakete ab?
- Welche mikrophysikalischen Modelle sind mit den Beobachtungen konsistent?
- Wie kann die PSC-Statistik mit der Meteorologie der Stratosphäre erklärt werden?
- Wie kann die beobachtete zeitliche Entwicklung der PSCs mit mikrophysikalischen Modellen unter Berücksichtigung der Meteorologie erklärt werden?
- Was bedeutet das für die O₃-Chemie?

2. Streu- und Lidar-Theorie

In diesem Kapitel möchte ich die wichtigsten Größen aus den Bereichen Molekülund Partikelstreuung sowie die grundlegenden Lidar-Gleichungen darstellen, soweit ich sie später noch brauchen werde. Da die Theorie der Streuung und die des hier verwendeten Lidar-Systems seit Jahren bekannt ist, lehne ich mich hier an die entsprechenden Abschnitte aus der Dissertation von Georg Beyerle [Beyerle, 1994] an.

Die Laserstrahlen, die das Aerosol-Lidar emittiert, werden von den Molekülen der Atmosphäre und dem suspendierten partikulären Material gestreut und absorbiert. Ersteres bezeichnet man als Molekülstreuung, letzteres als Partikelstreuung, falls die Ausdehnung des streuenden Objekts von gleicher Größenordnung wie die Wellenlänge λ des eingestrahlten Lichts ist. Der Spezialfall der Streuung an einer optisch homogenen Kugel heißt Mie-Streuung. Die Wechselwirkung von Licht mit Objekten, deren Dimensionen sehr viel größer als λ sind, wird durch die Gesetze der geometrischen Optik beschrieben (z.B. [Born und Wolf, 1980]). Die Wirkungsquerschnitte für Molekül- und Partikelstreuung sind abhängig von der Wellenlänge des eingestrahlten Lichts sowie von den optischen Eigenschaften und der Dimension des streuenden Teilchens.

Da in den Aerosol-Lidar-Messungen neben der Intensität auch die Änderung des Polarisationszustands der emittierten Lichtwelle bestimmt wird, beginne ich die Darstellung mit der Definition von Stokes-Vektoren und Müller-Matrizen; dann wird auf die Berechnung von Molekül- und Partikelstreukoeffizienten eingegangen, worauf wir die Lidar-Gleichungen hinschreiben können.

2.1. Stokes-Vektoren und Müller-Matrizen

Im folgenden betrachte ich eine quasi-monochromatische elektromagnetische Welle der Frequenz ν mit dem Wellenvektor \vec{k} ,

$$\vec{E}(t) = \left(E_{||}(t) \,\hat{e}_{||} + E_{\perp}(t) \,\hat{e}_{\perp} \right) \, \exp\left(i \, (\vec{k} \, \vec{r} - 2\pi \, \nu \, t) \right) \,.$$

Hier bezeichnen \hat{e}_{\parallel} und \hat{e}_{\perp} die Einheitsvektoren senkrecht zur Ausbreitungsrichtung sowie $E_{\parallel}(t)$ und $E_{\perp}(t)$ den Betrag der elektrischen Feldstärke in Richtung von \hat{e}_{\parallel} und \hat{e}_{\perp} . Auf einer Zeitskala, die deutlich größer als die inverse Frequenz ist $(T \gg 1/\nu)$, kann die Lichtwelle durch vier Größen charakterisiert werden: die Intensität der \perp - und der ||-Komponente, die Phasendifferenz zwischen der \perp - und der ||-Komponente und der prozentuale Anteil des vollständig polarisierten Lichts. Es gibt verschiedene Möglichkeiten der Darstellung dieser vier-elementigen Größe [van de Hulst, 1957; Shurcliff, 1962; Clarke und Grainger, 1971; Bohren und Huffman, 1983]. Ungeachtet der differierenden Definitionen bezeichnet man diese Größe als Stokes-Vektor $\vec{P} = (P_1, P_2, P_3, P_4)$. Ich folge der Notation von Bohren und Huffman [1983],

$$P_{1} = \langle E_{\parallel} E_{\parallel}^{*} + E_{\perp} E_{\perp}^{*} \rangle$$

$$P_{2} = \langle E_{\parallel} E_{\parallel}^{*} - E_{\perp} E_{\perp}^{*} \rangle$$

$$P_{3} = \langle E_{\parallel} E_{\perp}^{*} + E_{\perp} E_{\parallel}^{*} \rangle$$

$$P_{4} = i \langle E_{\parallel} E_{\perp}^{*} - E_{\perp} E_{\parallel}^{*} \rangle$$

Die zeitliche Mittelung, angedeutet durch die eckigen Klammern, erfolgt über einen Beobachtungszeitraum $T \gg 1/\nu$. E_{\parallel}^{*} ist die komplex Konjugierte von E_{\parallel} . P_1 ist proportional zur Gesamtintensität der Lichtwelle, P_2 ist proportional zur Intensität des parallel (0°) oder senkrecht (90°) polarisierten Anteils, P_3 ist proportional zur Intensität des unter 45° oder 135° polarisierten Anteils und P_4 ist proportional zur Intensität des zirkular polarisierten Anteils [Bohren und Huffman, 1983]. Da im Rahmen dieser Arbeit die Absolutbeträge von Lichtintensitäten nicht von Belang sind, identifiziere ich im folgenden P_1 mit der Gesamtintensität. Entsprechend verfahre ich für P_2 , P_3 und P_4 . Als Referenzebene, auf die sich die Polarisationsrichtungen beziehen, wird konventionell die Streuebene gewählt. Bei reiner Rückwärtsstreuung wie beim monostatischen Lidar gibt es unendlich viele Streuebenen, aus denen diejenige ausgewählt wird, die parallel zur Polarisationsebene des ausgesandten Lichtpulses liegt. Der polarisierte Anteil der Lichtwelle ist gegeben durch

$$p = \frac{\sqrt{(P_2)^2 + (P_3)^2 + (P_4)^2}}{P_1}$$

Man bezeichnet p als Polarisationsgrad [van de Hulst, 1957; Bohren und Huffman, 1983]. Vollständig parallel oder senkrecht polarisiertes Licht besitzt demnach einen Polarisationsgrad von eins. Für parallel bzw. senkrecht linear polarisiertes Licht ($P_3 = 0 = P_4$) definiere ich die Depolarisation¹ δ nach van de Hulst [1957] durch die Beziehung

$$\delta = \frac{P_1 - P_2}{P_1 + P_2} \\ = \frac{1 - p}{1 + p}.$$

Beschreibt der Stokes-Vektor \vec{P} die aus einem Atmosphärenvolumen zurückgestreute Lichtwelle, werde ich im folgenden δ auch als Volumendepolarisation bezeichnen.

¹Genauer: Die *lineare* Depolarisation. Für zirkulares Licht kann man analog eine zirkulare Depolarisation δ_C definieren, siehe [Mishchenko und Hovenier, 1995].

Aufgrund der Linearität der elektromagnetischen Wechselwirkung können die Komponenten des Stokes-Vektors einer gestreuten Lichtwelle \vec{P}^r als Linearkombination der Stokes-Komponenten des einfallenden Lichts \vec{P}^e dargestellt werden,

$$\vec{P}^r = F \vec{P}^e$$
 .

Die 4×4 -Matrix F bezeichnet man als Müller-Matrix. Jeder Streuprozeß läßt sich in eindeutiger Weise durch eine Müller-Matrix beschreiben. Dies gilt für die Streuung an Molekülen oder Partikeln, aber auch für die Transmission durch Linearpolarisatoren oder Verzögerungsplatten und für die Reflexion an Oberflächen.

2.2. Molekülstreuung

Die Streuung einer elektromagnetischen Welle an Molekülen oder Atomen bezeichnet man als Molekülstreuung. Das Streuspektrum enthält Komponenten der Rayleigh-Streuung und der Vibrations-Raman-Streuung [Young, 1981]. Letztere werden durch Änderungen von Vibrationszuständen des streuenden Moleküls verursacht. Das Rayleigh-Spektrum seinerseits besteht aus der zentralen Cabannes-Linie (elastisches Signal) und Rotations-Raman-Linien. Ebenso wie die Cabannes-Linie sind auch die Vibrations-Raman-Linien von Rotations-Raman-Linien umgeben. Die Frequenzdifferenzen zwischen den Raman-Linien und der zentralen Cabannes-Linie sind jeweils molekülspezifisch; für Stickstoff und Sauerstoff betragen die Vibrations-Ramanverschiebungen resp. 2331 cm^{-1} und 1556 cm^{-1} , während die Breite (Abfall auf 0,1% der Intensität der Q-Linie) der Rotationsnebenlinien typischerweise etwa 300 cm^{-1} beträgt.

Die spektrale Auflösung $\Delta\lambda/\lambda$ des Aerosol-Lidar-Detektors beträgt etwa 0,005 bis 0,02 (vgl. Abschnitt 3.2.3). Eine Trennung des Rotations-Raman-Spektrums von der Cabannes-Linie ist mit dieser geringen Auflösung nicht möglich und ich beschränke mich daher in der folgenden Diskussion auf die Beschreibung der Rayleigh-Streuung.

2.2.1. Rayleigh-Streuquerschnitt

Der differentielle Rayleigh-Streuquerschnitt $d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}/d\Omega(\theta, \phi)$ für linear polarisiert eingestrahltes Licht ist [Jackson, 1983; Kerker, 1969; Young, 1981]

$$\frac{d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}}{d\Omega}(\theta,\phi) = \frac{\pi^2 |m(\lambda)^2 - 1|^2}{(\mathcal{N}^M)^2 \lambda^4} \left(T_o^s(\theta,\epsilon) \cos^2\phi + T_o^p(\theta,\epsilon) \sin^2\phi \right) . \quad (2.1)$$

Der Winkel θ bezeichnet den Streuwinkel, ϕ den Winkel zwischen der Polarisationsebene des einfallenden Lichts und der Streuebene, λ die Wellenlänge und $\mathcal{N}^{\mathcal{M}}$ die Molekülteilchendichte. Der Brechungsindex $m(\lambda)$ ist eine Funktion der Wellenlänge; im sichtbaren Spektralbereich ist die effektive Wellenlängenabhängigkeit des Streuquerschnitts etwa proportional $\lambda^{-4,08}$ [Penndorf, 1957; Young, 1982]. Für den Brechungsindex von Luft verwende ich die in [Birch und Downs, 1994] angegebene Dispersionsformel. Die Faktoren $T_x^y(\theta,\epsilon)$ hängen ab von θ und dem Anisotropiefaktor ϵ . Die Tabelle 2.2.1 listet $T_x^y(\theta,\epsilon)$ für verschiedene Polarisationszustände des einfallenden und gestreuten Lichts auf. Der Anisotropiefaktor ϵ ist wellenlängenabhängig; von 0.2 μm bis 1.0 μm sinkt sein numerischer Wert von 0.36 auf 0.21 (Abbildung 2.1).



Abbildung 2.1.: Wellenlängenabhängigkeit des Anisotropiefaktors ϵ von trockener Luft

Ich benutze hier die von [Bucholtz, 1995; Bates, 1984] zitierten Resultate von Laboruntersuchungen und molekültheoretischen Berechnungen im Wellenlängenbereich $0.2 \ \mu m \leq \lambda \leq 1.0 \ \mu m$; man erhält für $\lambda = 532 \ nm$: $\epsilon = 0, 2205$. Diesen Wert werde ich im folgenden der Auswertung bei der depolarisationsempfindlichen Wellenlänge von 532 nm zugrunde legen; bei anderen Wellenlängen geht der Anisotropiefaktor nur in die Berechnung der Rayleigh-Streuquerschnitte ein.

Der Rayleigh-Rückstreuquerschnitt für die gesamte Streustrahlung berechnet sich mittels Gl. 2.1 und Tab. 2.2.1 zu

$$\frac{d\sigma_{\rm Str}^{\rm Ray}}{d\Omega}(\theta=\pi) = \frac{d\sigma_{\rm Rck}^{\rm Ray}}{d\Omega} = \frac{\pi^2 |m(\lambda)^2 - 1|^2}{(\mathcal{N}^M)^2 \lambda^4} \left(1 + \frac{7\epsilon}{45}\right) \,. \tag{2.2}$$

(Die Rückstreuquerschnitte für die polarisierten Komponenten der Rayleighstreuung erhält man analog.) Den totalen Rayleigh-Streuquerschnitt erhält man durch Integration von Gl. 2.1 über den gesamten Raumwinkel 4π

$$\sigma_{\rm Str}^{\rm Ray} = \frac{8\pi}{3} \frac{\pi^2 |m(\lambda)^2 - 1|^2}{(\mathcal{N}^M)^2 \lambda^4} \left(1 + \frac{2\epsilon}{9}\right) . \tag{2.3}$$
$T_s^s = 1 + \frac{4\epsilon}{45}$	$T_s^p = \frac{3\epsilon}{45}$	$T_s^o = 1 + \frac{7\epsilon}{45}$
$T_p^s = \frac{3\epsilon}{45}$	$T_p^p = \frac{3\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45})\cos^2(\theta)$	$T_p^o = \frac{6\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45})\cos^2(\theta)$
$T_o^s = 1 + \frac{7\epsilon}{45}$	$T_o^p = \frac{6\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45})\cos^2(\theta)$	$T_o^o = 1 + \frac{13\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45})\cos^2(\theta)$

Tabelle 2.1.: Depolarisationsfaktoren für Rayleighstreuung. θ ist der Streuwinkel und ϵ der Anisotropiefaktor. Die Superskripts s, p und o bezeichnen senkrecht und parallel polarisiertes sowie unpolarisiert einfallendes Licht. Die Subskripts s, p und o kennzeichnen die senkrecht und parallel polarisierte Komponente der Streustrahlung sowie die Summe der beiden Komponenten [Young, 1982].

Aus Gl. 2.2 und 2.3 folgt, daß das Verhältnis von totalem Rayleigh-Streuquerschnitt zu Rayleigh-Rückstreuquerschnitt eine Konstante ist,

$$L^{\text{Ray}} = \frac{\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}}{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Ray}}/d\Omega} = \frac{8\pi}{3} \frac{45 + 10 \epsilon}{45 + 7 \epsilon} .$$
(2.4)

Im folgenden werde ich L^{Ray} auch als Rayleigh-Streuverhältnis bezeichnen. Die Depolarisation des Lidar-Rückstreulichts einschließlich der Rotationsramanlinien für einen linear polarisierten, einfallenden Strahl ist durch

$$\delta^{\text{Ray}} = \frac{T_s^p}{T_p^p} = \frac{3\epsilon}{4\epsilon + 45}$$
(2.5)

$$\approx$$
 0,0144

gegeben. Wird nur die Streuung der Cabannes-Linie berücksichtigt, so ist die Depolarisation bei linear polarisiert emittiertem Licht durch

$$\delta^{\text{Ray}} = \frac{3\epsilon}{4\epsilon + 180}$$

$$\approx 0,00365$$
(2.6)

[Young, 1980] gegeben.

25

2.2.2. Streu- und Extinktionskoeffizienten

Für die Auswertung der Lidar-Daten erweist sich die Verwendung des Rayleigh-Rückstreukoeffizienten als sinnvoll. Er ist gegeben durch

$$\beta^{\mathrm{Ray}}(\lambda) = \frac{d\sigma^{\mathrm{Ray}}_{\mathrm{Rck}}}{d\Omega}(\lambda) \mathcal{N}^{M} .$$

 \mathcal{N}^M bezeichnet die Molekülteilchendichte. Analog definiere
ich den Rayleigh-Extinktionskoeffizienten,

$$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(\lambda) = \sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}(\lambda) \mathcal{N}^{M}$$
.

2.2.3. Linienbreiten

Die Linienbreite im Streuspektrum ist beeinflußt durch die natürliche Linienbreite und die Doppler-Verbreiterung. Unter atmosphärischen Bedingungen (T = 220 K) und bei einer typischen Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm ergibt sich eine natürliche Linienbreite von etwa 0.01 pm und eine Dopplerbreite von etwa 1,5 pm. Die Dopplerlinienbreite ist damit fast vier Größenordnungen geringer als die Breite der Interferenzfilter (um 5 nm) und wird daher im folgenden ebenso wie die natürliche Linienbreite nicht berücksichtigt.

2.3. Partikel-Streuung

Die Streuung von elektromagnetischen Wellen an Objekten, deren Ausdehnung mit der Wellenlänge des eingestrahlten Lichts vergleichbar ist, bezeichnet man als Partikelstreuung. Nur für wenige, spezielle Teilchenformen existieren analytische Lösungen dieses Streuproblems. Die für Aerosoluntersuchungen wichtigste analytische Lösung ist die Streuung an einer homogenen Kugel (Mie-Streuung [Mie, 1908]); es existieren analytische Lösungen für andere Teilchenformen, die jedoch nur mit hohem numerischen Aufwand auswertbar sind. Ich werde daher im folgenden nur die Mie-Streuung kurz anreißen und gesondert auf wichtige Abweichungen der Streucharakteristik bei asphärischen Streuern eingehen (2.3.2).

2.3.1. Mie-Streuung

Die Dimensionen, die das Streuproblem charakterisieren, sind der Kugelradius r und die Wellenlänge λ des einfallenden Lichts. Daraus ergibt sich, daß die Streueffizienz Q^{Str} , d.h. der auf das geometrische Profil der Kugel normierte Wirkungsquerschnitt

$$Q^{\rm Str} = \frac{d\sigma_{\rm Str}^{\rm Aer}/d\Omega}{\pi r^2} ,$$

nur von dem dimensionslosen Quotiente
n r/λ abhängt [Mie, 1908]. Man definiert daher eine dimensionslose Größe als

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda}$$

und bezeichnet sie als Größenparameter.

Es läßt sich zeigen², daß Mie-Streuung unter Rückwärtsrichtung den Polarisationsgrad der einlaufenden Lichtwelle beim Streuprozeß nicht ändert. Dies ist ein wesentlicher Unterschied zur Rayleigh-Streuung, die nach Gl. 2.5 für Rückwärtsstreuung eine Depolarisation von $\delta^{\text{Ray}} = 0,014$ verursacht. Kleine Abweichungen von der Rückwärtsrichtung erzeugen bereits signifikante Depolarisation; bei den sehr kleinen, beim Lidarverfahren vorkommenden Winkeln zu $\theta = \pi$ (maximal 0.5 mrad) läßt sich jedoch zeigen [Beyerle und Neuber, 1995], daß die resultierende Polarisationsänderung weit unterhalb der Meßgenauigkeit liegt (maximale Depolarisation $\leq 3, 5 \times 10^{-6}$ für 1 mrad Abweichung von $\theta = \pi$).

Die Rückstreueffizien
z $Q^{\rm Rck}$ und die Extinktionseffizien
z $Q^{\rm Ext}$ sind folgenermaßen definiert:

$$Q^{\text{Rck}} = \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}/d\Omega}{\pi r^2}$$
$$Q^{\text{Ext}} = \frac{\sigma_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}}{\pi r^2}.$$
(2.7)

²Dies ist auch unmittelbar aus Symmetriegründen einsichtig!

In der Literatur existieren optimierte Algorithmen zur numerischen Berechnung dieser Größen [Wiscombe, 1980; Bohren und Huffman, 1983].

Streu- und Extinktionskoeffizienten, Streuung an Ensembles von Teilchen

Ebenso wie für Rayleigh-Streuung kann man auch für Mie-Streuung Extinktionsund Rückstreukoeffizienten definieren. Da Partikel mit unterschiedlichen Radien unterschiedliche Streueffizienzen aufweisen, sind die Wirkungsquerschnitte mit der Größenverteilung dN^A/dr zu wichten. Der Mie-Rückstreukoeffizient ist daher gegeben durch

$$\begin{split} \beta^{\text{Aer}}(\lambda,m) &= \int_{0}^{\infty} dr \, \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}}{d\Omega}(r,\lambda,m) \, \frac{dN^{A}}{dr}(r) \\ &= \int_{0}^{\infty} dr \, \pi \, r^{2} \, Q^{\text{Rck}}(r,\lambda,m) \, \frac{dN^{A}}{dr}(r) \end{split}$$

Entsprechend definiert man den Mie-Extinktionskoeffizienten,

$$\begin{aligned} \alpha^{\operatorname{Aer}}(\lambda,m) &= \int_{0}^{\infty} dr \, \sigma_{\operatorname{Ext}}^{\operatorname{Aer}}(r,\lambda,m) \, \frac{dN^{A}}{dr}(r) \\ &= \int_{0}^{\infty} dr \, \pi \, r^{2} \, Q^{\operatorname{Ext}}(r,\lambda,m) \, \frac{dN^{A}}{dr}(r) \;. \end{aligned}$$
(2.8)

Analog zu Gl. 2.4 bezeichne ich im folgenden das Verhältnis

$$L^{\text{Aer}}(\lambda, m) = \frac{\alpha^{\text{Aer}}(\lambda, m)}{\beta^{\text{Aer}}(\lambda, m)}$$
(2.9)

als Mie-Streuverhältnis. Im Gegensatz zu L^{Ray} weist L^{Aer} eine deutliche Abhängigkeit von Wellenlänge, Brechungsindex und Größenverteilung auf.

2.3.2. Streuung an asphärischen Partikeln

Die Berechnung der Streuung an asphärischen Aerosolpartikeln ist ungleich schwieriger als die Miestreuung. Insbesondere ist die Form der Partikel nicht bekannt, so daß man sich mit Annahmen behelfen muß. Eine Möglichkeit ist die Berechnung der Rückstreuung an Sphäroiden mit einer Schar von verschiedenen "aspect ratios" (große Achse/kleine Achse). Abbildung 2.2 auf S. 30 zeigt eine derartige Berechnung für NAT-Partikel unter typischen stratosphärischen Bedingungen in Abhängigkeit von den mittleren Radien und dem Aspektverhältnis.

Es ist bemerkenswert, daß die Depolarisation erst bei mittleren Radien von ca. $0.1 \mu m$ spürbar von Null abweicht; das bedeutet, daß die Messung der Depolarisation bei

kleineren Partikeln und kleinem Rückstreuverhältnis nicht zur experimentellen Unterscheidung von sphärischen und asphärischen Teilchen eingesetzt werden kann (vgl. [Toon *et al.*, 1990]).

In einer neueren Arbeit [Mishchenko und Sassen, 1998] sind die Depolarisationen für polydisperse asphärische Aerosole für eine Schar von Teilchenformen (Sphäroide, Zylinder und Chebyshev-Partikel) mit einer exakten T-Matrix-Methode berechnet worden. Der angenommene Brechungindex war $m = 1,308 + 1,328 \times 10^{-6}i$ (Eis bei 532 nm) und die Größenverteilung ein $1/r^3$ -Potenzgesetz mit der Randbedingung. daß die effektive Varianz 0,1 betragen soll, entsprechend einer moderat breiten Verteilung. Der effektive Radius ist hier der Radius der Kugel mit gleicher Oberfläche. Es ergibt sich (vgl. Abbildung 2.3.2), daß die starken Oszillationen der monodispersen Verteilung durch die Faltung mit der Größenverteilung nahezu völlig verschwinden; δ steigt mit dem effektiven Größenparameter zunächst etwa $\propto x^4$ an, um bei Größenparametern von 10...20 ein Maximum zu erreichen; bei noch größeren effektiven Radien sinkt δ wieder ab. Es werden, je nach Geometrie der Teilchen, maximale Depolarisationen von 0.25 bis 0,7 erreicht. Alle Partikel (bis auf nur ganz schwach von der Kugelgestalt abweichende) erreichen eine Depolarisation von 0.05 bei x = 3...4, entsprechend einem effektiven Radius von ca. $0.14 \mu m$. Sogar Teilchen mit einer Abweichung von nur 2% von der idealen Kugelform können für $r > (0, 4 \dots 0, 8) \ \mu m$ signifikante ($\delta > 0, 05$) Depolarisation erzeugen. Analoge Rechnungen an Teilchen mit einem Brechungsindex von $m = 1,53 + 8 \times 10^{-3}i$ zeigen ein qualitativ gleiches Verhalten, nur treten die Maxima der Depolarisation schon bei kleineren effektiven Größenparametern ein und sind etwas kleiner (um ca. 0,1) als oben angegeben [Mishchenko et al., 1996b, a].

Allgemein: Streuung an Ensembles von Teilchen

Werden in den Gleichungen 2.8 bzw. 2.8 die Mie-Streueffizienzen durch allgemeine Streueffizienzen ersetzt (z.B. auch Streueffizienzen an asphärischen Partikeln), so erhält man die allgemeinen Rückstreu- und Extinktionsquerschnitte für Ensembles von beliebigen Teilchen. Die Streueffizienzen in den Integralen 2.8 und 2.8 nennt man auch die *Kernel* und die Größenverteilung $\frac{dN^A}{dr}(r)$ kann als Gewichtungsfunktion aufgefaßt werden.



Abbildung 2.2.: Rückstreuung (oben), Aerosoldepolarisation (Mitte) und "color index" $(\beta_{354}^{Aer}/\beta_{532}^{Aer})$ (unten) für eine monodisperse NAT-Aerosolpopulation bei T = 193 K, p = 60 hPa und 5,0 ppbv kondensierter HNO₃ und einer Lidarwellenlänge von 532 nm [Tsias, 1998]

30



Abbildung 2.3.: Depolarisationen versus effektiven Größenparameter für polydisperse, zufällig orientierte Eispartikel verschiedener Teilchenformen. Die obere Achse zeigt den effektiven Radius für eine Lidarwellenlänge von 532 nm.

 $\mathbf{31}$

2.4. Die Lidar-Gleichungen

Der Zusammenhang zwischen den physikalischen Atmosphärenparametern und dem Meßsignal wird durch die Lidar-Gleichung beschrieben. Ich stelle zunächst die Lidar-Gleichung für ein Rückstreu-Lidar unter der Annahme eines vollständig depolarisierten Emissionsstrahls vor. In Abschnitt 2.4.2 wird die Diskussion auf den Fall polarisierter Emission erweitert.

2.4.1. Lidar-Gleichung für unpolarisiertes Licht

Die Intensität des während des Zeitintervalles $[2z/c, 2(z + \Delta z)/c]$ im Detektor nachgewiesenen Streulichts $P^d(z, \lambda)$ ist zunächst proportional der Energie des emittierten Laserpulses $P^e(\lambda)$. Sie ist zweitens proportional der Summe der Rückstreukoeffizienten $\beta^{\text{Ray}}(\lambda, z) + \beta^{\text{Aer}}(\lambda, z)$. Drittens ist sie proportional dem Raumwinkel A/z^2 , unter dem das Streuvolumen die effektive Teleskopfläche A sieht. Schließlich ist zu berücksichtigen, daß der Laserpuls auf seinem Weg durch die Atmosphäre durch Streuung und Absorption abgeschwächt wird. Daher ist der Zusammenhang zwischen emittierter und detektierter Intensität gegeben durch [Measures, 1984]

$$P^{d}(z,\lambda) = D^{k}(\lambda) P^{e}(\lambda) \frac{A}{z^{2}} \\ \times \left(\beta^{\operatorname{Ray}}(z,\lambda) + \beta^{\operatorname{Aer}}(z,\lambda)\right) O(z) T^{2}(z,\lambda) \Delta z \qquad (2.10)$$
$$T(z,\lambda) = \exp\left(-\int_{z_{0}}^{z} d\tilde{z} \,\alpha^{\operatorname{Mol}}_{\operatorname{Ext}}(\tilde{z},\lambda) + \alpha^{\operatorname{Aer}}(\tilde{z},\lambda)\right),$$

wobei

z	die Höhe,
Δz	die Höhenauflösung des Detektors ($\Delta z \gg c\tau/2$),
O(z)	den geometrischen Überlapp zwischen emittiertem Laserstrahl
	und Teleskopgesichtsfeld,
$D^k(\lambda)$	die Empfindlichkeit des Detektorkanals k für die Wellenlänge λ ,
$lpha_{ m Ext}^{ m Mol}(z,\lambda)$	den Rayleigh-Extinktionskoeffizienten,
$lpha^{ ext{Aer}}(z,\lambda)$	den Partikelextinktionskoeffizienten,
$P^{e}(\lambda)$	die Intensität des zum Zeitpunkt t und mit der Wellenlänge λ
	emittierten Laserlichts,
$P^d(z,\lambda)$	die Intensität des zum Zeitpunkt $t = 2 z/c$ und bei der Wellenlänge λ
	detektierten Signals und
$T(z, \lambda)$	die Transmission der Atmosphäre
	zwischen der Beobachtungshöhe z_0 und der Höhe z

bezeichnet.

Gl. 2.10 ist die Lidar-Gleichung. Sie ist in dieser Form nur gültig, wenn die folgenden Voraussetzungen erfüllt sind.

• Die optische Dicke der Atmosphäre ist so gering, daß Mehrfachstreuung gegenüber Einfachstreuung vernachlässigt werden kann.

Für eine Wellenlänge von 532 nm beträgt der Rayleigh-Extinktionskoeffizient in einer Höhe von 16 km etwa 10^{-6} m⁻¹. α^{Aer} übersteigt diesen Wert in der Regel um nicht mehr als eine Größenordnung; die optische Dicke der Typ I-PSCs liegt immer unter 0,1. Daher ist die Annahme korrekt, daß Einfachstreuung in der Stratosphäre der dominierende Streuprozeß ist³.

• Die Zähleradditionszeit des Detektors übersteigt die Pulslänge des Laserpulses um mindestens eine Größenordnung (vgl. Kapitel 3.2.1).

Die Pulslängen der Laser, die in dieser Arbeit zum Einsatz gekommen sind, liegen zwischen 5 und 10 nsec. Die Höhenauflösung des Detektors beträgt 15 bis 200 m. Dies entspricht einer Additionszeit von von 0,1 bis $1,33~\mu sec$.

• Die spektrale Bandbreite des emittierten Laserpulses ist gegenüber der Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten vernachlässigbar gering.

Die Linienbreiten $\Delta\lambda/\lambda$ der Laser betragen zwischen $3 \cdot 10^{-5}$ und 10^{-4} (vgl. Tab. 3.1 und 3.2). Über diesen spektralen Bereich hinweg ändern sich die Rayleigh-Extinktions- und -Rückstreukoeffizienten um etwa 10^{-4} bis $4 \cdot 10^{-4}$. Die Wellenlängenabhängigkeit von α^{Aer} und β^{Aer} ist in der Regel geringer als λ^{-4} und liegt daher noch unterhalb dieser Werte. Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten können folglich in guter Näherung über den Spektralbereich als konstant angesehen werden.

2.4.2. Lidar-Gleichung für polarisiertes Licht

Enthält das Emissions- oder Streusignal einen polarisierten Anteil, muß die skalare Lidar-Gleichung durch eine Beziehung für die Stokes-Vektoren ersetzt werden [Kavaya, 1987; Anderson, 1989],

$$\vec{P}^{r}(z,\lambda) = \left(F^{\text{Ray}}\,\beta^{\text{Ray}}(z,\lambda) + F^{\text{Aer}}(z)\,\beta^{\text{Aer}}(z,\lambda)\right) \\ \times \vec{P}^{e}(\lambda)\,\frac{A}{z^{2}}O(z)\,T^{2}(z,\lambda)\,\Delta z \;.$$
(2.11)

Es bezeichnet

 F^{Ray} die Rayleigh-Streumatrix für Rückwärtsstreuung,

 $F^{\text{Aer}}(z)$ die Partikelstreumatrix für Rückwärtsstreuung,

 $\vec{P}^{e}(\lambda)$ den Stokes-Vektor des mit der Wellenlänge λ emittierten Laserlichts und

 $\vec{P}^r(z,\lambda)$ den Stokes-Vektor des in der Höhe z gestreuten Laserlichts

vor Eintritt in Teleskop und Detektor.

³Eine die Depolarisation der PSC-Signale möglicherweise durch Mehrfachstreuung verfälschende Wirkung von durchstrahlter Cirrusbewölkung wird immer wieder diskutiert, ist aber weder in Meßdaten noch durch Modellrechnungen bisher eindeutig nachgewiesen worden.

In der Regel ändert ein realer Detektor den Polarisationszustand des Streusignals \vec{P}^{τ} ,

$$\vec{P}^{d,k}(z,\lambda) = D^k \vec{P}^r(z,\lambda) . \qquad (2.12)$$

Hier bedeutet D^k die Müller-Matrix des k-ten Detektorkanals und \vec{P}^d den Stokes-Vektor des Lichts, dem der Photodetektor im Kanal k ausgesetzt ist. Besonders interessant sind die Müller-Matrizen der polarisationsempfindlichen Detektorkanäle, wo die – möglichst ideale – Separation der s- und p-Anteile des Streulichts ja erwünscht ist. Die Rayleigh-Streumatrix für einen Streuwinkel von 180° hat die Form [van de Hulst, 1957; Bohren und Huffman, 1983]

$$F^{\text{Ray}} = \frac{1}{45+7\epsilon} \begin{pmatrix} 45+7\epsilon & 0 & 0 & 0\\ 0 & 45+\epsilon & 0 & 0\\ 0 & 0 & -(45+\epsilon) & 0\\ 0 & 0 & 0 & -(45+45\epsilon) \end{pmatrix}$$
(2.13)

mit dem molekularen Anisotropiefaktor ϵ (vgl. Abschnitt 2.2.1). Unter der Annahme einer isotropen, spiegelsymmetrischen Partikelverteilung⁴ ist die Partikel-Streumatrix F^{Aer} gegeben durch [van de Hulst, 1957]

$$F^{\text{Aer}}(z) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & a(z) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -a(z) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -b(z) \end{pmatrix}.$$
 (2.14)

Da die Form der Partikel in der Regel höhenabhängig ist, sind die positiven Parameter a(z) und b(z) Funktionen von z. Nach Mishchenko und Hovenier [1995] gilt: b(z) = 2a(z) - 1. Für isotrop verteilte sphärische Partikel gilt a = 1 = b. Für aspärische Partikel steckt in den a(z) und b(z) gerade die Information über die lineare Depolarisation:

$$\delta = \frac{P_1 - P_2}{P_1 + P_2} = \frac{1 - a(z)}{1 + a(z)} \,.$$

Es gilt $0 \leq \delta \leq 1$ [Mishchenko und Hovenier, 1995]. Der Vorfaktor in Gl. 2.13 garantiert, daß Gl. 2.11 für unpolarisierte Emission in die skalare Form der Lidar-Gleichung übergeht.

Im folgenden verzichte ich der Übersichtlichkeit wegen auf die Indizierung mit dem Kanalindex k. Ist die Quantenausbeute der Photodetektoren unabhängig vom Polarisationszustand des eingestrahlten Lichts, hängt die Zählrate Z(z) im k-ten Detektorkanal nur von der ersten Komponente von \vec{P}^d ab. Unter der Voraussetzung, daß der Photodetektor nicht übersteuert wird, gilt daher

$$Z(z) = Z^{s}(z) + Z^{u} = C P_{1}^{d}(z) + Z^{u} .$$
(2.15)

⁴d.h. entweder zufällig orientierte Partikel mit einer Symmetrieebene wie zB. Ellipsoide und/oder Partikel und ihre Spiegelteilchen in gleicher Anzahl und zufälliger Orientierung [Mishchenko und Hovenier, 1995]. Ganz allgemein ist $F_{14} = F_{41} \neq 0$.

C bezeichnet die Detektorempfindlichkeit und Z^u die Untergrundzählrate im Kanal k.

Für parallel bzw. senkrecht linear polarisiertes Emissionslicht $(\vec{P}^e = (P_1^e, P_2^e, 0, 0))$ verbleiben von Gl. 2.11 nur zwei nichttriviale Gleichungen, die skalare Lidar-Gleichung und eine Gleichung, die die Depolarisation des Rückstreusignals beschreibt,

$$P_1^r(z,\lambda) = \left(\beta^{\operatorname{Ray}}(z,\lambda) + \beta^{\operatorname{Aer}}(z,\lambda)\right) P_1^e(\lambda) \frac{A}{z^2} O(z) T^2(z,\lambda) \Delta z \quad (2.16)$$
$$P_2^r(z,\lambda) = \left(F_{22}^{\operatorname{Ray}} \beta^{\operatorname{Ray}}(z,\lambda) + F_{22}^{\operatorname{Aer}} \beta^{\operatorname{Aer}}(z,\lambda)\right)$$

$$(z,\lambda) = \left(F_{22}^{hay} \beta^{Ray}(z,\lambda) + F_{22}^{hay} \beta^{Ray}(z,\lambda) \right)$$

$$\times P_2^e(\lambda) \frac{A}{z^2} O(z) T^2(z,\lambda) \Delta z .$$

$$(2.17)$$

Für die Berechnung von $\beta^{\text{Aer}}(z,\lambda)$ (unpolarisierter oder Gesamt-Rückstreukoeffizient) wird Gl. 2.16 verwendet, für die Berechnung von $\beta_{\perp}^{\text{Aer}}(z,\lambda)$ bzw. $\beta_{\parallel}^{\text{Aer}}(z,\lambda)$ (polarisierte Komponenten des Rückstreukoeffizienten) Gl. 2.17. Die Gl. 2.17 in Kombination mit Gl. 2.16 gestattet die Bestimmung der Volumendepolarisation (vgl. Abschnitt 3.3.2). Wie die Diskussion des Klett-Verfahrens zur Berechnung von Rückstreukoeffizienten in Abschnitt 3.3.3 zeigen wird, genügt für die Berechnung der Rückstreukoeffizienten die Kenntnis von $\vec{P}^{r}(z,\lambda)$ bis auf eine multiplikative Konstante.

2.4.3. Rückstreuverhältnis

Der aus Lidar-Messungen abgeleitete Aerosolgehalt in der Atmosphäre wird üblicherweise in Form des Rückstreuverhältnisses angegeben. Das Rückstreuverhältnis ${\cal R}$ ist definiert als

$$R(z,\lambda) = \frac{\beta^{\operatorname{Ray}}(z,\lambda) + \beta^{\operatorname{Aer}}(z,\lambda)}{\beta^{\operatorname{Ray}}(z,\lambda)} .$$
(2.18)

Für eine aerosolfreie Atmosphäre nimmt R den Wert eins an. Ebenso wie das Volumenmischungsverhältnis eines Tracers ist das Rückstreuverhältnis auf einer Zeitskala, während der die Zusammensetzung und die Größenverteilung des Aerosols als konstant angesehen werden kann, eine konservative Größe. Außerdem steht R(genauer das Aerosol-Mischungsverhältnis, R-1), in einem halbquantitativen Zusammenhang mit dem Mischungsverhältnis der Spurengase, die zur Partikelbildung beitragen. Nach Wedekind [1997] gilt näherungsweise

$$R - 1 = c \cdot x_{\text{HNO}_3}$$

mit
$$c \approx (0, 25 \pm 0, 15) \frac{1}{\text{ppbv}}$$

Hier ist x_{HNO_3} der Anteil HNO₃, der in den Teilchen kondensiert ist. Die Konstante c ist von Wedekind für NAT als Kondensat und Annahme sphärischer Teilchen

aus Lidardaten abgeschätzt worden. Durch den Zusammenhang von R mit dem Mischungs*verhältnis* der kondensierten Gase ist es möglich, PSCs, die in unterschiedlichen Höhen beobachtet wurden, miteinander zu vergleichen.

In dieser Arbeit werde ich die Bezeichung "Rückstreuverhältnis" (konform mit der Konvention im Lidar-Bereich) synomym mit der Größe R_u, also dem unpolarisierten Rückstreuverhältnis verwenden. Für den 532 nm-Kanal wurden auch die polarisierten Rückstreuverhältnisse R_⊥ und R_{||} (analog die polarisierten Aerosolrückstreukoeffizienten $\beta_{\perp}^{\text{Aer}}$ und $\beta_{||}^{\text{Aer}}$) bestimmt; falls diese Größen verwendet werden, wird explizit darauf hingewiesen. Die Definition der polarisierten Rückstreuverhältnisse ist analog zu Formel 2.18, es sind lediglich alle Größen als polarisationsabhängig zu verstehen.

2.4.4. Korrektur der Spurengasabsorption

Bisher wurde in der Lidargleichung lediglich die Extinktion durch Streuung behandelt. Absorption durch Spurengase ist jedoch zu berücksichtigen, wenn die Emissions- oder Absorptionswellenlänge auf Absorptionsbanden atmosphärischer Gase liegen. Zur Korrektur ist ein Höhenprofil des betreffenden Spurengases und die Kenntnis des jeweiligen molekularen Absorptionsquerschnittes notwendig. Für die beim vorliegenden Aerosol-Lidar verwendeten Wellenlängen ist nur das Chappuis-Absorptionsband von Ozon, und hier auch nur bei 532 nm (und 607 nm) von Bedeutung. Formal wird die Korrektur in den Rayleigh-Extinktionskoeffizienten $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(\lambda)$ hineingezogen durch

$$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(\lambda, z) := \sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}(\lambda) \, \mathcal{N}^{M}(z) + \sigma^{Ozon}(\lambda, T(z)) \, \mathcal{N}^{Ozon}(z).$$

Hier bedeutet $\mathcal{N}^{Ozon}(z)$ die Ozonteilchenzahldichte als Funktion der Höhe z und $\sigma^{Ozon}(\lambda, T(z))$ den auch von der Temperatur abhängigen molekularen Absorptionsquerschnitt von Ozon.

2.4.5. Raman–Lidargleichung

Das hier besprochene Lidar-System ist dafür ausgelegt, die (Vibrations-)Ramanrückstreuintensitäten des Stickstoffs auf mindestens zwei Wellenlängen zu messen. Hier ist der Zusammenhang zwischen emittierter und detektierter Intensität gegeben durch [Ansmann *et al.*, 1990]:

$$P^{d}(z,\lambda_{0},\lambda_{R}) = D^{k}(\lambda_{R}) P^{e}(\lambda_{0}) \frac{A}{z^{2}} O(z) \Delta z \left(\beta^{Raman}(z,\lambda_{0},\lambda_{R})\right)$$
$$\times \exp\left(-\int_{z_{0}}^{z} d\tilde{z} \alpha(\tilde{z},\lambda_{0}) + \alpha(\tilde{z},\lambda_{R})\right)$$
(2.19)

wobei

den Ramanrückstreukoeffizienten,
die Intensität des zum Zeitpunkt t und mit der Wellenlänge λ_0
emittierten Laserlichts,
die Intensität des zum Zeitpunkt $t = 2 z/c$ und bei der
Wellenlänge λ_R detektierten Signals,
den totalen Extinktionskoeffizienten bei λ_0 ,
den totalen Extinktionskoeffizienten bei λ_R

bezeichnet.

Der Raman-Rückstreukoeffizient ist gegeben durch den differentiellen Ramanrückstreuquerschnitt $d\sigma_R/d\Omega$ eines Gases mit der molekularen Anzahldichte \mathcal{N} :

$$\beta^{Raman}(z,\lambda_0,\lambda_R) = \mathcal{N}(z) \frac{d\sigma_R(\lambda_0,\lambda_R)}{d\Omega}$$

Es kann z.B. das Stickstoffprofil benutzt werden, da hier die Anzahldichte über meteorologische Sondierungen gut bekannt ist.

Der differentielle Rückstreuquerschnitt für die Detektion der Summe der beiden Polarisationsrichtungen bei 532 nm liegt für Stickstoff bei 4, 5×10^{-27} m² sr⁻¹ [Stebel, 1998; Inabe, 1976]. Er ist damit drei Größenordnungen kleiner als der entsprechende Wert des Rayleigh-Rückstreuquerschnitts 6, 22×10^{-24} m² sr⁻¹.

Wenn der Raman-Rückstreukoeffizient bekannt ist, hängt das Signal nur noch von den gesuchten totalen Extinktionskoeffizienten $\alpha(z, \lambda_0)$ bzw. $\alpha(z, \lambda_R)$ ab, die man schreiben kann als

$$\alpha(z,\lambda) = \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(z,\lambda) + \alpha^{\text{Aer}}(z,\lambda).$$

In diesem Kapitel werde ich erst den experimentellen Aufbau des für diese Arbeit verwendeten Lidarsystems begründen und vorstellen, beschreibe dann detailliert die verwendeten Methoden zur Datenauswertung und die Berechnung der abgeleiteten Größen; zum Schluß stelle ich die sonstigen zur Auswertung verwendeten Daten vor.

Strategien zur Aufklärung der Natur der PSCs

- Mikrophysikalische Modellrechnungen und Labormessungen (z.B. Crutzen und Arnold [1986]; Molina et al. [1993]). Sie haben das Potential, die Natur und die Bildung von PSCs detailliert zu beschreiben. Allerdings müssen sie mit Feldmessungen verglichen und überprüft werden.
- 2. In situ-Meßverfahren. Sie können die Form, Größe und Zusammensetzung von PSC-Partikeln aus einem begrenzten Probevolumen bestimmen und haben u.a. bestätigt, daß PSC-Partikel HNO₃ und Wasser enthalten [Fahey et al., 1989; Kawa et al., 1990]¹. Ballon- oder auch Flugzeuggetragene in situ-Messungen sind jedoch aufwendig und liefern immer nur örtlich und zeitlich eng begrenzte Momentaufnahmen. Eine direkte, quantitative, chemische in situ-Analyse von PSC-Partikeln ist bis heute nicht geglückt [Peter, 1996].
- 3. Satellitenmessungen. Satelliten können großräumig die stratosphärischen Aerosole erfassen; sie liefern Extinktionsprofile mit einer mäßigen Höhenauflösung (Größenordnung 1 km). Kleinräumige Phänomene und Aerosole in der Polarnacht können jedoch durch die Natur der Methode (Limb-Messungen) nicht erfaßt werden. Immerhin haben die Messungen des TOMS-Satelliten zum ersten Mal gezeigt, daß PSCs in den Polargebieten ein häufiges Phänomen sind (Mc Cormick et al. [1982]; vgl. Abschnitt 1.4.3).
- 4. Fernerkundende Systeme, hier: LIDAR
 - Optisches Meßverfahren, keine Interaktion im Probevolumen
 - Phase meßbar, ebenso sind Aussagen über Oberflächen- und Volumendichten, die Grössenverteilung und sogar über den Brechungsindex möglich.

 $^{^1}$ Was zu erwarten ist, weil die Stratosphäre nur drei kondensierbare Substanzen – HNO₃, H₂O und H₂SO₄ – in signifikanten Mengen enthält.

- Sehr gut höhen- und zeitaufgelöste Profile meßbar.
- Möglichkeit der routinemäßigen Langzeitbeobachtung erlaubt Rückschlüsse auf die Evolution der PSCs.

Bodengebundene Lidarmessungen müssen jedoch insbesondere ergänzt werden durch p-, T-Profile (aus Radiosonden) am Beobachtungsort² und durch möglichst realistische Spurengasprofile. Ebenso sind (Rückwärts-) Trajektorienrechnungen ein notwendiges Hilfsmittel, wie wir noch sehen werden.

Flugzeuggetragene Lidarmessungen nehmen eine Zwischenstellung zwischen dem in dieser Arbeit beschriebenen bodengestützten Verfahren und den insitu-Messungen ein; insbesondere quasi-Langrange-Flüge erlauben eine detaillierte Verfolgung der PSC-Bildung über Stunden hinweg (z.B. [Tsias *et al.*, 1997*a*]).

Anforderungen an ein bodengestütztes Lidar zur Beobachung von PSCs:

- Betrieb an jedem (klaren) Tag während des arktischen Winters (auch das Meßergebnis: "keine PSCs!" ist wichtig!).
- Mindestens zwei (elastische) Rückstreuwellenlängen zur Abschätzung der Größe der Partikel.
- Höhen- und Zeitauflösung besser als die typischen Größen- bzw. Zeitskalen der PSC-Strukturen. Als ausreichend haben sich eine Höhenauflösung von < 50 m und eine Zeitauflösung < 10 min erwiesen.
- Reichweite des brauchbaren Signals von der Tropopause bis mindestens ca. 35 km Höhe (einige km über die stratosphärische Aerosolschicht hinaus).
- Möglichkeit, auf mindestens einer Wellenlänge polarisationsempfindlich zu messen (zur Ableitung der Aerosoldepolarisation).

Wünschenswerte Erweiterungen:

- Möglichst viele (\geq 3) elastische Rückstreuwellenlängen verteilt vom UV-Bereich bis ins Infrarote erlauben im Prinzip durch Inversion die Ableitung der Aerosolgrößenverteilung (vgl. Beyerle [1994] und Abschnitt 3.4.3).
- Messung des Ramansignals (Stickstoff-Vibrations-Stokeslinien der elastischen Rückstreuwellenlängen) erlaubt im Prinzip die Ableitung des Extinktionsprofils der Aerosole (Ansmann *et al.* [1990], vgl. Abschnitt 3.4.5).

²Temperaturprofile sind zwar grundsätzlich auch aus Lidarsignalen ableitbar (vgl. Abschnitt 3.4.5), mit dem hier verwendeten Rayleigh-Rückstreulidar jedoch gerade innerhalb von Aerosolschichten nicht!

Das in dieser Arbeit besprochene Lidar-System erfüllt alle oben angeführten Anforderungen (die Erfüllung der "Wunschliste" im Winter 1996/97 scheiterte leider an technischen Problemen). Im Vorgriff auf noch folgende genaue Definitionen stelle ich hier die Liste der Meßgrößen auf, wie sie in beiden hier betrachteten Wintern für alle Meßtage vorliegen (z ist der Höhenvektor):

Lidar:

- $\delta(z)$: Volumendepolarisation bei 532 nm.
- β^{Aer} : Aerosolrückstreukoeffizienten
 - (für die beiden Polarisationsrichtungen des 532nm-Kanals und für den unpolarisierten 353 nm-Kanal.)
- $\begin{array}{ll} R(z): & R\"{u}ckstreuverh\"{a}ltnis\ (R_u)\\ & bei\ 353\ und\ 532\ nm\ (bei\ 532\ nm\ auch\ R_{\perp}\ und\ R_{\parallel}). \end{array}$

Sonden:

T(z), p(z), $n_{Ozon}(z)$: Temperatur-, Druck- und Ozonprofile

Modelle:

stratosphärische Spurengasprofile für H₂O, HNO₃, H₂SO₄ Rückwärts-Trajektorien (insbes. geographischer Ort, Temperatur und Druck von Luftpaketen auf Isentropen)

3.1. Fernerkundung mit Lidar

Das Akronym LIDAR steht für *light detection and ranging*. Das Meßprinzip ist das eines optischen Radars: intensive, quasi monochromatische Laserlichtpulse werden (hier: senkrecht) in die Atmosphäre emittiert. Die ausgesandten Photonen (größenordnungsmäßig 10^{17} pro Puls) werden an den Partikeln und Molekülen absorbiert und gestreut; das in Rückwärtsrichtung gestreute Licht wird mit einem Teleskop gesammelt und mit einem geeigneten Detektorsystem zeitlich aufgelöst nachgewiesen. Aus der Laufzeit des Lichtes t, d.h. der Zeitdifferenz zwischen der Emission der Laserpulse und der Detektion des Streusignals im Detektor, kann die Höhe zberechnet werden, in der der Streuprozeß stattgefunden hat³.

$$z = \frac{c t}{2}$$
 c: Lichtgeschwindigkeit

Die Höhenauflösung des Lidars ist theoretisch nur durch die Pulslänge τ_L des Lasers begrenzt, entspricht also $c\tau_L$. Die Höhenauflösung wird aber auch durch die Integrationszeit des Detektors τ_D reduziert, so daß die in der Praxis erreichbare

³Der Fehler durch Verwendung der Vakuumlichtgeschwindigkeit *c* gegenüber der Gruppengeschwindigkeit in Luft kann praktisch vernachlässigt werden

effektive Höhenauflösung insgesamt durch $c(\tau_L+\tau_D)/2$ gegeben ist.

Aus der Analyse der gemessenen Intensitätsprofile gewinnt man Informationen über die geophysikalischen Parameter der Atmosphäre (umfassende Darstellungen z.B. in Measures [1984] oder Ansmann *et al.* [1997]).

Neben der Untersuchung von Aerosolen liegen Anwendungen für atmosphärische Lidar im Bereich der Bestimmung von Dichte-, Temperatur-, Windfeldern und Schwerewellen, siehe z.B. [Neuber *et al.*, 1988; Hansen und von Zahn, 1994; Meriwether *et al.*, 1994; Gardner *et al.*, 1995; Whiteway und Carswell, 1995].

Das in dieser Arbeit vorgestellte Lidarsystem ermöglicht neben der Bestimmung von Aerosolparametern auch die Messung des stratosphärischen Ozonprofils nach dem (Raman-) DIAL-Prinzip [Neuber und Krüger, 1990; Mc Gee *et al.*, 1993; Steinbrecht und Carswell, 1995; Heese, 1996]. Das Prinzip der differentiellen Absorption (DIAL steht für **Di***fferential* **Ab***sorption* **L***idar*) besteht darin, daß Laserlicht auf zwei Wellenlängen emittiert wird, die unterschiedlich stark von dem zu messenden Spurengas (z.B. Ozon) absorbiert werden. Aus dem Vergleich der rückgestreuten Signalintensitäten können Höhenprofile der Gaskonzentration ermittelt werden. Die am atmosphärischen Stickstoff oder Sauerstoff inelastisch rückgestreuten Raman-Signale (Vibrations-Rotations-Spektren) sind nicht durch die Aerosol-Rückstreuung beeinflußt (vgl. Abschnitt 2.2). Daher kann durch die Implementierung von Raman-Kanälen im Prinzip die Spurengaskonzentration auch bei einer Aerosolbelastung der Atmosphäre korrekt ermittelt werden.

3.1.1. Geschichte der Lidar–Beobachtungen in Ny-Ålesund

Da ich mich in dieser Arbeit mehrfach auf die langjährige Lidar-Meßreihe des Alfred-Wegener-Instituts auf Spitzbergen beziehen werde, ist hier ein kurzer Überblick über die instrumentelle Entwicklung der Lidarstation angebracht. Die Darstellung bis 1995 folgt [Stebel, 1998].

Seit dem Sommer 1988 werden in Ny-Ålesund (78.924°N, 11.934°E) auf Spitzbergen Lidar-Messungen vom Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung (AWI) durchgeführt. Die anfänglich als reine DIAL-Ozon-Lidar konzipierte Anlage [Steinbrecht, 1987] wurde im Winter 1991/92 im Rahmen der EASOE-Meßkampagne (*European Arctic Stratospheric Ozone Experiment*) für die Untersuchung von stratosphärischen Aerosolen erweitert [Neuber *et al.*, 1992*a*; Beyerle, 1994]. 1992 wurde die deutsche Arktisforschungsstation (Koldewey-Station) in das internationale Netzwerk zur Erkundung stratosphärischer Veränderungen NDSC (*Network for the Detection of Stratospheric Change*) aufgenommen. Sie ist – neben Thule in Grönland und Eureka in Kanada – eine arktische *Primary Station*. Dies beinhaltet u. a. eine kontinuierliche Beobachtung des stratosphärischen Ozons. Bis zum Winter 1991/92 standen nur die beiden DIAL-Wellenlängen 308 nm und 353 nm zur Verfügung; Aerosolmessungen waren nur mit der *off*-Wellenlänge

(353 nm) möglich. Im November/Dezember 1991 sind mit dem neuen Nd:YAG-Laser die Sendewellenlängen 532 nm und 1064 nm hinzugekommen, mit denen die vulkanische Aerosolwolke des Pinatubo-Ausbruchs⁴ und im Winter 1992/93 auch zahlreiche PSCs untersucht werden konnten [Beyerle, 1994]. Das Hauptaugenmerk der im Winter 1993/94 durchgeführten Messungen lag auf der Untersuchung der Variation der Ozonkonzentration [Heese, 1996]. Im November 1994 wurde das Lidar im bis dahin verwendeten Meßcontainer abgebaut. Bis Ende Dezember 1994 konnte ein erweitertes Lidar-System komplett neu in dem fertiggestellten NDSC-Gebäude⁵ aufgebaut werden. Dabei wurde der im Rahmen der Dissertation von Kerstin Stebel [Stebel, 1998] für die ESMOS/Arctic (*European Stratospheric Monitoring Stations in the Arctic*)-Meßkampagne entwickelte Mehrwellenlängen-Detektor installiert, mit dem ab Januar 1995 Aerosol-Messungen durchgeführt wurden. Modifikationen und Verbesserungen im Rahmen dieser Arbeit erfolgten für die Meßkampagnen im Winter 95/96 und noch einmal für den Winter 96/97.

Für die hier vorgestellten Aerosol-Messungen wurde das Lidar als reines Rückstreu-Lidar eingesetzt. Bei dieser ungenau auch als Rayleigh-Lidar bezeichneten Anwendung wird das aus der Atmosphäre rückgestreute Signal auf der emittierten Wellenlänge detektiert. Die Bandbreite der Detektoren umfaßt die zentrale Cabannes-Linie und die Rotations-Raman-Linien (s. Abschnitt 2.2).

⁴Der Mt. Pinatubo (15°N,120°O) brach im Juni 1991 aus

⁵Die genauen geographischen Koordinaten des Lidars sind nach eigenen astronomischen Beobachtungen:
 $\lambda=11^\circ55'20''\pm35'',\phi=78^\circ55'23''\pm7''$

3.2. Beschreibung des Instruments

Das Aerosol-Lidar besteht aus fünf mechanischen, optischen und elektronischen Komponenten:

- Als Laserlichtquelle dienen zwei leistungsstarke Lasersysteme, die Energie in drei spektralen Bereichen mit hoher Pulsenergie und Pulsrate bereitstellen.
- Die Aussendeoptik lenkt die Laserpulse vertikal in die Atmosphäre. Strahlaufweitungssysteme verringern zuvor die Divergenz des emittierten Laserstrahls.
- Mittels eines Spiegelteleskops in modifizierter Cassegrain-Montierung werden die Rückstreusignale aufgefangen und in den Detektor fokussiert.
- Der Detektor separiert das Rückstreusignal in die verschiedenen Wellenlängenkomponenten und bestimmt zusätzlich für eine Wellenlänge die Depolarisation. Die Rückstreusignale werden mit empfindlichen und rauscharmen Photomultipliern nachgewiesen, die alle im Photonenzählmodus arbeiten.
- Eine rechnergestützte Datenaufnahme nimmt die von den Photodetektoren erzeugten Zählpulse in Vielkanalzählern auf. Ein Rechner steuert die Datenaufnahme-Elektronik, speichert die Zählraten periodisch ab und führt eine einfache Datenanalyse für die Kontrolle und Steuerung des Instrumentes durch.



Abbildung 3.1.: Lidarschema im Winter 1995/96

•



Abbildung 3.2.: Detektoraufbau im Winter 1995/96

45



ω

46



Abbildung 3.4.: Detektoraufbau im Winter 1996/97

Hersteller	Continuum		
Тур	Nd:YAG NY 61-30		
Wellenlänge	1064 nm	532 nm	
Pulsfrequenz	30 Hz		
Pulsenergie	ca. 200 mJ	ca. 190 mJ	
Pulslänge	6–8 nsec	5-7 nsec	
Linienbreite	30 GHz		
Divergenz	0,5 mrad		
Polarisation	zirkular	vertikal	
Polarisationsgrad	k.A.	0.995	
Energiestabilität	3%	4,5%	
Strahlprofil	kreisförmig		
Stromversorgung	220 V		
Wasserversorgung	11–15 l/min		

Tabelle 3.1.: Die technischen Daten des Nd:YAG-Festkörperlasers NY 61-30. Die angegebenen Pulsenergien beziehen sich auf den Betrieb mit Frequenzverdoppler.

3.2.1. Laser

Da die Rückstreuintensitäten aufgrund der abnehmenden Luftdichte etwa exponentiell mit der Höhe abnehmen, sind für stratosphärische Lidar-Untersuchungen leistungsstarke Laser, große Teleskope und empfindliche Photodetektoren erforderlich. Als Laserlichtquellen werden daher zwei Lasersysteme hoher Pulsenergie und Repetitionsrate eingesetzt. Beide Systeme sind kommerziell erhältlich. Für die Erzeugung des UV-Laserlichts bei 308 nm wird ein XeCl-Excimer-Laser verwendet, die Wellenlänge 353 nm entsteht durch Konversion eines Teils der Photonen mittels induzierter Ramanstreuung in einer H₂-Gaszelle. Die Wellenlänge 532 nm wird von der zweiten Harmonischen eines Nd:YAG-Lasers geliefert⁶.

Nd:YAG-Laser

Als Quelle für die Erzeugung von Laserlicht bei 532 und 1064 nm wird der gepulste Nd:YAG-Festkörperlaser NY 61-30 des Herstellers Continuum eingesetzt. Die wichtigsten technischen Daten des Gerätes sind in Tabelle 3.1 aufgelistet [Continuum, 1990].

Der NY 61-30 verfügt über eine Oszillator- und eine Verstärkerstufe. Beide YAG-Stäbe werden mittels einer Blitzlampe optisch gepumpt. Zur Erhöhung der Pulsenergie und zum Erreichen kurzer Pulslängen ist der Laser mit einer Güteschaltung

⁶Es ist leicht möglich, auch die Fundamentale bei 1064 nm zu benutzten, was zusammen mit der Installation eines Zweiges für einen neuen Titan:Saphir-Laser bei 779 nm für den Winter 1996/97 geplant war; leider versagte der vorgesehene Detektor (Avalanche-Photodiode) für den IR-Zweig in beiden Wintern; 1996/97 konnte der Ti:Sa-Laser nicht rechtzeitig nach Ny-Ålesund transportiert werden

ausgestattet. Der Verdopplerkristall erzeugt die zweite Harmonische aus der Fundamentalwellenlänge von 1064 nm. Durch Verkippen des Kristalls wird auf maximale Pulsenergie bei 532 nm justiert. Die nominelle Blitzlampenfrequenz des ND 61-30 beträgt 30 Hz; aufgrund der Ausdehnung des optischen Mediums können höhere Frequenzen eine Fokussierung des Laserstrahls innerhalb der YAG-Stäbe verursachen und damit zur Zerstörung des Lasermediums führen.

Frequenzen niedriger als 30 Hz gefährden zwar keine optischen Komponenten, erhöhen aber die Divergenz des emittierten Lichts.

Für den Einsatz des Nd:YAG-Lasers als Lidar-Lichtquelle muß die Möglichkeit einer externen Triggerung bestehen. Der NY 61-30 benötigt zwei Triggerpulse. Der erste Puls zündet die Blitzlampe, die das Lasermedium optisch pumpt. Nach etwa 280 μsec schaltet ein zweiter Puls den Güteschalter durch und startet damit die Laseraktivität. Für eine maximale Pulsenergie ist die genaue Justage der Zeitdifferenz zwischen erstem und zweitem Triggersignal erforderlich.

Excimer-Laser

Für die Erzeugung des UV-Laserlichts bei 308 nm wird ein XeCl-Excimer-Gaslaser (LPX 250) des Herstellers Lambda Physik eingesetzt. Die wichtigsten Systemparameter sind in Tabelle 3.2 zusammengefaßt. Es ist zu beachten, daß dieser Laser (falls keine besonderen Vorkehrungen getroffen werden) meist auf beiden $XeCl^*$ -Linien breitbandig emittiert. Durch eine genaue Abstimmung eines hinter der Oszillatorröhre angeordneten dispersiven Elements kann jedoch eine schmalbandige Emission auf nur einer der beiden Linien erzwungen werden. Leider ist diese Abstimmung instabil, so daß der Laser die meiste Zeit breitbandig mit einem Energieschwerpunkt bei 308,1 nm lief. Ein Teil der Laserenergie bei 308 nm wird in einer mit H₂ gefüllten Raman-Zelle zu Strahlung mit der Wellenlänge 353 nm (1. Stokes-Linie) konvertiert [Werner *et al.*, 1983]. Der Wasserstoffdruck läßt sich während des Betriebes regeln, so daß eine für das Experiment optimale Konversion eingestellt bzw. gehalten werden kann. Bild 3.5 zeigt typische experimentelle Spektren vor bzw. nach der Konversion. Eine detaillierte Beschreibung des Lasers sowie der Justage der Raman-Zelle findet sich in [Steinbrecht, 1987].



Abbildung 3.5.: Gemessene Spektren des Eximerlasers LPX 250T im breit- und im schmalbandigen Betrieb sowie die erste Stokes-Linie nach der Konversion in der Wasserstoffzelle. [Rairoux, 1997]

Hersteller	Lambda Physik
Тур	LPX 250T
Wellenlängen	307.9 / 308.1 ₅ nm
Pulsfrequenz	max. 100 Hz
Pulsenergie (max.)	bis ca. 380 mJ
Pulsenergie (Betrieb)	ca. 150 mJ
Pulslänge	15 nsec
Linienbreite	32 GHz
Divergenz (Herstellerangabe)	0,2 mrad
Divergenz (exp.)	(0, 62) mrad
Strahlprofil	Rechteck $10 \times 20 \text{ mm}$
Stromversorgung	380 V

 Tabelle
 3.2.: Die technischen Daten des Excimer-Gaslasers LPX 250T

3.2.2. Sende- und Empfangsoptik



Abbildung 3.6.: Überlappschema Teleskopgesichtsfeld/Laserkonus

Wie in 3.1 bzw. 3.3 schematisch angedeutet, ist die gewählte Anordnung die eines bistatischen Lidars, d.h. Sende- und Empfangsachsen sind nicht koaxial. Vollständiger Überlapp des Laserstrahls mit der Divergenz ϑ mit dem Gesichtsfeld des Telekops Θ (jeweils volle Winkel) wird damit erst ab einer Höhe z_2 erreicht; falls $\vartheta < \Theta$ verbleibt dann der Sendestrahl bis ins Unendliche im Teleskopgesichtsfeld.

Es gelten nach Bild 3.6 die folgenden Beziehungen in geometrischer und Kleinwinkel-Näherung unter der Voraussetzung, daß das Teleskop auf "unendlich" eingestellt ist und der eine Laserrandstrahl parallel zu einem Rand des Teleskopgesichtsfeldes verläuft, $viz \alpha = (\Theta - \vartheta)/2$:

$$z_0 = D/\Theta$$

$$z_1 = \frac{b + (D - d)/2}{\Theta}$$

$$z_2 = \frac{b + (D + d)/2}{\Theta - \vartheta}$$

Hierbei ist b der horizontalen Abstand von Teleskop und Sendeoptik (hier: b = (0.7...1.1) m), D der Durchmesser des Primärspiegels und d der Durchmesser des Laserstrahls auf dem Sendespiegel (hier: d = (0.025...0.25) m).

Abbildung 3.7.: Höhe z_2 für vollständigen Überlapp als Funktion der Laserdivergenz ϑ , Abstand Teleskop-Sendeoptik b als Parameter. Alle anderen Größen fest (vgl. Abb.3.6).



Bei richtiger Überlappjustage ist hier im ungünstigsten denkbaren Fall, $\vartheta = 0.6 mrad$ und $b = 1, 1 m, z_2 \approx 7 km$ (siehe Abb. 3.7).

Aussendeoptik

Die Aussendeoptik lenkt die Laserpulse, die horizontal aus den Laserquellen emittiert werden, vertikal in die Atmosphäre. Die Stellung der Aussendespiegel ist justierbar, um einen vollständigen Überlapp des Sendestrahls mit dem Teleskopgesichtsfeld einstellen zu können. Das Emissionslicht des Nd:YAG- und des Excimerlasers wird separat durch zwei voneinander unabhängige Aussendeoptiken geführt.

Die Aussendeoptik des UV-Zweigs ist für die beiden Meßwinter unterschiedlich (vgl. Bilder 3.1 und 3.3). Im Winter 1995/96 wird der Strahl über einen 50mm-UV-Spiegel durch ein Aufweitungsteleskop geleitet. Das Teleskop besteht aus einem Konvexspiegel der Brennweite f = -175 mm und einem Konkavspiegel mit einer Brennweitevon f = 1750 mm. Diese Anordnung liefert eine Strahlaufweitung von 1:10 und verringert damit die Divergenz des emittierten Laserstrahls um eine Größenordnung. In Abb. 3.1 ist diese Strahlführung schematisch dargestellt.

Im Winter 1996/97 konnte auf eine Aufweitung verzichtet werden, weil eine Verbesserung des Lasers⁷ die reale Divergenz auf akzeptable Maße senkte.

Die Justage des Strahlüberlapps erfolgt über zwei Schrittmotoren am Konkavspiegel, welche auch während des Meßbetriebes die Kontrolle und das Reproduzieren der Einstellungen erlauben.

Für den VIS-Kanal wird ein für 532 nm vergütetes Galileo-Teleskop verwendet, das den Strahl um den Faktor 10 aufweitet. Die Aussendeoptik besteht aus einem ovalen (80x113mm) –Spiegel, der in einem kardanischen Halter eingefaßt ist. Der Spiegel ist mit einer hochreflektierenden Beschichtung für 532 nm versehen und wird analog zur Sendeoptik des UV-Zweiges mit Schrittmotoren gesteuert; diese motorgetriebenen Linearversteller werden durch eine Kontrolleinheit angesteuert, die über die serielle Schnittstelle mit dem Steuerrechner für das gesamte Experiment verbunden ist. Die Winkelauflösung der Verstellmechanik beträgt ca. 0,3 μ rad. Die Antriebe mußten bei Betriebstemperaturen unter ca. -10°C geheizt werden.

Teleskop

Für die Detektion der Rückstreusignale wird das Spiegelteleskop des alten DIAL-Lidars verwendet [Steinbrecht, 1987]. Der Primärspiegel ist ein sphärischer Zerodur-Spiegel, dessen Spiegelfläche einen Durchmesser von 600 mm besitzt. Seine Brennweite beträgt 2,4 m, damit ist das Öffnungsverhältnis f/4. Der durch die sphärische Aberration des Spiegels verursachte Streukreis hat einen Durchmesser von etwa 0,7 mm. Durch eine modifizierte Cassegrain-Anordnung wird eine effektive Brennweite von 5,0 m erreicht.

Das Teleskop ist in einem stabilen Stahlrahmen gelagert, an den auch die Aussendespiegel angeschraubt sind. Zur Vermeidung von Streulicht wird das Telekop während des Betriebs bis auf die Eintrittsöffnung mit schwarzen Tüchern verhängt.

3.2.3. Mehrwellenlängendetektor 95/96 und 96/97

Im folgenden werde ich die einzelnen Elemente des Detektors kurz beschreiben (vgl. Abb. 3.2 und 3.4).

⁷Einbau von NovaTubeTM-Röhren; besserer Abgleich von Oszillator und Verstärker

Das Signal tritt seitlich in den Detektor ein⁸ und trifft zunächst auf die Gesichtsfeldblende. Durch eine sorgfältige Justage ist sichergestellt, daß sich die Blende im Fokus des Teleskops befindet. Das Gesichtsfeld α des Teleskops wird durch die Größe der Blende bestimmt: Für die Aerosol-Lidarmessungen werden zumeist Blendendurchmesser d von 4 mm verwendet. Mit einer Teleskopbrennweite f = 4985 mm ergibt sich ein Gesichtsfeld α

$$\alpha = \frac{d}{f} \approx 0.8 \text{ mrad}$$

Die Blendenmitte legt zusammen mit der Komponenten des Teleskops die "Blickrichtung" des Lidars fest; die Zenitrichtung wird mit einer Unsicherheit von etwa 1 mrad erreicht. Für eine korrekte Depolarisationsmessung ist es notwendig, daß die polarisationsempfindlichen Empfangszweige (532s und 532p) genau senkrecht bzw. parallel zu der vom Sendezweig definierten Polarisationsebene orientiert sind. Bei exakt vertikaler Laserpolarisation ist hierfür eine Bedingung , daß der Detektortisch exakt horizontal steht und die Richtungen der Empfangszweige zur Richtung des Sendestrahls (vor der Auslenkung in die Atmosphäre) genau gefluchtet sind. Beide Bedingungen sind mit Hilfe einer Schlauchwaage bzw. optischer Fluchtung auf etwa 1 mrad erfüllt worden. Ob die Polarisationsebene des Nd:YAG-Lasers exakt vertikal orientiert war, ließ sich nicht prüfen; diese Unsicherheit wird mit ± 10 mrad (0.6°) abgeschätzt.

Unmittelbar hinter der Blende befindet sich das Flügelrad ($2 \times 60^{\circ}$ -Flügel) des Choppers für die Abschattung der Photodetektoren im Nahbereich; dies ist notwendig, um eine Überlastung der Photomultiplier zu verhindern. Der Abstand der Blendenmitte von der Flügelradachse beträgt 48 mm, das Rad rotiert mit ca. 300 Hz. Eine optische Abtastung der Flügelradposition mittels einer Leuchtdiode und einem lichtempfindlichen Element liefert TTL-Pulse, aus denen die Signale für Lasertriggerung und Datenaufnahme abgeleitet werden, d.h. der Chopper liefert den "Masterpuls" für die Triggerung aller übrigen Komponenten.

Eine plankonvexe Quarzlinse mit einer Brennweite von 100 mm parallelisiert das einfallende Licht und leitet es auf dichroitische Strahlteiler. Die Transmissionswerte der Dichroite sind in Tab. 3.3 aufgelistet. Die Daten beruhen auf Herstellerangaben und gelten für unpolarisiertes Licht, Inzidenzwinkel 45°. Es existert ein geringfügiger Unterschied der Transmissionen für senkrecht (s-) bzw. parallel (p-) zur Einfallsebene der Strahlteiler polarisiertes Licht, z.B. gilt für D_4 bei 532 nm nach Angaben des Herstellers⁹: $T_s = 0,998$, $T_u = 0,992$, $T_p = 0,985$. Zum Vergleich: die s-,p-Reflektivitäten der im Teleskop verwendeten Aluminiumspiegel unterscheiden sich bei einem Einfallswinkel von 45°bereits um 8%! Diese, auf den ersten Blick erschreckenden, "Depolarisationen" haben allerdings keinen störenden

⁸Auch der Detektor ist während des Betriebs bis auf den Strahleintritt vollständig abgedeckt.

 $^{^9\}mathrm{Diese}$ Werte sind gerechnet und stimmen deshalb nicht exakt mit den gemessenen Zahlen in Tabelle 3.4 überein.

Wellenlänge [nm]	D ₁	D ₂	D ₃	D ₄	D ₅	D ₆	D ₇	D_8
308 nm	0,36	0,2	≈ 90				78	
332 nm	0,20	5	≈ 90		Í		1,6	
353 nm	0,50	45	93				$\leq 0,5$	
385 nm	0,5	96	3					
532 nm	94	93		98,0	87			88
607 nm	92	92		92	95	≤ 1		0,4
779 nm	≈ 80			$\leq 0,2$	96	98		
1064 nm	≈ 80			2,8	0,3			
Hersteller	LOG	LOG	LOG	PMS	LOG	PMS	LOG	LOG

Tabelle 3.3.: Die Daten der dichroitischen Strahlteiler nach Herstellerangaben. Die Bezeichnung mit $(D_1 ... D_8)$ korrespondiert mit den Bezeichnungen auf den Bildern 3.2 und 3.4. Herstellerkürzel: LOG = Laseroptik, Garbsen; PMS = PMS Optik, Frankfurt/Main.

Einfluß auf die Messung¹⁰, da eine polarisationsabhängige Reduktion der Signale nur die Nachweiseffizienz der Kanäle bestimmt und durch die Normierung im aerosolfreien Höhenintervall die Bestimmung der Rückstreuverhältnisse und Depolarisationen nicht beeinflußt. Wie in Abschnitt 3.3.2 gezeigt wird, können Fehler in den polarisationsabhängigen Meßgrößen ausschließlich durch die Depolarisation des emittierten Laserlichts, die fehlerhafte Justage der Empfangszweige auf die Polarisationsebene des ausgesandten Lichts und durch ungenügende Trennung der s- und p-Komponenten im Detektor ("Übersprechen") entstehen.

Die genaue Anordnung der Strahlteiler und der einzelnen Zweige ist aus den Abbildungen 3.2 und 3.4 ersichtlich.

Nach der spektralen Zerlegung sorgen Interferenzfilter für eine Reduktion des Untergrundlichts in den vier Wellenlängenkanälen und für eine Erhöhung der Kanaltrennung. Tab. 3.4 enthält Angaben über die verwendeten Interferenzfilter und deren optische Daten. Die hohe Blockung sorgt dafür, daß ein Übersprechen der intensiven elastischen Rückstreuwellenlängen in die Ramankanäle vernachlässigt werden kann. Die Wellenlänge maximaler Transmission λ eines Interferenzfilters variiert mit dem Einfallswinkel α nach [Macleod, 1969]

$$\lambda = \lambda_0 \sqrt{1 - \left(\frac{m_0}{m^\star}\right)^2 \sin^2 \alpha} , \qquad (3.1)$$

wobei λ_0 die Zentralwellenlänge, m_0 den Brechungsindex des umgebenden Mediums und m^* den effektiven Brechungsindex des Filters bezeichnet (vgl. Tab. 3.4). Mit experimentell möglichen Restdivergenzen der auf die Interferenzfilter einfal-

lenden Strahlenbündel von etwa 10 mrad bzw. von Abweichungen von lotrechter

¹⁰Sofern sich im Detektorzweig keine optischen Elemente befinden, die die Polarisationsebene drehen.

Kanal	$\lambda_0 \text{ [nm]}$	Halbwertsbreite [nm]	Transmission [%]
308	307,8	5,0	45
332	331,7	5,4	56
353	353,0	5,0	56
385	384,7	5,7	56
532s	532,9	10,5	79
532p	532,9	10,6	79
607	607,8	4,9	75
779	779,3	3,0	78
1064	1064,5	5,0	81

Tabelle 3.4.: Die Daten der Interferenzfilter nach Unterlagen des Herstellers Barr Associates. Die Blockung ist über den gesamten Spektralbereich besser als 10^{-5} . Der effektive Brechungsindex wird mit $m^* = 1,45$ für den UV-Bereich und $m^* = 2,05$ für die sichtbaren Wellenlängen angegeben.

Inzidenz auf die Filter von maximal 1° verschiebt sich die Wellenlänge maximaler Transmission um ca. 0,01...0,02%. Diese Wellenlängendifferenz ist wesentlich geringer als die Halbwertsbreite der Filter ($\Delta\lambda/\lambda \ge 0,4\%$) und kann daher vernachlässigt werden. Der Einfluß der Temperatur auf die Wellenlänge maximaler Transmission beträgt ca. 0,01 nm/K, so daß auch Temperaturschwankungen um 50 K vernachlässigt werden können.

Im 532-nm-Kanal erfolgt die Separation der parallel und der senkrecht polarisierten Komponenten mittels eines polarisierenden Strahlteilerwürfels. Die Transmission für vollständig parallel polarisiertes Licht (\parallel -Licht) und die Reflektivität für vollständig senkrecht polarisiertes Licht (\perp -Licht)¹¹ wird vom Hersteller mit $\approx 99\%$ angegeben. Die durch Rayleigh-Streuung verursachte Depolarisation des Rückstreusignals beträgt etwa 0,014 (s. Kapitel 2.2). Das \perp -Signal ist damit fast zwei Größenordnungen geringer als das \parallel -Signal. Um den Anteil von parallel polarisiertem Licht (das sog. Übersprechen) im \perp -Kanal weiter zu verringern, wird im \perp -Kanal ein zweiter Polarisator eingefügt¹². Der Nachweis der Signale in den beiden VIS- und den beiden UV-Kanälen erfolgt mit Photomultipliern. Fokussierlinsen, die vor jedem der Detektoren angeordnet sind, bilden zusammen mit der Parallelisierungslinse die Gesichtsfeldblende auf die empfindlichen Detektorflächen ab. Die Brennweite dieser Linsen in den VIS- und UV-Kanälen beträgt je 100 mm. Unmittelbar vor den

¹¹Hier beziehen sich die Bezeichnungen || und ⊥ auf die Einfallsebene mit der reflektierenden Fläche des Strahlteilerwürfels; Verwechslungen mit den ||- bzw. ⊥- Komponenten der Streustrahlung sollte man vermeiden!

¹²Leider kam es im Meßwinter 1996/97 durch das Schwenken des Detektortisches um 90° relativ zum Sendestrahl anfänglich zu einer Verwechslung der ⊥- und ||-Kanäle, so daß der zweite Strahlteilerwürfel fälschlicherweise im ||-Kanal eingebaut wurde; er war damit unwirksam. Vgl. Abschnitt 3.3.2

Kanal	UV	VIS	
Hersteller	Thorn EMI		
Detektortyp	Photomultiplier		
Тур	9893Q/350	9863QA/350	
Betriebsart	Photonenzählung		
Dunkelzählrate	300 sec^{-1}	$40 { m sec^{-1}}$	
Grenzfrequenz	ca. 200 MHz	ca. 200 MHz	
max. Quantenausbeute	ca. 12%	ca. 23%	
eff. Kathodendurchmesser	9 mm	$9 \mathrm{mm}$	
Spannungsversorgung	2250 V (typ.)	1950 V (typ.)	
Vorverstärker	A2; 10 x	A2; 10 x	
Kühlung			

Tabelle 3.5.: Die technischen Daten der Photodetektoren. Die Angaben sind den Herstellerunterlagen entnommen. Die ins PM-Gehäuse eingebauten Vorverstärker des Typs A2 vom selben Hersteller sind mit einer Anstiegszeit von 2,5 nsec und einem Rauschen von 4,2 nV Hz^{1/2} spezifiziert.

Photomultipliern sind Neutraldichtefilter angeordnet, im Aufbau 95/96 als Wechselfilter, 96/97 in manuellen Filterrevolvern, die je fünf Neutralfilter fassen. Diese Filter dienen zur Anpassung der Signalintensiät an den Lastbereich der Multiplier; sie werden so gewählt, daß die maximale Zählrate an der Chopperkante unterhalb einer Grenzfrequenz bleibt, die vom jeweiligen Photodetektor abhängt (genaueres siehe 3.3.1). Die Spezifikationen der Photodetektoren sind in Tabelle 3.5 zu finden.

3.2.4. Trigger- und Datenaufnahmesystem

Das Datenaufnahmesystem diskriminiert die Zählpulse der Photodetektoren, liest diese in Vielkanalzähler ein, steuert über Triggersignale die Laserpulsemission, startet die Vielkanalzähler, stellt die Rohdaten graphisch dar und speichert diese in geeigneter Form ab.

Triggerung

Das am Chopper abgegriffene 540 Hz–Taktsignal wird von einem, in der Elektronikwerkstatt des AWI in Potsdam entwickelten, Triggermodul heruntergeteilt und zeitverzögert. Das Modul liefert 30 Hz (für Nd:YAG–Laser) bzw. 90 Hz (für den Excimer–Laser) Ausgangspulse für die Triggerung der Laser. Der Nd:YAG–Laser benötigt zwei Trigger-Pulse mit definiertem Zeitabstand von 187 μ s für das Zünden der Blitzlampen und das Schalten des Q-Switch. Der Excimer–Laser wird über einen Puls extern getriggert. Um ein Übersprechen der UV- und der VIS–Laseremissionen zu verhindern, steuert eine interne Logik die Emissionen derart, daß sie nie gleichzeitig stattfinden. Die Trigger-Pulse können mittels eines Potentiometers verzögert werden. Hierdurch ist die Höhe des Abschattbereichs des Choppers einstellbar. Ein weiteres Verzögerungsglied stellt der, seit dem Winter 1995/96 eingebaute, Multi-Delay-Generator (Model DG535 Digital Delay/Pulse Generator; Standford Research Systems) dar. Für den Meßbetrieb bedeutet das, daß der Abschattbereich des Choppers für die Excimer-Wellenlängen und die Nd:YAG-Laseremissionen getrennt einstellbar ist.

Die Triggerpulse für die Vielkanalzähler werden direkt von den Laserpulsemissionen des Nd:YAG-Lasers und des Excimer-Lasers mittels schneller Photodioden abgegriffen. Über zwei Weichen werden die Signale in jeweils vier Vielkanalzähler (MCS) eingespeist. Um elektronische Einstreuungen zu verhindern, werden die mittels Elektro-Optischer-Wandler konvertierten Trigger-Signale durch Lichtleiter übertragen.

Signalverarbeitung

Die invertierten verstärkten Ausgangssignale der Photomultiplier werden auf den Oktal Diskriminator (NIM Model 708, Fa. Phillips Scientific) gegeben. Es können gleichzeitig acht unabhängige Kanäle mit Pulsraten bis zu 300 MHz verarbeitet werden. Die Diskriminatorschwelle ist variabel zwischen -10 mV und -1 V. Die Messungen wurden bei Diskriminatorschwellen von -10 mV durchgeführt. Durch den Diskriminator sind keine zusätzlichen Totzeiteffekte zu erwarten. Die Spezifikation der Doppelpuls-Auflösung beträgt weniger als 3,3 ns.

Zum Auslesen der Signale werden acht Vielkanalzähler des Typs Turbo- MCS^{TM} des Herstellers EG&G ORTEC [EG & ORTEC, 1992] eingesetzt. Die Tabelle 3.6 gibt die für die Datenaufnahme wesentlichen Parameter wieder. Eine weitergehende Beschreibung der Vielkanalzähler findet sich in [Wittrock, 1994].

Tabelle 3.6.: Spezifikationen der Vielkanalzähler (nach Herstellerangaben).

Turbo–MCS TM Vielkanalzähler, EG&G ORTEC		
Maximale Zählrate	150 MHz	
Kanalstandzeit	5 ns - 2^{16} s (intern)	
Speicherkapazität	2 ²⁴ pro Kanal	
Anzahl der Kanäle	4 - 16384	
Totzeit zwischen Kanälen	keine	
Diskrimator	inaktiviert	

3.2.5. Software

Die Steuerung des Systems und die Datenaufnahme erfolgen zentral von einem PC aus. Hierzu wurde am AWI-Bremerhaven ein menü-orientiertes Datenaufnah-

me- und Steuerprogramm 'LIDAR.EXE' entwickelt, das auf die Anfordungen des Aerosol-Lidars abgestimmt ist [Ruhe, 1996]. Das Programm ist auf einem 486-PC installiert und transferiert im Meßbetrieb die Daten im Hintergrund auf eine Sparc-Workstation, von der aus die gepackten und komprimierten Daten eines Tages per *ftp* ins Alfred-Wegener-Institut Potsdam übertragen werden. Während des Meßbetriebs steuert dieses Programm die Datenaufnahme:

Die Daten werden von den Turbo-MCS Vielkanalzählern übernommen und zusammen mit weiteren, für die Auswertung benötigten Meßparametern (z.B.: Startzeit; Sender-Daten: Laserleistung und -frequenz, Druck in der H2-Ramanzelle, Positionen der Aussendespiegel; MCS-Daten: Anzahl der Höhenkanäle, Diskriminatorschwellen; Detektor-Daten: Wellenlänge, Polarisation, Photomultiplierspannung, Optiken) visualisiert und abgespeichert. Die Software erlaubt die Steuerung der Höhen- und Zeitauflösung; die zeitliche Auflösung wird durch die Anzahl der zu summierenden Laserpulse bestimmt; die untere Grenze entspricht 30 sec, die obere Grenze ist offen. Die räumliche, d.h. Höhenauflösung wird durch individuelle Ansteuerung der MCS eingestellt und hat eine untere Grenze von 7,5 m. Die Höhenauflösung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen lag zwischen 15 m und 200 m. 2000 Nd:YAG-Pulse (bzw. 6000 Excimer-Pulse) werden aufsummiert, das entspricht einer Zeitauflösung von 66.7 s. Da die Untergrundbestimmung aus der Analyse der Zählraten aus großen Höhen (> 100 km) erfolgt, wurde üblicherweise die maximale Anzahl der Höhenkanäle von 16384 ausgenutzt. Dies entspricht, bei einer Höhenauflösung von 15 m, einer maximalen Höhe von > 245 km. Hierdurch können bei Betrieb aller acht Detektor-Kanäle Datenraten bis 30 MByte/h anfallen.

Weiterhin kann die Justierung der Aussende-Spiegel direkt vom Datenaufnahme-Rechner aus erfolgen. Eine automatisierte Suche des Strahlüberlapps ist möglich. Dazu werden, unter Vorgabe der Startposition, der Endposition und der Schrittweite der motorgetriebener Linearversteller, Schnitte durch das Gesichtsfeld des Teleskops abgefahren. Anhand der auf dem Monitor dargestellten Signalintensitäten kann die optimale Überlapp-Position rekursiv ermittelt werden.

3.3. Methoden zur Datenauswertung

In diesem Kapitel stelle ich die Methoden und Algorithmen für die Auswertung der Aerosol-Lidardaten vor. Die Auswertesoftware ist in $Matlab^{TM}$ geschrieben und baut auf dem kwiklook-Programm von Georg Beyerle [Beyerle, 1994] auf. Die technische Programmiersprache *Matlab* bietet den Vorteil, daß alle Größen als Matrizen behandelt werden; als Interpretersprache ist eine sehr einfache interaktive Manipulation der Variablen möglich. Der Geschwindigkeitsverlust kann durch die einfache Einbindung externer Programme leicht ausgeglichen werden.

3.3.1. Rohdatenerfassung und -aufbereitung

Im ersten Schritt der Auswertung müssen die Rohdaten in einer geeigneten Höhenund Zeitauflösung eingelesen und wegen Untergrund, Nichtlinearitäten der Photodetektoren und evt. Übersprechen korrigiert werden. Außerdem ist dafür Sorge zu tragen, daß – soweit programmgesteuert möglich – fehlerhafte bzw. zu schwache Profile ausgesondert werden.

Einlesen

Die Rohdaten eines Kalendertages bestehen aus mehreren hundert Einzeldateien pro Meßstunde, je einer pro Kanal und eingestellter Integrationszeit des Datenaufnahmesystems (typischerweise ca. 1 min). Diese Einzeldateien liegen nach der Datenfernübertragung zunächst gepackt und komprimiert (*unix*-Dienstprogramme tar und gzip) vor. Die einzelnen Schritte beim Einlesen in das *Matlab*-Programmpaket "lidar" sind nun bei Vorgabe des Datumsstrings "YYMMDD":

- 1. Rohdatengesamtfile zu Tag "YYMMDD" entkomprimieren und auspacken (*unix*-Dienstprogramme tar und gzip).
- 2. Einzeldateien zusammenfassen zu größeren zeitlichen Integrationsblöcken. Die Standardzeitauflösung ist 1 h; weitere Standardzeitmittel sind 10,20,30 min, bei Bedarf können die Mittelungszeiten vom Benutzer frei definiert werden.
- 3. Einlesen aller Einzeldateien im laufenden Mittelungsintervall en bloc mit dem externen (C-)Programm "mcstoasc". Dieses Programm ist auf das spezielle binäre Datenformat [Ruhe, 1996] der Rohdaten zugeschnitten und besorgt im wesentlichen eine Datenreduktion (Ausgabe nur im Höhenintervall 0...50 km bzw. 0...100 km), die Bestimmung der Untergrundzählrate in einem frei wählbaren Höhenbereich (typisch 100...148 km) und die "kritische" Addition der Einzelprofile zu einem Gesamtprofil. "Kritisch" bedeutet hier, daß offenbar zu schwache Profile nicht aufaddiert werden, da dies nur eine Vergrößerung des Rauschens ergeben würde. Solche Profile können im Dauermeßbetrieb leicht durch den (zuweilen unbemerkten) Durchzug von kleineren Wolkenfeldern entstehen. Es werden nur diejenigen Einzelprofile berücksichtigt, deren Maxima mindestens 30% (einstellbar) des Maximums des zählratenstärksten Profils erreichen. Standardmässig wird das resultierende Profil zum Schluß noch auf das "AWI-Standardhöhenraster" interpoliert¹³, nämlich z = (100 : 200 : 49900)m. Diese "Interpolationsoption" kann jedoch abgeschaltet werden, man erhält dann die volle Höhenauflösung der Vielkanalzähler. Das Ausgabeformat von "mcstoasc" ist das bekannte NASA-Ames ASCII-Format, das z.B. in [Gaines

¹³Eigentlich ist dies eine interpolierende Integration; es wird das Akima-Verfahren [Hilberg, 1989] verwendet.
und Hipskind, 1990] beschrieben ist. Diese Datei enthält neben den Zählratenprofilen im Datenblock auch alle für die Weiterverarbeitung benötigte Informationen wie Wellenlänge, emittierte Polarisation, Empfangspolarisation, Startund Endzeit des Mittelungszeitraums, Höhenauflösung (im Zeitmaß), Anzahl der Höhenbins, Hintergrundzählrate, Anzahl emittierte Laserpulse, Anzahl addierter Laserpulse.

- 4. Einlesen des (intermediären) NASA-Ames-Files mit dem externen C-Programm "asci2mat", welches die Umsetzung der ASCII-Datei in Matlab-Variablen besorgt.
- 5. Abspeichern der *Matlab*-Variablen in einer binären *Matlab*-Datei (eine Datei für jeden Meßtag).

Datenkorrekturen



Abbildung 3.8.: Rohdaten für die Kanäle 353u, 532s und 532p am 22.12.95, 1600-1700 Uhr. Die Höhenauflösung beträgt 200 m. Es sind PSCs auf bin 110 (ca. 22 km Höhe) zu erkennen.

61

Bevor ich auf die Verfahren zur Korrektur der Rohdaten näher eingehe, möchte ich drei Beispielprofile zeigen, an denen sich der Gang der Auswertung anschaulich verfolgen lässt.

In Bild 3.8 sind zunächst die Rohdatenprofile vom 22.12.95, 1600-1700 Uhr dargestellt, so wie sie nach dem Einlesen vorliegen. Dargestellt ist ein Stundenmittel mit 200 m Höhenauflösung der Signale bei 353 nm (unpolarisiert,'u'), und der beiden Kanäle für 532 nm (parallel zur Laserpolarisation, 'p', und quer zur Laserpolarisation, 's').

Aufgrund der mit der Höhe abfallenden Luftdichte nimmt das Signal in erster Näherung exponentiell ab¹⁴. In etwa 22 km Höhe (*bin 110*) erkennt man einen zusätzlichen Streubeitrag durch stratosphärische Aerosole; unterhalb von ca. *bin 40* reduziert die mechanische Abblendvorrichtung (Chopper) die Zählraten. Die Flanke unterhalb *bin 40* wird im folgenden auch als Chopper-Kante bezeichnet. Diffuse Streuung des Laserlichtes im Teleskopraum lassen die Zählraten in den untersten Höhenbins der Profile etwas ansteigen. Die vom Aerosol-Lidar in der Stratosphäre detektierten Rückstreusignale haben eine sehr geringe Intensität; die maximale Zählrate beträgt nur zwischen 1,5 und 17,3 Ereignisse pro emittiertem Puls und 200 m-Höhenintervall.

In der folgenden Aufzählung werden die einzelnen Schritte der Rohdatenkorrekturund Aufbereitung dargestellt, wobei die Reihenfolge der Abfolge der Schritte im Datenauswerteprogramm entspricht.

- 1. Berechnung des Höhenvektors $\vec{z} = z_0 + \Delta h/2 + \Delta h$ (0:1:N); hierbei ist $\Delta h = cT/2$. Es bedeuten: T Zähleradditionszeit, N Anzahl der Höhenbins; $z_0 = 13$ m ist die Seehöhe des Lidarsystems¹⁵. Die Höhe z_i ist genauer als diskretes Höhenintervall $[z_i \Delta h/2:z_i + \Delta h/2]$ zu verstehen; über dieses Intervall werden die Signale ja jeweils summiert. Das "Standard-Höhenraster" der 200 m-Auflösung ist [100:200:49900] m.
- 2. Normierung der Zählraten Z auf Ereignisse/Höhenbin/Laserpuls, kurz cts/bin/puls ergibt $\hat{Z} = Z/NAP$, wobei NAP die Anzahl der addierten Laserpulse bedeutet.
- 3. Berechnung der statistischen Fehler \mathcal{E}^{stat} . Es wird eine Poissonverteilung der Zählraten angenommen, was einfach auf $\mathcal{E}^{stat}(\hat{Z}) = \sqrt{\hat{Z}/NAP}$ führt.
- 4. Korrektur der Nichtlinearitäten des Detektorsystems. Für den Winter 1995/96 wurde für alle Kanäle mit den Werten aus [Beyerle, 1994] gearbeitet. $\hat{Z}^{lin}(z_i)$ soll die linearisierte Zählrate bedeuten:

$$\hat{Z}^{lin}(z_i) = \frac{1}{2} \frac{T}{\tau_d} \left(1 - \sqrt{1 - 4\frac{\tau_d}{T} \hat{Z}(z_i)} \right) .$$
(3.2)

¹⁴Der Faktor 1/z² in der Lidargleichung 2.10 hat nur in der Troposphäre einen signifikanten Einfluß auf die Form des Signals.

¹⁵abzüglich 2,4 m (ungefähre Verzögerung durch $c \neq c_{Vakuum}$ in der Troposphäre)



Abbildung 3.9.: Linker Graph: Signal unkorrigiert und wegen Nichtlinerarität korrigiert. Rechter Graph: Korrekturfaktor mit Fehlerschranken (die Fehler sind für die Korrekturen 1996/97 wesentlich kleiner). Als Beispiel ist das 532s-Profil aus Abb. 3.8 gewählt.

Hier bezeichnet τ_d den Totzeitparameter, $\tau_d = (10 \pm 5) nsec$ und T wieder die Zähleradditionszeit. Bei einer Höhenauflösung von $\Delta z = 200$ m beträgt $T = 1,33 \ \mu sec$. In Abb. 3.9 ist der Totzeitkorrekturfaktor $\hat{Z}^{lin}(z_i)/\hat{Z}(z_i)$ als Funktion der Höhe für das Rohdatenprofil für den Kanal 532 nm (s-pol) dargestellt.

Im Winter 1996/97 sind die Nichtlinearitäten der Detektoren gemessen und parametrisiert worden; die Korrektur der Zählraten erfolgt ebenfalls mit Gleichung 3.2, allerdings sind hier die τ_d für jeden Kanal individuell einzusetzen. Die Ableitung der Totzeitparameter aus Testmessungen und Zahlenwerte für die Ergebnisse der Parametrisierung werden auf Seite 66 diskutiert.

Die Fehlerfortpflanzung der Unsicherheit von τ_d ergibt eine systematische Unsicherheit $\mathcal{E}^{sys}(\hat{Z})$ für jedes Profil.

5. Untergrundkorrektur. Die Untergrundzählrate setzt sich zusammen aus der Detektordunkelzählrate und dem Hintergrundsignal, das durch die Himmelsresthelligkeit verursacht wird. Übersprechen aus anderen Kanälen ist zum einen durch das abwechselnde Feuern der Laser, zum anderen durch die wirksamen dichroitischen Filter und die hohe blocking-effizienz der Interferenzfilter als auch durch sorgfältige Abschirmung der Strahlengänge gegen Streulicht gegenüber früheren Aufbauten (vgl. [Beyerle, 1994]) praktisch völlig vermieden worden (auf den Spezialfall der Separation der s- und p-Kanäle für 532 nm werde ich gesondert eingehen, s. Abschnitt 3.3.2). Die Hintergrundzählrate Z^u wird aus einem einstellbaren Höhenbereich $(z_{von} \dots z_{bis})$ durch Bildung des arithmetischen Mittels bestimmt. Der verwendete Höhenbereich ergibt sich aus der Forderung nach Vernachlässigbarkeit des Signals und daraus, daß z_{bis} kleiner sein muß als die Höhe (ca. 156...172 km), wo der Chopper beginnt das Himmelsrestlicht wieder abzuschatten. Typische Werte sind $z_{von} = 100$ km und $z_{bis} = 148$ km. Die untergrundkorrigierte Zählrate ist nun $\hat{Z}_{0in}^{lin} = \hat{Z}^{lin} - Z^{u}$.

Es ist empirisch verifiziert worden, daß bei den verwendeten maximalen Photomultiplier-Zählraten das sogenannte SIN (Signalinduziertes Rauschen, *signal induced noise*) keine Rolle spielt, der zur Hintergrundmittelung verwendete Abschnitt des Profils mithin im Rahmen der Meßgenauigkeit konstant ist. Es zeigte sich, daß bei den verwendeten Photomultipliern in der Tat der SIN-Effekt der die mögliche Maximalintensität limitierende Faktor ist und nicht die Nichtlinearität!

6. Berechnung des Gesamtfehlers $\mathcal{E}(\hat{Z}_0^{lin})$ Es gilt:

$$\mathcal{E}(\hat{Z}_0^{\hat{l}in}) = \sqrt{(\mathcal{E}^{stat}(\hat{Z}))^2 + (\mathcal{E}^{stat}(\hat{Z}^u))^2} + \mathcal{E}^{sys}(\hat{Z})$$

- Korrektur des Übersprechens zwischen den beiden polarisationsempfindlichen Kanälen und Normierung des ⊥-Kanals auf den ||-Kanal anhand des Atmosphärensignals in großen Höhen. Hierauf wird in Abschnitt 3.3.2 näher eingegangen.
- Herstellung eines quasi-unpolarisierten Signals für aus den 532s- und 532p-Signalen: Üblicherweise wird bei 532 nm auch ein "Gesamt-R" R_u berechnet. Das geschieht einfach dadurch, daß die Intensitäten I_{||} und I_⊥ (nach der Normierung im vorigen Schritt) addiert werden und dieses quasi-unpolarisierte Signal in die Klettinversion eingeht.
- 9. Bestimmung des auswertbaren Höhenbereichs. Die Rohdatenbearbeitung wird abgeschlossen mit der Bestimmung des Höhenbereichs $[z_M, z_N]$, in dem eine Auswertung möglich ist. z_N ist diejenige Höhenstufe, auf der das Signal unter die Untergrundzählrate gesunken ist bzw. das Signal-zu-Rausch-Verhältnis kleiner eins wird; sie ergibt sich zwanglos als diejenige Höhe, ab der das untergrundkorrigierte Signal zum erstenmal ≤ 0 wird. z_M wird definiert als die minimale Höhe oberhalb der Chopperkante, in der keine Beeinflussung der Signalintensität durch den Chopper vorliegt. Die Bestimmung dieser Höhe erfolgt durch die (numerische) Ableitung des Profils nach der Höhe; empirisch ergibt sich, daß die Chopperkante z_M sehr gut an dem scharfen Minimum dieser Ableitung erkannt werden kann. Vgl. Bild 3.10, wo links das 353 nm-Signal aus Abb. 3.8 noch einmal aufgetragen ist und rechts die Ableitung. z_0 bezeichnet die Einsatzhöhe des Choppers; $z_M - z_0$ ist der gesamte vom Chopper beeinflußte Höhenbereich und kann von Messung zu Messung schwanken infolge Variationen in der Laserdivergenz und der Abbildungsqualität in der Blendenebene. Weil das gemessene Signal verrauscht ist, können z_0 und z_M



Abbildung 3.10.: Bestimmung der Chopperkante durch Analyse der Ableitung des Signals.

nicht beliebig genau ermittelt werden. Zur Abschätzung des Fehlers wurde eine Monte Carlo - Simulation durchgeführt: ein synthetisches, verschieden stark verrauschtes Lidarprofil wurde analysiert und die Standardabweichung von z_0 und z_M in Abhängigkeit des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses in 20 km Höhe (SN20) bestimmt. Sie lassen sich wie folgt parametrisieren:

$$\mathcal{E}(z_0) = \begin{cases} -1050 * log_{10}(SN20) + 635 \ m & \text{falls } SN20 < 3, 6\\ \Delta z & \text{sonst} \end{cases}$$
$$\mathcal{E}(z_M) = \begin{cases} -1060 * log_{10}(SN20) + 2920 \ m & \text{falls } SN20 < 150\\ \Delta z & \text{sonst} \end{cases}$$

Zum Schluß werden alle Signalstücke unterhalb z_M und oberhalb z_N auf Null gesetzt (= "NoValue").

10. Speichern als binärer Matlab-File.

Die korrigierten Signale sind beispielhaft in Abb. 3.11 dargestellt.



Abbildung 3.11.: Aufbereitete Profile für dieselben Daten wie in Abb. 3.8. Die Signale sind mit dicken, absolute Unsicherheiten mit dünnen Linien gezeichnet.

Testmessungen zur Nichtlinearität der Detektoren und zum SIN

Bei hohen Pulsraten tritt in Photonenzählsystemen durch das Überlappen von Pulsen und die endliche Totzeit der Zähler Nichtlinearität auf. Weil alle Komponenten des Nachweissystems – Photomultiplier, Kabel, Diskriminator- und Zählelektronik – beitragen, kann die Korrekturfunktion nur am Gesamtsystem, so wie es auch bei der realen Lidarmessung benutzt wird, ermittelt werden [Donovan *et al.*, 1993]. Im einzelnen tragen drei Effekte zur Nichtlinearität bei (vgl. Fig. 3.12):

- A: Zählratenreduktion durch "pulse pileup".
- B: Zählratenerhöhung durch "pulse pileup".
- C: Zählratenreduktion durch mehr als einen Puls innerhalb der Totzeit der Zählelektronik.

Offenbar hängt der Nettoeffekt stark von der Pulshöhenverteilung und der Höhe der Diskriminatorschwelle ab. Die Diskriminatorschwelle des vorliegenden Lidarsy-



Abbildung 3.12.: Pulsratenreduktion und -erhöhung durch Diskriminator- und Totzeiteffekte. Die dünnen, gestrichelten Linien sollen Einzelpulse repräsentieren; die dicke Linie ist jeweils die Summe der Einzelamplituden.

stems ist auf ein optimales Signal/Rausch-Verhältnis eingestellt und wurde nicht verändert. Nach [Donovan *et al.*, 1993; Steinbrecht, 1994] kann der Zusammenhang zwischen gemessener Zählrate P_0 und der linearisierten, der Intensität streng proportionalen Zählrate P_l in realistischen Detektionsaufbauten wie folgt genähert werden:

$$P_0 = P_l - \tau P_l^2 \left(+ k P_l^3 \right) \tag{3.3}$$

woraus bei Vernachlässigung des kubischen Gliedes

$$P_l = \frac{1}{2\tau} (1 - \sqrt{1 - 4\tau P_0}) \tag{3.4}$$

folgt, also Gl. 3.2.

 τ und k sind die gesuchten Konstanten, die das Verhalten des Systems beschreiben; sie können auf einfache Weise durch Messung zweier Lidarprofile bestimmt werden, von denen das eine mit vorgeschalteten Neutraldichte- (ND) -filter aufgenommen wird. Stellt man sicher, daß die Zählraten P_0^{ND} des abgeschwächten Profils im linearen Bereich liegen und mißt kurz darauf (die atmosphärische Variation muß vernachlässigbar sein) ein nichtabgeschwächtes Profil mit den Zählraten P_0^{noND} , so gilt

$$\frac{P_0^{noND}}{P_0^{ND}} = \frac{1}{\mathcal{T}} - \frac{\tau}{\mathcal{T}^2} P_0^{ND}$$

$$= A - B P_0^{ND} ,$$
(3.5)



Abbildung 3.13.: Beispiel für die Bestimmung der Detektor-Nichtlinearität. Das obere Bild zeigt die beiden Rückstreuprofile mit und ohne Neutraldichtefilter; das untere Bild stellt den Quotienten nach Gl. 3.5 dar.

also eine lineare Gleichung (\mathcal{T} ist die Transmission des ND-Filters).

Als Beispiel zeigt Abb. 3.13 die Analyse des 308 nm-Kanals; ein gewichteter linearer Fit der Meßpunkte des unteren Figur an Gl. 3.5 ergibt $\frac{1}{\tau} = 24,07$ und $\tau = 8,2693 \times 10^{-9}$ sec.

Aus einer Reihe solcher Testmessungen ergaben sich die Mittelwerte der Tabelle 3.7 (hier sind auch schon die SIN-Konstanten eingetragen; der Fehler (in Klammern) wurde aus der Streuung der Fitkonstanten bei verschiedenen Profilkombinationen bestimmt). Bemerkung zum 532p-Kanal: dies war der einzige, bei dem die Mitnahme des kubischen Gliedes in Gl. 3.3 signifikant war. Bei einer maximalen Zählrate bis 10 MHz im Meßbetrieb lohnt sich jedoch die Auflösung der kubischen Gleichung nach P_l nicht und es wurde mit einer linearen Näherung, $\tau = 12.4 \times 10^{-9} (1 \pm 3,5\%) sec$ gerechnet. Für die Ramankanäle wurde die Korrektur weiterhin mit $\tau_d = (10 \pm 5) nsec$ durchgeführt.

Signal-induziertes Rauschen, SIN: Es ist bekannt, daß die meisten Photomultiplier nach einer kurzzeitigen Exposition an hohe Lichtintensitäten ein erhöhtes Rauschsignal zeigen, das in etwa exponentiell nach der Exposition abklingt. Diese "SIN-Zählrate" addiert sich auf das normale Hintergrundsignal; weil der SIN zeitund damit höhenabhängig ist, wird dadurch der Hintergrundabzug verfälscht. Hier möchten wir den SIN-Effekt möglichst vermeiden, d.h. es war experimentell zu ermitteln, welche maximale Zählrate noch einen vernachlässigbaren SIN-Effekt ergibt. Dazu wurden wieder Testmessungen an der Atmosphäre durchgeführt; es wurden Profilpaare mit hohem und niedrigem Chopperdelay unter sonst gleichen Bedingungen gemessen. Man erwartet dann, daß das Profil mit hoher Chopperkante von SIN



Abbildung 3.14.: Beispiel für die Bestimmung des Signalinduzierten Rauschens. Es sind zwei Rückstreuprofile (dünne Linien) mit hoher und mit niedriger Chopperkante für große Höhen dargestellt; die dicke Linie ist die Differenz beider Signalprofile. Gestrichelt eingezeichnet ist ein Fit an diese Differenz nach Gl. 3.6.

unbeeinflußt ist, so daß die Differenz die SIN-Zählrate P^{SIN} wird. Ein Beispiel für

Kanal	PMT-Seriennummer	τ [nsec]	k/ au^2	SIN [Hz/MHz]
308 nm	9893/72058	8,27(0,02)	0	7,1(2,0)
353 nm	9893/5018	9,5(2,3)	0	6(2)
532s nm	9893/5171	9,2(1,9)	0	24(10)
532p nm	9863/15044	12,75(0,04)	0,265(0,009)	7,5(2,0)

Tabelle 3.7.: Totzeit- und SIN-Konstanten im Winter 1996/97 für die elastischen Kanäle; Unsicherheiten in Klammern. Die Ramankanäle konnten wegen der geringen Intensitäten nicht getestet werden.

eine derartige Messung ist in Abb. 3.14 dargestellt; hier sind die Profile erst stark geglättet und etwas oberhalb der Chopperkante aufeinander normalisiert worden, um Schwankungen der Laserleistung bzw. der Transmission der Atmosphäre auszuschalten. Der in der logarithmischen Auftragung näherungsweise lineare Verlauf der Differenz (der unterste Teil ist stark fehlerbehaftet und kann außer Betracht bleiben) kann an eine exponentielle Funktion angepaßt werden, wobei die beobachtete Proportionalität zwischen P^{SIN} und der maximalen Zählrate beachtet wurde:

$$P^{\text{SIN}} = \text{SIN} \times P_l^{max} \exp\left(-\frac{(z-z^{max})}{s}\right) ,$$
 (3.6)

wo z^{max} die Höhe des Signalmaximums P_l^{max} und SIN sowie s die zu ermittelnden Konstanten bedeuten. Als Mittelwert von s ergab sich $s = (50 \pm 10) km$ entsprechend einer Abklingzeit von 250 μsec ; die Vorfaktoren SIN sind in Tabelle 3.7 eingetragen. Es ergibt sich, daß für eine maximale Auslastung der Photomultiplier von 2,5 MHz (UV) bzw. 7,5 MHz (VIS) des signalinduzierte Rauschen für Aerosol- und Ozondialmessungen bis 50 km Höhe vernachlässigbar ist.

Die Grenzfrequenz, ab der die gemessene Zählrate nicht mehr eindeutig ist (Auflösung der Gl. 3.3 nach Gl. 3.2 nicht eindeutig bzw. Diskriminante negativ) liegt bei $1/(4 \times \tau)$ oder, je nach Kanal, zwischen 19,6 und 30,2 MHz. Es liegt nur an den störenden SIN-Effekten, daß die Detektoren nicht höher belastet werden können und deshalb der brauchbar auswertbare Höhenbereich (Chopperkantenhöhe bis Höhe wo $S/N \approx 10$) der Dektektoren auf etwa 15 bis 25 km begrenzt ist.

3.3.2. Berechnung der Depolarisation

Mit der Kenntnis der ersten beiden Komponenten des Stokes-Vektors \vec{P}^r läßt sich die Volumendepolarisation direkt berechnen. Die Depolarisation des Rückstreusignals

$$\delta^{r}(z_{i}) = \frac{P_{1}^{r}(z_{i}) - P_{2}^{r}(z_{i})}{P_{1}^{r}(z_{i}) + P_{2}^{r}(z_{i})}$$
(3.7)

setzt sich zusammen aus einem Anteil des emittierten Laserlichts

$$\delta^e = \frac{P_1^e - P_2^e}{P_1^e + P_2^e}$$

und einem durch die atmosphärischen Streuprozesse verursachten Anteil $\delta(z_i)$. Die lineare Polarisation des Nd:YAG-Pulses beträgt nach Herstellerangaben beim Verlassen des Laserkopfs etwa 99% [Continuum, 1993]; hieraus ergibt sich eine Depolarisation von $\delta^e = 0,005$.

Falls man einen idealen Detektor annimmt (kein Übersprechen), kann man $P_1^r(z_i)$ und $P_2^r(z_i)$ bis auf Normierungsfaktoren mit den (korrigierten) Zählraten Z^s und Z^p ausdrücken:

$$P_1^r = \frac{Z^{\parallel}}{C^{\parallel}} + \frac{Z^{\perp}}{C^{\perp}}$$
$$P_2^r = \frac{Z^{\parallel}}{C^{\parallel}} - \frac{Z^{\perp}}{C^{\perp}}$$

Hierbei sind die C zunächst noch unbekannte "Sensitivitätsfaktoren" in dem Ansatz Z = CP; sie hängen von den individuellen Quantenausbeuten der Photomultiplier, von vorgeschalteten Neutraldichtefiltern und von der Detektionselektronik ab. Es ergibt sich mit Gl. 3.7:

$$\delta^{r}(z_{i}) = \frac{C^{\parallel}}{C^{\perp}} \frac{Z^{\perp}}{Z^{\parallel}}$$
(3.8)

 $\delta(z_i)$ berechnet sich nun aus $\delta^r(z_i)$ und δ^e zu¹⁶

$$\delta(z_i) = \frac{\delta^r(z_i) - \delta^e}{1 - \delta^r(z_i) \, \delta^e} \,. \tag{3.9}$$

Das Problem reduziert sich auf die Bestimmung der relativen Empfindlichkeit C^{\parallel}/C^{\perp} . Hier bietet sich eine Anpassung an den aerosolfreien Teil des atmosphärischen Signals an (empirisch z > 26 km), denn hier ist die theoretische Depolarisation der Rayleighstreuung $\delta^{\text{Ray}} = 0,0144$ (vgl. Gl. 2.5). Zusammen mit der Laserdepolarisation wird das:

$$\delta_0^r = \frac{\delta^e + \delta^{\text{Ray}}}{1 + \delta^e \delta^{\text{Ray}}} \tag{3.10}$$

oder als Zahlenwert 0,0192.

 C^{\parallel}/C^{\perp} ergibt sich nun zu

$$\frac{C^{\perp}}{C^{\parallel}} = \left(\frac{\overline{Z^{\parallel}}}{Z^{\perp}} \,\delta_0^r\right)^{-1} \,. \tag{3.11}$$

Die horizontale Linie über dem Quotienten der Zählraten soll die Bildung eines (gewichteten) Mittels über den Fit-Höhenbereich andeuten.

Zuletzt werden die Signale noch nach Gl. 3.9 vom Einfluss der Laserdepolarisation befreit.

Berücksichtigung eines nichtidealen Detektors, experimentelle Bestimmung der Laserdepolarisation

Der Winterdetektor 1996/97 arbeitete effektiv mit nur einem polarisierenden Strahlteiler. Nach Herstellerangaben ist damit die (normalerweise) schwache Intensität P_{\perp} des querpolarisierten Kanals mit $\tau \approx 1...2\%$ der Intensität P_{\parallel} des Parallelkanals überlagert. Dies wird vor Berechnung der Volumendepolarisation mit einem simplen Algorithmus (siehe Anhang E.3) korrigiert, wobei *a* priori $\tau = 0.010$ und – konservativ – für die Fehlerrechnung $\mathcal{E}(\tau)/\tau = 50\%$ angenommen wird. Es wurde auch versucht, die reale Depolarisation des Detektors (d.h. die Müllermatrix) experimentell zu bestimmen; im Prinzip ist dies möglich, wenn Testreihen mit einer vorgeschalteten Halbwellenplatte durchgeführt werden. Leider war diese extrem aufwendige Messung infolge der zeitlichen Variationen der Laserintensität (und der Transmission der Atmosphäre) nicht genau genug, um die Matrixelemente mit hinreichend kleiner Unsicherheit zu bestimmen. Eine andere Methode zur Bestimmung der Korrektur wird von Baumgarten [1997] beschrieben: an nichtdepolarisierenden Aerosolen kann der Einfluß der Laserdepolarisation plus instrumentelles Übersprechen an einer linearen Abhängigkeit des querpolarisierten Rückstreuverhältnisses

¹⁶Herleitung der Depolarisationsgleichungen siehe [Beyerle, 1994, Anhang].

von R_{\parallel} erkannt und iterativ bestimmt werden. Dies wurde für beide Meßwinter durchgeführt und ergab *a* posteriori-Korrekturen für die polarisationsabhängigen Meßgrößen. Genaueres siehe Anhang E.3.

3.3.3. Berechnung der Rückstreukoeffizienten nach der Klett-Methode

Nach der Lidar-Gleichung 2.10 ist das Meßsignal $Z^{s}(\boldsymbol{z}_{i})$ von vier physikalischen Größen abhängig,

- dem Rayleigh-Rückstreukoeffizienten $\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$,
- dem Molekülabsorptionskoeffizienten $\alpha_{Abs}^{Mol}(z_i, \lambda)$,
- dem Aerosolrückstreukoeffizienten $\beta^{Aer}(z_i, \lambda)$ und
- dem Aerosolextinktionskoeffizienten $\alpha^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$.

Der Rayleigh-Streukoeffizient $\alpha_{\text{Str}}^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$ ist keine unabhängige Größe, da er nach Gl. 2.4 proportional zu $\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$ ist.

Drei unbekannten Größen steht nun eine Meßgröße gegenüber. Daher kann die Lidar-Gleichung nur unter Zuhilfenahme von zusätzlichen Informationen gelöst werden.

• Mit einem Temperaturprofil $T(z_i)$ und Druckprofil $p(z_i)$ kann der Rayleigh-Rückstreukoeffizient $\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$ berechnet werden. Unter Verwendung des idealen Gasgesetzes¹⁷ gilt

$$\beta^{\mathrm{Ray}}(z_i, \lambda) = \frac{p(z_i)}{kT(z_i)} \frac{d\sigma_{\mathrm{Rck}}^{\mathrm{Ray}}}{d\Omega}(\lambda)$$

Auf die Ballonsondierungen des Temperatur- und Druckprofils wird in Abschnitt 3.5.1 näher eingegangen.

• Absorption durch Spurengase ist zu berücksichtigen, wenn die Emissions- oder Detektionswellenlänge auf Absorptionslinien oder -banden atmosphärischer Gase liegen. Zur Korrektur ist ein Höhenprofil des betreffenden Spurengases erforderlich. Für die beim Aerosol-Lidar verwendeten Wellenlängen ist nur das Chappuis-Absorptionsband des Spurengases Ozon von Bedeutung, vgl. Abschnitt 2.4.4.

Ich verwende hier die absoluten Querschnitte der GOME-Arbeitsgruppe [Burrows *et al.*, 1997]; eine Übersicht gibt Abb. 3.15 für Wellenlängen vom UV bis ins IR bei Temperaturen von 202 bis 293 K. Einen signifikanten Einfluß hat die Ozonabsorption nur bei der Wellenlänge 532 nm; der Absorptionsquerschnitt

¹⁷Die Abweichungen zum realen Gasgemisch "Luft" sind stets kleiner als 0,1%.



Abbildung 3.15.: In dieser Arbeit verwendeter absoluter Absorptionsquerschnitt von Ozon nach Burrows et al. [1997] bei verschiedenen Temperaturen.

beträgt hier $\sigma(O_3) = (2, 83 \pm 0, 14) 10^{-21} m^2$, die Temperaturabhängigkeit bei dieser Wellenlänge ist vernachlässigbar.

Während des Polarwinters werden an der Koldewey-Station mehrmals wöchentlich neben der Bestimmung der meteorologischen Profile Ozonsondierungen durchgeführt [Neuber *et al.*, 1992*b*]. Diese Daten werden für die Absorptionskorrektur in dieser Arbeit verwendet.

• Wie im folgenden gezeigt werden wird, benötigt man für die Berechnung der Rückstreukoeffizienten die Kenntnis des Aerosol-Streuverhältnisses $L^{\text{Aer}}(z_i, \lambda) = \alpha^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)/\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$. L^{Aer} ist eine Funktion der Aerosolzusammensetzung, des Partikelgrößenspektrums und der Form der Teilchen. Sowohl $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$ wie auch $\alpha^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$ sollen jedoch erst als ein Ergebnis der Lidar-Datenauswertung bestimmt werden und sind daher zunächst nicht bekannt.

 $L^{\rm Aer}$ kann jedoch anhand von $in\mathchar`situ$ bestimmten Partikelgrößenverteilungen berechnet werden.

Solche Messungen an verschiedenen PSCs sind in die Modellrechnungen von [Gobbi, 1995] eingeflossen und führen auf die in Tab. 3.8 aufgeführten höhenkonstanten Werte. Um den Ergebnissen von Raman-Lidar-Untersuchungen Rechnung zu tragen, die eine deutliche Höhenabhängigkeit von L^{Aer} zeigen [Ansmann *et al.*, 1993], wird ein relativer Fehler $\mathcal{E}(L^{Aer})/L^{Aer}$ von 50%

Wellenlänge	Mie-Streuverhältnis		
λ	$L^{\operatorname{Aer}} = \alpha^{\operatorname{Aer}} / \beta^{\operatorname{Aer}}$		
308 nm	25 sr		
353 nm	30 sr		
532 nm	40 sr		
(1064 nm)	(60 sr)		

Tabelle 3.8.: Verwendete Aerosol-Streuverhältnisse für die elastischen Lidar-Wellenlängen. In dieser Arbeit wird $L^{Aer}(z_i)$ durch eine höhenunabhängige Konstante approximiert. Zahlenwerte nach [Beyerle, 1994]. Für alle Werte wird ein relativer Fehler von 50% angesetzt.

angesetzt. Diese Vorgehensweise wird durch die geringe Abhängigkeit des Partikelrückstreukoeffizienten $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$ von L^{Aer} gerechtfertigt (vgl. Abschnitt 3.3.5).

• Der Rückstreukoeffizient in einer Referenzhöhe z_R muß bekannt sein. Die Referenzhöhe z_R wird in eine Atmosphärenschicht gelegt, in der Rayleigh-Streuung der dominierende Streuprozeß ist und in der daher $\beta(z_R)$ durch $\beta^{\text{Ray}}(z_R)$ ersetzt werden kann.

Mit diesen zusätzlichen Informationen kann $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$ anhand der Lidargleichung 2.10 berechnet werden. Der Vollständigkeit halber zitiere ich hier die Herleitung der relevanten Formeln¹⁸ (die so auch in den Auswerteprogrammen implementiert sind) nach [Beyerle, 1994]:

Die Lidar-Gleichung 2.10 läßt sich als Differentialgleichung schreiben [Klett, 1981, 1985],

$$\frac{dS(z_i)}{dz} = \frac{d}{dz} \ln \left(\beta^{\text{Ray}}(z_i) + \beta^{\text{Aer}}(z_i) \right) -2 \left(\alpha^{\text{Ray}}_{\text{Str}}(z_i) + \alpha^{\text{Mol}}_{\text{Abs}}(z_i) + \alpha^{\text{Aer}}(z_i) \right), \quad (3.12)$$

wobei

$$S(z_i) = \ln(z_i^2 P_1^r(z_i))$$

den Logarithmus des entfernungskorrigierten Signals bezeichnet. Gleichung 3.12 hat die formale Struktur einer Bernoulli-Differentialgleichung. Ihre Lösung lautet [Bronstein und Semendjajew, 1981]

$$\beta^{\text{Aer}}(z_i) = \frac{\mathcal{Z}(z_i)}{C + 2\Delta z \sum_{j=i}^{N} L^{\text{Aer}}(z_j) \mathcal{Z}(z_j)} - \beta^{\text{Ray}}(z_i)$$
(3.13)

¹⁸Im Sinne der Übersichtlichkeit verzichte ich im folgenden auf die explizite Darstellung der Wellenlängenabhängigkeit von Variablen. mit der Integrationskonstanten C, die sich aus der Anfangsbedingung $\beta(z_R) = \beta^{\text{Ray}}(z_R)$ ergibt, und dem Zähler

$$\mathcal{Z}(z_i) = \exp\left(S(z_i) - S(z_N) - 2\Delta z \sum_{j=i}^{N} \left[\left(L^{\operatorname{Ray}} - L^{\operatorname{Aer}}(z_j) \right) \beta^{\operatorname{Ray}}(z_j) + \alpha_{\operatorname{Abs}}^{\operatorname{Mol}}(z_j) \right] \right) \,.$$

In der Formulierung von Gl. 3.13 ist berücksichtigt, daß $S(z_i)$ nur auf diskreten Höhenniveaus z_i vorliegt; Integrationen über z sind daher durch Summationen ersetzt worden. [Klett, 1981] wies als erster darauf hin, daß die Stabilität der Lösung (Gl. 3.13) unempfindlicher gegenüber Meßfehlern wird, wenn als Referenzhöhe z_R nicht die untere Grenzhöhe z_M , sondern die obere Grenze z_N benutzt wird. Die Integrationskonstante Ckönnte man direkt zu

$$C^{-1} = \beta^{\operatorname{Ray}}(z_N) + \beta^{\operatorname{Aer}}(z_N) \approx \beta^{\operatorname{Ray}}(z_N)$$
(3.14)

bestimmen. Einsetzen eines fehlerhaften Werts von $\beta^{\text{Ray}}(z_N)$ in Gl. 3.13 führt zu einer Verschiebung des gesamten Profils $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$. Der Fehler von $\beta^{\text{Ray}}(z_i)$ nimmt jedoch mit Höhe exponentiell zu. Ich bestimme daher die Integrationskonstante C mittels einer Anpassung von $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$ an die Nullfunktion im Höhenbereich $[z_K, z_N]$, d.h. durch Minimierung von

$$\chi^{2}(C) = \sum_{i=K}^{N} \left(\frac{\beta^{\operatorname{Ray}}(z_{i}) - \mathcal{Z}(z_{i}) / \left(C + 2\Delta z \sum_{j=i}^{N} L^{\operatorname{Aer}}(z_{j}) \mathcal{Z}(z_{j})\right)}{\mathcal{E}\left(\beta^{\operatorname{Ray}}(z_{i})\right)} \right)^{2}$$

Der Höhenbereich $[z_K, z_N]$, in dem die Minimierung erfolgt, ist so gewählt, daß er vollständig oberhalb der Aerosolschichten liegt.

Für die Auswertung der Daten des Winters 1995/96 und 1996/97 verwende ich $z_K = 26,1$ km; z_N ist die größte Höhe mit noch auswertbarem Signal. In Abb. 3.16 wird als Beispiel das Ergebnis der Auswertung der in Abb. 3.8 dargestellten Rohdatenprofile gezeigt. Die Profile stellen allerdings nicht die Rückstreukoeffizienten selbst, sondern das Rückstreuverhältnis R (vgl. Gl. 2.18) dar. Man erkennt, daß die PSC in 20 bis 25 km Höhe eine Partikelrückstreuung bewirkt, die fast viermal so stark ist wie die Rayleighrückstreuung. Weiterhin ähnelt sich die Struktur der Rückstreuverhältnisse bei 353u und 532p, im Gegensatz zum querpolarisierten Kanal.

3.3.4. Die Problematik der räumlichen und zeitlichen Mittelung

Bei allen Lidarmessungen müssen infolge der sehr geringen Intensität des Rückstreusignals die Einzelprofile zeitlich und ggf. auch räumlich (in der Höhe) gemittelt, d.h. aufintegriert werden; nur so läßt sich



Abbildung 3.16.: Rückstreuverhältnisse der in Abb. 3.11 gezeigten Profile. Die drei Kurven links sind die absoluten Fehler (Standardabweichung). Die unterbrochene vertikale Linie bei R=1 markiert den Wert des Rückstreuverhältnisses für die aerosolfreie Atmosphäre.

- der statistische Fehler auf akzeptable Werte drücken und
- überhaupt im Fitbereich der Klettinversion (s. Gl. 3.14) bzw. im Bereich der Depolarisationsnormierung ein auswertbares Signal finden.

Die Größenordnung der notwendigen Integrationsintervalle hängt u.a. von der Laserleistung, der Teleskopfläche und der Empfindlichkeit der Detektoren ab¹⁹. Diese räumliche und zeitliche Mittelung bedeutet aber auch, daß evt. geophysikalische Variationen im Integrationsbereich "weggemittelt" werden, d.h. daß Information verloren geht; der Experimentator steht vor einem nicht eindeutig lösbaren Dilemma. In dieser Arbeit wird standardmäßig eine zeitliche Integration von 60 min ("Stundenmittel") und eine räumliche Mittelung von 200 m verwendet. Die Erfahrung zeigt,

¹⁹Bei dem hier verwendeten Aufbau vergrößern auch die in den elastischen Kanälen fast immer notwendigen Neutralfilter den statistischen relativen Fehler!

daß damit die o.a. Bedingungen stets erfüllt werden können und daß auf der anderen Seite die Variation der PSC-Strukturen von Stunde zu Stunde i.a. gering sind; sich schnell verändernde Profile wurden für die Aussagen in Kapitel 4 nicht herangezogen. Auch im Hinblick auf die Aufgabenstellung dieser Arbeit ist der Ansatz zu eher größeren Mittelungsintervallen gerechtfertigt; beim Vergleich von PSC-Daten mit Radiosondentemperaturen und erst recht mit Trajektorienrechnungen auf synoptischen Längen- und Zeitskalen und bei der Masse des Beobachtungsmaterials sind kleinräumige, kurzzeitige und selten auftretende Strukturen von untergeordneter Bedeutung.

3.3.5. Fehlerberechnung

Der Fehler von $\beta^{\text{Aer}}(z_i) = \beta(z_i) - \beta^{\text{Ray}}(z_i)$ und der Fehler von $\delta(z_i)$ sind nach den üblichen Gauß'schen Fehlerfortpflanzungsformeln berechnet worden [Bevington, 1969]:

$$\left(\mathcal{E}(\beta_i^{\text{Aer}}) \right)^2 = \sum_{j=M}^N \left(\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial P_j^r} \mathcal{E}(P_j^r) \right)^2 + \sum_{j=M}^N \left(\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial \beta_j^{\text{Ray}}} \mathcal{E}(\beta_j^{\text{Ray}}) \right)^2$$
$$+ \sum_{j=M}^N \left(\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial L_j} \mathcal{E}(L_j) \right)^2 + \sum_{j=M}^N \left(\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial \alpha_{\text{Abs}j}^{\text{Mol}}} \mathcal{E}(\alpha_{\text{Abs}j}^{\text{Mol}}) \right)^2 .$$
(3.15)

Hierbei verzichte ich der Übersichtlichkeit wegen auf die Angabe der expliziten Höhenabhängigkeit und füge den Höhenindex direkt an die höhenabhängige Variable an; statt $X(z_i)$ schreibe ich also X_i . Der Index j läuft über den auswertbaren Höhenbereich (Indizes $[M \dots N]$). Mit einer analogen Formel werden die Fehler der Rückstreukoeffizienten $\mathcal{E}(R_i)$ berechnet. Eine explizite Darstellung der Differentialquotienten $\partial \beta_i^{\text{Aer}} / \partial X_j$ findet sich in [Beyerle, 1994]. In Abb. 3.17(a) ist der relative Fehler $\mathcal{E}(\beta_i^{\text{Aer}})/\beta_i^{\text{Aer}}$ zusammen mit den vier Einzelbeiträgen aus Gl. 3.15 für ein Profil des Partikelrückstreukoeffizienten dargestellt. Es handelt sich hierbei um die Auswertung des in Abb. 3.8 gezeigten Rohdatenprofils vom 22. Dezember 1995, 16:00 Uhr. Im Maximum der Aerosolwolke in etwa 22 km Höhe geht der Gesamtfehler auf etwa 10% zurück. Unterhalb und oberhalb der Aerosolschicht nimmt der relative Fehler deutlich größere Werte an, da dort $\beta^{Aer}(z_i)$ verschwindet. Im gesamten Höhenbereich tragen zu $\mathcal{E}(\beta^{\text{Aer}})/\beta^{\text{Aer}}$ wesentlich nur der Fehler des Rohdatensignals und der Fehler des Rayleigh-Rückstreuprofils bei. Die Unsicherheiten in der Bestimmung von L^{Aer} und $\alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}$ wirken sich nicht signifikant auf das Ergebnis $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$ aus. Die resultierenden absoluten Fehler im Rückstreukoeffizienten zeigt Abb. 3.17(b), während Abb. 3.17(c) den relativen und absoluten Fehler der Volumendepolarisation darstellt.





Abbildung 3.17.: Fehlerbeiträge in den mit dem Klett-Verfahren berechneten Größen β^{Aer} , R und δ (Profil vom 22.12.1995, 16-17 Uhr). In 3.17(a) und 3.17(b) sind bezeichnen die Kurven mit dem Index L den Beitrag des Fehlers im Lidarverhältnis, β den Fehler in β^{Ray} , α den Fehler in α^{Mol}_{Abs} und P den Fehler im Signal.

3.3.6. Validation

Um den Auswertealgorithmus zu testen, wurde im Frühjahr 1996 gemeinsam mit der Lidar-Gruppe der Universität Nagoya²⁰, ein kleines Validationsexperiment unternommen [*Shibata, Takashi*, priv. Mitt.]; es wurden nur (korrigierte) Signale, Luftund Ozondichte ausgetauscht und daraus von beiden Gruppen Rückstreuprofile berechnet. Die Unterschiede unabhängig voneinander berechneter R-Werte überstieg nirgendwo 5×10^{-3} bei einem maximalen Rückstreukoeffizienten von 2,5.

²⁰Solar Terrestrial Environment Laboratory, Nagoya, Japan

3.4. Abgeleitete Größen

In den bisherigen Abschnitten ist die Auswertung der primären Meßgrößen, $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$ und $\delta(z_i)$, dargestellt worden. Die Berechnung der sekundären Meßgrößen ist Inhalt der folgenden Abschnitte.

3.4.1. Aerosoldepolarisation

Die Depolarisation $\delta(z_i)$ besteht ihrerseits aus einer Komponente der Rayleigh-Streuung δ^{Ray} und einer Komponente der Partikelstreuung $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$. Sind die Rückstreuverhältnisse für die einzelnen Polarisationskomponenten bekannt, so ist einfach

$$\delta^{\text{Aer}}(z_i) = \frac{I_{\perp}^{\text{Aer}}}{I_{\parallel}^{\text{Her}}} = \frac{(R_{\perp} - 1)}{(R_{\parallel} - 1)} \frac{I_{\perp}^{\text{Ray}}}{I_{\parallel}^{\text{Ray}}} = \frac{R_{\perp} - 1}{R_{\parallel} - 1} \delta^{\text{Ray}} \,. \tag{3.16}$$

In der Regel bestimmen wir jedoch nur das Gesamt-R und die Volumendepolarisation; mit dem Gesamtrückstreuverhältnis $R(z_i)$ (Gl. 2.18) und der Rayleigh-Depolarisation δ^{Ray} berechnet sich dann die Partikeldepolarisation zu

$$\delta^{\text{Aer}}(z_i) = \frac{(1+\delta^{\text{Ray}})\,\delta(z_i)\,R(z_i) - (1+\delta(z_i))\,\delta^{\text{Ray}}}{(1+\delta^{\text{Ray}})\,R(z_i) - (1+\delta(z_i))} \,. \tag{3.17}$$

Die Herleitung der Gl. 3.17 findet sich in [Beyerle, 1994, Anhang].

Abbildung 3.18.: Vergleich zwischen Volumen- (linkes Bild, (a)) und Aerosoldepolarisation (rechtes Bild, (b)) für das 532 nm-Profil vom 22.12.95, 16-17 Uhr (UT). Gestrichelt die jeweiligen absoluten Fehler.



Die Berechnung von $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ ist für einen geringen Aerosolgehalt ($R \approx 1$ und $\delta \approx \delta^{\text{Ray}}$) problematisch, da nach Gl. 3.17 der Fehler $\mathcal{E}(\delta^{\text{Aer}})$ beliebig groß wird. Man muß dann damit leben, daß die Aerosoldepolarisation experimentell nicht immer

zugänglich ist. Abb. 3.18 demonstriert dies an dem Profil vom 22.12.95. Die durchgezogene Kurve in (a) kennzeichnet den Verlauf der Volumendepolarisation $\delta(z_i)$, die unterbrochene Kurve den absoluten Fehler. Analog sind in (b) die Partikeldepolarisation $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ und ihr absoluter Fehler dargestellt. Für Höhen über 25 km wird $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ nicht dargestellt, da die relativen Fehler von $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ in diesem Höhenbereich beliebig große Werte annehmen. Die vertikale, unterbrochene Linie markiert in beiden Bildern den Wert der molekularen Depolarisation δ^{Ray} .

Für eine verschwindende Aerosoldepolarisation $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ folgt aus Gl. 3.17, daß die Volumendepolarisation mit ansteigendem Rückstreuverhältnis abnimmt,

$$\delta(z_i) = \frac{\delta^{\text{Ray}}}{(1+\delta^{\text{Ray}}) R(z_i) - \delta^{\text{Ray}}} .$$
(3.18)

also unter die molekulare Depolarisation von ca. 1.4% fällt.

Falls die polarisierten Komponenten der Rückstreukoeffizienten bzw. der Rückstreuverhältnisse berechnet werden, kann auch daraus die Aerosoldepolarisation berechnet werden. Es ist einfach

$$\delta^{\text{Aer}}(z_i) = \beta_{\perp}^{\text{Aer}} / \beta_{\parallel}^{\text{Aer}} = \frac{\mathbf{R}_{\perp} - 1}{\mathbf{R}_{\parallel} - 1} \,\delta^{\text{Ray}} \tag{3.19}$$

3.4.2. Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreuung

Ursprünglich war ein Ziel dieser Arbeit, die Größenverteilungen der beobachteten PSC-Aerosole durch die Inversion der Rückstreudaten zu bestimmen. Dies gelingt jedoch nur, wenn Rückstreukoeffizienten bei mindestens drei [Beyerle, 1994], besser vier Wellenlängen vorliegen; hier waren die Wellenlängen (353,532,779,1064) nm vorgesehen. Leider konnte dieses Vorhaben aus technischen Gründen nicht umgesetzt werden, so daß wir hier vor der Aufgabe stehen, aus zwei elastischen Rückstreuwellenlängen (353,532) nm zumindest eine qualitative Abschätzung der Partikelgröße zu bestimmen. Hierzu folge ich [Steinbrecht, 1994] und definiere einen Wellenlängen-exponenten η der Rückstreukoeffizienten, allgemein:

$$\beta^{\text{Aer}}(\lambda_2) = \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)^{\eta} \beta^{\text{Aer}}(\lambda_1) \ bzw. \tag{3.20}$$

$$\eta(\lambda_1, \lambda_2) = \frac{\ln R^*(\lambda_1) / R^*(\lambda_2)}{\ln (\lambda_1 / \lambda_2)} - 4,08$$
(3.21)

mit $\lambda_2 > \lambda_1$ und R^* als Abkürzung für R-1 ("Aerosol backscatter ratio"). Die Konstante $-4,08 = \eta^{Ray}$ ist der effektive Wellenlängenexponent der Rayleighstreuung, vgl. Abschnitt 2.2.1.

Die Größe η ist hängt mit Browells (Tabelle 1.2) α einfach durch $\eta = -\alpha$ zusammen. Ich bevorzuge η , weil damit keine Verwechslung mit dem schon lange in der Literatur verwendeten Ångström-Koeffizienten α zu befürchten ist (dieser beschreibt die Wellenlängenabhänigkeit der Extinktion). Oft wird auch ein "color ratio" bzw. "color index" definiert (vgl. [Stebel, 1998]) als cr = $R^*(\lambda_2)/R^*(\lambda_1)$. Genauer: Aus den Aerosol-Rückstreukoeffizienten bei zwei Wellenlängen berechnet sich das Aerosol-Farbverhältnis $C^{\text{Aer}}(\lambda_1, \lambda_2, z)$ nach Gleichung 3.22 zu:

$$C^{Aer}(\lambda_1, \lambda_2, z) = \frac{R(\lambda_2, z) - 1}{R(\lambda_1, z) - 1} = \frac{\beta^{Aer}(\lambda_2, z)}{\beta^{Aer}(\lambda_1, z)} \frac{\beta^{Ray}(\lambda_1, z)}{\beta^{Ray}(\lambda_2, z)} .$$
(3.22)

Hierbei ist z

z	die Höhe,
$\lambda_{i=1,2}$	die i–te Wellenlänge, mit $\lambda_2 > \lambda_1$,
$R(\lambda_i, z)$	das Rückstreuverhältnis,
$\beta^{\operatorname{Aer}}(\lambda_i, z)$	der Aerosol–Rückstreukoeffizient und
$\beta^{\text{Aer}}(\lambda_i, z)$	der Ravleigh–Rückstreukoeffizient.

Farbverhältnis und Wellenlängenexponent können einfach ineinander umgerechnet werden:

$$\eta = \eta^{\text{Ray}} - \frac{\log(C^{\text{Aer}})}{\log(\lambda_1/\lambda_2)}$$

$$C^{\text{Aer}} = 10^{(\eta^{\text{Ray}} - \eta)\log(\lambda_1/\lambda_2)}$$
(3.23)

Es zeigt sich nun, daß $\eta(\lambda_1, \lambda_2, z)$ im Gegensatz zu $C^{\text{Aer}}(\lambda_1, \lambda_2, z)$ von der Wahl des Wellenlängenpaares (λ_1, λ_2) in erster Näherung unabhängig ist; bei sehr kleinen Modenradien \bar{r} geht η gegen -4 (Rayleighstreuung) und bei sehr großen Modenradien gegen 0 (Bereich der geometrischen Optik). Steinbrecht [1994] hat $\eta(353, 532)$ für eine große Zahl von gemessenen stratosphärischen Größenverteilungen und für zwei typische Brechungsindizes berechnet (Mie-Rechnung); das Ergebnis läßt sich wie folgt zusammenfassen:

- Für $0,01\mu m \leq \bar{r} \leq 0,25\mu m$ wird ein $\eta \approx -1,7\pm 0,3$ erwartet.
- Für größere Radien, bis etwa $\bar{r} = 1 \mu m$, steigt η auf Werte von ca. (-0,3...+0,6).

Ein $\eta(353, 532) > -1,5$ läßt also auf einen signifikanten Anteil von Partikeln mit $\bar{r} \approx 0,5\mu m$ schließen. Ähnlich wie bei der Aerosoldepolarisation tritt auch bei der Berechnung des Wellenlängenexponenten das Problem auf, daß der Fehler für R \rightarrow 1 über alle Grenzen wächst; als Anhaltspunkt mag dienen, daß normalerweise für $R(353nm) \geq 1,5$ die Unsicherheit von η akzeptabel ist.

3.4.3. Bestimmung von Größenverteilungen aus optischen Daten

In diesem Kapitel möchte ich kurz auf die Konzepte zur Berechnung von Größenverteilungen aus Lidardaten eingehen. Das formale Problem bei der Berechnung von Partikelgrößenspektren besteht darin,

$$\beta^{\text{Aer}}(\lambda, m) = \int_{0}^{\infty} dr \, \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}}{d\Omega}(r, \lambda, m) \, \frac{dN^{A}}{dr}(r) \quad bzw.$$
(3.24)

$$\alpha^{Aer}(\lambda,m) = \int_{0}^{\infty} dr \,\sigma^{Aer}_{Ext}(r,\lambda,m) \,\frac{dN^{A}}{dr}(r) , \qquad (3.25)$$

nach $dN^A/dr(r)$ aufzulösen. Die Größenverteilung $dN^A/dr(r)$ ist die Anzahl der Partikel im Größenintervall [r, r + dr]. Gl. 3.24 ist eine Fredholm-Integralgleichung erster Art mit dem Kern $d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}/d\Omega(r, \lambda, m)$. Die entsprechende Gleichung für $\alpha^{\text{Aer}}(\lambda)$, Gl. 3.25, liefert nur dann zusätzliche Information, wenn $\alpha^{\text{Aer}}(\lambda)$ aus Ramanlidarprofilen bestimmt wird, da $\alpha^{Aer}(\lambda)$ sonst in der Klett-Auswertung mit Hilfe von $L^{\text{Aer}}(z_i,\lambda) = \alpha^{\text{Aer}}(z_i,\lambda)/\beta^{\text{Aer}}(z_i,\lambda)$ aus $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$ berechnet wird und daher keine unabhängige Meßgröße ist. Um Gl. 3.24 invertieren zu können, ist ein Aerosolmodell notwendig; z.B. kann man Mie-Streuung annehmen und die physikalisch möglichen Werte des Brechungsindex einschränken. Weiterhin wird oft die Annahme gemacht, daß sich $dN^A/dr(r)$ in der Form einer monomodalen Lognormalverteilung darstellen läßt, deren Parameter zu bestimmen sind. Dies führt auf das z.B. von Beyerle [1994] oder Stein [1994] verwendete Verfahren, das [Wedekind, 1997] auch zur Ableitung von Brechungsindizes verwendet. Allerdings ist die Annahme einer monomodalen Lognormalverteilung für PSCs wahrscheinlich nicht in allen Fällen gerechtfertigt. Zwar kann man prinzipiell jede Größenverteilung durch eine Summe von Lognormalverteilungen darstellen, das oben angedeutete Verfahren der Anpassung deren Parameter an die Rückstreudaten scheitert dann aber sehr bald an der notwendigen Zahl der Lidarwellenlängen (= Observablen) und an starken Korrelationen der Parameter untereinander. Es ist daher wünschenswert, einen prinzipiell anderen Weg einzuschlagen und die Gl. 3.24 direkt, ohne Vorgabe der funktionellen Form von $dN^A/dr(r)$, zu invertieren. Mathematisch stellt jede Fredholm-Integralgleichung erster Art ein "schlecht gestelltes Problem" dar, d.h. es gibt im allgemeinen keine eindeutige Lösung und die Lösung hängt diskontinuierlich von den Daten $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$ (und ggf. den $\alpha^{\text{Aer}}(\lambda)$) ab. Ein Ausweg aus diesem Dilemma ist es, nicht $dN^A/dr(r) \equiv n(r)$, sondern eine geglättete Größenverteilung $n_{\gamma}(r)$ zu bestimmen; das neue Problem ist "gut gestellt", hängt von dem Parameter γ ab und ist bei verschwindenden Meßfehlern und $\gamma \rightarrow 0$ mit dem Originalproblem konsistent. In Zusammenarbeit mit der Universität Potsdam (Institut für Mathematik) wird gegenwärtig ein solcher Algorithmus entwickelt [Böckmann et al., 1998].

3.4.4. Integralgrößen: Oberflächen- und Volumendichten der Aerosole

Zur Modellierung der Ozonchemie in der arktischen Stratosphäre ist neben Zusammensetzung und Phase der PSC-Teilchen vor allem die Oberflächendichte A und die Volumendichte V wichtig. Da die Ableitung von Größenverteilungen durch Inversion der Lidardaten mit nur 2 Wellenlängen nicht möglich ist, mußte auf ein statistisches Verfahren [Gobbi, 1995] für die Wellenlänge 532 nm zurückgegriffen werden. Die Methode gestattet die Schätzung von A und V aus dem Aerosolrückstreuquerschnitt β^{Aer} :

$$Y = a_{0Y} + a_{1Y}X + a_{2Y}X^2$$

wo $X = \lg \beta^{\operatorname{Aer}}$ und Y die betrachtete Integralgröße bedeuten. Die Koeffizienten a_{jY} , j=(0...2), sind von Gobbi [1995] durch Anpassung an einige tausend Monte Carlogenerierte Aerosolverteilungen bestimmt worden; den Bandbreiten der Parameter dieser Aerosolmodelle liegen Messungen zugrunde, alle Teilchen werden als sphärisch angenommen. Varianten der Parameter gelten für spezielle PSC's, z.B. Pinatubo-Aerosole, Hintergrundaerosol, STS und (sphärisch angenommes) NAT. Der typische Modellfehler bei $\beta^{\operatorname{Aer}} = 10^{-7}m^{-1}sr^{-1}$ ist $\mathcal{E}(S) = 30...50\%$ (am kleinsten in starken PSCs) bzw. $\mathcal{E}(V) = 15...50\%$ (am größten in starken PSCs).

3.4.5. Sonstige Größen

In den folgenden Abschnitten möchte ich auf die Auswertung der Ramanprofile, die Ableitung von Ozonprofilen aus Lidardaten und auf die Berechnung von Temperaturprofilen eingehen. Weil diese nicht direkt Thema der vorliegenden Arbeit sind bzw. nicht zur Auswertung herangezogen wurden²¹, möchte ich die genannten Themen nur kurz anreißen und einige Beispiele zeigen.

Berechnung von Extinktionen aus den Ramansignalen

Sind der Rayleigh-Rückstreukoeffizient β^{Ray} , die Ozon-Absorption σ_{Abs} und die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosol-Extinktion $\alpha^{\text{Ray}}(\lambda) \propto \lambda^{-k}$ bekannt (vgl. Kapitel 2), kann die Ramanlidargleichung 2.19 nach dem Aerosol-Extinktionskoeffizienten $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$ aufgelöst werden [Ansmann *et al.*, 1992; Wandiger *et al.*, 1995]:

$$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z,\lambda_0) = \frac{\frac{d}{dz} \left[\ln \left(\frac{N(z)}{z^2 P(z,\lambda_0,\lambda_R)} \right) \right] - \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Ray}}(z,\lambda_0) - \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Ray}}(z,\lambda_R)}{1 + \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_R} \right)^k} .$$
(3.26)

Hierbei ist N(z) die Stickstoffdichte (= 0,7809× Luftdichte) und P(z, λ_0 , λ_R) das Ramansignal, λ_0 die emittierte und λ_R die zugehörige Stickstofframanwellenlänge. Der Wellenlängenexponent k ist für den Extinktionskoeffizienten die analoge Größe²² zu $-\eta$ und wird oft *a priori* gleich 1 gesetzt. Der Fehler durch ein falsches *k* ist normalerweise klein; ist zum Beispiel der Fehler in k ±2 (was schon eine sehr ungünstige

²¹Extinktionsprofile aus den Ramansignalen wären für diese Arbeit interessant gewesen; die niedrige Intensität machte leider eine brauchbare Auswertung zunichte.

²²k wird manchmal auch Ångströmkoeffizient genannt.

Schätzung ist), so wird der systematische Fehler in α ca. 8% bei 300 nm und 20% bei 800 nm [von der Gathen, 1995].

Die Schwierigkeit der Ramanauswertung nach Gl. 3.26 liegt in der notwendigen Glättung des Differentialquotienten

$$\frac{d}{dz} \left[ln \left(\frac{N(z)}{z^2 P(z, \lambda_0, \lambda_R)} \right) \right]$$

Hier wird folgender Glättungsalgorithmus benutzt:

- Definiere Fenster der Breite W, zentriert in der Höhe z_i .
- $W = \frac{\text{scf}}{\Delta z} \exp(z_i/6 \text{ km})$, d.h. die Fensterbreite wächst exponentiell mit der Höhe entsprechend der exponentiellen Zunahme des Quadrates des relativen Fehlers des Signals; die 1/e-Länge ist fest auf 6 km gesetzt. Der Skalenfaktor scf muß vom Signal-zu-Rausch-Verhältnis des Signals (hier: gemessen in 20 km Höhe = SN20) abhängen, *viz.*:
- $scf = const. (1/SN20)^2$.
- Im Fenster x=(-W:1:W) wird nun y = Y(x + i) mit $Y(j) = N(z_j)/(z_j^2 P(z_j, \lambda_0, \lambda_R))$ an eine Gerade y = Ax + B angepaßt (Methode der kleinsten Quadrate mit Gewichtung).
- Dann ist für die Höhe z_i :

$$\frac{d}{dz} \left[ln \left(\frac{N(z_i)}{z_i^2 P(z_i, \lambda_0, \lambda_R)} \right) \right] = B/A/\Delta z$$

• Der Fehler der Ableitung wird aus den Varianzen von A und B sowie der Kovarianz Cov(A, B) bestimmt [Kohlrausch, 1968].

Bild 3.19 zeigt beispielhaft den nach obigem Verfahren ermittelten Extinktionskoeffizienten für das Wellenlängenpaar (532,607) nm. Die an diesem Tag beobachtete PSC hatte ein maximales Rückstreuverhältnis von über 4.

Die Genauigkeit der Ramanauswertung ist, wie die Abbildung zeigt, trotz starker Glättung nur mäßig. Eine längere Integrationszeit ist andererseits wegen der hohen zeitlichen Variabilität der PSCs wenig sinnvoll. Das Problem liegt in der geringen Intensität der Ramansignale; die Rückstreuquerschnitte sind um etwa den Faktor 1000 kleiner als die Rayleighquerschnitte! Damit ist die Ermittlung der *Ableitung* des Signals sehr schwierig. – Die realen Zählraten sind noch kleiner als dieses theoretische Verhältnis erwarten läßt; deshalb wurden die Ramandaten für die Auswertung im Rahmen dieser Arbeit nicht herangezogen.



Abbildung 3.19.: Auswertung des 607 nm-Ramankanals am 6.1.96, 12:05 bis 13:00 Uhr. Aufgetragen ist das Signal, der Extinktionskoeffizient nach der Ramanauswertung und der nach Klett aus β^{Aer} berechnete Aerosol-Extinktionskoeffizient. Unterbrochene dünne Linien sind jeweils Fehlergrenzen. Die scheinbare Verschiebung des Raman-Profils zu größeren Höhen ist ein systematischer Effekt durch die sehr starke Glättung (Glättungslänge 3 bis 4 km).

85



Abbildung 3.20.: Ozonauswertung am 19.11.1997, Mittelwert über 6 Stunden Lidarmessungen von 04–10 Uhr UT (dicke Linie). Unterhalb von 15 km wird das Signal unbrauchbar. Die Glättungslänge betrug hier 1 km in 10 km Höhe, 3 km in 30 km Höhe und 9 km in 30 km Höhe. Die dünnen, unterbrochenen Linien geben den Unsicherheitsbereich an, während die durchgezogene dünne Linie das Profil der Ozonsonde (Start 1816 UT) kennzeichnet. Diese Sonde driftete in der Stratosphäre bis zu 154 km von Ny-Ålesund weg.

Berechnung des Ozonprofils mittels UV-DIAL

Ich berechne die Ozondichte nach [Steinbrecht, 1994] unter Vernachlässigung der Beiträge von Aerosolrückstreuung und -extinktion wie folgt:

$$n_{O_3} = \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \left[\frac{d}{dz} \ln \frac{z^2 P(z, \lambda_{off})}{z^2 P(z, \lambda_{on})} \right] \\ - \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} N(z) (\sigma^{Ray}(\lambda_{on}) - \sigma^{Ray}(\lambda_{off}))$$
(3.27)

Hier ist $\sigma_{O_3} = \sigma_{O_3}(\lambda_{on}) - \sigma_{O_3}(\lambda_{off})$ die Differenz der absoluten Ozonwirkungsquerschnitte bei $\lambda_{on} = 308, 15 nm$ und $\lambda_{off} = 353, 49 nm$. Zur Glättung der in Gl. 3.27 vorkommenden Höhenableitung wird der gleiche Algorithmus wie in 3.4.5 verwendet.

Fig. 3.20 zeigt das Resultat einer Ozonauswertung zusammen mit dem Profil der am gleichen Tag geflogenen Ozonsonde.

Es sei angemerkt, daß Ozon-DIAL-Messungen nach dem hier beschriebenen Prinzip bei Anwesenheit von Aerosolwolken (PSCs, vulkanisches Aerosol) systematische Fehler aufweisen, die sich nur schwer korrigieren lassen [Steinbrecht, 1994; Donovan, 1996]. In diesem Fall ist die Raman-DIAL-Methode genauer [*ebendort*].

Die Bedeutung von Lidarmessungen des Ozonprofils liegt in der Möglichkeit, schnelle zeitliche und räumliche Variationen (z.B. Filamente) in dichten Zeitreihen erfassen zu können [Heese, 1996; Steinbrecht, 1994]. Im Winter 1997/98 ist in Ny-Ålesund eine internationale Vergleichskampagne zur Validation der stratosphärischen Lidar-Ozonprofile durchgeführt worden [Neuber *et al.*, 1998; Steinbrecht *et al.*, 1998].

Ableitung von Temperaturprofilen

Aus Rayleigh-Lidardaten kann bei Abwesenheit von Aerosolen die Temperatur bestimmt werden [Hauchecorne und Chanin, 1980; Steinbrecht, 1994, z.B.]. Der Grundgedanke besteht in der Integration der hydrostatischen Gleichung von *oben*, nämlich von einer Referenzhöhe z_{ref} mit einer Modelltemperatur $T_{ref}(z_{ref})$, wobei der Temperaturfehler durch eine fehlerhafte Modelltemperatur unterhalb von z_{ref} rasch kleiner wird.

Explizit ist die Luftdichte bei vernachlässigbarer Extinktion (z > 30 km)

$$N(z) \propto P(z)z^2$$

mit dem Lidarsignal P(z). Die hydrostatische Gleichung

$$\frac{dp}{dz} = -N(z)Mg(z)$$

(p: Druck; M: molare Masse von Luft; g: Schwerebeschleunigung) integrieren wir nun unter Beachtung der idealen Gasgleichung $p = Nk_BT$ (k_B : Boltzmann-Konstante):

$$N(z)k_BT(z) = n(z_0)k_BT(z_0) + \int_{z_0}^z N(\tilde{z})Mg(\tilde{z})d\tilde{z}$$

bzw. nach Division durch $N(z)$, k_B
und mit $N(z) \propto P(z)z^2$:
$$T(z) = T(z_0)\frac{z_0^2P(z_0)}{z^2P(z)} + \frac{M}{k_B}\frac{\int_{z_0}^z \tilde{z}^2P(\tilde{z})g(\tilde{z})d\tilde{z}}{z^2P(z)}$$
(3.28)

Bei den hier verwendeten Programmen wird das Lidarsignal noch für Rayleigh-Extinktion korrigiert und kann deshalb im Prinzip auch unterhalb ≈ 30 km verwendet werden; in der stratosphärischen Aerosolschicht (und erst recht beim Auftreten von PSCs) erhält man aber stets systematisch falsche Werte. Weiterhin kann eine Glättung des Profils der relativen Luftdichte $z^2 P(z)$ durchgeführt werden (analoger



Abbildung 3.21.: Temperaturauswertung am 18.12.96; Tagesmittel der 532 nm-Profile mit Fehlergrenzen (gestrichelt). Zum Vergleich ist das Temperaturprofil der Radiosonde (dünne durchgezogene Linie) und das CIRA89-Referenzprofil (strichpunktiert) aufgetragen.

Algorithmus wie bei der Ramanauswertung), um die hochfrequenten Rauschanteile insbesondere in großen Höhen zu beseitigen.

Fig. 3.21 zeigt das Resultat einer Temperaturauswertung zusammen mit dem Profil der am gleichen Tag geflogenen Radiosonde sowie dem Temperaturprofil der CIRA-Referenzatmosphäre. Das Lidarprofil schließt sehr gut an das Temperaturprofil der Radiosonde an, zeigt aber systematisch zu tiefe Temperaturen im Bereich der stratosphärischen Aerosolschicht.

3.5. Sonstige Daten

3.5.1. Radio- und Ozonsondenprofile

In Ny-Ålesund werden vom Stationsmanager der Koldewey-Station ganzjährig Ballonsondierungen durchgeführt. Normalerweise wird einmal täglich²³ (mittags) eine Radiosonde (Typ ECC 5A/6A) gestartet, welche Temperatur T, Druck p, relative Feuchte²⁴ U und, über die Ortsbestimmung mit dem Omega-System, Windrich-

²³Beim Auftreten von PSCs auch öfter, bis zu dreimal am Tag.

 $^{^{24}\}mbox{Diese}$ Größe wird allerdings in der Stratosphäre unbrauchbar.

Meßgröße	Sensor	Meßbereich	Auflösung	Genauigkeit	Zeitkonst.
p	Kapaz. Aneroid	31060 hPa	0,1 hPa	0,5 hPa	
Т	Thermistor	-90+60 °C	0,1 K	0,2 K	$2,3 \mathrm{sec}$
U	HUMICAP	0100% r.F.	1%	2%	1 sec
$p(O_3)$	ECC5A/ECC6A	k.A.	1%?	5%	42 sec

 Tabelle
 3.9.: Die Daten der Sondensensoren nach Unterlagen des Herstellers.

tung und -geschwindigkeit bestimmt. Einmal wöchentlich, im Winter oder bei bestimmten Kampagnen auch öfter, wird eine Ozonsonde (Typ Vaisala OES, [Vaisala, 1991]) gestartet, die zusätzlich zu den genannten Größen die Ozondichte mißt. Die Meßbereiche und Unsicherheiten der Sensoren sind in Tabelle 3.9 zusammengefaßt (s.a. [Antikainen und Hyvönen, 1983]). Die Höhenauflösung ist durch die Tastfrequenz von $1/10 \sec^{-1}$ bestimmt, was mit einer typischen Steigrate von (4...6) m/s einer vertikalen Auflösung von (40...60) m entspricht.

Die Sondenrohdaten werden direkt nach der Messung korrigiert (Kalibrierung auf Bodenwerte, Ventilations- und Strahlungskorrektur für die Temperatur; siehe [Vaisala, 1991]). Die geopotentielle Höhe wird durch Integration der hydrostatischen Gleichung (Annahme: Luft ist ideale Gasmischung von trockener Luft und Wasserdampf²⁵ berechnet.

Für die Verwendung in den Lidarauswerteprogrammen werden die Datensätze weiter reduziert:

- Zusammenfassung aller Sonden eines Monats in eine Datei.
- Konsistenz- und Fehlerprüfung.
- Umwandlung der geopotentiellen Höhe H in die geometrische Höhe z mittels der Formel $z = r_0 H/(g/g_0 - H)$, wo $r_0 = 6367829 m$ den effektiven Erdradius, $g_0 = 9.8301 m/s^2$ die Erdbeschleunigung in Ny-Ålesund und $g_0 = 9.80665 m/s^2$ die Normschwerebeschleunigung bedeuten.
- Berechung der Abdrift (Richtung und horizontale Strecke) durch Integration der Winddaten.
- Interpolation der Meßwerte auf das Standardhöhengitter (50:50:50000 m) (Druck logarithmisch, alle anderen Größen linear).
- Extrapolation von Luft- und Ozondichte von der Sondenmaximalhöhe bis auf 50 km durch Anpassung an die CIRA89-Modellatmosphäre (s.u.).

Zeitliche Interpolation: Für die Klettinversion (cf. 3.3.3) und den Vergleich der PSC-Messungen mit der Differenz aus Temperatur und den verschiedenen Existenztemperaturen (siehe 3.5.5) werden auf den Zeitraum der Lidarmessung interpolierte

²⁵Der Fehler infolge der Nichtidealität ist vernachlässigbar.

Temperatur- und Dichteprofile benötigt. Dazu werden o.g. Datensätze aus den Ballonsondierungen linear interpoliert. Der durch die Interpolation entstehende Fehler wird größenordnungsmäßig zu ± 1 K abgeschätzt.

Verdriftung der Sonden: Wenn die Radiosonden ihre Maximalhöhe erreicht haben, sind sie etwa eine Stunde lang durch die Stratosphäre geflogen und dabei typischerweise (50...100) km verdriftet worden²⁶. Die horizontale Variation der Temperatur hierbei lässt sich anhand der ECMWF-Trajektorien (ich betrachte die Temperaturen 1 Stunde vor Ankunft des Luftpakets in Ny-Ålesund) synoptisch zu ca. 0,3 K abschätzen (Standardabweichung). Nur in Einzelfällen treten Kühlraten von bis zu als 2 K/h auf.

3.5.2. Ny-Ålesund Referenzatmosphäre

Es stellt sich bei der Auswertung von Lidar-Daten häufig das Problem, daß klimatologische Referenzprofile von z.B. Temperatur, Druck oder Dichte gebraucht werden; beispielsweise bei fehlenden Radiosondenprofilen oder für die Extrapolation derselben in große Höhen, zum Zweck der Normierung von Spurengasprofilen (vgl. 3.5.4) oder der auf klimatologische Mittelwerte bezogenen Darstellung von Meßgrößen.

Zu diesem Zweck wurde die NARA97 (i.e. Ny-Aalesund Reference Atmosphere 1997) konstruiert, die auf einem Höhenraster von 50:50:50000 m (geometrische Höhe) Monatsmittel von $T, p, n, n(O_3)$ bereitstellt. Sie basiert bis zu einer Höhe von durchschnittlich 30 km auf der fast zehnjährigen Meßreihe der Koldewey- Station (Radio- und Ozonsondenaufstiege 1988-1997). Ab einer monatlich unterschiedlichen Maximalhöhe H_{max} ist bis 50 km Höhe die CIRA89²⁷ [Fleming *et al.*, 1989] angepaßt worden, und zwar die Temperatur T durch einen Offset, alle anderen Größen durch je einen Faktor; die Ozondichte wurde unter Annahme eines konstanten Mischungsverhältnisses oberhalb der maximalen Sondenhöhe extrapoliert. Dabei wurde darauf geachtet, den Übergang bei H_{max} auch in der 1. Ableitung stetig zu halten (gradueller Übergang innerhalb eines Fitbereiches von 2,5 km unterhalb von H_{max}). Die Unsicherheit der extrapolierten Werte wurde mit (7,5%, 50%) resp. für die (Luftund Ozondichte) sowie dem Mittelwert der Streuung über den Fitbereich im Falle der Temperatur angenommen. H_{max} wurde bei der Mittelbildung automatisch so gewählt, daß bei dieser Höhe noch mindestens 25 bzw. 75 Meßwerte (Ozondichte bzw. P, T) in den Mittelwert einfließen mußten, um hinreichend repräsentative Werte zu gewährleisten. In der Höhe wurde mit einem laufenden Mittel der Fensterbreite 200 m gearbeitet, um eine gewisse vertikale Glättung zu erzielen (die Höhenauflösung der Originaldaten beträgt ca. 40 bis 50 m); die Streuung (Standardabweichung einer

²⁶In Einzelfällen bis über 300 km!

²⁷Cospar International Reference Atmosphere 1989, enthält breitenabhängige zonale Monatsmittel von Druck und Temperatur in einem 5 km-Raster bis zu einer Höhe von 120 km.

Messung vom Mittelwert) der einzelnen Mittelwerte wurde als Unsicherheitsmaß der NARA97- Profile mitberechnet und -abgespeichert.

Der Hauptzweck der NARA97 ist die Bereitstellung von realistischen, für Ny-Ålesund repräsentativen Profilen bis 50 km Höhe zu jedem Zeitpunkt des Jahres; wegen einiger nachfolgend aufgeführter Effekte kann sie jedoch nicht volle klimatologische Gültigkeit (in einem statistischen Sinne; "unbiased") beanspruchen.

Diese Einschränkungen betreffen im wesentlichen Höhen größer ca. 25 km, wo die Zahl der zum Monatsmittelwert beitragenden Profile signifikant abnimmt. Da aus Erfahrung die Platzhöhe der Ballone mit der Umgebungstemperatur stark negativ korreliert ist, sind in großen Höhen "warme" Profile tendenziell überrepräsentiert, ebenso warme Winter gegenüber kalten. Ähnlich bewirken die Verbesserung der Ballontechnik und die zunehmende Frequenz der Sondenaufstiege in den letzten Jahren des Beobachungszeitraums ein größeres Gewicht jener Jahre.



Abbildung 3.22.: Vergleich der Temperaturprofile der NARA97 (durchgezogene Linie, Unsicherheiten punktiert) mit der CIRA89 (80° N) für Mitte Januar.

Übersichtsbilder von Temperatur, Ozondichte, der monatlichen Maximalhöhe sowie der Bodenwerte von Druck und Temperatur sind im Anhang E.2 zu finden. Abbildung 3.22 zeigt beispielhaft für ein Januar-Temperaturprofil die Referenzatmosphären CIRA89 und NARA97 im Vergleich. Es wird deutlich, daß die CIRA – als zonales Mittel – systematische Abweichungen zum mittleren Profil über Ny-Ålesund aufweist.

3.5.3. Meteorologische Felder: ECMWF-Daten und Trajektorien

- Zur Berechnung von (Rückwärts-) Trajektorien wird auf Daten des ECMWF (European Center for Medium Range Weather Forecast) zurückgegriffen. Sie liegen allerdings nur auf bestimmten Standardniveaus der potentiellen Temperatur vor (380,400,435,475,550,675K) und für jeden Tag 12 Uhr UT. Dazwischenliegende Zeiten werden linear interpoliert. Da die meteorologischen Felder des ECMWF nur synoptische Variationen erfassen und insbesondere in den größten Höhen stark geglättet werden, sind signifikante Abweichungen z.B. zur der mittels Radiosonde gemessenen Temperatur über Ny-Ålesund unvermeidlich; Fig. 3.23(a) zeigt die mittlere Differenz ($T_{Sonde} - T_{ECMWF}$) und deren Standardabweichung für Vergleiche aus allen Tagen der beiden Meßwinter (jeweils November bis April), während in Fig. 3.23(b) zur besseren Veranschaulichung der Streuung alle Differenzen eingetragen sind.
- Zur Analyse jeder einzelnen PSC-Beobachtung in der Höhen- und Zeitauflösung der Lidarbeobachtungen (siehe Abschnitt 4.7) sind sehr viele hochaufgelöste Rückwärtstrajektorien auf beliebigen Höhenniveaus und Anfangszeiten notwendig. Diese wurden von P. von der Gathen mit einem Programm der FU Berlin [Reimer, 1998] berechnet. Die dazu benötigten meteorologischen Felder stützen sich auf die ECMWF-Analysen. Die potentielle Temperatur wird auf 0,1 K und die Endzeitpunkte auf 10 min erfaßt; der Zeitschritt ist 1 Stunde. Der Vergleich der Temperaturen dieser Trajektorien zu den Radiosondenbeobachtungen zeigte eine starke systematische Komponente von $T(\text{Traj.}) - T(\text{Sonde}) = (2,05 \pm 1,3) K$, gemittelt über alle Niveaus und Zeiten.
- Karten der potentiellen Wirbelstärke (PV) und der Temperatur auf ausgewählten Niveaus der potentiellen Temperatur (normalerweise ist die Betrachtung des 475 K- und des 550 K-Niveaus ausreichend). Diese Karten werden im Alfred-Wegener-Institut aus den täglichen ECMWF-Analysendaten bzw. -Vorhersagen täglich erzeugt.



Abbildung 3.23.: Vergleich aller ECMWF Trajektorien-Endpunkttemperaturen mit den Ny-Ålesund Radiosondentemperaturen. Es sind sämtliche Profile beider Winter aufgetragen.

3.5.4. Spurengasprofile

Zur Berechnung der Koexistenztemperaturen (s.u.) sind Profile von bestimmten Spurengasen notwendig: insbesondere sind das Profile des Mischungsverhältnisses von Wasserdampf, H_2O und Salpetersäure, HNO_3 . Für bestimmte Untersuchungen, wie die theoretische Berechnung der STS-Volumina, ist auch ein Profil für das H_2SO_4 - Mischungsverhältniss notwendig.

Wasserdampfprofil Ich verwende hier ein zeitlich konstantes²⁸, allerdings höhenabhängiges Profil (Fig. 3.24), das einen geglätteten Mittelwert aus allen mir in der Literatur zugänglichen Messungen [Aellig *et al.*, 1996; Schiller *et al.*, 1996; Ovarlez und Ovarlez, 1994; Vömel *et al.*, 1997] des stratosphärischen Wasserdampfprofils im arktischen Wirbel darstellt.

²⁸Es gibt Hinweise darauf, daß zur Zeit der Wasserdampfgehalt der Stratosphäre um größenordnungsmäßig 0,1 ppmv/Jahr zunimmt [Nedoluha et al., 1998].



Abbildung 3.24.: Verwendetes zeitlich konstantes Wasserdampfprofil

Salpetersäureprofil Hier werden *in situ*-FTIR-Messungen [Notholt *et al.*, 1997] verwendet, aus denen der mittlere Jahresgang der in Ny-Ålesund gemessenen HNO₃-Säulendichte und des sog. "Degree-of-subsidence" (DOS-) Parameters abgeleitet wurde. Der DOS-Parameter gibt an, wie stark ein Referenzprofil in stratosphärischen Höhen "gestaucht" werden muß, um die beobachteten Linienbreiten im IR-Spektrum zu erzeugen. Explizit ist für einen bestimmten Tag im Jahr:

$$\tilde{V}(z) = \left(z_T + \frac{z - z_T}{1 + DOS}\right) \times V_{ref}(z) ; z \ge z_T$$

$$\tilde{V}(z) = V_{ref}(z) ; z < z_T$$

$$\tilde{S} = \int_{z=0}^{50 \ km} n(z') \tilde{V}(z) dz'$$

$$V(z) = (S/\tilde{S}) \tilde{V}(z)$$
(3.30)

(3.31)

Hierbei bedeuten z_T die Höhe der Tropopause (10 km), $V_{ref}(z)$ das Referenzprofil (Ballonmessungen aus mittleren Breiten nach [Peterson und Margitan, 1995]), $\tilde{V}(z)$ das "gestauchte" aber noch nicht auf die aktuelle Gesamtsäule *S* normierte Profil mit einer Säulendichte \tilde{S} ; V(z) ist das gewünschte "klimatologische" HNO₃-Profil. Die Integration der Gesamtsäule wird mit der Luftdichte n(z) aus der NARA97 durchgeführt; der Beitrag zur Säulendichte für $z > 50 \ km$ ist vernachlässigbar. Da meist keine aktuellen FTIR-Messungen für *DOS* und *S* vorliegen, wird eine ausgeglichener Jahresgang dieser Parameter verwendet, der aus den Bildern 3.25(a) und 3.25(b) ersichtlich ist. Bild 3.26 zeigt einige typische Winterprofile nach diesem "klimatologischen" Modell.



Abbildung 3.25.: Zum Salpetersäureprofil: Ausgeglichener Jahresgang des DOS-Parameter (a) und der Säulendichte (b). Datenpunkte repräsentieren einzelne FTIR-Messungen, die durchgezogenen Linien sind ausgleichende Splines; die Funktionswerte dieser Splines werden zur Berechnung der "klimatologischen" HNO₃-Profile verwendet.



Abbildung 3.26.: Beispiele für die verwendeten HNO₃-Profile. Es wurden jeweils für die Monatsmitten Dezember-März der ausgeglichene Jahresgang des DOS-Parameters und der HNO₃-Säulendichte zur Berechnung der Salpetersäureprofile benutzt (Luftdichte: NARA97).



Abbildung 3.27.: Monatsmittel der Differenz der HNO₃-Profile: AWI minus LIMS. Die "AWI"-Profile sind die nach dem hier vorgestellten Verfahren berechneten aus FTIR-Messungen hergeleiteten klimatologischen Profile für Ny-Ålesund, mit "LIMS" sind die monatlichen zonalen Mittelwerte aus Satellitenmessungen [Gille et al., 1993] bezeichnet. Die vier Kurven sind die Differenzen für die Monate Dezember, Januar, Februar und März; die systematisch Unsicherheit der LIMS-Profile wird mit ca. 30% angegeben.

Zur Abschätzung des Fehlers der verwendeten HNO_3 -Profile kann die Differenz zu neueren (LIMS-) Satellitenmessungen [Gille *et al.*, 1993] betrachtet werden. Die LIMS-Daten liegen als zonale Monatsmittel für 80°Nord für die Monate Oktober bis Mai vor; Bild 3.27 illustriert die Differenz der Mischungsverhältnisse für einige Profile im Winter.

Schwefelsäureprofil Ich verwende das aus zahlreichen Messungen zusammengestellte Profil aus [Warneck, 1988], das in Fig. 3.28 dargestellt ist. *Nota bene*: Das



Abbildung 3.28.: Verwendetes H₂SO₄-Profil

Massenmischungsverhältnis x_m ist hier in das Volumenmischungsverhältnis x_v umgerechnet worden, es gilt $x_v(z) = M_{air}/(M_{\text{H}_2\text{SO}_4} \rho_{Luft}(z)) \times x_m(z) = 0,2282 \times x_m(z)$ wo mit M die Molmassen und mit $\rho(z)$ die Luftdichte (U.S. Standard Atmosphere) bezeichnet sind. In Höhen ab ca. 35 km geht die Schwefelsäure in die Gasphase über.

3.5.5. Existenztemperaturen der verschiedenen Aerosole

Eine wichtige Methode zur Interpretation von PSC-Beobachtungen anhand mikrophysikalischer Modelle ist der Vergleich der stratosphärischen Temperaturen mit den (theoretischen) Existenztemperaturen verschiedener Partikel. Definition:

- T_{NAT} : Koexistenztemperatur von HNO₃-Gas und Wasserdampf über NAT.
- T_{Ice}: Koexistenztemperatur von Wasserdampf mit Eis, "Eis-Frostpunkt".
- T_{STS} : Temperatur auf der STS-Taukurve, bei der die Massenkonzentrationen von H₂SO₄ und HNO₃ gleich sind; unterhalb dieser Temperatur beginnen die
Partikel durch die Aufnahme von H_2SO_4 und HNO_3 sehr effektiv zu wachsen [Tabazadeh *et al.*, 1994*a*]. Vgl. Fig. 3.29.



Abbildung 3.29.: Typische STS-Taukurve. Im oberen Teil sind die Massenanteile von HNO_3 (durchgezogene Linie) und H_2SO_4 (gebrochene Linie) sowie der Anteil von HNO_3 in der Gasphase (punktiert), gegen die Temperatur aufgetragen. Der untere Teil zeigt die Volumendichte der Tröpfchen. – Für dieses Beispiel wurde ein Druck von 50 hPa, ein Wasserdampfgehalt von 5 ppm, eine HNO_3 -Konzentration von 10 ppbv und eine H_2SO_4 -Konzentration von 0.5 ppbv angenommmen. Nach [Carslaw et al., 1995a].

 $T_{\rm Ice}$: Nach neueren Laboruntersuchungen von Marti und Mauersberger [1993] läßt sich die Koexistenztemperatur von Eis im Bereich zwischen 170 und 253 K in der Form

$$T_{\text{Ice}} = \frac{A}{\ln (p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa}) - B}$$
$$A = -6132,9 \ K \pm 1,8 \ K$$
$$B = 28,868 \pm 0,025$$

parametrisieren. $p_{\rm H_2O}$ bezeichnet den H₂O-Partialdruck.

 T_{NAT} : Sättigungsdampfdrücke von HNO₃ und H₂O über NAT sind in Laboruntersuchungen von [Hanson und Mauersberger, 1988b] bestimmt worden. Nach ihrer Parametrisierung ist die Koexistenztemperatur T_{NAT} gegeben durch

$$\frac{T_{\text{NAT}}}{1 \text{ K}} = -\frac{108,3 - 2,784 \ln\left(\frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{1 \text{ Pa}}\right) - \ln\left(\frac{p_{\text{H}NO_3}}{1 \text{ Pa}}\right)}{5,088 \cdot 10^{-2} - 1,76 \cdot 10^{-3} \ln\left(\frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{1 \text{ Pa}}\right)} + (3.32) \\
\sqrt{\left(\frac{108,3 - 2,784 \ln\left(\frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{1 \text{ Pa}}\right) - \ln\left(\frac{p_{\text{H}NO_3}}{1 \text{ Pa}}\right)}{5,088 \cdot 10^{-2} - 1,76 \cdot 10^{-3} \ln\left(\frac{p_{\text{H}2O}}{1 \text{ Pa}}\right)}\right)^2 + \frac{26242}{2,544 \cdot 10^{-2} - 8,8 \cdot 10^{-4} \ln\left(\frac{p_{\text{H}2O}}{1 \text{ Pa}}\right)}.$$

 T_{STS} : Die Berechnung dieser Temperatur basiert auf dem analytischen thermodynamischen Modell von [Carslaw *et al.*, 1995*b*] und auf der Iteration der entsprechenden FORTRAN-Routine [Carslaw *et al.*, 1995*a*]. Es stellt sich heraus, daß unter typischen stratosphärischen Bedingungen in guter Näherung gilt:

$$T_{STS} = T_{NAT} (-3, 6 \pm 0, 1) K$$

Schmelzpunkt und Deliqueszenz von SAT:

$$T_{SAT-Melt} = \frac{A}{B - \log(p_{H_2O}/1 \text{ Pa})}$$
(3.33)

mit A = 3236K, B = 11, 217.

Die Schmelztemperatur von SAT $(T_{SAT-Melt})$ berechnet sich nach Gleichung 3.33 [Zhang *et al.*, 1993] aus dem Wasserdampfpartialdruck p_{H_2O} und liegt in der mittleren Stratosphäre bei etwa 210 K. Sie ist deshalb interessant, weil die Überschreitung dieser Temperatur impliziert, daß sich sämtliche Aerosole dann in der flüssigen Phase befinden müssen.

Nach [Koop und Carslaw, 1996] kann sich SAT bei Abkühlung unter eine Temperatur $T_{SAT-del}$ unter HNO₃-Aufnahme verflüssigen; im Temperaturbereich zwischen $T_{SAT-del}$ und $T_{SAT-low}$ koexistiert SAT und ein ternärer flüssiger HNO₃-H₂SO₄-H₂O Film. Bei $T_{SAT-low}$ ist SAT vollständig unter Bildung flüssiger ternärer HNO₃-H₂SO₄-H₂O-Tropfen in Lösung gegangen. Die in der Tabelle 3.10 angegebenen Temperaturen und die Auftragung der Differenz dieser Temperaturen zu T_{NAT} in Fig. 3.30 wurden mittels Routinen von Carslaw *et al.* [1995*a*] berechnet.

Tabelle 3.10.: SAT-Deliqueszenz-Temperatur $T_{\text{SAT-Del}}$ (nach Koop und Carslaw (1996)). $T_{\text{SAT-Del}}$ ist die Temperatur, bei der SAT zu schmelzen beginnt. Im Temperaturbereich zwischen $T_{\text{SAT-Del}}$ und $T_{\text{SAT-low}}$ koexistiert SAT und ein ternärer flüssiger HNO₃-H₂SO₄-H₂O Film. Bei $T_{\text{SAT-low}}$ ist SAT vollständig unter Bildung flüssiger ternärer HNO₃-H₂SO₄-H₂O-Tropfen in Lösung gegangen.

Höhe [km]	$T_{\rm SAT-Del}$ [K]	$T_{\rm SAT-low}$ [K]	
10.5	210.1	210.1	geschmolzen
12.5	197.0	195.6	
14.5	195.4	193.6	
15.5	193.8	191.6	
18.5	192.0	189.6	
20.5	190.3	187.5	
22.5	188.4	185.5	
24.5	186.5	183.6	
26.5	166.2	166.2	geschmolzen



Abbildung 3.30.: Typische Höhenprofile $T_{SAT-del.}$ - T_{NAT} bzw. $T_{SAT-low}$ - T_{NAT} für Januar- und Februar-Profile der Spurengasmischungsprofile.



Abbildung 3.31.: Mittleres Winterprofil der Koexistenztemperaturen, d.h. mit den in dieser Arbeit vorgestellten Spurengasprofilen für ein mittleres Druckprofil der Monate Dezember-Februar berechnete Temperaturen.

Typische Höhenprofile der Existenztemperaturen sind in Bild 3.31 aufgetragen (Wintermittel DJF). Hier ist auch die "STS-Tautemperatur" T_{dew} aufgetragen, die manchmal alternativ zu T_{STS} angegeben wird²⁹.

Unsicherheiten der Existenztemperaturen Hier sollen kurz die Fehlerquellen, die die Temperaturmessung und die Bestimmung der Existenztemperaturen beeinflussen, abgeschätzt werden.

- Fehler der Sondentemperaturen: nach Tabelle 3.9 hat der Temperatursensor eine Genauigkeit von $\pm 0, 2K$; er liefert den geringsten Beitrag zum Gesamtfehler.
- Fehler durch Abdrift der Sonde vom Lidar-Meßort und durch die Zeitdifferenz zwischen Lidarmessung und Sondenaufstieg. Die Abschätzung in Abschnitt 3.5.1 war $\pm 1 K$.
- Fehler durch die Unsicherheiten in den Wasserdampf- und Salpetersäurepro-

 $\overline{{}^{29}T_{dew} - T_{STS} \approx -0,8K}$

filen³⁰. Dies ist der wesentliche Fehler und kann anhand der Bilder 3.32(a) und 3.32(b) abgeschätzt werden; aufgetragen sind die Differenzen in $T_{\rm NAT}$, $T_{\rm Ice}$ und $T_{\rm STS}$ für eine Änderung des H₂O-Mischungsverhältnisses von 1 ppmv bzw. 1 ppbv. Eine realistische Größenordnung für die Unsicherheit der H₂O- und HNO₃-Mischungsverhältnisse³¹ wird mit ±1 ppmv resp. ±2 ppbv angenommen; es ergibt sich die in Bild 3.33 gezeigte Unsicherheit der drei Existenztemperaturen, für die ich im weiteren einen pauschalen Fehler von ±1,3 K setze. Zu beachten ist, das dies nur für wenig gestörte Verhältnisse in der winterlichen Stratosphäre gilt; sobald durch starke PSC-Aktivität eine signifikante Dehydration bzw. Denitrifizierung eintritt, werden die Existenztemperaturen erheblich von den mit obigen Modellen berechneten Werten abweichen!

• Der Fehler eines Vergleichs von Existenz- mit gemessenen Temperaturen unter normalen Bedingungen läßt sich schließlich zu $\pm 2,5$ K abschätzen.

 $^{^{30}\}mathrm{Die}$ Existenztemperaturen sind vom H2SO4- Mischungsverhältnis unabhängig. $^{31}\mathrm{vgl.}$ auch 3.27



Abbildung 3.32.: Änderung der Existenztemperaturen bei Variation der Spurengasmischungsverhältnisse (a: H₂O; b: HNO₃), berechnet als Wintermittel DJF



Abbildung 3.33.: Abgeschätzte Gesamtunsicherheit der Existenztemperaturen.

3.5.6. In situ - Partikelsonden

Als eine interessante Ergänzung der Lidar-Messungen haben sich begleitende Messungen von Aerosoleigenschaften mit in situ -Partikelsonden erwiesen. In Tabelle 3.11 sind die Startzeiten der Partikelsonden in den Wintern 1995/96 und 1996/97 zusammengestellt.

Startzeiten der Partikelsonden			
OPC-Sonden	BKS-Sonden		
951217			
951228			
960106	960106		
	960117		
	960121		
	960130		
	960212		
	960219		
961221			
	970107		
	970121		
	970225		

 Tabelle
 3.11.: Liste der Tage mit OPC- bzw. BKS-Sondierungen in den Wintern 1995/96

 und 1996/97

Rückstreusonden

In den beiden betrachteten Wintern sind insgesamt 10 (vgl. Tabelle 3.11) von der University of Wyoming [Rosen und Kjome, 1991] gebaute Rückstreusonden, im folgenden BKS-Sonden genannt, gestartet worden. Diese Ballonsonden messen die Rückstreuintensität (bei einer Verteilung von Streuwinkeln um $\overline{\Theta} = 173^{\circ}$) einer 7-J/Puls Xenon Blitzlampe, die alle 7 s getriggert wird (Höhenauflösung ca. 40 m). Das effektive Meßvolumen beträgt etwa 1 m^3 in einer Entfernung von einigen Metern von der Sonde. Zwei Photodioden mit vorgeschalteten Glasfiltern messen die Rückstreuintensität bei zwei effektiven Wellenlängen, 490 und 940 nm. Meteorologische Parameter (Temperatur, Druck, Ozonpartialdruck) werden gleichzeitig gemessen und dienen u.a. zur Berechnung der Höhe. Eine instrumentelle Kalibration erlaubt die Berechnung von Rückstreuverhältnissen R_{490} und R_{940} , aus deren Kombination ("colorindex") es möglich ist, grobe, aber oft ausreichende Informationen über die effektive Partikelgröße abzuleiten. Besonders interessant ist die gleichzeitige Messung von optischen Eigenschaften (R_{490} und R_{940} , colorindex) und Temperatur



Abbildung 3.34.: Vergleich von BKS-Messungen am 25.2.1997 mit dem etwa gleichzeitig aufgenommen Lidarprofil. Das Bild oben links zeigt die Atmosphärentemperatur (schwarze Linie) im Vergleich mit $T_{\rm NAT}$ und $T_{\rm Ice}$; im schraffierten Höhenintervall ist $T < T_{\rm NAT}$. Die Rückstreuprofile sind in den beiden unteren Abbildungen dargestellt; links bei 490 nm (BKS) bzw. 353 nm (Lidar), rechts bei 940 nm (BKS) bzw. 532 nm (Lidar). Der Wellenlängenexponent η (490,940 nm) ist in der oberen rechten Figur dargestellt (schwarze Linie, Fehlergrenzen grün gestrichelt); zum Vergleich ist in dieselben Achsen die mit Lidar bestimmte Aerosoldepolarisation $\delta^{\rm Aer}$ eingetragen. Maxima in η (große Teilchen) entsprechen deutlich einer erhöhten Aerosoldepolarisation.

im selben Probevolumen. Weiterhin ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis in großen Höhen besser als beim Lidar, z.B. $\approx 50:1$ in 30 km Höhe³². Bild 3.34 zeigt zur Veranschaulichung gleichzeitig aufgenommene BKS- und Lidarprofile; es ist zu beachten, daß die BKS-Sonde in der Stratosphäre typischerweise (50...150) km von der Lidarstation weggedriftet ist, so daß die PSC-Strukturen nicht direkt vergleichbar sind. Außerdem sind die Meßpunkte der BKS-Sonde "Momentaufnahmen", während das Lidar über 10 bis 60 min mittelt. Hinzu kommt noch, daß die Sonde die "Rückstreuung" aus einem Streuwinkel von ca. 173°und nicht 180°wie beim Lidar mißt; die

³²Dies allerdings nur mit Glättung über 1 km-Intervalle.

Streuintensitäten sind somit nicht direkt vergleichbar. Nur unter Zuhilfenahme eines Aerosolmodells und Berechung der Phasenfunktion für diese beiden Winkel ist eine Umrechnung möglich.

Optische Partikelzähler

In Ny-Ålesund werden gelegentlich (vgl. Tabelle 3.11) an der Koldewey-Station ballongetragene optische Partikelzähler der Universität Nagoya (abgekürzt OPC-Sonden) gestartet, vgl. [Watanabe *et al.*, 1997]. Diese Sonden messen die Vorwärts-Streuintensität einzelner Teilchen im Probevolumen bei 810 nm (Laserdiode) und diskriminieren die Teilchengröße anhand des Vergleichs der gemessenen Intensität mit einer Mie-Rechnung für einen Brechungsindex von m = 1, 4 + 0i. Partikelgrößenklassen von $\leq 0, 3, \leq 0, 5, \leq 0, 8, \leq 1, 2, \leq 3, 6 \,\mu m$ (Durchmesser) können unterschieden werden. Der Meßbereich der Partikelkonzentrationen ist etwa $(10^4 \dots 10^8) m^{-3}$ (bei kleineren Konzentrationen wird der Fehler > ca. 50%, bei größeren erfolgt Sättigung der Detektoren). Abb. 3.35 zeigt ein Profil vom 6.1.96 mit einer PSC in etwa 20 km Höhe.



Abbildung 3.35.: OPC-Sondierung vom 6.1.1996. Der $> 0.3\mu$ m-Kanal ist oberhalb von ca. 20 km fehlerhaft (Detektor in Sättigung).

In diesem Kapitel möchte ich die Resultate der Aerosol-Lidarbeobachtungen im Kontext mit der Stratosphärendynamik vorstellen. Zunächst stelle ich in Abschnitt 4.1 die Dynamik des Polarwirbels in den beiden Meßwintern vor und gehe der Frage nach, ob die PSC-Messungen in Ny-Ålesund als repräsentativ für den arktischen Vortex bzw. die Arktis angesehen werden können. Nach einem Überblick über die Meßstatistik (Abschnitt 4.2) präsentiere ich die Aerosolmessungen; nach einer Darstellung des Hintergrundaerosols werde ich die zu einer Datenbank zusammengefaßten PSC-Messungen ausführlich darstellen und diskutieren. Es schließt sich die Vorstellung der typischen zeitlichen Entwicklung der PSC-Beobachtungen an, woraufhin die "normalen" und "Sonder"-PSCs diskutiert werden. Einige interessante Einzelaspekte zum Test von mikrophysikalischen Modellen werden in Abschnitt 4.5 behandelt; anschließend stelle ich die Resultate einer breit angelegten Analyse von Rückwärtstrajektorien zu allen PSC-Beobachtungen vor. In Abschnitt 4.8 gehe ich abschließend auf die Bedeutung der hier erzielten Erkenntnisse für die stratosphärische Ozonchemie ein.

4.1. Stratosphärendynamik im arktischen Wirbel

Die räumliche und zeitliche Verteilung der für die Aerosolentwicklung relevanten Parameter muß bekannt sein, um die Verhältnisse in der arktischen Stratosphäre zu verstehen. Ich werde zunächst abschätzen, inwieweit die Station (Ny-Ålesund), an der die Messungen durchgeführt werden, als typisch für den gesamten arktischen Wirbel angesehen werden kann.

Die Verteilung der stratosphärischen Aerosole ist dynamisch beeinflußt: Die Entwicklung des Polarwirbels bestimmt die Temperaturveränderung in der Stratosphäre. Die Temperatur ist der kritische Parameter für die Bildung der verschiedenen Typen von polaren stratosphärischen Wolken. Im Vergleich zum Polarwirbel auf der südlichen Hemisphäre ist der arktische Wirbel i.A. durch die Aktivität der planetaren Wellen dynamisch stark gestört (vgl. Kapitel 1.2.3). Die Entwicklung und Stärke des arktischen Wirbels und die damit verknüpften Temperaturen variieren demzufolge stark zwischen den einzelnen Wintern. Diese große Variabilität spiegelt sich in der Häufigkeit der PSC-Bildung wieder. Polare stratosphärische Wolken treten verstärkt in Wintern mit kalten, stark ausgebildeten Polarwirbeln auf. Im folgenden Abschnitt wird ein Überblick über die Dynamik und die Temperaturentwicklung der arktischen Stratosphäre der Winter 1995/96 und 1996/97 gegeben. Die Darstellung stützt sich auf die Stratosphären-Analysen des Instituts für Meteorologie der Freien Universität Berlin [Naujokat und Pawson, 1996, 1998] sowie auf die Analysen von Manney *et al.* [1996] und Kilbane-Dawe und Harris [1997]. Im Anschluß wird die relative Lage von Ny-Ålesund im Bezug zum polaren Wirbel während der Beobachtungen der polaren stratosphärischen Wolken diskutiert.

4.1.1. Dynamik des Polarwirbels

Die geographische Lage des Polarwirbels in verschiedenen Höhenniveaus kann durch Karten der potentiellen Wirbelstärke veranschaulicht werden. Die Abbildungen D.1 und D.4 im Anhang D geben die Lage des arktischen Wirbels und die Temperaturentwicklung für die Winterkampagnen 1994/95 und 1996/97 wieder. Die zeitliche Entwicklung der in den beiden Meßwintern *in situ* in Ny-Ålesund gemessenen Temperaturen ist in den Abbildungen C.1 und C.2 im Anhang C dargestellt¹.

Winter 1995/96

Der arktische Winter 1995/96 zeichnete sich durch drei Monate mit anhaltend niedrigen stratosphärischen Temperaturen (Dezember bis Februar) und zwei extremen Kälteperioden im Januar aus [Naujokat und Pawson, 1996]. Der Januar bzw. der Februar 1996 waren der fünft- bzw. viert-kälteste Monat seit 1965 [*ebendort*]. Schon zu Beginn des Dezembers wurde lokal auf einer Fläche von ca. einem halben Prozent der Fläche der Nordhemisphäre im 475K-Niveau die Temperatur von $T_{\rm NAT}$ unterschritten. Mit der Verschiebung des Wirbels in die kanadische Arktis am 10. Dezember floß relativ warme Luft ostwärts über Europa [*Naujokat*, *B.*, persönliche Mitteilung, 1996]. Ab Mitte des Monats verlagerte sich der Wirbelkern in Richtung Spitzbergen mit Temperaturen, die unterhalb der langjährigen Mittelwerte lagen. Ab dem 17. Dezember wurde der Schwellenwert für die Bildung von PSCs des Typs I großflächig unterschritten. Der Wirbel verstärkte sich bis zum Ende des Monats verbunden mit einem diabatischen Absinken von ca. 45 K im 475K-Niveau (vgl. Abbildung 1.2 in Kapitel 1.2.3, Seite 5).

Auch im Januar war die Stratosphäre kalt genug für die Bildung von PSCs des Typs I. Während zweier extrem kalter Perioden (10. bis 16. und 22. bis 24. Januar) fielen die Temperaturen auf der Nordhemisphäre unter $T_{\rm Eis}$. Der Kältepol befand sich über der europäischen Arktis (s. Abbildung D.2). Trotz einer kleinen mittwinterlichen Erwärmung in der oberen Stratosphäre Ende Januar blieben die Temperaturen während des gesamten Februars über der europäischen Arktis kalt genug für die PSC-Bildung. Auf deutlich mehr als einem halben Prozent der Fläche der Nordhemisphäre konnte es am 15./16. und am 20./21. Februar zur PSC-Bildung des Typs II im 475K-Niveau kommen. Die Stratosphärenerwärmung Ende des Monats konnte sich bis in die untere Stratosphäre durchsetzen. Nachdem Anfang März

¹Analoge Analysen für die Winter 1988/89 bis 1994/95 siehe [Stebel, 1998].

die Temperaturen ein letztes Mal unter 183 K fielen, war die Saison für die PSC-Bildung auf der Nordhemisphäre am 8. März beendet. Ende März leitete eine große Stratosphärenerwärmung den Beginn der Umstellung auf die Sommerzirkulation ein [Naujokat und Pawson, 1996]. Am 20. Februar und am 3. März 1996 kam es zu signifikanten "blocking events"; so werden Zustände bezeichnet, wo ein Hochdruckkeil in der oberen Troposphäre zu einer hohen, kalten Tropopause und einer ungewöhnlich kalten Region in der unteren Stratosphäre führt. Dies bewirkt [Manney *et al.*, 1996] eine Nordablenkung des polaren Strahlstroms bis in die untere Stratosphäre (die kältesten Regionen – und damit die PSCs – sind deshalb ausnahmsweise am Wirbelrand); dies kann durch Advektion auf isentropen Flächen zum Einmischen von Luft aus mittleren Breiten in den Wirbel führen (z.B. nach dem 20. Februar 1996 auf 465 K und darunter). Weil in diesen kalten Regionen auch die höchsten Windgeschwindigkeiten auftreten, können große Mengen stratosphärischer Luft an PSCs prozessiert werden.

Manney *et al.* [1996] zeigten auch, daß die ungewöhnlich kalten Temperaturen und die Persistenz des Wirbels im Winter 1995/96 zu einem stärkeren Ozonabbau als in den vorausgegangenen vier Nordwintern führten.

Winter 1996/97

Für den dritten Winter in Folge war die arktische Stratosphäre außerordentlich kalt; entsprechend niedrige Ozonsäulenwerte² (240 DU) sind beobachtet worden [Knudsen *et al.*, 1998].

Der polare Wirbel entstand im Oktober 1996 und war zu dieser Zeit stärker und kälter als gewöhnlich [Kilbane-Dawe und Harris, 1997], allerdings fielen die Temperaturen noch nicht unter T_{NAT} . Er schwächte sich während des Novembers und Dezembers infolge einer von Kanada ausgehenden Erwärmung ab; zur Jahreswende 1996/97 verstärkte er sich unter starker Abkühlung wieder. Im großen und ganzen war der Vortex dann bis weit in den April 1997 stabil mit seinem Zentrum nahe am Nordpol. Das Zentrum der tiefsten Temperaturen war (uncharakteristischerweise) stets nahe der Wirbelmitte. Temperaturen $T < T_{\text{NAT}}$ traten zuerst um Neujahr herum in großen Höhen (bis 30 km) auf; in der unteren Stratosphäre (16-24 km) setzten sie sich erst etwas später durch, wurden jedoch bis Anfang April beobachtet. Der März 1997 war durch einen andauernd kalten Wirbel mit Rekord-Minimumtemperaturen für fast jeden Tag des Monats gekennzeichnet. Die untere polare Stratosphäre blieb auch im April kalt und wurde durch einen starken Wirbel bestimmt; erst Ende April/Anfang Mai leitete ein ungewöhnlich spätes "final warming" den Übergang von Winter- auf Sommerzirkulation ein. Zusammenfassend setzte dieser Winter den seit mindestens 25 Jahren beobachteten Abkühlungstrend der arktischen Stratosphäre fort; die Minimumstemperaturen (Zeitraum: 1. November bis 31.März) im 30 hPa-Niveau sind seit 1965/66 um mehr als 2,5 K/Dekade gefallen [Pawson und Naujokat, 1997; Naujokat und Pawson, 1998].

 $^{^2\}mathrm{DU}=\mathrm{Dobson}$ Unit = 0,001 mm Gassäule unter STP-Bedingungen = 2,69 \times $10^{16}~cm^{-2}$

4.1.2. Lage von Ny-Ålesund relativ zum arktischen Wirbel

In beiden betrachteten Wintern konnten in Ny-Ålesund polare stratosphärische Wolken beobachtet werden. Für diese Winter lagen Werte der potentiellen Wirbelstärke für diskrete potentielle Temperaturniveaus vor. In den Abbildungen 4.1(a) und 4.1(b) ist die potentielle Wirbelstärke über Ny-Ålesund für die isentropen Temperaturniveaus 400 K, 475 K, 550 K und 675 K im Zeitraum von November bis März abgebildet. Alle in diesem Kapitel angeführten Werte der potentiellen Wirbelstärke beziehen sich, wenn sonst nichts gesagt ist, auf das 475K-Niveau.

Winter 1995/96

Im Winter 1995/96 befand sich der arktische Wirbel von Mitte Dezember 1995 bis Anfang März 1996 überwiegend über Spitzbergen. Im November lag Ny-Ålesund außerhalb des Wirbels oder am Wirbelrand. Anfang Dezember wurde der Wirbel über die kanadische Arktis verschoben, so daß Spitzbergen nicht mehr im inneren Bereich des Wirbels lokalisiert war. Während der sich anschließenden elf Wochen lag die Station, mit Ausnahme zweier Tage Mitte Januar, im inneren Wirbelbereich. Polare stratosphärische Wolken wurden im Zeitraum vom 17. Dezember 1995 bis 30. Januar 1996 (bei 39 PVU bis 50 PVU), vom 4. bis 6. Januar und vom 17. Januar bis 19. Februar (bei 44 bis 58 PVU) gemessen (vgl. Abbildung 4.1(a)). Mit Ausnahme des 17. Januars 1996, als Ny-Ålesund im Wirbelrandbereich (bei 34 bis 38 PVU) lag, befand sich die Beobachtungsstation ausschließlich im inneren Bereiches des Wirbels. Am 17. Januar 1996 war der Kern des langgestreckten Wirbels über der kanadischen Arktis lokalisiert; der Kältepol erstreckte sich über die kanadische und europäische Arktis. Erst Anfang März fand sich Ny-Ålesund in Bereichen geringer potentieller Wirbelstärke.

Winter 1996/97

Im Winter 1996/97 lag Ny-Ålesund im Dezember 1996 meist im Randbereich des noch relativ warmen Polarwirbels. Ab dem 31.12.96 wurde er kreisförmiger, stärker und begann sich abzukühlen; bis weit in den April 1997 lag Ny-Ålesund meist mitten im Vortex. Ab dem 2.1.97 fielen die Temperaturen das erste Mal signifikant unter $T_{\rm NAT}$, der Kältepol lag (wie meist den restlichen Winter) zwischen Grönland und Spitzbergen. Am 25./26.1.97 bis zum 2.2.97 und um den 18.2.97 lag die Meßstation im Randbereich des Wirbels, ansonsten ab dem 6.1.97 ausschließlich innerhalb des inneren Bereiches des Wirbels. Der 11. März brachte für Ny-Ålesund eine leichte Erwärmung; ab dem 14.3. bis Ende März waren die Temperaturen wieder "PSCverdächtig". Anfang April 1997 setzten steigende Temperaturen der Möglichkeit des Auftretens von PSCs ein Ende, während der Wirbel sich erst Ende April auflöste. PSCs über Ny-Ålesund wurden ab dem Beginn der Messungen am 3. Januar bis zum 5.1.97, am 21./22.1. und dann an jedem Meßtag vom 6.2.97–28.2.98 beobachtet.





Abbildung 4.1.: Die vier Kurven zeigen die zeitliche Entwicklung der potentiellen Wirbelstärke für die potentiellen Temperaturniveaus 400, 475, 500 und 675 K. Die beiden Hilfslinien bei 33 PVU bzw. 71 PVU (gestrichelt) gestatten eine grobe Abschätzung, wann Ny-Ålesund im Wirbel lag. Sie dienen nach Knudsen (1992) als Markierungen des Wirbelrandes im 475K-, bzw. 550K-Niveau.

4.1.3. Fazit

In beiden Wintern sind die Beobachtungen der polaren stratosphärischen Wolken über Ny-Ålesund sämtlich (mit nur drei Ausnahmen, dem 17.1.96, 3.-5.1.97 und 18./19.2.97) im inneren Bereich des polaren Wirbels gemacht worden. Sie sind daher unbeeinflußt von dynamischen Effekten, die verstärkt am Wirbelrand zu erwarten sind (z.B. dem Austausch zwischen Luftmassen aus mittleren und polaren Breiten). Dies ist für Ny-Ålesund auch schon für frühere Jahre festgestellt worden [Stebel, 1998]. Hinzu kommt, daß in Ny-Ålesund in bisher neun Wintern noch nie Typ II-PSCs (Eiswolken) festgestellt worden sind; dies korrespondiert mit der sehr kleinen Wahrscheinlichkeit, mit der im arktischen Wirbel synoptisch Temperaturen $T < T_{\rm Ice}$ auftreten [Naujokat und Pawson, 1998]. Andere (Lidar-) Meßstationen in der Arktis, vor allem auf der Ostseite des skandinavischen Gebirgszuges, beobachten demgegenüber häufiger Eis-PSCs, was mit lokalen orographischen Effekten erklärt wird [Wedekind, 1997]. Die hier durchgeführten Messungen werden folglich als typisch für Beobachtungen von polaren stratosphärischen Wolken im arktischen Wirbel, ungestört von lokalen orographischen Effekten, erachtet.

4.2. Meßstatistik

Einen (wochenweisen) Überblick über die Frequenz der Lidar- und PSC- Beobachtungen gibt Abb. 4.2; die genauen Meßzeiten sind in den Abbildungen im Anhang A aufgeschlüsselt.

Diskussion. Im Winter 1995/96 gab es 50 Meßtage (18.11.–6.3.) mit insgesamt 299 auswertbaren (Stunden-) Profilen; die entsprechenden Zahlen für 1996/97 sind 31 Lidar-Tage (3.1.–6.3.) mit 175 Profilen. Mit der 200 m-Auflösung ergeben sich in den beiden betrachteten Wintern insgesamt 19745(8482) resp. 12173(5216) Meßpunkte; die Zahl in Klammern gibt die Anzahl Datenpunkte an, für die $T < T_{\rm NAT}$ gilt. An 64% (95/96) bzw. 61% aller Meßtage (96/97) sind PSCs detektiert worden; dies sind wesentlich größere PSC-Häufigkeiten als der Mittelwert der Jahre 1988–1996 für Ny-Ålesund, wo an durchschnittlich 25% aller Meßtage PSCs beobachtet wurden [Stebel, 1998]. Zum Vergleich : In den Wintern 1990/91 ist keine PSC beobachtet worden; in den Wintern 1991/92 und 1993/94 nur jeweils einmal. Diese starke Variabilität des PSC-Vorkommens spiegelt die Variabilität der Temperaturen (im arktischen Wirbel) in den einzelnen Wintern wider.

4. Ergebnisse



Abbildung 4.2.: Meßstatistik aller Lidarbeobachtungen in Ny-Ålesund. Aufgetragen sind für jede Kalenderwoche die Zahl der Tage, an denen Lidarbeobachtungen stattfanden (dunkler Balken) sowie die Tage, an denen die Aerosolprofile eindeutig die Präsenz von PSCs zeigen (heller Balken). Man beachte die ungewöhnlich lange PSC-Saison in den beiden hier betrachteten Wintern.

4.3. Aerosolmessungen: Das Hintergrund-Aerosol

Aus den vorliegenden Daten (Einzelprofile als Stundenmittel) kann ein mittleres Profil des Hintergrundaerosols konstruiert werden, indem man nur die Einzelprofile (Stundenmittel) in all den Höhen mittelt, wo $T - T_{\rm NAT} > 2,5$ K ist. Wie in diesem Kapitel noch gezeigt werden wird, hat man damit auch innerhalb der experimentellen Unsicherheiten der Temperaturbestimmung alle PSCs aus dem Datensatz entfernt. Das Ergebnis wird in Bild 4.3 dargestellt. Es ist unklar, ob das erheblich größere Rückstreuverhältnis im Winter 1995/96 real ist oder einen systematischen Meßfehler darstellt, beispielsweise durch ein Überlapp-Problem. Nach den Daten von Wedekind [1997], siehe Abb. 1.4, beträgt die jährliche Differenz der maximalen Rückstreuverhältnisse des Hintergrundaerosols für den hier betrachteten Zeitraum etwa 0,05; die entsprechende Abnahme der hier dargestellten Profile ist etwa 0,1. Im Umkehrschluß folgt, daß der systematische Fehler in R bei diesen kleinen Rückstreuverhältnissen mindestens 0,05 beträgt.



Abbildung 4.3.: In Ny-Ålesund gemessenes Rückstreuverhältnis des Hintergrundaerosols bei 532 nm. Die mit dem Kriterium T- $T_{NAT} > 2,5$ K gefundenen Datenpunkte wurden zu gewichteten Mittelwerten zusammengefaßt; der Fehlerbalken ist der mittlere Fehler des Mittels und berücksichtigt weder natürliche Variabilität noch Beiträge durch systematische Fehler. Die Anzahl der gemittelten Datenpunkte variiert stark mit der Höhe; in den kältesten Höhenbereichen um 20 km sind nur wenige Dutzend Meßpunkte vorhanden. Die Anzahl der Meßpunkte steigt an den Rändern auf ca. 259 (1995/96) bzw. ca. 150 (1996/97).

4.4. Aerosolmessungen: PSC-Beobachtungen

It is a capital mistake to theorise before one has data. Insensibly one begins to twist facts to suit theories, instead of theories to suit facts. *Sir Arthur Conan Doyle*, A Scandal in Bohemia

In den folgenden Abschnitten werden die PSC-Messungen graphisch dargestellt und diskutiert. Ich wähle in vorliegender Arbeit eine eher statistische Herangehensweise und verzichte weitgehend darauf, zahlreiche Einzelprofile darzustellen; vielmehr versuche ich, von der Höhen- und Zeitinformation zu abstrahieren und aus der Korrelation der Meßgrößen sehr vieler Einzelbeobachtungen statistisch signifikante Zusammenhänge zu erkennen. Dies ist, wie sich zeigen wird, auch sinnvoll, da die überwältigende Mehrzahl der Beobachtungen in wenige, sich stets wiederholende, charakteristische Gruppen zerfällt; Ausnahmen werden in Abschnitt 4.4.4 gesondert betrachtet. Es ist ebenfalls sinnvoll, weil viele, vor allem abgeleitete, Meßgrößen mit großen Fehlern behaftet sind (z.B. die Aerosoldepolarisation; hier ist der Fehler zudem systematisch von einer anderen Meßgröße, nämlich R, abhängig) und die Betrachtung von wenigen, subjektiv ausgewählten Einzelprofilen leicht in die Irre führen kann.

Einige typische Höhenprofile über den Verlauf der Winter werden gleichwohl in Abschnitt 4.4.3 vorgestellt.

4.4.1. Zusammenfassende Darstellung

Auf den folgenden Seiten stelle ich alle auswertbaren PSC-Messungen in verschiedenen Auftragungen vor. Die dargestellten Punkte stammen aus einer Datenbasis ("Aerosoldatenbank"), die alle Aerosolprofile enthält. Die Datenbasis greift auf die tageweise abgespeicherten Stundenmittel (200 m Höhenauflösung) zurück; die Berechnung dieser Profile ist in Abschnitt 3.3 detailliert beschrieben. Die Aerosoldatenbank für alle Messungen der Winter 1995/96 und 1996/97 wurde wie folgt erzeugt:

• Lade von allen Rückstreuprofilen R_u und δ (532 nm).

Die Zeiten dieser Profile sind die "Master"-Zeiten für alle anderen Daten, d.h. es wird nur nach Daten gesucht, für die gleichzeitig auch R_u und δ (532 nm) vorhanden sind.

- Lade R(353 nm).
- Lade polarisierte Komponenten: R_{\perp} , R_{\parallel} , β_{\perp}^{Aer} , β_{\parallel}^{Aer} (532 nm).
- Bestimme für die Meßzeiten die Profile von $T, T_{\text{NAT}}, T_{\text{Ice}}, T_{\text{STS}}, T_{\text{SAT-melt}}$ und θ .

- Berechne die Aerosoldepolarisation δ^{Aer} aus $\beta_{\perp}^{\text{Aer}}$, $\beta_{\parallel}^{\text{Aer}}$.
- Berechne den Wellenlängenexponenten η aus R(353), R(532).
- Berechne die Oberflächen- und Volumendichten S und V aus $\beta^{Aer} (= \beta_{\perp}^{Aer} + \beta_{\parallel}^{Aer})$ nach Gobbi [1995], vgl. Abschnitt 3.4.4.

Die im folgenden dargestellten Meßpunkte ("Meßpunkt" = Beobachungsgröße gemittelt über das 200 m-Höhenintervall und über 1 Stunde) wurden aus der Datenbasis durch folgende Bedingungen ausgewählt:

- Ausschluß von zu verrauschten, ungenügend normierbaren, "pathologischen" bzw. von Profilen mit bekannten apparativen Problemen.
- Ausschluß von zeitlich stark variablen Profilen (vgl. Abschnitt 3.3.4).
- Depolarisation δ , unpolarisiertes Rückstreuverhältnis R_u und Temperaturinformation (aus Sonden) gleichzeitig vorhanden.
- $\delta^{\operatorname{Aer}} \mathcal{E}(\delta^{\operatorname{Aer}}) \leq 1 \text{ und } \delta^{\operatorname{Aer}} + \mathcal{E}(\delta^{\operatorname{Aer}}) \geq 0.$
- Höhe $z \ge 13000$ m (Ausschluß von Cirren).

Auf den nun folgenden Seiten sind die Datenpunkte in verschiedenen Auftragungen dargestellt.

- 1. Abbildung 4.4 zeigt die "klassische" Auftragung δ^{Aer} über R_u (eine grobe Temperaturinformation ist durch unterschiedliche Symbole dargestellt). Bei dieser Auftragung geht natürlich jede Information über die Zeitentwicklung und Höhe verloren. Das Rückstreuverhältnis R_u steht in einem halbquantitativen Zusammenhang mit dem Mischungsverhältnis der Aerosolpartikel³ (damit ist es möglich, PSC-Beobachtungen aus verschiedenen Höhen miteinander zu vergleichen) während die Aerosoldepolarisation δ^{Aer} in erster Linie eine Information über den Aggregatzustand der beobachteten Teilchen gibt.
- 2. Abbildung 4.5 zeigt das Aerosolrückstreuverhältnis $R_u 1$ in Abhängigkeit von der Temperaturdifferenz $(T - T_{NAT})$; man wählt nicht die Temperatur selbst, weil die Existenztemperaturen der verschiedenen Aerosolphasen höhenabhängig sind. Die Differenz zu T_{NAT} beseitigt diese Höhenabhängigkeit weitgehend, da alle anderen Existenztemperaturen eine nahezu höhenunabhängige Differenz zu T_{NAT} aufweisen, vgl. Abschnitt 3.5.5. Die Symbolcodierung nach δ^{Aer} erlaubt es, feste (weisse Symbole) und flüssige Teilchen voneinander zu unterscheiden.

³siehe Abschnitt 2.4.3

- 3. In Figur 4.6 ist die Aerosoldepolarisation δ^{Aer} über $(T T_{NAT})$ aufgetragen; man beachte, daß der Fehler (und damit die Streuung) von δ^{Aer} bei kleinen R_u , d.h. bei hohen Temperaturen, sehr groß wird. Als Parameter der Darstellung ist $R_u - 1$ gewählt, um Ia- von Ib-Wolken unterscheiden zu können.
- 4. Bild 4.7 enthält eine logarithmische Auftragung des Aerosolrückstreuverhältnisses R_u – 1 gegen den Aerosolwellenlängenexponenten η. Letzterer ist (vgl. Abschnitt 3.4.2) ein grobes Maß für die Größe der Teilchen. Die Form dieser Auftragung ähnelt der in [Rosen *et al.*, 1997], wo BKS-Messungen anhand dieses Diagramms klassifiziert werden. Die Symboldarstellung erlaubt die Identifizierung von Ia-Partikeln.
- 5. Abb. 4.8 ähnelt der Auftragung von Bild 4.4, diemal jedoch mit η als Symbol-Parameter statt $T - T_{\text{NAT}}$; statt einer zusätzlichen Temperaturinformation erhält man damit einen Hinweis auf die Größe der Teilchen. $\eta \gtrsim -1, 5$ deutet auf große Partikel hin.
- 6. Bild 4.9 zeigt die senkrecht polarisierte Komponente des Rückstreuverhältnisses, R_{\perp} , über der Parallelkomponente R_{\parallel} . Die schwarze Linie entspricht einer Aerosoldepolarisation von 1 (die theoretisch nicht überschritten werden kann, vgl. Abschnitt 2.3.2). Diese Art der Auftragung ist neu; in der Diskussion unten wird sich zeigen, daß sie wichtige Informationen über die Koexistenz von festen und flüssigen Teilchen gibt. Die Symbole sind nach $T - T_{\text{NAT}}$ codiert.
- 7. In Bild 4.10 ist schließlich die senkrecht polarisierte Komponente der Rückstreuverhältnisses, R_{\perp} , über der Temperaturdifferenz $(T T_{NAT})$ mit η als Symbolparameter aufgetragen.



Abbildung 4.4.: Beide Meßwinter: Aerosoldepolarisaton über Gesamt-Rückstreuverhältnis, Symbolcodierung nach $T - T_{\text{NAT}}$: * steht für $T - T_{\text{NAT}} < -3.6$ K, + für $-3.6 \leq T - T_{\text{NAT}} \leq 0$ K, grau x für $T - T_{\text{NAT}} > 0$ K



Abbildung 4.5.: Beide Meßwinter: $R_u - 1$ vs. $T - T_{NAT}$, codiert nach δ^{Aer} : + steht für $0 \le \delta^{Aer} < 0.15$, weiß o für $0.15 \le \delta^{Aer} < 0.30$, grau * für $0.30 \le \delta^{Aer} < 1.00$

$4. \quad Ergebnisse$







Abbildung 4.8.: Beide Meßwinter: δ^{Aer} vs. R_u , codiert nach η : + steht für $-4 \le \eta < -2$, • für $-2 \le \eta < 0$, grau * für $\eta \ge 0$





Abbildung 4.9.: Beide Meßwinter: R_{\parallel} vs. R_{\perp} , codiert nach $T - T_{NAT}$: * steht für $T - T_{NAT} < -3.6 \text{ K}$, + für $-3.6 \leq T - T_{NAT} \leq 0 \text{ K}$, grau x für $T - T_{NAT} > 0 \text{ K}$



Abbildung 4.10.: Beide Meßwinter: R_{\perp} vs. $T - T_{NAT}$, codiert nach η : + steht für $-4 \le \eta < -2$, • für $-2 \le \eta < 0$, grau * für $\eta \ge 0$

4.4.2. Diskussion

Nachfolgend diskutiere ich die einzelnen Darstellungen der voranstehenden Abbildungen 4.4 bis 4.10.

- Nach Bild 4.4 zerfallen alle⁴ PSC-Messungen in nur 2 Klassen: solche mit hohen Aerosoldepolarisationen $\delta^{Aer} > 5\%$ und kleinen Rückstreuverhältnissen R_u bis ca. 1,5 und solche mit kleinem oder verschwindendem δ^{Aer} und höheren R_u bis zu 6. Die erste Gruppe wird mit dem Typ Ia identifiziert, die zweite mit Typ Ib, wobei der Übergang hier offenbar fließend ist; z.B. existiert keine Lücke in den R_u zwischen Ia und Ib. Die breite Verteilung der Depolarisationen bei den Ia-Beobachtungen kann mit den großen Fehlern von δ^{Aer} bei kleinen Rückstreuverhältnissen erklärt werden. Bei den Temperaturen zeigt sich, daß der Ia-Typ bei signifikant höheren Temperaturen (bei $T_{\rm NAT}$ bis einige Kelvin darunter) auftritt, während die Ib-PSCs offenbar erst ab $T - T_{\rm NAT} < -3$ K beobachtet werden.
- In Abbildung 4.5 (Aerosolrückstreuverhältnis $R_u 1$ in Abhängigkeit von der Temperatur $T - T_{NAT}$) sieht man bei hohen Temperaturen bis etwa T_{NAT} praktisch konstantes Hintergrundaerosol und ab 3 bis 4 K unterhalb von T_{NAT} einen starken Anstieg entsprechend der Ausbildung von stark rückstreuenden Ib-PSCs. Die depolarisierenden Ia-Teilchen erscheinen bei kleinen, nahezu konstanten Rückstreuverhältnissen hauptsächlich im Temperaturintervall $-4 < T - T_{NAT} < 0$ K. Bei sehr tiefen Temperaturen scheinen die Rückstreuverhältnisse nicht mehr weiter anzusteigen bzw. wieder zu fallen, was mit nahezu vollständiger Kondensation der verfügbaren HNO₃ bzw. einer Denitrifizierung der beobachteten Luftmasse erklärt werden kann.
- In Figur 4.6 (Aerosoldepolarisation über der Temperaturdifferenz $(T T_{\text{NAT}})$) sind bis zu $T - T_{\text{NAT}} < -5$ K fast nur Ia-Partikel zu sehen; die nicht oder wenig depolarisierenden Beobachtungsdaten aus Ib-Wolken liegen fast alle auf der Abszisse. Bei sehr tiefen Temperaturen, für etwa $T - T_{\text{NAT}} \leq -5$ K, existieren fast keine Beobachtungen mehr mit hohen δ^{Aer} , weil die hohe Rückstreuung der dort beobachteten Ib-Wolken den Beitrag der depolarisierenden Teilchen maskiert (die beobachtete Aerosoldepolarisation ist die eines Gemisches von wenigen festen und vielen flüssigen Partikeln.).
- In Bild 4.7 wird die Relation des Aerosolrückstreuverhältnisses $R_u 1$ mit dem Aerosolwellenlängenexponenten η (als grobes Maß für die Größe der Teilchen) deutlich. Weil die Bestimmung eines sinnvollen Werten für η von genügend hohen Aerosolrückstreuintensitäten abhängt, sind fast nur Teilchen aus Ib-Wolken zu sehen; diese zeigen einen leichten systematischen Gang zu größeren

⁴Bis auf die sog. "Sonder-PSCs", die hier der Übersichtlichkeit halber *nicht* mit dargestellt wurden; sie werden in Abschnitt 4.4.4 gesondert diskutiert.

 η und damit größeren Teilchen bei höheren $R_u - 1$, was nach der STS-Theorie zu erwarten ist. Die Punkte mit einer signifikanten Aerosoldepolarisation liegen systematisch bei höheren η , was darauf hindeutet, daß die festen Partikel systematisch größer sind als die STS-Tropfen. Im unteren Teil der Abbildung liegt praktisch nur Hintergrundaerosol; das mittlere η hier beträgt etwa -2 (Teilchen kleiner als ca. $0.25\mu m$).

- Deutlicher sieht man die Abhängigkeit des η von der Teilchenart in Abb. 4.8, einer Auftragung wie in Bild 4.4 aber mit η als Symbol-Parameter. Die Beobachtungen mit hohen η konzentrieren sich bei kleinen R_u und hohen δ^{Aer} ("Ia"). Dies ist wieder ein Beleg dafür, daß die festen PSC-Teilchen meist wesentlich größer als die STS-Tröpfchen sind; die Anzahldichte muß dann sehr gering sein, um die geringe Rückstreuung im Parallelkanal zu erklären.
- Die Koexistenz von festen und flüssigen Teilchen wird aus den nächsten beiden Auftragungen deutlich. Bild 4.9 zeigt die senkrecht polarisierte Komponente des Rückstreuverhältnisses, R⊥, über der Parallelkomponente R_{||}. Ganz klassisch sind bei R_{||} bis etwas 1,5 (Ia-PSCs nach Browell) hohe R⊥-Werte bei vergleichsweise hohen Temperaturen zu sehen. Rechts davon, im Gebiet der klassischen (kalten) Ib-Wolken, hat R⊥ jedoch keineswegs (innerhalb der Fehlergrenzen) einen Wert von 1, wie man es für Wolken aus Mie-Partikeln erwartet; vielmehr ist R⊥ fast immer > 1 mit einem typischen Wert von 2.
- In Bild 4.10 zeigt sich sehr schön das plötzliche Ansteigen von R_{\perp} , sobald die Temperatur unter T_{NAT} fällt (eigentlich schon bei $T - T_{\text{NAT}} \approx +2$ K, dies ist aber konsistent mit dem Fehler von bis zu 2,5 K in der Bestimmung der Temperaturen). Bei $T \approx T_{\text{STS}}$ scheint R_{\perp} ein Minimum aufzuweisen; es könnte darüber spekuliert werden, ob die konkurrierende Kondensation von HNO₃ in den STS-Teilchen zu kleineren Rückstreusignalen bei den festen Partikeln führt. Bei sehr tiefen Temperaturen, unter $T - T_{\text{NAT}} \approx -5,5$ K, geht R_{\perp} ebenfalls zurück (bis praktisch auf 1). Möglicherweise ist diese Tendenz wegen der geringen Zahl der Messungen bei diesen Temperaturen nicht signifikant.

4.4.3. Typische zeitliche Entwicklung

Die beiden hier behandelten PSC-Winter wiesen eine ähnliche Entwicklung auf [Biele *et al.*, 1998]; exemplarisch sind je drei charakteristische Profile für den Beginn, die Mitte und das Ende der PSC-"Saison" in Abb. 4.11 dargestellt. Die ersten PSC-Messungen (je linkes Profil) werden bei Temperaturen wenig unter T_{NAT} nur im querpolarisierten Kanal detektiert, d.h. es sind nur große feste Teilchen mit einer geringen Anzahldichte vorhanden; mit abnehmender Temperatur im arktischen Wirbel werden später auch im parallel polarisierten Kanal (Ib)-PSCs nachgewiesen (mittlere Profile). Es bildet sich in der Mitte des Winters oft eine typische "Sandwichstruktur" aus wie in den mittleren Profilen der beiden Abbildungen zu sehen. Ein typisches



Abbildung 4.11.: Typische PSC-Profile (Tagesmittel) am Anfang, der Mitte und am Ende der "PSC-Saison". In (a) sind drei Fälle für den Winter 1995/96 dargestellt, in (b) aus dem Winter 1996/97. Die oberen Teilbilder stellen jeweils das Rückstreuverhältnis (dicke Linie) und die Aerosoldepolarisation×10 (dünne Linie) dar; die durchgezogene vertikale Linie verdeutlicht R=1, d.h. aerosolfreie Atmosphäre. Die unteren Teilbilder zeigen die zugehörigen Profile von Temperatur (schwarz), $T_{\rm NAT}$ und $T_{\rm Ice}$ (gebrochene bzw. strichpunktierte Linien). Der jeweils schraftiert eingezeichnete Bereich verdeutlicht den Höhenbereich mit $T < T_{\rm NAT}$.

Merkmal hierbei ist, daß die Ib-Wolke niemals bis zu den Rändern des (hier schraffiert eingezeichneten) Höhenintervalls reicht, wo $T < T_{\text{NAT}}$; vielmehr findet man die Schichten mit depolarisierenden Teilchen in den Höhenbereichen, wo T gerade unterhalb von T_{NAT} ist. Am Ende der "PSC-Saison" (rechte Profile) sind wieder kleinere R_u charakteristisch; auch die starken depolarisierenden Schichten werden seltener bzw. nur abgeschwächt beobachtet.

Der prinzipielle Verlauf der zeitlichen Entwicklung der PSCs kann sehr gut mit dem Temperaturverlauf erklärt werden; am Anfang der PSC-"Saison" fallen die Temperaturen im arktischen Vortex in der unteren und mittleren Stratosphäre zum erstenmal synoptisch unter $T_{\rm NAT}$ und es kann zur Bildung von PSCs aus zunächst nur festen Partikeln kommen. Bei weiterer Abkühlung unter $T_{\rm STS}$ beginnen die flüssigen STS-Teilchen zu wachsen, man beobachtet Ib-PSCs in den kältesten Höhenbereichen mit oft gleichzeitiger Anwesenheit von festen Partikeln in dem (größeren) Höhenbereich wo $T < T_{\rm NAT}$. Zum Ende des Winters bzw. bei der Erwärmung des Wirbels werden zuerst die Ib-PSCs schwächer, dann lösen sich auch die Schichten mit den depolarisierenden Teilchen endgültig auf.

4.4.4. Klassifikation und Vergleich mit Modellrechnungen

Aus der Datenübersicht soll im folgenden versucht werden, eine sinnvolle Klassifikation von PSCs zu erarbeiten. Zunächst betrachte ich die konventionelle Auftragung von δ^{Aer} gegen R_u unter Hinzuziehung der Temperaturinformation (Abb. 4.4) und des Wellenlängenexponenten (Abb. 4.8).

"Normale" PSCs

Im R_u/δ^{Aer} -Bild 4.4 zeigt sich sehr klar, daß alle beobachteten PSCs in zwei Klassen zerfallen, solche mit hohen Aerosoldepolarisationen und niedrigen R_u und solche mit sehr kleinem δ^{Aer} , aber Rückstreuverhältnissen von ca. 1,5 bis 6. Dies ist im Rahmen der Fehlergrenzen mit der "klassischen" Einteilung von Browell et al. [1990] vereinbar, insbesondere wenn man die hohen Fehler von δ^{Aer} bei kleinen Rückstreuverhältnissen bedenkt. Allerdings gibt es keine Lücke bei den Ru zwischen den Iaund den Ib-PSCs wie in Tabelle 1.2, vielmehr gehen die nichtdepolarisierenden Partikel übergangslos aus dem Hintergrundaerosol (in der Nähe von $R_u = 0$) hervor. Die Spezifikation des Wellenlängenexponenten η des PSC-Typs Ia nach Browell läßt sich mit den vorliegenden Daten schlecht überprüfen, da die Unsicherheit von η bei den kleinen R_u der Ia-Teilchen zu groß wird. Hinweise, daß die stark depolarisierenden PSCs typischerweise größere Teilchen enthalten, geben aber die genaueren Rückstreusondenprofile beim Vergleich mit Lidardaten; die bereits gezeigte Abb. 3.34 (Seite 104) ist ein Beispiel hierfür. Der Wellenlängenexponent der nicht $(\delta^{\text{Aer}} < 2.5\%)$ depolarisierenden Teilchen ist im Mittel -1,7 und nicht -3 bis -2 wie in Tab. 1.2; dies kann jedoch qualitativ auf die Verwendung des Wellenlängenpaars (353 nm;532 nm) statt (603 nm;1064 nm) zurückgeführt werden.

Koexistenz von festen und flüssigen Partikeln

Die Abb. 4.9 bzw. 4.10 haben bereits für die gesamte Datenbasis gezeigt, daß im allgemeinen bei großen R_u , d.h. nach bisherigen Verständnis in Ib-PSCs, das Signal R_{\perp} im querpolarisierten Kanal *nicht* auf 1 sinkt, sondern meist signifikant darüber liegt. Gleichzeitig geht aber (vgl. Abb. 4.4) die Aerosoldepolarisation $\delta^{Aer} \rightarrow 0$ (sie ist innerhalb der Fehlergrenzen mit 0 vereinbar); ohne Information über R_{\perp} würde man diese Meßpunkte als reine Ib-PSCs klassifizieren. Typische Höhenprofile für solche Fälle zeigt Abb. 4.11 insbesondere an den Tagen, die für die Mitte der "PSC-Saison" charakteristisch sind. Dies sog. "Sandwich-PSCs" zeigen Ib-Wolken in der kalten mittleren Höhenschicht und Ia-Wolken darüber und darunter, wo die Temperatur nur knapp unter T_{NAT} liegt. In Bild 4.12 sind Profile der Komponenten des Rückstreuverhältnisses für den 12.2.1997 dargestellt; man sieht deutlich, daß R_{\perp} innerhalb der "Ib"-Schicht nur auf Werte von ca. 2 sinkt. Dies ist für fast alle



Abbildung 4.12.: Oberes Bild: R_{\parallel} - und R_{\perp} -Profile der PSC vom 12.2.97, einer typischen "Sandwich"-PSC. R_{\perp} dicke Linie, R_{\parallel} dünne Kurve. Das untere Bild zeigt die korrespondierenden Profile der Volumendepolarisation und damit die Schichten, in denen depolarisierende Teilchen beobachtet wurden. Die Profile zu den zwei verschiedenen Beobachtungszeiten (s. oben rechts) sind durch einen Offset von 4 bzw. 0.04 voneinander getrennt gezeichnet.

derartigen geschichteten PSCs typisch; R_{\perp} hat zwar an den Rändern die höchsten Werte, liegt aber innerhalb der "flüssigen" Schicht fast immer signifikant über 1. Da die durch experimentelle Fehler hervorgerufene positive Korrelation von R_{\perp} mit R_{\parallel} *a posteriori* beseitigt worden ist (siehe Anhang E.3), ist dieses Ergebnis nur geo-

physikalisch zu erklären: Offenbar koexistieren feste PSC-Teilchen bei $T < T_{\rm NAT}$ mit den flüssigen STS-Teilchen, es liegt eine externe Mischung vor. Beim Vergleich der Aerosoldepolaristion mit dem Rückstreuprofil ist das oft nicht zu sehen, da die hohen R_{\parallel} der flüssigen Teilchen die Rückstreuung dominieren und damit $\delta^{\rm Aer}$ auf kleine Werte drücken, "maskieren". Ein ähnliches Ergebnis fand Wedekind [1997] an PSC-Beobachtungen über Sodankylä.

Diese Mischung von Partikeln kann modelliert werden. Abbildung 4.13 von Tsias [1998] zeigt eine mikrophysikalische Berechnung der (δ^{Aer}, R) -Charakteristik für eine externe Mischung von festen NAT- und flüssigen STS-Teilchen bei typischen stratosphärischen Bedingungen (60 hPa, 10 ppbv HNO₃, 5 ppmv H₂O und 0,1 ppbv H₂SO₄). Angenommen ist dabei, daß nur 0,5 ppbv Salpetersäure zu NAT kondensiert ist, die Anzahldichte beträgt danach nur 0,003 cm⁻³; die NAT-Teilchen werden als nahezu monodispers (Lognormalverteilung, Breitenparameter $\sigma = 1,01$) mit einem Modenradius $\bar{r} = 2\mu m$ angesehen. Der Scharparameter der Kurven ist die Aspherizität der NAT-Partikel. Für die flüssigen Teilchen (STS) wird eine konstante Anzahldichte von 10 cm⁻³ und eine relativ breite Lognormalverteilung ($\sigma = 1, 80$ wie Hintergrundaerosol, vgl. Abschnitt 1.4.1) angenommen; der freie Parameter, dargestellt durch die Farbskala, ist die Menge HNO3 (als ppbv ausgedrückt), die in der flüssigen Phase vorliegt; der Anteil der HNO3 in der flüssigen Phase ist nach dem STS-Modell eine streng monotone Funktion der Temperatur (vgl. 3.29), d.h. je tiefer die Temperatur, desto mehr Salpetersäure in der flüssigen Phase. Man vergleiche Abbildung 4.13 mit den Lidardaten, Abbildung 4.4; die Übereinstimmung ist nicht nur qualitativ frappierend! Offenbar können bereits die einfachen Annahmen im Modell von [Tsias, 1998] den Großteil der beobachteten (δ^{Aer}, R)-Charakteristik der in zwei Jahren über Ny-Ålesund beobachteten PSCs erklären. Weiterhin wird die These gestützt, daß in den meisten hier beschriebenen PSC-Beobachtungen eine externe Mischung von flüssigen und festen Teilchen vorliegt, was die Klassifizierung in "reine" Ia- bzw. Ib-Wolken schwierig macht. Weiterhin sind offenbar stets nur größenordungsmäßig 5% der verfügbaren HNO3 in festen Partikeln kondensiert, während die STS-Tropfen fast das ganze Reservoir an Salpetersäure ausschöpfen können.

Die Abb. 4.9 läßt weiterhin erkennen, daß die R_⊥ ein Maximum für kleine R_{||} besitzten und bei größeren Rückstreuverhältnissen als ca. 1,5, also bei beginnender STS-Kondensation, systematisch auf ca. 2–3 abnehmen. Dies könnte damit erklärt werden, daß die Kondensation von HNO₃ in den STS-Teilchen das Anwachsen der festen Partikel hemmt bzw. eine Umverteilung von kondensierter Materie von festen in die flüssigen Aerosole stattfindet. Mit anderen Worten, für $T < T_{\rm STS}$ wachsen die STS-Teilchen offenbar auf Kosten der NAT-Partikel.

Sonderfälle

Wie oben bereits erwähnt, fallen die PSC-Beobachtungen von lediglich drei (von über 100) Meßtagen durch ungewöhnliche R/δ -Kombinationen auf (Abbildung 4.14). Es



Abbildung 4.13.: Theoretische Berechnung der R/δ -Charakteristik bei 532 nm eines Gemisches von STS- und NAT-Aerosol; Randbedingung ist, daß zusammen 0.5 ppbv HNO₃ kondensiert sind. S ist das Rückstreuverhältnis. Nach Tsias [1998].

sind dies die PSCs vom 21./22.12.1995, 6.1.1996 und 6.2.1996. Die Abbildung 4.15 zeigt für diese Zeiten die Temperaturprofile.

Am 21./22.12.95 fällt das wellenförmige Temperaturprofil auf. Hieraus kann man schließen, daß für diesen Zeitraum die Schwerewellenaktivität über Ny-Ålesund ungewöhnlich hoch war; nach Meilinger *et al.* [1995] ist es möglich, daß hier Nichtgleichgewichtszustände bei schnellen Temperaturänderungen auch für $T > T_{\text{NAT}}$ zur Nukleation von HNO₃ · 3 H₂O geführt haben können. Die Ortstrajektorien zeigen einen komplexen Weg der Luftmassen von der grönländischen Ostküste ($T < T_{\text{NAT}}$) über den skandinavischen Gebirgsrücken, die Halbinsel Kola (hier $T > T_{\text{NAT}}$), Nowaja Semlja (wieder $T < T_{\text{NAT}}$) und Ost-Spitzbergen.

Die Temperaturgeschichte der Luftmassen, die am 21./22.12.95 in Ny-Ålesund ankommen, weist in den letzten 1,5 Tagen eine hohe Kühlrate von fast 5 K/d aus.

Am 6.1.96 zeigen die Rückwärtstrajektorien ebenfalls eine schnelle Abkühlung der Luftmassen von etwa 4 K/d in den letzten drei Tagen bis zu einem Temperaturminimum knapp oberhalb $T_{\rm Ice}$ 12 Stunden vor dem Beobachtungszeitpunkt, gefolgt von einer mäßigen Erwärmung um bis zu 2 K. 12–24 Stunden vor der Beobachtung



Abbildung 4.14.: Aerosoldepolarisation vs. R_u für die drei "aus dem Rahmen fallenden" PSC-Meßtage. Die Symbole + stehen für den 21./22.12.95, o für den 6.1.96 und * für den 6.2.96



Abbildung 4.15.: Atmosphärentemperatur zusammen mit den wichtigsten Existenztemperaturen für die Zeiten der "Sonder-PSCs". Die glatten Kurven bezeichnen, in Richtung steigender Temperatur, T_{Ice} , T_{STS} und T_{NAT} .

passierten die Luftpakete die Nordostküste Grönlands.

Am 6.2.96 liegt die Temperatur in weiten Höhenbereichen nahe bei oder leicht unterhalb $T_{\rm Ice}$; für eine PSC vom Typ II sind die Rückstreuverhältnisse jedoch viel zu gering. Es kann höchstens darüber spekuliert werden, ob gerade beginnende Eisbildung beobachtet wurde. Die Rückwärtstrajektorien zeigen eine extrem tiefe Temperatur $\approx T_{\rm Ice}$ fast 24 Stunden vor der Beobachtungszeit. Die Ortstrajektorien zeigen einen Weg der Luftmassen von der Südspitze Grönlands über die Dänemarkstraße nach Spitzbergen, praktisch ohne Landberührung. Die Messungen dieses Tages sind die ungewöhnlichsten der drei "Sonder-PSCs". Die Abbildung 4.4.4 zeigt detailliert die Profile der Rückstreuverhältnisse R_{\perp} und R_{\parallel} , die Aerosoldepolarisation und die Auftragung R_{\parallel} versus $\delta^{\rm Aer}$ in 15 m-Auflösung und stündlicher Mittelung. Offenbar existiert in 20–22 km Höhe eine Ib-Schicht, während im Höhenbereich 14–19 km die "Id"-Partikel mit R_{\perp} bis zu 100 beobachtet werden.

Auch aus anderen Lidarmessungen ist ein ähnlich ungewöhnlicher PSC-Typ in einigen Fällen beobachtet worden. Zwei derartige Messungen werden in Abbildung 4.17 vorgestellt; verglichen mit den hier diskutierten Beobachtungen (Figur 4.14) fällt auf, daß die Aerosoldepolarisation nur Werte von 0,1 bis 0,3 erreicht und daß ein kontinuierlicher Übergang zum Bereich der klassischen Ia-PSCs (kleine R) existiert. Ich möchte hier eine mikrophysikalische Modellrechung vorstellen (Abb. 4.18 von Tsias [1998]), die eine bemerkenswerte Übereinstimmung mit den Beobachtungsdaten der "Sonder-PSCs" zeigt. Die Abbildung zeigt die (δ^{Aer}, R) -Charakteristik für monomodale NAT-Teilchen bei typischen stratosphärischen Bedingungen (60 hPa, 10 ppbv HNO₃, 5 ppmv H₂O und 0,1 ppbv H₂SO₄) wie in Abb. 4.13. Angenommen ist hier jedoch, daß 0,5 ppbv Salpetersäure zu NAT kondensiert sind; der freie Parameter (Farbskala) ist der effektive Radius der Teilchen, der Scharparameter der Kurven ist die Aspherizität der NAT-Partikel. Offenbar paßt die gerechnete (δ^{Aer}, R)-Charakteristik zu den Lidardaten insbes. der PSC vom 6.2.1996 (Abbildung 4.14). Verfeinerte theoretische Berechnungen [Tsias, 1998], die auch die zeitlich variable Größenverteilung der NAT-Partikel simulieren, können auch die in Abb. 4.17 dargestellten Messungen erklären; anscheinend ist die Messung aus Ny-Ålesund vom 6.2.96 gerade in einem solchen Zeitfenster gemacht worden, daß die eher speziellen Annahmen von Abbildung 4.18 näherungsweise erfüllt waren, während die beiden anderen Messungen vom 21./22.12.95 und vom 6.1.96 den Fall einer "Sonder-PSC in Entwicklung" zeigen.

Die diskutierten Sonderfälle lassen also den Schluß zu, daß hier ausnahmsweise fast die gesamte im Volumen enthaltene Salpetersäure zu $HNO_3 \cdot 3 H_2O$ oder einem anderen festen Hydrat kondensiert ist (bei weitgehender Abwesenheit von STS-Partikeln) und damit die beobachten hohen Aerosoldepolarisationen bei gleichzeitigem hohen Rückstreuverhältnis bewirkt. Ähnliche Beobachtungen diskutiert Wedekind [1997] anhand von Lidarbeobachtungen in Sodankylä/Finnland; er nennt diesen PSC-Typ tentativ "Id"⁵. Er kommt ebenfalls zu dem Schluß, daß bei diesen Rückstreucharakte-

⁵Der Name "Ic" ist bereits 1996 von Tabazadeh *et al.* verwendet worden.






(c)



4. Ergebnisse



Abbildung 4.17.: Ein neuer PSC-Typ? Bild (a) zeigt zwei Lidarmessungen von Januar 1997; die Messung vom 7./8.1. ist die mit der "Id"-Charakteristik, während zum Vergleich eine "normale" PSC vom 19.1.97 dargestellt ist. Die PSC vom 7./8.1. war zugleich die erste Beobachtung des Winters 1996/97; die Temperatur in der Wolke war $\approx T_{\rm NAT}$. Bemerkenswert ist die große Höhe (bis 28 km). (ALOMAR-Lidar, mit freundlicher Genehmigung von Hela Mehrtens und Sederico Sierli). Bild (b) [Peter et al., 1997] ist ein Plot der flugzeuggetragenen Lidardaten einer ausgedehnten PSC südlich von Spitzbergen (ca. 76° N) in ca. 26 km Höhe vom 31.12.96; mit freundlicher Genehmigung von Martin Wirth und Wolfgang Renger, DLR Oberpfaffenhofen

ristika der überwiegende Teil der gasförmigen HNO_3 zu festen Partikeln kondensiert sein muß, im Gegensatz zu den Ia-Wolken mit höchstens (10...20)% kondensierter HNO_3 [ebendort].

Das hohe Rückstreuverhältnis kann entweder durch eine höhere Anzahldichte als bei normalen Ia-Partikeln oder durch wesentlich größere Teilchen erklärt werden. Der Wellenlängenexponent η ist für diese Partikel in der Tat > 0, was auf Radien deutet, die größer als die Wellenlänge sind. Ein $\eta \gtrsim 0$ deutet nach Abb. 2.2 (Seite 30) auf einen mittleren effektiven Radius von 1, 5 μ m. Wenn die "normalen" Ia-Teilchen einen typischen Radius von 0, 5 μ m haben, kann überschlägig eine Erhöhung des Rückstreuverhältnisses von 1,2 auf 3 allein durch den größeren Radius der "Id-Partikel" erklärt werden (Der Rückstreukoeffizient und damit das Aerosolrückstreuverhältnis R-1 ist annähernd $\propto \bar{r}^2$ [Wedekind, 1997]; $1+(1,2-1)\times(1,5/0,5)^2 \approx 3$). Es stellt sich jetzt noch die Frage, ob die zur Verfügung stehende Zeit (wenige Stun-

4. Ergebnisse



Abbildung 4.18.: Theoretische Berechnung der R/δ -Charakteristik bei 532 nm von NAT-Aerosol; Randbedingung ist, daß 5 ppbv HNO₃ kondensiert sind; die Punkte sind jeweils Aspekt-Verhältnis-Scharen zu je einem Wert des effektiven Radius (vgl. Farbcode). S ist hier wieder das Rückstreuverhältnis.

den bis 1-3 Tage) für das Wachstum von so großen Partikeln ($\bar{r} > 1\mu m$) ausreicht. Mikrophysikalische Modellrechnungen [Tsias, 1998] (nicht gezeigt) scheinen diese Frage zu bejahen; die beste Übereinstimmung mit den Meßergebnissen wird von einer Simulation des Partikelwachstums erreicht, wo nur wenig mehr Teilchen aktiviert sind als in "klassischen" Ia-PSCs, auf diesen kondensiert jedoch infolge der besonderen Temperaturgeschichte die überwiegende Menge der verfügbaren Salpetersäure. Dieses Resultat steht im Gegensatz zu Wedekind [1997], der die hohen Rückstreuverhältnisse der "Id"-PSCs mit einer höheren Anzahldichte erklärt.

4.5. Überprüfung von mikrophysikalischen Modellen

Nachdem im vorangegangenen Kapitel bereits die (δ^{Aer}, R) -Charakteristik von "normalen" und von "Sonder"-PSCs erfolgreich mit mikrophysikalische Modellrechnungen verglichen wurde, soll in diesem Abschnitt anhand der Lidar-Daten versucht werden, drei spezielle Fragen zu beantworten: • Gibt es Hinweise auf die Existenz von SAT, d.h. von gefrorenem Hintergrundaerosol, in der Stratosphäre?

Hintergrund: SAT könnte unter Umständen als Kondensationskeim für feste (NAT-) Teilchen dienen.

• Ist die Unterschreitung der STS-Temperatur (T_{STS}) eine hinreichende Bedingung für die Beobachtung von PSCs vom Typ Ib?

Hintergrund: Das wäre ein gewichtiges Argument, daß sich PSCs vom Typ Ib als Wolken aus STS-Partikeln erklären lassen.

• Lassen sich Hinweise auf einen heterogenen Gefriermechanismus von PSC-Teilchen finden?

Hintergrund: Dies wäre neben der Kondensation auf SAT der zweite Bildungsmechanismus für feste PSC-Teilchen, der – von von heutigen mikrophysikalischen Theorien aus – ohne starke Abkühlungen unter die synoptische Temperatur auskommt.

4.5.1. Existenz von SAT in der Stratosphäre

SAT, Schwefelsäuretetrahydrat, ist als ein möglicher Keim zur Bildung von festen NAT-Partikeln bei Temperaturen oberhalb des Frostpunktes interessant, vgl. Abschnitt 1.4.3, Seite 18. Wenn SAT-Aerosol in der Stratosphäre vorhanden ist, müßten sich die gefrorenen H₂SO₄ · 4 H₂O-Partikel durch eine von Null verschiedene Aerosoldepolarisation bzw. eine Erhöhung der Volumendepolarisation über den molekularen Wert im Temperaturbereich T_{NAT} bis ≈ 210 K (genauer: $T_{SAT-Melt}$) bemerkbar machen. In Abb. 4.19 ist die Aerosoldepolarisation gegen $T - T_{\text{NAT}}$ für Messungen bei hohen Stratosphärentemperaturen aufgetragen. Da hier praktisch nur Hintergrundaerosol mit kleinen Rückstreuverhältnissen gemessen wird, sind die Fehler von δ^{Aer} beträchtlich; die Teilabbildungen zeigen deshalb, von links nach rechts, $\delta^{\text{Aer}} - \mathcal{E}(\delta^{\text{Aer}}), \ \delta^{\text{Aer}} - 2\mathcal{E}(\delta^{\text{Aer}}), \ \delta^{\text{Aer}} - 3\mathcal{E}(\delta^{\text{Aer}}).$ Offenbar existieren Daten, wo die Aerosoldepolarisation signifikant (drei Standardabweichungen) größer als Null ist, bis ca. 10 K oberhalb T_{NAT} . δ^{Aer} selbst muß, mit dem gleichen Signifikanzlevel, mindestens $\delta^{\text{Aer}} = 0,005$ betragen (mittlerer Wert: 0,01–0,02). Um diese Depolarisation zu erzeugen, müssen die Partikel nach den theroretischen Berechnungen von Mishchenko et al. [1996a,b]; Mishchenko und Sassen [1998] eine bestimmte Mindestgröße besitzen; je nach Form der Partikel ergibt sich ein typischer Mindestradius $r_{eff} \approx 0, 2\mu m$ mit einer ziemlich breiten Streuung je nach Form und Abweichung von der Kugelgestalt (Extrema: $0,006\mu m$ bzw. $0,5\mu m$). Daß deformierte flüssige Schwefelsäureaerosole mit einer kleinen Abweichung von der Kugelgestalt (5%) die beobachteten Depolarisationen erzeugen können, ist – nach denselben Rechnungen – unwahrscheinlich, weil das Hintergrundaerosol die dafür notwendigen großen Radien $r > 0, 4\mu m$ nicht enthält. Damit ergibt sich:

4. Ergebnisse



Abbildung 4.19.: δ^{Aer} vs. $T - T_{\text{NAT}}$ im Bereich warmer Temperaturen; Messungen vom Winter 1995/96. Details siehe Text.

- 1. Die Existenz von gefrorenem Hintergrundaerosol, d.h. SAT, kann für Temperaturen zwischen $T_{\rm NAT}$ und $T_{\rm SAT-melt}$ für kleine Teilchen nicht ausgeschlossen werden.
- 2. Es existieren Messungen für $T_{\text{NAT}} < T < T_{\text{SAT-melt}}$ mit signifikanter Aerosoldepolarisation bzw. signifikant erhöhter Volumendepolarisation. Theoretische Berechnungen von Tsias [1998] zeigen, daß beim Gefrieren von 0,1 ppbv der verfügbaren H₂SO₄ des Hintergrundaerosols Aerosoldepolarisationen von einigen % erwartet werden können. Das stützt die These, daß in der Stratosphäre tatsächlich SAT beobachtet werden kann.
- 3. Aufgrund der größeren Fehler in der Bestimmung von δ^{Aer} bei den kleinen R im Hintergrundaerosol und der grundsätzlichen, geringen Empfindlichkeit von polarisationsempfindlichen Lidar-Messungen für *kleine* asphärische (=feste) Teilchen ist eine genauere, quantitative Aussage nicht möglich.

4.5.2. Ausreichende Bedingung für die Bildung von STS-PSCs

Es soll nun untersucht werden, ob hinreichend tiefe Temperaturen, $T \leq T_{\rm STS}$, tatsächlich zwingend zur Bildung von STS-Partikeln (Ib-PSCs) führen. Dazu wurde untersucht, ab welcher Temperatur das Rückstreuverhältnis signifikant über das Rückstreuverhältnis des Hintergrundaerosols von ca. 1,05 bis 1,2 steigt. Es ergibt sich für beide Meßwinter, daß unterhalb von $T - T_{\rm NAT} = (-5, 8 \pm 0, 4)$ K entsprechend $T - T_{\rm STS} = (-2, 2 \pm 0, 4)$ K alle Datenpunkte ein signifikant erhöhtes Rückstreuverhältnis aufweisen. Mit der gegebenen Unsicherheit von $T - T_{\rm NAT}$ bzw. $T - T_{\rm STS}$ von $\pm 2, 5$ K (vgl. Abschnitt 3.5.5) heißt das: Die Unterschreitung von $T_{\rm STS}$ führt in jedem Falls zur Bildung von PSCs.

4.5.3. Heterogenes Gefrieren?

In Abschnitt 1.4.3 wurde bereits ein Prozeß vorgestellt (mesoskalige schnelle Temperaturflukuationen), der zum Gefrieren von flüssigen Aerosolen oberhalb $T_{\rm Eis}$ führen könnte [Meilinger et al., 1995; Tsias et al., 1997b]. Es bleibt jedoch zur Zeit offen, ob gegenwärtig verfügbare mesoskalige Modelle in der Lage sind, die Amplitude und Struktur der Temperaturfluktuationen korrekt zu berechnen [Peter, 1997]. Eine andere Möglichkeit ist das heterogene Gefrieren flüssiger Teilchen. Labormessungen an STS-Tröpfchen unter stratosphärischen Bedingungen [Krämer et al., 1998b] zeigen, daß heterogenes Gefrieren erst bei Schwefelsäureanteilen von $<40\,Gewichts-\%$ möglich ist; das entspricht etwa $T - T_{\text{NAT}} < -2$ K. In diesen Experimenten wurden die Partikel allerdings mit Eiskeimen geimpft; es bleibt zu untersuchen, ob in der Stratosphäre oberhalb $T_{\rm Eis}$ überhaupt feste Kondensationskeime in den STS-Tröpfchen enthalten sein können. Sheridan et al. [1994] haben in stratosphärischen Aerosolen nur in etwa 2% aller Fälle unlösliche Kerne (größer 10-30 nm) gefunden. Koop et al. [1995] und Biermann et al. [1996] untersuchten heterogenes Gefrieren an einigen unlöslichen Substanzen, die in der Stratosphäre vorkommen könnten, inklusive Mikrometeorite. In keinen der untersuchten Fälle stieg die Nukleationsrate auf stratosphärisch relevante Größenordnungen; die genannten Autoren kommen zu dem Schluß, daß heterogene Gefrierprozesse in der Stratosphäre unwahrscheinlich sind.

Auch mit den vorliegenden Messungen kann diese Frage nicht entschieden werden: hierzu wäre es nämlich notwendig, Lidarbeobachtungen von festen Partikeln zu finden, deren Temperaturgeschichte alle anderen möglichen Gefrierprozesse ausschließt. Wegen des Fehlens von mesoskaligen Rückwärtstrajektorien der Temperatur und der Möglichkeit, daß SAT-Partikel als Kondensationskerne dienen können, ist dies jedoch z.Zt. nicht möglich.

4.6. Bedeutung von kleinskaligen Temperaturvariationen

Die Temperatur ist der dominierende Parameter für die Bildung und Auflösung von PSCs. Zur Zeit ist man weit davon entfernt die stratosphärischen Temperaturen genau genug zu kennen, um PSCs korrekt zu modellieren. Die stratosphärischen Temperaturen über der winterlichen Arktis sind allgemein höher als über der Antarktis, oft liegen sie nur wenige Kelvin über der PSC-Bildungstemperatur; deshalb können lokale bis regionale Störungen des synoptischen Temperaturfeldes leicht zur Entstehung von PSCs führen. Carslaw *et al.* [1998] haben gezeigt, daß lokale PSCs (z.B. in Leewellen) zu einer nahezu vollständigen Chloraktivierung mit nachfolgender Ozonzerstörung führen können.



Abbildung 4.20.: Häufigkeit von Abkühlereignissen durch mountain waves. Dargestellt ist die Frequenz, mit der Abkühlereignisse größer als ΔT in Luftpaketen innerhalb des arktischen Wirbels während Dezember und Januar 1994–95 auftraten. Die Resultate sind aufgetragen als mittlere Zeit zwischen mountain wavesereignissen der Abkühlung ΔT oder größer (obere Kurve, linke Achse) und als Bruchteil aller Ereignisse, die zu Temperaturen $\leq T_{\rm Eis}$ bzw. $\leq T_{\rm Eis} - 4 K$ führten (untere Kurven, rechte Achse). Simulation mit ECMWF-Windfeldern und Parametrisierung der mountain waves nach Bacmeister et al. [1994] für das 550 K-Niveau (≈ 25 mbar) am 1.Dezember (≈ 500 K am 31.Januar wegen diabatischem Absinken). Nach [Carslaw et al., 1998, fig.3] mit freundlicher Genehmigung von K.S. Carslaw.

Allgemein können alle Hindernisse⁶ für die troposphärische Strömung zur Anregung

⁶Solche Hindernisse können orographische Merkmale wie Gebirgsketten oder auch sich bewegende Frontensysteme sein.

4. Ergebnisse

von aufwärts propagierenden Schwerewellen und zu einer Coriolis-Ablenkung der atmosphärischen Strömung führen. Je nach Zustand der Atmosphäre können daraus Temperaturstörungen in der Stratosphäre und ggf. PSC-Bildung resultieren. Abbildung 4.20 aus [Carslaw *et al.*, 1998] zeigt exemplarisch für den arktischen Wirbel im Winter 1994/95 die Häufigkeit von Abkühlereignissen in *mountain waves*; z.B. konnte alle 10 Tage eine Abkühlung von mindestens 10 K unter die synoptische Temperatur berechnet werden, wobei 35% der Ereignisse die Luftpakete unter $T_{\rm Ice} - 4$ K und 70% unter $T_{\rm Ice}$ abkühlten. Die Luftmassen im Vortex zirkulieren auf derselben Zeitskala einmal um das Wirbelzentrum; das bedeutet, daß im Mittel bei jedem Umlauf ein signifikantes Abkühlereignis zu erwarten ist.

In der vorliegenden Arbeit wurde gezeigt, daß regionale oder lokale Abkühlereignisse (z.B. in *mountain waves*) mit hoher Wahrscheinlichkeit für die Bildung von festen PSC-Teilchen verantwortlich sein müssen. Diese Partikel können sich nach dem Gefrieren über große Gebiete des arktischen Wirbels ausbreiten, da für das Weiterexistieren der einmal gebildeten Teilchen lediglich $T < T_{\text{NAT}}$ erforderlich ist. Mit den Bebachtungsdaten verträglich sind zwei Szenarien (die sich nicht gegenseitig ausschließen) zur Bildung fester Teilchen:

- Erzeugung von prä-aktiviertem SAT z.B. zu Beginn der "PSC-Saison", das dann wegen der seltenen Überschreitung der SAT-Schmelztemperatur lange im Wirbel überlebt und bei Unterschreitung von $T_{\rm NAT}$ immer wieder zur Kondensation von HNO₃ zu NAT führen kann.
- Ko-Kondensation von Salpetersäurehydraten bei Eisbildung in kalten Leewellen; das Eis verdampft bald darauf wieder, die Salpetersäurehydrate (die sich langsam in die thermodynamisch stabile Form, NAT, umwandeln) überleben wiederum wenn $T < T_{\text{NAT}}$.

4.7. Trajektorienrechungen

Es soll im folgenden untersucht werden, ob die Herkunft der über Ny-Ålesund beobachten Luftpakete eine Korrelation mit dem darin beobachteten PSC-Typ aufweist. Solche Vergleiche in bezug auf die Temperaturgeschichte sind schon oft gemacht worden (vgl. Beyerle [1994]; Stebel [1998]; Wedekind [1997]; Larsen *et al.* [1997]) und ergaben je nach verwendeter Datenbasis oftmals inkonsistente Ergebnisse. Oft wurden nur anhand von Fallbeispielen von einzelnen PSCs die Temperaturgeschichte auf einzelnen Höhen studiert; eine Hauptfehlerquelle sind die ungenauen Temperaturen der meteorologischen Felder und damit der berechneten Trajektorien. Die systematischen Fehler können bis zu 2 K betragen und die Streuung ist (vgl. 3.5.3) ebenfalls größenordungsmäßig ± 2 K. Damit ist ein Vergleich mit den Existenztemperaturen z.B. für NAT oder Eis oft wenig aussagekräftig.

Hier wurde deshalb ein etwas anderer Weg eingeschlagen: einmal wird auch die Herkunft der Luftpakete betrachtet, d.h. die Ortstrajektorien. Zum anderen wurde eine



Abbildung 4.21.: Stereographische Karte der Nordpolarregion. Die fett umrandeten Gebiete (schwarze Identifizierungsnummern) sind nach Carslaw et al. [1998] diejenigen Gebiete, für die Berechnungen eine hohe Wahrscheinlichkeit von signifikanten Abkühlereignissen in mountain waves vorausgesagt haben.

eher statistische Herangehensweise gewählt: es sind Rückwärtstrajektorien (vgl. Abschnitt 3.5.3 auf S. 92) für alle relevanten Datenpunkte berechnet worden, d.h. für alle Rückstreumessungen (auf 200 m Höhenauflösung integrierte Stundenmittel) der Aerosol-Datenbank (siehe Abschnitt 4.4.1) mit $T < T_{\rm NAT}^{7}$.

Zur Betrachtung der Korrelationen zwischen beobachteten PSC-Aerosoleigenschaften und den Rückwärtstrajektorien kann nun eine beliebige Teilmenge der Daten (z.B. alle depolarisierenden PSC-Meßpunkte) ausgewählt werden; es werden dann nur die Temperatur- und Ortstrajektorien der Luftpakete dieser Teilmengen zusammen dargestellt. Dieses Vorgehen hat sich zur Betrachtung der Temperaturgeschichte bewährt, da sich aus der Schar aller Temperaturkurven leicht eine mittlere Temperaturkurve berechnen läßt (zusammen mit der Standardabweichung aller Kurven um die mittlere). Bei den Ortskurven ist die Analyse schwieriger, da bei den etwa 10000 vorliegenden Trajektorien auch die einer Teilmenge sehr schnell fast jedes Gebiet der Arktis überdecken. Hier wurde deshalb

⁷Nur für $T < T_{\text{NAT}}$ deshalb, weil für höhere Temperaturen keine PSC-Partikel beobachtet wurden.

ein anderer Ansatz gewählt; für jeden Meßpunkt mit $T < T_{\rm NAT}$ wurde die Ortskurve daraufhin untersucht, ob sie irgendwann eines der in Abb. 4.21 definierten Gebiete trifft. Danach wird die maximale Temperatur im Zeitintervall vom letzten "Treffer" bis zum Beobachtungszeitpunkt sowie die Indentifizierungsnummer des letzten getroffenen Gebietes bestimmt.

Damit sind objektive Größen gegeben, die direkt mit den beobachteten Aerosoleigenschaften der Datenbasis verglichen werden können.

4.7.1. Temperatur-Rückwärtstrajektorien

Zunächst definiere ich die Kriterien, anhand derer die Messungen eingeteilt wurden:

- Überwiegend gefrorene Partikel (Ia):
 - 1. Nach Browell: $R_u + \mathcal{E}(R_u) > 1, 1 \land R_u \mathcal{E}(R_u) < 1, 4 \land \delta^{Aer} \mathcal{E}(\delta^{Aer}) > 0,025 \land \delta^{Aer} + \mathcal{E}(\delta^{Aer}) > 0, 3 \land \delta^{Aer} \mathcal{E}(\delta^{Aer}) < 0, 5.$

In Worten: Innerhalb der Fehlergrenzen liegt R_u zwischen 1,1 und 1,4 und δ^{Aer} zwischen 0,3 und 0,5 (auf jeden Fall > 0,025).

 $\begin{array}{ll} \text{2. Diese Arbeit: } R_u + \mathcal{E}(R_u) > 1, 0 \ \land \ R_u + \mathcal{E}(R_u) < 1,75 \ \land \ \delta^{Aer} - \mathcal{E}(\delta^{Aer}) > \\ 0,025 \ \land \ R_\perp - \mathcal{E}(R_\perp) > 2, 0. \end{array}$

In Worten: Innerhalb der Fehlergrenzen liegt R_u zwischen 1,0 und 1,75, δ^{Aer} ist größer 0,025 und R_\perp ist größer 2,0.

- Überwiegend flüssige Partikel (Ib):
 - 1. Nach Browell: $R_u + \mathcal{E}(R_u) > 2, 5 \land R_u \mathcal{E}(R_u) < 7, 5 \land \delta^{Aer} \mathcal{E}(\delta^{Aer}) < 0,025 \land \delta^{Aer} + \mathcal{E}(\delta^{Aer}) > 0,005 \land \delta^{Aer} + \mathcal{E}(\delta^{Aer}) < 0, 3 \land T < T_{NAT}.$ In Worten: Innerhalb der Fehlergrenzen liegt R_u zwischen 2,5 und 7,5, δ^{Aer} zwischen 0,005 und 0,025 (auf jeden Fall < 0, 3) und es gilt $T < T_{NAT}$.
 - 2. Diese Arbeit: $R_u \mathcal{E}(R_u) > 1,75 \land R_\perp + \mathcal{E}(R_\perp) \le 2,0 \land \delta^{Aer} + \mathcal{E}(\delta^{Aer}) < 0,025 \land T T_{STS} 2,5 < 0.$

In Worten: Innerhalb der Fehlergrenzen liegt R_u über 1,75, R_{\perp} ist kleiner 2, δ^{Aer} kleiner 0,025 und die Temperatur unter T_{STS} .

Temperaturgeschichte von überwiegend gefrorenen Partikeln

Die Temperaturgeschichten zeigen im Durchschnitt eine langandauernde (> 1 d) tiefe Temperatur $T < T_{\rm NAT}$ vor der Beobachtung. Dafür gibt es zwei mögliche Erklärungen: entweder entstehen die festen Teilchen in einem langsamen Gefrier- bzw. Kondensationsprozeß (es kommt die Kondensation von HNO₃ auf präaktiviertem SAT in Frage), oder die Chance des Luftpaketes, ein Abkühlereignis in einer mountain wave zu erleiden, ist größer.

Temperaturgeschichte von überwiegend flüssigen Partikeln

Die Temperaturgeschichten zeigen im Durchschnitt eine starke Abkühlung kurze Zeit vor der Beobachtung. Wenn feste Teilchen nur in *mountain waves* bei Abkühlung unter $T_{\rm Eis}$ entstehen, sollten bei schnellen Abkühlungen von hohen Temperaturen durchschnittlich weniger feste Teilchen zu erwarten sein, da die Luftpakete dann kaum Zeit hatten, ein Abkühlereignis zu durchlaufen.

Diese Ergebnis ist vergleichbar mit den Resultaten von [Larsen *et al.*, 1997; Wedekind, 1997].





Abbildung 4.22.: Gemittelte Temperaturrückwärtstrajektorien (Abszisse ist die Zeit in Tagen vor der Beobachtung) für vier Fälle von PSC- Beobachtungen in Ny-Ålesund: (a) für PSCs vom Typ Ia nach Browell, (b) für den Typ Ib nach Browell; (c) für "reine Ib-PSCs" (diese Arbeit) und (d) für "reine Ia-PSCs" (diese Arbeit). Die unterbrochenen Linien markieren die Standardabweichung der Temperaturmittelwerte.

4.7.2. Statistische Analyse der Ortskurven

Im folgenden soll der Nukleationsprozeß der gefrorenen PSC-Teilchen untersucht werden. Dazu wurden die Rückwärtstrajektorien von 8193 Meßpunkten (alle Aerosolmeßpunkte der Winter 95/96 und 96/97 mit $T \leq T_{\text{NAT}}$, "Sonder-PSCs" ausgenommen) in folgende Kategorien eingeteilt:

• Depolarisierende Partikel beobachtet: Ja/Nein.

Als Kriterium betrachte ich wegen der möglichen Koexistenz von festen und flüssigen Teilchen hier nicht die Aerosoldepolarisation δ^{Aer} , sondern das querpolarisierte Rückstreuverhältnis R_{\perp} und lege fest, daß $R_{\perp} - K \times \mathcal{E}(R_{\perp}) > 1$ mit K=(1,2,3) als Indiz für die Anwesenheit von festen Partikeln gelten soll. Je größer der Faktor K, desto signifikanter ist der Datenpunkt.

- Trajektorie hat vor der Messung ein Gebiet getroffen, in dem Wellenaktivität wahrscheinlich ist (Gebiete nach Abb. 4.21): Ja/Nein.
- Falls "Treffer": War die maximale Temperatur \hat{T} seit dem Verlassen des aktiven Gebiets bis zur Messung größer oder kleiner T_{NAT} ?

Es ergibt sich zunächst, daß die große Mehrzahl (ca. 70%) aller Rückwärtstrajektorien mindestens einmal eines der in Abb. 4.21 definierten "aktiven" Gebiete berührt hat. Das am häufigsten (zuletzt) getroffene Gebiet (68% aller Treffer) ist die grönländische Küste⁸, was wegen der Meteorologie und der geographischen Lage von Ny-Ålesund ohne weiteres verständlich ist (Luftmassen strömen im Normalfall zyklonal, d.h. von West nach Ost). Es gibt jetzt zwei zu testende Hypothesen:

- 1. Feste Teilchen können nur bei starken Unterkühlungen (unterhalb $T_{\rm Ice}$) kondensieren, wie sie normalerweise nur in orographisch induzierten Wellen vorkommen. Hier gebildetes Eis sublimiert nach der Unterkühlungsphase schnell wieder, die ebenfalls gebildeten Salpetersäurehydrate bleiben übrig und können nachgewiesen werden, solange $T < T_{\rm NAT}$ bleibt.
- 2. Feste Teilchen können auch ohne Wellenaktivität entstehen, wenn die Temperatur lange genug unter $T_{\rm NAT}$ sinkt. Als Kondensationskeime kommen nach bisherigem Stand der Forschung (vgl. Abschnitt 1.4.3) wahrscheinlich nur präaktivierte SAT-Teilchen in Frage, d.h. gefrorenes Hintergrundaerosol, auf dem schon einmal NAT kondesiert war.

Aufgeschlüsselt nach den oben angegebenen Klassifikationskriterien ergibt sich nun die in Tabelle 4.1 angegebene Statistik (umseitig).

⁸Nr. 6 in Abbildung 4.21.

	T 1 1
<u> </u>	Hingonniego
÷.	TU FEDIU99E
	— O

Treffer mit	fes	ste Teilch	ien	keine festen Teilchen			
	K = 1 K = 2 K =		K = 3	K = 1	K = 2	K = 3	
$\hat{T} - T_{\rm NAT} < 0$	1973	1303	882	2084	2759	3180	
$\hat{T} - T_{\rm NAT} > 0$	608	405	286	1123	1326	1445	
Summe Treffer	2586	1708	1168	3207	4085	4625	
kein Treffer	1392	965	638	1008	1435	1762	
Gesamtsumme	3978	2673	1806	4215	5520	6387	

Tabelle 4.1.: Ergebnis der Ortstrajektorien-Statistik. "Treffer" bedeutet, daß das Luftpaket ein Gebiet passiert hat, in dem häufige Wellenaktivität zu erwarten ist. \hat{T} ist die höchste (synoptische) Temperatur entlang der Trajektorie vom letzten "Treffer" bis zur Beobachtung. Der Faktor K multipliziert den Fehlerbalken von R_{\perp} beim Test, ob feste Teilchen beobachtet worden sind ($R_{\perp} > 1$). Die Gesamtzahl der betrachteten Trajektorien war 8193; davon 5793 mit "Treffer" und 2400 ohne.

Diskussion

Feste PSC-Teilchen werden in grob einem Drittel aller Meßpunkte beobachtet. Die Häufigkeit, mit der diese festen Partikel beobachtet werden, ist in Luftpaketen mit "Treffer" etwa doppelt so hoch wie ohne. Wenn die synoptische Temperatur nach dem vermuteten Wellenereignis bis zur Beobachtung unter $T_{\rm NAT}$ bleibt, steigt die Häufigkeit, mit der Ia-PSCs beobachtet werden, um den Faktor drei gegenüber "warmen" Zwischenzeiten. Die rechten drei Spalten der Tabelle zeigen, daß viele "Treffertrajektorien" nicht zur Bildung von beobachtbaren Ia-Partikeln führen; dies ist auch einsichtig, da nicht jede Trajektorie über einen Gebirgszug zu signifikanter Wellenaktivität in der Stratosphäre führt (vgl. Abb. 4.20). Die Gruppe der Trajektorien, die in den letzten drei Tagen vor der Beobachtung nur ungestörte Gebiete passiert haben, zeigt eine etwas geringere Häufigkeit für die Beobachtung von festen Partikeln.

Zusammenfassend wird obige Hypothese 1 zwar von diesem Resultat gestützt, jedoch existiert eine signifikante Anzahl von Messungen, die nur damit nicht erklärt werden können! D.h. es wurden zweifelsfrei feste Partikel nachgewiesen, obwohl die Ortstrajektorien keins der Gebiete berührt haben, die geeignet sind, starke Wellenaktivität in der Stratosphäre auszulösen.

Nun könnte das auch daran liegen, daß (a) die Ortstrajektorien in diesen Fällen so ungenau waren, daß sie eines der aktiven Gebiete scheinbar verfehlt haben, in Wirklichkeit jedoch getroffen haben oder (b) daß die Karte der aktiven Gebiete (Abb. 4.21) ungenau bzw. unvollständig ist (sie stützt sich nur auf Berechnungen vom Dezember-Januar 1994/95). Ein starkes Argument für die Entstehung von festen Teilchen außerhalb von Wellen liefert jedoch die Gruppe der Beobachtungen mit festen PSC-Teilchen, wo die Luftpakete aus aktiven Gebieten kommen, jedoch bis zur Beobachtung synoptisch über T_{NAT} erwärmt worden sind; vorher in mountain waves gebildete feste Salpetersäurehydrate sollten dabei mit hoher Wahrscheinlichkeit ver-

4. Ergebnisse

dampfen. Auch eine Verschiebung der Grenztemperatur auf $T_{\text{NAT}}+2$ K (möglicher systematischer Fehler der Trajektorientemperaturen) ändert nichts wesentliches an diesem Resultat.

Das heißt: Hypothese 2 trifft offenbar auch zu. Tatsächlich kann ja die Existenz von festen Kondensationskeimen (SAT?) aus den Lidarmessungen bis zu einer Temperatur von mindestens 205 K nicht ausgeschlossen werden bzw. es werden solche depolarisierenden Teilchen anscheinend auch beobachtet (Abschnitt 4.5.1).

Entstehung der ersten Ia-PSCs im Winter

Zu Beginn des arktischen Winters stabilisiert sich der Polarwirbel, die Temperaturen sinken. In beiden betrachteten Wintern waren die ersten dann auftretenden PSCs allein im Depolarisationskanal zu beobachten, es traten also "klassische" Ia-PSCs auf. Die Rückwärtstrajektorien von Ort und Temperatur deuten in beiden Fällen (18./19.12.95 und 3./4.1.97) auf eine wahrscheinliche Produktion der festen Partikel in *mountain waves* an der Nordküste Grönlands; die Temperatur deutlich unter $T_{\rm NAT}$, jedoch nicht tief genug zur Bildung von STS-PSCs.

4.8. Oberflächen- und Volumendichten

In diesem Abschnitt präsentiere ich die aus den Lidardaten abgeleiteten Aerosoloberflächen- und Volumendichten präsentieren; diese Größen können z.B. in "chemical box"-Modellen als Inputparameter dienen, um den Ozonabbau *a posteriori* zu simulieren.

Aus allen Aerosolbeobachtungen der beiden Winter 1995/96 und 1996/97 sind nach dem Verfahren von Gobbi (vgl.Abschnitt 3.4.4) Oberflächendichten S und Volumendichten V berechnet worden. Diese stehen für alle Meßpunkte der Aerosoldatenbank zur Verfügung; die Darstellungen in Abbildung 4.23 sollen lediglich einen Überblick geben. Der Vergleich mit den Höhenschnitten der Temperatur über Ny-Ålesund (Anhang C) zeigt deutlich die Korrelation der Aerosoldichte mit Höhen- und Zeitbereichen tiefer Temperatur.





Abbildung 4.23.: Contourplot der nach Gobbi [1995] aus den Rückstreukoeffizienten bei 532 nm berechneten Oberflächen- (a) und Volumendichten (b) im Winter 1995/96. Meßzeitpunkte sind durch die senkrechten Striche über der Abbildung angedeutet.

 $\mathbf{148}$





Abbildung 4.24.: Contourplot der nach Gobbi [1995] aus den Rückstreukoeffizienten bei 532 nm berechneten Oberflächen- (a) und Volumendichten (b) im Winter 1996/97. Meßzeitpunkte sind durch die senkrechten Striche über der Abbildung angedeutet.

5. Fazit

In der Einführung wurden die Fragen an das Experiment formuliert; hier soll versucht werden, sie zu beantworten.

• Wie lassen sich PSCs sinnvoll klassifizieren, d.h. nicht nur phänomenologisch, sondern auch mikrophysikalisch sinnvoll?

Antwort Die auf Browell zurückgehende Klassifikation in Ia- und Ib-Typen hauptsächlich nach R_u und δ^{Aer} ist nicht ausreichend. Es wurde gezeigt, daß die meisten "flüssigen" PSCs koexistierend auch depolarisierende, d.h. feste Teilchen enthalten, deren Aerosoldepolarisation jedoch vom hohen Rückstreuverhältnis der flüssigen Partikel "maskiert" wird. Das Problem ist die Verwendung der eindimensionalen Größe δ^{Aer} bei PSCs, die aus einer externen Mischung von Partikeln bestehen; eine bessere Analyse wird in diesem Fall durch die Betrachtung der polarisierten Rückstreukoeffizienten R_⊥ und R_{||} erreicht: Ein R_⊥ > 1 zeigt zuverlässig die Anwesenheit von asphärischen Teilchen, auch wenn R_{||} bzw. R_u gleichzeitig hohe Werte annehmen.

- Wie ist Existenztemperaturbereich bzw. die Einsatztemperatur dieser Typen? *Antwort* Die Einsatztemperatur für flüssige Teilchen ist innerhalb der experimentellen Unsicherheit: T_{STS} . Die Existenztemperatur der depolarisierenden, festen Partikel ist $T < T_{\text{NAT}}$.
- Wie hängt das Auftreten der verschiedenen Typen (außer von der Umgebungstemperatur) von der Temperatur- und sonstigen Vorgeschichte der Luftpakete ab?

Antwort Es existiert eine hohe Korrelation des signifikanten Auftretens von gefrorenen Aerosolen mit a) einer langen (> 1 d) Periode mit $T < T_{\text{NAT}}$ vor der Beobachtung und b) der Herkunft der Partikel aus Gebieten, die häufige Störungen der synoptischen Temperatur durch mountain waves erwarten lassen. Eine genauere Analyse ist mangels einer Wellen-Klimatologie noch nicht möglich.

 Welche mikrophysikalischen Modelle sind mit den Beobachtungen konsistent? *Antwort* Für flüssige Aerosole: STS. Für feste Teilchen: Kondensation von meist nur wenigen Prozent der in der Gasphase verfügbaren Salpetersäure zu feste Hydraten (PSC-Typ "Ia"); in Ausnahmefällen Kondensation eines
 5. Fazit

großen Teils der in der Gasphase verfügbaren Salpetersäure zu festen Hydraten (PSC-Typ "Id"). Diese festen Partikel existieren bis zu $T_{\rm NAT} \pm 2,5$ K und können (wenigstens etliche Stunden) mit den STS-Tröpfchen koexistieren. Die Existenz von SAT in der Stratosphäre kann für effektive Radien $\bar{r} < 0,2\mu m$ generell nicht ausgeschlossen werden, in einigen Beobachtungen konnten mit einer hohen Signifikanz depolarisierende Teilchen ($\delta^{\rm Aer} \approx 0.01$) bis zu einer Temperatur von 205 K nachgewiesen werden. Die Bildung von festen PSC-Partikeln auf präaktiviertem SAT ist deshalb ebenso mit den Beobachtungsdaten konsistent wie das Gefrieren von flüssigen Aerosolen bei mesoskaligen Abkühlereignissen.

• Wie kann die PSC-Statistik mit der Meteorologie der Stratosphäre erklärt werden?

Wie kann die beobachtete zeitliche Entwicklung der PSCs mit mikrophysikalischen Modellen unter Berücksichtigung der Meteorologie erklärt werden? **Antwort** Die beginnende Abkühlung der Stratosphäre im arktischen Winter begünstigt zunächst die Bildung von festen PSC-Partikeln durch Abkühlereignisse in kalten Leewellen. Dies scheint eher die Regel als die Ausnahme zu sein, da die Luft im arktischen Wirbel mit einer typischen Periode von nur wenigen Tagen immer wieder signifikate Abkühlereignisse erfährt; die dabei gebildeten festen PSC-Teilchen existieren weiter, solange $T < T_{NAT}$. Mit Unterschreitung der STS-Temperatur im weiteren Verlauf des Winters kondensieren notwendigerweise (zusätzlich) flüssige Aerosole (STS); das typische Temperaturminimum in der Stratosphäre gibt dann Anlaß zur Beobachtung der sogenannten "Sandwich-PSCs" mit stark rückstreuenden "Ib"-PSCs in der kältesten mittleren Schicht und stark depolarisierenden, wenig rückstreuenden "Ia"-PSCs in den wärmeren Höhenbereichen darüber und darunter.

• Was bedeutet das für die O₃-Chemie?

Antwort Chemical Box-Modelle sollten für $T < T_{\rm STS}$ die heteorogene Chemie an STS-Partikeln berücksichtigen. Das bedeutet hohe Reaktionsraten, aber wegen der allein relevanten tiefen Temperaturen, nur geringe beitragende Volumina im arktischen Wirbel (besonders in "warmen" Wintern). Im Prinzip können die notwendigen Oberflächen- und Volumendichten der flüssigen Teilchen aus den thermodynamischen Modellen und den synoptischen Temperaturen berechnet werden.

Für alle $T < T_{\rm NAT}$ müßte zusätzlich die heteorogene Chemie an festen Salpetersäurehydraten (NAT?) berücksichtigt werden. Die Reaktionsraten hier sind relativ klein, das beitragende Volumen des polaren Wirbels aber ist größer als bei den STS-PSCs; entsprechend mehr Luft kann prozessiert werden. Die Häufigkeit des Auftretens von festen PSCs kann noch nicht modelliert werden, da eine Klimatologie der offenbar entscheidenden mesoskaligen Temperaturfluktuationen noch fehlt und der genaue Gefrierprozeß (sowohl für das Gefrieren bei $T < T_{\rm Eis}$ als auch für die postulierte Kondensation auf präaktiviertem SAT) noch unbekannt ist. Für kalte stratosphärische Winter scheint jedoch das Auftreten von gefrorenen PSC-Partikeln, die ca. 5% der verfügbaren Salpetersäure enthalten, die Regel zu sein.

Es existieren nur wenige Feldmessungen, die auf den Einfluß der Teilchenart auf die Ozonzerstörung schließen lassen. Neuber *et al.* [1997] kommen mittels des Vergleichs von Ozonsondierungen mit Lidarmessungen zu dem Schluß, daß die Höhenschichten mit klassischen Ib-PSCs weniger effektiv Ozon abbauen als Höhenbereiche, in denen hauptsächlich Ia-Teilchen nachgewiesen worden sind. Diese Beobachtung kann aber auch so interpretiert werden, daß bei Temperaturfluktuationen im Polarwirbel um $T_{\rm STS}$ die Ia-Partikel über den Beobachtungszeitraum wesentlich länger persistierten (und damit Ozon prozessieren konnten) als die leichter "flüchtigen" Ib-PSCs aus STS-Partikeln.

Anhang

A. Übersicht über die Betriebszeiten des Lidars

Die Zeitäume, während denen in Ny-Ålesund Lidar-Messungen durchgeführt wurden, sind in der Tabelle A.1 zusammengestellt. Erfaßt sind alle Winterkampagnen, die zwischen dem Winter 1988/89 und 1996/97 durchgeführt wurden. Die Tabelle A.2 gibt einen Überblick über die während dieser Meßperioden verwendeten Detektionskanäle. Der mit dem im Rahmen dieser Arbeit konstruierte Aerosol-Ozon-Detektor wurde während der Winterkampagnen 1995/96 und 1996/97 eingesetzt. Eine Übersicht über die mit diesem System durchgeführten Meßzeiten ist in den nachfolgenden Tafeln dargestellt.

Die Tafeln A.1 bis A.5 geben eine visuelle Übersicht über die Meßzeiten in den Wintern 1995/96 und 1996/97. Aufgetragen über der Uhrzeit (UT) für jeden einzelnen Meßtag ist jedes Rohdatenprofil durch eine dünne vertikale Säule dargestellt, deren Höhe den sog. "Channelcode" repräsentiert: dies ist eine Codierung der gleichzeitig aktiven Kanäle.

Winter	Meßbeginn	Meßende
1988/89	5.01.1989	26. 04. 1989
1989/90	19.01.1989	11. 03. 1990
1990/91	3. 01. 1990	17. 03. 1991
1991/92	13. 11. 1991	27. 03. 1992
1992/93	1. 12. 1992	1.03.1993
1993/94	5. 10. 1993	6. 04. 1994
1994/95	9. 01. 1995	5. 04. 1995
1995/96	1. 11. 1995	19. 03. 1996
1996/97	$3.\ 01.\ 1997$	06. 03. 1997

 Tabelle
 A.1.: Zeiträume, während denen Lidar-Messungen durchgeführt wurden.

i considir abor all Douriossion acs maar	1.	Übersicht	über	die	Betriebszeiten	des	Lidar
--	----	-----------	------	-----	----------------	-----	-------

Winter	308	332	353	385	532 u	532 p	532 s	607	1064
1988/89	х	-	х	_	_			_	_
1989/90	х		x	-	-		-	—	-
1990/91	х	-	х	-		-		-	
1991/92	x	-	х		-	x	x	_	
1992/93	х		х	—	-	x	x		х
1993/94	х	х	х	х	x	—	—	х	—
1994/95	х	x	x	х	х	x	x	x	_
1995/96	х	x	х	х	-	x	x	х	-
1996/97	х	—	х	х	_	x	x	х	

 Tabelle
 A.2.: Tabelle der verwendeten Lidar-Wellenlängen. Die Wellenlängen sind in nm

 angegeben und es bedeutet s: senkrecht polarisiert, p: parallel polarisiert, u: unpolarisiert.

Es gilt

ł

$$Channelcode = \sum_{i=1}^{N} 2^{i}$$

wobei i die Kanalnummer (i=1...(max) 8) bedeutet und nach aufsteigenden Wellenlängen gezählt wird. Sind z.B. nur die UV-Kanäle aktiv, so ist der Channelcode 30 (14), mit zugeschalteten VIS-Kanälen 254 (128) für resp. 1995/96 und 1996/97. NofProf ist die Anzahl der aufgenommenen Profile, M.T. die Meßzeit und T.S. die von den Messungen des jeweiligen Tages überdeckte Zeitspanne.







ł





Abbildung A.5.: 160 Ì

MULTIYOC

B. Übersicht über die PSC–Beobachtungen

In den Tabellen B.1 und B.2 sind alle Beobachtungszeiträume zusammengestellt, während derer polare stratosphärische Wolken beobachtet wurden. Erfaßt sind die beiden Winterkampagnen 1995/96 bis 1996/97. Die Dauer der Aerosol-Messungen bei 532 nm ist in der zweiten Spalte der nach dem Datum geordneten Tabellen aufgeführt. Ein Kreuz "x" in der nächten Spalte bedeutet, daß PSCs beobachtet wurden. Ist dort ein Strich "-" eingetragen, so wurden zu diesem Zeitpunkt keine polaren stratosphärischen Wolken gesichtet. Im Falle von PSC-Beobachtungen ist in der vierten Spalte die minimale und die maximale Höhe angegeben, in dem im Laufe des Tages PSCs detektiert wurden. Das Kriterium für die Detektion von PSCs ist eine signifikante Erhöhung des Rückstreukoeffizienten über das Hintergrund-R und/oder eine signifikante Abweichung der Volumendepolarisation vom molekularen Wert. In der fünften und sechsten Spalte ist das maximale Rückstreuverhältnis R_{\max} und die Höhe, in welcher R_{\max} beobachtet wurde, aufgeführt. Die siebte Spalte enthält Angaben über die Temperaturbereiche, in dem die lokal über Ny-Ålesund mittels Radiosondenaufstiegen gemessene Temperaturen unter der Koexistenztemperatur von NAT (T_{NAT}) lagen (vgl. Kapitel 3.5.5). Nur für diejenigen Tage, an denen ein Radiosondenaufstieg stattgefunden hat, sind Werte angegeben. Ansonsten ist hier ein Stern "*" eingetragen.

Die Unsicherheiten der maximalen Rückstreuverhältnisse liegen bei 10 %. Die Unsicherheiten der Höhenangaben betragen 0.2 km. Der Höhenbereich, in dem im Laufe des jeweiligen Tages PSCs beobachtet wurden, ist mit einer Unsicherheit von 0.5 km zu verstehen.

	Dezember 1995 bis Februar 1996								
Datum	Meßdauer	PSC	Höhe [km]	R _{max}	Höhe [km]	Höhe [km]			
	[Std.]			532 nm	R_{\max}	$T < T_{\rm NAT}$			
17.12	8.5	x	19.0 - 24.0	<1.2	depol	20.7 - 23.9			
18 12	12.7	v	175 - 240	<12		20.1 - 21.7			
10. 12		A	11.0 21.0	<1.2	depol	22.9 - 23.1			
19.12	3.1	x	19.0 - 23.0	<1.2	1 1	19.3 - 20.5			
					depol	21.3 - 22.7			
20.12	10.9	x	19.5 - 22.5	<1.2	dopol	18.9 - 19.0 20.1 - 21.7			
					depor	185 - 187			
21.12	8.5	x	18.0 - 24.0	2.2	19.9	10.0 - 10.1 19.5 - 23.1			
	0.0		1010 2110		10.0	23.9 - 24.3			
						18.3 - 23.7			
22.12	8.1	х	20.0 - 25.0	4.4	20.7	24.5 - 24.7			
02 10	70		20.0 22.5	1.0	00 K	18.7 - 24.5			
23.12	1.2	х	20.0 - 25.5	1.9	22.0	25.5 - 25.7			
25.12	6.9	х	19.0 - 24.0	1.3	20.5	*			
26.12	3.4	х	19.0 - 21.5	1.4	20.3	17.7 - 20.1			
27.12	1.2	x	18.5 - 20.0	3.0	19.3	17.3 - 19.5			
28.12	5.3	x	19.0 - 22.0	1.5	21.3	18.7 - 24.5			
						25.5 - 25.7			
30. 12	3.6	х	15.5 - 23.0	1.5	22.3	17.9 - 23.5			
4.1	3.2	х	18.5 - 24.0	1.8	21.9	17.1 - 24.7			
5.1	9.0	х	17.5 - 25.0	3.1	19.7	16.5 - 25.3			
6.1	9.0	х	17.0 - 25.5	5.7	21.5	15.9 - 25.5			
17.1	1.3	х	19.0 - 23.5	4.6	21.5	18.1 - 25.9			
18.1	1.5	x	19.5 - 23.5	4.0	20.7	16.3 - 16.9			
						17.5 - 25.5			
						15.9 - 16.7			
21.1	3.7	x	16.0 - 24.0	4.2	20.3	17.3 - 21.9			
	0.1				20.0	22.9 - 23.9			
						24.5 – 24.7			

Tabelle B.1.: Beobachtungen polarer stratosphärischer Wolken im Winter 1995/96 An den mit "depol" gekennzeichneten Tagen war die PSC–Schicht lediglich durch eine erhöhte Depolarisation zu erkennen.

Fortsetzung der Tabelle B.1

	Dezember 1995 bis Februar 1996								
Datum	Meßdauer	PSC	Höhe [km]	$R_{\rm max}$	Höhe [km]	Höhe [km]			
	[Std.]			532 nm	R_{\max}	$T < T_{\rm NAT}$			
27.1.	7.7	x	17.5 - 22.0	3.6	20.3	16.9 - 22.7			
28.1.	9.2	х	16.0 - 21.5	2.5	18.3	*			
						16.1			
30.1.	9.2	х	17.5 - 20.0	1.5	17.9	16.9 - 18.5			
						19.3 - 21.1			
31 1	12.2	v	17.0 - 18.0	1 /	17 5	17.7 - 18.7			
01. 1.	12.2	^	11.0 10.0	1,4	11.0	19.3-21.3			
						17.5 - 17.7			
1. 2.	8.4			-		18.7			
						19.9 - 20.1			
2. 2.	9.6	_		-					
3. 2.	14.2			-	_	17.7 - 19.9			
4, 2,	2.6	x	16.5 - 22.5	3.9	20.3	11.7			
						15.5 - 23.5			
6. 2.	1.8	x	14.5 - 23.0	5.2	16 7	10.9 - 13.3			
						13.7 - 22.9			
12. 2.	4.9	х	15.5 - 22.0	3.2	18.5	15.3 - 23.3			
13. 2.	9.9	х	14.5 - 22.5	3.0	18.9	15.9 - 22.9			
14. 2.	9.7	х	17.0 - 21.5	2.8	18.7	15.7 - 23.1			
15.2.	4.0	х	15.0 - 20.0	2.0	19.3	*			
16. 2.	1.1	х	18.5 - 20.0	1.3	18.9	16.1 - 22.1			
17. 2.	2.7	x	16.0 - 20.5	1.8	19.9	*			
18. 2.	0.7	x	14.5 - 21.5	3.4	18.7	*			
19. 2.	5.4	x	_			14.9 - 21.7			
23. 2.	2.9		_			17.5 – 19.1			
						19.5 - 21.5			
28. 2.	0.2		_						
29. 2.	0.9				_	17.3			

Januar 1996 bis März 1997								
Datum	Meßdauer	PSC	Höhe [km]	$R_{\rm max}$	Höhe [km]	Höhe [km]		
	[Std.]			532 nm	R_{\max}	$T < T_{\rm NAT}$		
3. 1.	3.7	x	21.3 - 24.7	<1,1	depol	19,5 - 25,5		
4.1.	5.5	x	21.7 - 25.7	1.2	25.7	18.7 - 25.5		
5. 1.	2.3	x	20.0 - 25.0	1.3	23.0	19.5 - 26.7		
10. 1.	3.7							
12. 1.	14.2					21.5 - 24.1		
16. 1.	4.5					19.7 - 21.3		
17. 1.	2.6					19.7 - 21.5		
21. 1.	5.4	х	21.9 - 23.1	2.1	22.9	19.1 - 24.5		
22. 1.	11.5	х	20.5 - 23.9	2.8	22.1	19.3 - 24.1		
23. 1.	1.5					19.7 - 24.1		
30. 1.	11.8							
2. 2.	16.7.							
3. 2.	12.9							
4. 2.	16.1							
5.2.	4.2					17.1 - 22.1		
6. 2.	10.1	х	16.1 - 23.9	<1,1	depol	16.9 - 22.5		
7.2.	7.8	х	18.1 - 22.9	<1,1	depol	17.3 - 23.5		
8. 2.	1.5					17.3 - 23.1		
11. 2.	5.3	х	16.3-23.1	4.9	20.5	14.9 - 24.7		
12. 2.	1.4	х	17.1 - 22.3	4.4	19.9	14.9 - 24.5		
15. 2.	3.6	х	17.3 - 19.7	1.5	19.3	15.5 - 23.5		
19. 2.	4.6	х	20.5 - 24.1	4.7	22.9	18.1 - 24.7		
20. 2.	4.9	х	17.7 - 23.9	5.9	20.3	15.9 - 24.7		
21. 2.	10.0	х	16.7-23.5	5.6	19.5	15.3 - 23.3		
22. 2.	3.3	х	16.7 - 22.7	5.1	18.9	14.7 - 23.9		
24. 2.	6.4	х	16.1 - 20.7	3.1	18.1	14.1 - 23.3		
25. 2.	5.8	х	16.3 - 20.5	2.8	18.3	13.3 - 23.1		
26. 2.	0.9	х	-21.9	1.6	20.1	15.7 - 22.9		
27. 2.	4.1	х	- 20.3	2.3	20.1	15.9 - 22.9		
28. 2.	5.6	х	19.7 - 20.1	1.3	19.9	16.1 - 22.3		
6.3.	1.6							

Tabelle B.2.: Beobachtungen polarer stratosphärischer Wolken im Winter 1996/97 An den mit "depol" gekennzeichneten Tagen war die PSC–Schicht lediglich durch eine erhöhte Depolarisation zu erkennen.

C. Temperaturentwicklung über Ny-Ålesund

Die Abbildungen C.1 und C.2 zeigen die Höhen–Zeitschnitte der über Ny–Ålesund gemessenen Temperaturen für die beiden betrachteten Winter. In Hinblick auf die Bildungsfähigkeit polarer stratosphärischer Wolken des Typs I wurde die Differenz zwischen der *in situ* (mittels Radiosondenaufstiegen) gemessenen Temperatur und der berechneten Koexistenztemperatur von NAT ($T_{\rm NAT}$) (vgl. Kapitel 3.5.5) als Temperaturkoordinate gewählt. Die Symbole oberhalb der Abbildung markieren die Startzeiten der durchgeführten Ballonsondierungen. Die dickere schwarze Linie gibt die Fläche (in 10⁶ km², Skala am rechten Bildrand) innerhalb des Polarwirbels mit Temperaturen unterhalb von T_{NAT} für das 475 K Niveau an [von der Gathen; 1996]. Für den gestrichelt umrandeten Höhenbereich in Abb. C.1 ist chemischer Ozonabbau nachgewiesen worden.



Abbildung C.1.: Temperaturentwicklung über Ny-Ålesund im Winter 1995/96.



Abbildung C.2.: Temperaturentwicklung über Ny-Ålesund im Winter 1996/97.

D. Entwicklung der Polarwirbel

Die geographische Lage des Polarwirbels in verschiedenen Höhenniveaus kann durch Karten der potentiellen Wirbelstärke veranschaulicht werden. Sie sind aus den sechsstündigen Analysedaten des ECMWF berechnet [Knudsen *et al.*, 1992]. Die Abbildungen D.1 und D.4 verdeutlichen für die beiden durchgeführten Winterkampagnen 1995/96 und 1996/97 die Unterschiede in der geographischen Lage des Polarwirbels und der Bereiche kalter Temperaturen. In einer Polarprojektion der Nordhemisphäre sind für das 475 K Niveau der potentiellen Temperatur die Wirbelstärken während der Monate November bis April farbkodiert eingezeichnet. Das potentielle Temperaturniveau von 475 K entspricht einer Höhe von ca. 19.7 km. Exemplarisch ist die Situation für etwa alle zwei Wochen ausgewählt, um die zeitliche Entwicklung des Polarwirbels für jeden Winter zu veranschaulichen.

Für das potentielle Temperaturniveau 475 K sind PV-Werte größer 42 PVU typisch für den Kernbereich des Wirbels, der Rand des arktischen Wirbels liegt grob bei ca. 36 PVU (vgl. Abschnitt 1.2.2).

Neben den PV-Karten sind analog Karten der synoptischen Temperatur auf demselben potentiellen Temperaturniveau von 475 K dargestellt.


Abbildung D.1.: Geographische Verteilung der potentiellen Wirbelstärke während der Monate November 1995 bis April 1996.



Abbildung D.2.: Geographische Verteilung der Temperaturen während der Monate November 1995 bis April 1996 .



Abbildung D.3.: Geographische Verteilung der potentiellen Wirbelstärke während der Monate November 1996 bis April 1997.

171



Abbildung D.4.: Geographische Verteilung der Temperaturen während der Monate November 1996 bis April 1997 .

E. Verschiedenes

E.1. Verwendete Computerprogramme

In diesem Abschnitt möchte ich einen Überblick über die zur Auswertung verwendeten Programme geben.

Das Datenaufnahmeprogramm

Das in Turbo-PascalTM geschriebene Steuerungs- und Datenaufnahmeprogramm LIDAR.EXE ist in [Ruhe, 1996] dokumentiert. Dort findet sich auch eine genaue Beschreibung des binären Formats, in dem die Daten abgespeichert werden. Alle anderen Programme wurden unter Unix/Solaris auf workstations programmiert; es wurde Matlab-Version 5.0 benutzt.

mcstoasc, asci2mat

Zum Einlesen der Rohdatenfiles werden diese beiden externen C-Programme (die auf Georg Beyerle zurückgehen) benutzt. mcstoasc liest die binären Rohdaten ein, führt eine intelligente Zeit- und Höhenintegration durch und speichert die resultierenden Profile als NASA-Ames-ASCII-Datei ab. In dieser Arbeit wurde die Version 1.6 vom 6.11.97 benutzt [Ruhe, 1997]. Die standardisierte NASA-Ames-Datei [Gaines und Hipskind, 1990] ist das Standard-Interface zu anderen Programmen. Die Textdatei wird von asci2mat eingelesen und in eine binäre .mat-Datei umgewandelt, die von Matlab gelesen werden kann.

kwiklook und lidar

Der größte Teil der Datenauswertung ist in den Matlab-Programmen kwiklook (seit Sommer 1997 obsolet) und lidar programmiert. Dies sind m-files, also Textdateien, die von Matlab interpretiert werden. lidar ist ein Steuerprogramm, das im wesentlichen nachfolgende Unterprogramme aufruft (die den einzelnen Schritten der Datenauswertung entsprechen). Das Verhalten des Programms kann vom Benutzter flexibel mit dem (ASCII-)Steuerfile lidaroptions.m gesteuert werden.

1. dnsofnya: Update der Radiosondenprofile mittels des Unterprogramms sondenofnya; neue Profile werden in .mat-Dateien monatsweise abgespeichert.

- 2. mcstoraw: Einlesen der Rohdatenfiles mittels mcstoasc und asci2mat; die Höhen- und Zeitauflösung und andere Details werden aus dem Steuerfile lidaroptions.m übernommen. Abspeichern als .mat-Datei.
- 3. rawtodat: Datenkorrekturen (Untergrund, Totzeit, Übersprechen etc.)
- 4. alfabeta: Berechnung der Rückstreuverhältnisse und der Volumendepolarisation (Option "bckratio") bzw. der Rückstreukoeffizienten (Option "coeffici").

Raman-, Temperatur- und Ozonauswerteprogramme

- Ramanauswertung mit dem Programm raman; der eigentliche Algorithmus ist in raman2alpha codiert.
- **Temperaturauswertung** mit dem Programm plot_tem; der eigentliche Algorithmus ist in dat2temp codiert.
- Ozonauswertung mit dem Programm plot_ozn; der eigentliche Algorithmus ist in dat2ozon codiert.

Datenbasis- und Trajektorienprogramme

- Erzeugung, Verwaltung und Darstellen der Aerosoldatenbank mit dem Programm plotdatabase; es können auch Identifizierungsdaten für ausgewählte Meßpunkte erzeugt werden (Auswahl der Trajektorien).
- Umwandlung der FU-Trajektorienfiles in das Matlab-Format mit dem Programm awitraj2mat.
- Erzeugung von Trajektoriendarstellungen mit dem Programm plotawitraj. Plotten von Rückwärtstrajektorien ausgewählter Höhen und Zeiten in Ort $(T T_{\text{NAT}}$ farbcodiert); Temperaturgeschichte; Darstellung der PV über der Zeit; Berechung der "Treffer"-Information.

E.2. Referenzatmosphäre NARA97

In den Abbildungen E.1 (a-c) werden Übersichtsbilder von Temperatur, Ozondichte der monatlichen Maximalhöhe sowie der Bodenwerte von Druck und Temperatur gegeben.

E. Verschiedenes

Abbildung E.1.: NARA97: Contourplots von (a) Temperatur, (b) Ozondichte, (c) Bodenwerte von Druck und Temperatur. Die gestrichelt eingezeichnete Linie ist die Maximalhöhe, bis zu der die Konstruktion auf Sondendaten beruht; darüber wurden die Meßgrößen an die CIRA89 angepaßt.













E.3. Korrektur der polarisationsabhängigen Größen

A priori - Übersprechkorrektur

Wie in Abschnitt 3.3.2 angesprochen, führt die Polarisationsteileroptik im Detektoraufbau des Winters 1996/97 zu einem signifikanten Übersprechen des p-Kanals in den s-Kanal. Der Hersteller gibt an, daß ein Bruchteil τ des p-Lichtes in den s-Kanal gelangt mit $\tau = (1...2)\%$.

Es gilt somit im aerosolfreien Teil der Atmosphäre:

$$Z^{\parallel} = C^{\parallel}(I^{\parallel} - \tau I^{\parallel})$$

$$= C^{\parallel}I^{\parallel}(1 - \tau)$$

$$Z^{\perp} = C^{\perp}(I^{\perp} + \tau I^{\parallel})$$

$$= C^{\perp}(\delta^{0}I^{\parallel} + \tau I^{\parallel})$$

$$= C^{\perp}I^{\parallel}(\delta^{0} + \tau)$$

wo die Z die (nicht normierten) Zählraten, $C^{\parallel,\perp}$ die Detektorempfindlichkeiten und $I^{\parallel,\perp}$ die empfangenen Intensitäten bedeuten; δ^0 ist die unkorrigierte theoretische Volumendepolarisation, d.h. die theoretische Depolarisation der Rayleighstreuung $\delta^{\text{Ray}} = 0,0144$ (vgl. Gl. 2.5) zusammen mit der Laserdepolarisation δ^e und dem Übersprechen:

$$\delta^{0} = (\delta_{0}^{r} + \tau)/(1 - \tau)$$

wo $\delta_{0}^{r} = \frac{\delta^{e} + \delta^{\text{Ray}}}{1 + \delta^{e} \delta^{\text{Ray}}}$

 C^{\parallel}/C^{\perp} ergibt sich nun zu

$$\frac{C^{\perp}}{C^{\parallel}} = \left(\frac{\overline{Z^{\parallel}}}{Z^{\perp}} \right) \, / \, \delta^0$$

Die horizontale Linie über dem Quotienten der Zählraten soll die Bildung eines (gewichteten) Mittels über den Fit-Höhenbereich andeuten.

Setzen wir nun willkürlich $C^{\parallel} = 1$, so ergeben sich als normierte und für Übersprechen korrigierte Zählraten:

$$\begin{split} I_r^{\parallel} &= Z^{\parallel}/(1-\tau) \\ I_r^{\perp} &= Z^{\perp}/\frac{C^{\perp}}{C^{\parallel}} - \frac{\tau}{1-\tau} Z^{\parallel} \end{split}$$

176

Zum Schluß muß I_r^{\perp} noch von der Laserdepolarisation δ^e befreit werden:

$$I^{\perp} = \frac{I_r^{\perp} - \delta^e I^{\parallel}}{1 - \delta^0 \delta^e}$$

Es gilt in sehr guter Näherung $I^{\parallel} = I_r^{\parallel}$.

Experimentelle Bestimmung der Gesamt-Gerätedepolarisation

Nach Baumgarten [1997] können die instrumentellen Beiträge zu einer fehlerhaften Depolarisationsmessung, nämlich die

- intrinsische Laserdepolarisation
- fehlerhafte Justage des Empfangszweiges in bezug auf den Sendezweig
- fehlerhafte Trennung ("Übersprechen") der beiden Polarisationsrichtungen im Empfangszeig

näherungsweise (kleine Größen) zu einer Gerätedepolarisation δ^g zusammengefaßt werden, die einer gleichgroßen Laserdepolarisation äquivalent ist.

Die Laser- bzw. Gerätedepolarisation macht sich am deutlichsten in einem linearen Trend in R_{\perp} aufgetragen nach R_{\parallel} bemerkbar; für $\delta^{Aer} \rightarrow 0$ gilt:

$$R_{\perp}^{\text{mess}} = \frac{\delta^g}{\delta^{\text{Ray}} + \delta^g} R_{\parallel} + \frac{\delta^{\text{Ray}}}{\delta^{\text{Ray}} + \delta^g}$$
(E.1)
= $A + B R_{\parallel}$

Da A = 1-B gilt, ergibt sich als gesuchte Konstante $\delta^g = \delta^{\text{Ray}} B/A = \delta^{\text{Ray}} B/(1-B)$. Gl. E.1 wurde separat an die Daten der beiden Meßwinter gefittet¹, wobei nur Daten mit $\delta^{\text{Aer}} \approx 0$ selektiert wurden. Abbildung E.2 zeigt den Fit exemplarisch für nur einen Meßtag. Die mit den erhaltenen vorläufigen Konstanten korrigierten (s.u.) Aerosoldepolarisationen wurden benutzt, um in einer zweiten Iteration endgültige Parameter zu erhalten. Es ergibt sich:

Winter 1995/96: $\delta^g = 0,0031 \pm 0,0005$ Winter 1996/97: $\delta^g = 0,0217 \pm 0,0020$.

Die Korrekturgleichungen der polarisationsempfindlichen Größen lauten:

$$\mathbf{R}_{\perp} = \left(1 + \frac{\delta^g}{\delta^{\mathrm{Ray}}}\right) \mathbf{R}_{\perp}^{\mathrm{mess}} - \frac{\delta^{\mathrm{g}}}{\delta^{\mathrm{Ray}}} \mathbf{R}_{\parallel}^{\mathrm{mess}}$$
(E.2)

$$\delta^{\text{Aer}} = \left(1 + \frac{\delta^g}{\delta^{\text{Ray}}}\right) \delta^{\text{Aer}}_{mess} - \delta^g \tag{E.3}$$

$$\beta_{\perp}^{\text{Aer}} = \left(1 + \frac{\delta^g}{\delta^{\text{Ray}}}\right) \beta_{\perp,mess}^{\text{Aer}} - \delta^g \beta_{\parallel,mess}^{\text{Aer}}$$
(E.4)

¹gewichtete lineare Regression

E. Verschiedenes



Abbildung E.2.: Korrektur der instrumentellen Depolarisation. Aufgetragen sind die Daten vom 20.2.97 (eine starke, praktisch nicht depolarisierende PSC). Punkte sind selektierte Daten mit δ^{Aer} (unkorr.)< 0,015; die großen Punkte sind die in der 2. Iteration selektierten Daten mit δ^{Aer} (korr.)< 0,005. Die gestrichelte Line ist der Fit mit $\delta^{g} = 0,0217 \pm 0,0020$.

Nach Baumgarten [1997] können die Korrekturen zu den p-polarisierten Größen vernachlässigt werden.

Es ist zu beachten, daß die hier beschriebene Korrektur *nach* der standardmäßigen Korrektur wegen Laserdepolarisation (0,5%) und Übersprechen im Winter 1996/97 (1%) berechnet wurde; die sehr kleine zusätzliche Korrektur im ersten Winter von nur 0,3% kann leicht auf den Unterschied der vom Hersteller angegebenen Laserdepolarisation *direkt hinter dem Laserkopf* zur realen Laserdepolarisation in der At-

E. Verschiedenes

mosphäre sowie auf unvermeidbare Justagefehler zurückgeführt werden. Die recht große Korrektur von über 2% für den zweiten Winter zeigt eine erhebliche Unterschätzung des Übersprechens; möglicherweise hat sich auch die Laserdepolarisation durch einen anderen Aufbau der Sendeseite (zusätzliche Umlenkspiegel zur getrennten Strahlführung von 532 nm und 1064 nm) verschlechtert.

Literaturverzeichnis

- Aellig C., Bacmeister J., Bevilacqua R., Daehler M., Kriebel D., Pauls T., Siskind D., Kämpfer N., Langen J., Hartmann G., Berg A., Park J., Russel III J. (1996). Space-borne H₂O observations in the Arctic stratosphere and mesosphere in the spring of 1992. *Geophys. Res. Lett.* 23: 2325-2328.
- Anderson J.G., Toohey D., Brune W. (1991). Free radicals within the Antarctic vortex: The role of CFCs in Antarctic ozone loss. *Science* 51: 39–46.
- Anderson R. (1989). Polarization and atmospheric backscatter coefficients measurements. Appl. Optics 28(5): 865–874.
- Andrews D.G. (1987). Middle atmosphere dynamics. Academic Press, London.
- Ansmann A., Riebesell M., Weitkamp C. (1990). Measurement of atmospheric extinction profiles with a Raman lidar. *Optics Letters* 15: 746–748.
- Ansmann A., Wandinger U., Riebesell M., Weitkamp C., Michaelis W. (1992). Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined Raman elastic-backscatter lidar. Applied Optics 31(33): 7113-7131.
- Ansmann A., Wandinger U., Weitkamp C. (1993). One-year observations of Mount-Pinatubo aerosol with an advanced Raman lidar over Germany at 53.5°N. *Geophys. Res. Lett.* 20(8): 711–714.
- Ansmann A., Neuber R., Rairoux P., Wandinger U. (Hg.) (1997). Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar. , Band Selected Papers of the 18th International Laser Radar Conference (ILRC), Berlin, 22-26 July 1996. Springer Verlag Berlin.
- Antikainen V., Hyvönen V. (1983). The Accuracy of Vaisala RS80 Radiosondes. In *Proceedings*, 5th Symp. of Meterological Observations and Instruments, S. 134– 140. Toronto, Canada.
- Arnold F. (1980). Multi-ion complexes in the stratosphere implications for trace gases and aerosols. *Nature* 284: 610–611.

- Bacmeister J., Newman P., Gary B., Chan K. (1994). An algorithm for forecasting mountain wave-related turbulence in the stratosphere. *Weath. Forecst.* 9: 241–253.
- Bates D.R. (1984). Rayleigh Scattering by Air. Planet. Space Sci. 32(6): 785-790.
- Baumgarten G. (1997). Erste Messungen des Bonner Rayleigh/MIe/Raman-Lidar auf Esrange, Schweden, zur Untersuchung von dynamisch induzierten polaren Stratosphärenwolken im Januar 1997. Diplomarbeit, Universität Bonn, Physikalisches Institut. IB-97-26.
- Bevington P.R. (1969). Data reduction and error analysis for the physical sciences. McGraw-Hill, New York.
- Beyerle G. (1994). Untersuchungen stratosphärischer Aerosole vulkanischen Ursprungs und polarer stratosphärischer Wolken mit einem Mehrwellenlängen-Lidar auf Spitzbergen (79°N, 12°E). Ber. Polarforsch. 138, Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung, Bremerhaven.
- Beyerle G., Neuber R. (1995). Depolarization of linear polarized light in Mie scattering processes. Pers. Mitt.
- Beyerle G., Luo B., Neuber R., Peter T., Mc Dermid I.S. (1997). Temperature dependence of ternary solution particle volumes as observed by lidar in the Arctic stratosphere during winter 1992/93. J. Geophys. Res. 102(D3): 3603-3609.
- Biele J., Neuber J., Warming J., Beninga I., von der Gathen P., Stebel K., Schrems O., Rosen J. (1998). The Evolution of Polar Stratospheric Clouds above Spitsbergen in winter 1996/97. In C. of the European Communities, B. (FRG) (Hg.), Proceedings, Fourth European Symposium on Polar Stratospheric Ozone.
- Biermann U.M., Presper T., Koop T., Mössinger J., Crutzen P.J., Peter T. (1996). The unsuitability of meteoritic and other nuclei for polar stratospheric cloud freezing. *Geophys. Res. Lett.* 23(13): 1693–1696.
- Birch K., Downs M. (1994). Correction to the Updated Edlén Equation for the Refractive Index of Air. *Metrologia* 31: 315–316.
- Böckmann C., Biele J., Neuber R. (1998). Analysis of multiwavelength lidar data by inversion with mollifier method. *Pure and Applied Optics A* zur Veröff. eingereicht (angenommen).
- Bohren C.F., Huffman D.R. (1983). Absorption and scattering of light by small particles. John Wiley & Sons, New York.
- Born M., Wolf E. (1980). Principles of Optics. Pergamon Press, Oxford.

- Bronstein I.N., Semendjajew K.A. (1981). Taschenbuch der Mathematik. Verlag Harri Deutsch, Thun.
- Browell E.V., Butler C.F., Ismail S., Robinette P.A., F. C.A., Higdon N.S., Toon O.B., Schoeberl M.R., Tuck A.F. (1990). Airborne lidar observations in the wintertime arctic stratosphere: Polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.* 17(4): 385–388.
- Bucholtz A. (1995). Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere. Applied Optics 34(15): 2765-2763.
- Burrows J., Richter A., Dehn A., Deters B., Himmelmann S., Voigt S., Orphal J. (1997). Atmospheric remote-sensing reference data from GOME. 2. Temperature-dependent absorption cross sections of O₃ in the 231–794 nm range. J. Quant. Spectr. Radiat. Transfer (eingereicht). M. Eisinger, priv. Mitt. 23.1.98.
- Carslaw K., Luo B., Peter T. (1995*a*). Fortran77 code to calculate composition of aqueous HNO₃/H₂SO₄/HCl/HOCl stratospheric aerosols. Distribution version 1, Aug. 2, 1995 (K. Carslaw, priv. Mitt.).
- Carslaw K., Wirth M., Tsias A., Luo B., Dörnbrack A., Leutbecher M., Volkert H., Renger W., Bacmeister J., Reimer E., Peter T. (1998). Increased stratospheric ozone depletion due to mountain-induced atmospheric waves. *Nature* 391: 675–678.
- Carslaw K.S., Luo B.P., Clegg S.L., Peter T., Brimblecombe P., Crutzen P.J. (1994). Stratospheric aerosol growth and HNO₃ gas phase depletion from coupled HNO₃ and water uptake by liquid particles. *Geophys. Res. Lett.* 21(23): 2479–2482.
- Carslaw K.S., Luo B.L., Peter T. (1995b). An analytic expression for the composition of aqueous HNO₃-H₂SO₄ stratospheric aerosols including gas phase removal of HNO₃. *Geophys. Res. Lett.* 22(14): 1877–1880.
- Clarke D., Grainger J.F. (1971). Polarized light and optical measurement. Pergamon Press, Oxford.
- Continuum (1990). Operation and maintenance manual NY60 & 61. Continuum, 3150 Central Expressway Santa Clara, CA 95051.
- Continuum (1993). Telefonische Mitteilung.
- Crutzen P.J., Arnold F. (1986). Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: a major cause for the springtime 'ozone hole'. *Nature* 324,: 651–655.
- Dameris M., Wirth M., Renger W., Grewe V. (1995). Definition of the polar vortex edge by LIDAR data of the stratospheric aerosol: A comparison with values of potential vorticity. *Beitr. Phys. Atmosph.* 68(2): 113–119.

- D'Ans, Lax (1967). Taschenbuch für Chemiker und Physiker. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 3. Auflage.
- **Donovan D.P.** (1996). Lidar measurements of Stratospheric Ozone and Aerosol. PhD thesis, York University, North York, Ontario, Canada.
- Donovan D.P., Whiteway J.A., Carswell A.I. (1993). Correction for nonlinear photon-counting effects in lidar systems. *Applied Optics* 32(33): 6742–6753.
- Drdla D., Turco R.P., Elliott S. (1993). Heterogeneous chemistry on antartic polar stratospheric clouds: A microphysical estimate of the extent of chemical processing. J. Geophys. Res. 98(D5): 8965–8981.
- Drdla K., Tabazadeh A., Turco R.P., Jacobson M.Z., Dye J.E., Twohy C., Baumgardner D. (1994). Analysis of the physical state of one Arctic polar stratospheric cloud based on observations. *Geophys. Res. Lett.* 21(23): 2475-2478.
- Dye J.E., Baumgardner D., Gandrub B.W., Kawa S.R., Kelly K.K., Loewenstein M., Ferry G.V., Chan K.R., Gary B.L. (1992). Particle size distribution in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation. J. Geophys. Res. 97(D8): 8015-8034.
- EG & ORTEC (1992). Manual, Turbo-MCS High-Performance Multichannel Scaler. EG & ORTEC, Oak Ridge, TN 37831-0895 USA.
- European Ozone Research Coordinating Unit (Hg.) (1997). Fourth European Symposium on Polar Stratospheric Ozone, Book of Abstracts. Commission of the European Communities and Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft, Forschung und Technologie, FRG. 22.–26. September 1997, Schliersee, Bavaria.
- Fahey D., Kelly K., Ferry G., Poole L., Wilson J., Murphy D., Loewenstein M., Chan K. (1989). In situ measurements of total reactive nitrogen, total water, and aerosol in a polar stratospheric cloud in the Antarctic. J. Geophys. Res. 94: 11299 – 11315.
- Fleming E., Chandra S., Shoeberl M., Barnett J. (1989). Monthly Mean Global Climatology of Temperature, Wind, Geopotential Height, and Pressure for 0–120 km. Technical Memorandum 100697, NASA.
- Gaines S.E., Hipskind R. (1990). Format Specification for Data Exchange. Technical Report Version 1, NASA.
- Gardner C.S., Tao X., Pagen G.C. (1995). Simultaneous lidar observations of vertical wind, temperature, and density profiles in the upper mesosphere: Evidence for nonseparability of atmospheric perturbation spectra. *Geophys. Res. Lett.* 22(20): 2877–2880.

- Gille J., Bailey P., Craig C. (1993). Revised reference model for nitric acid. Adv. Space Res. 13(1): (1)59-(1)72.
- Gobbi G.P. (1995). Lidar estimation of stratospheric aerosol properties: Surface, volume, and extinction to backscatter ratio. J. Geophys. Res. 100(D6): 11219-11235.
- Hamill P., Turco R.P., Kiang C.S., Toon O.B., Whitten R.C. (1982). An analysis of various nucleation mechanisms for sulfate particles in the stratosphere. J. Aerosol Sci. 13(6): 561–585.
- Hansen G., von Zahn U. (1994). Simultaneous observations of noctilucent clouds and mesopause temperature by lidar. J. Geophys. Res. 99(D9): 18.989–18.999.
- Hansen J., Ruedy R., Sato M. (1996). Global surface air temperature in 1995: Return to pre-Pinatubo level. *Geophys. Res. Lett.* 23(13): 1665–1668.
- Hanson D., Mauersberger K. (1988*a*). Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 15(8): 855–858.
- Hanson D., Mauersberger K. (1988b). Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 15(8): 855–858.
- Hauchecorne A., Chanin M.L. (1980). Density and Temperature Profiles obtained by Lidar between 35 and 70 km. *Geophys. Res. Lett.* 7(8): 565-568.
- Heese B. (1996). Untersuchungen zum Beitrag chemischer und dynamischer Prozesse zur Variabilität des stratosphärischen Ozons über der Arktis. Ber. Polarforsch. 196, Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung, Bremerhaven.
- Hilberg D. (1989). Akima-Interpolation: Noch besser als das Spline-Verfahren. c't 6: 206–214.
- Hinds W.C. (1982). Aerosol technology, properties, behavior, and measurement of airborne particles. John Wiley & Sons, New York.
- Hofmann D.J., Oltmans S.J., Komhyr W.D., Harris J.M., Lathrop J.A.,
 Langford A.O., Deshler T., Johnson B.J., Torres A., Matthews W.A. (1994). Ozone loss in the lower stratosphere over the United States in 1992–1993: Evidence for heterogeneous chemistry on the Pinatubo aerosol. *Geophys. Res. Lett.* 21(1): 65–68.
- Höpfner M., Blom C., Blumenstock T., Fischer H., Gulde T. (1996). Evidence for the removal of gaseous HNO₃ inside the Arctic polar vortex in January 1992. *Geophys. Res. Lett.* 23(2): 149–152.

- Hoskins B.J., McIntyre M.E., Robertson A.W. (1985). The use and significance of isentropic potential vorticity maps. *Quart. J. R. Met. Soc.* 111: 877–946.
- Houghton J.T. (1977). The physics of atmospheres. Cambridge University Press, Cambridge.
- Inabe H. (1976). Detection of atoms and molecules by Raman scattering and resonance fluorescence. In E.D. Hinkley (Hg.), Laser monitoring of the atmosphere, Kapitel 5, S. 153–236. Springer, Berlin.
- Iwasaka Y., Hayashi M., Kondo Y., Koike M., Koga S., Yamato M., Aimedieu P., Matthews W. (1993). Two Different Type Nitrate Aerosols in the Winter Polar Stratosphere: Morphology of Individual Particles Observed with an Electron Microscope. J. Geomagn. Geoelectr. 45: 1181–1192.
- Jackson J.D. (1983). Klassische Elektrodynamik. Walther de Gruyter, Berlin.
- Jäger H., Deshler T., Homburg F., Freudenthaler V. (1997). Five years of lidar observations of the Pinatubo eruption cloud. In Ansmann et al. [1997], S. 485-488.
- Junge C., Chagnon C., Manson J. (1961). Stratospheric aerosols. J. Meteorol. 18: 81–108.
- Kavaya M.J. (1987). Polarization effects on hard target calibration of lidar systems. Appl. Opt. 26(5): 796-804.
- Kawa S., Fahey D., Anderson L., Loewenstein M., Chan K. (1990). Measurements of total reactive nitrogen during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition. *Geophys. Res. Lett.* 17: 485–488.
- Kerker M. (1969). The scattering of light and other electromagnetic radiation. Academic Press, New York.
- Kilbane-Dawe I., Harris N. (1997). Report on the Northern Hemispheric winter of 1996/97. Report, European Ozone Research Coordinating Unit, University of Cambridge, UK. Supplied by R. Neuber.
- Kinne S., Toon O. (1990). Radiative effects of polar stratospheric clouds. Geophys. Res. Lett. 17(4): 373–376.
- Klett J.D. (1981). Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Appl. Opt.* 20(2): 211–220.
- Klett J.D. (1985). Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Appl. Opt.* 24(11): 1638–1643.

- Knudsen B., Larsen N., Mikkelsen I., Morcrette J.J., Braathen G.,
 Kyrö E., Fast H., Gernandt H., Kanzawa H., Nakane H., Dorokhov
 V., Yushkov V., Hansen G., Gil M., Shearman R. (1998). Ozone depletion in and below the Arctic vortex for 1997. *Geophys. Res. Lett.* 25(5): 627-630.
- Knudsen B.M., von der Gathen P., Braathen G.O., Fabian R., Jørgensen T.S., Kyro E., Neuber R., Rummukainen M. (1992). Temporal development of the correlation between ozone and potential vorticity in the Arctic in the winters of 1988/89, 1989/90 and 1990/91. Proc. of the Quadr. Ozone Symp., Charlottesville.
- Kohlrausch F. (1968). Praktische Physik, Band I. B.G. Teubner, Stuttgart, 22. Auflage.
- Koike M., Jones Y., Matthews W., Johnston P., McKenzie R., Kinnison D., Rodriguez J. (1994). Impact of Pinatubo aerosols on the partitioning between NO₂ and HNO₃. *GRL* 21: 597–600.
- Koop T., Carslaw K.S. (1996). Melting of H₂SO₄·4H₂O Particles upon Cooling: Implications for Polar Stratospheric Clouds. *Science* 272,: 1638–1641.
- Koop T., Biermann U.M., Raber W., Luo B.P., Crutzen P.J., Peter T. (1995). Do stratospheric aerosol droplets freeze above the frost point ? *Geophys. Res. Lett.* 22(8): 917–920.
- Koop T., Carslaw K.S., Peter T. (1997). Thermodynamic stability and phase transitions of PSC particles. *Geophys. Res. Lett.* 24(17): 2199-2202.
- Krämer B., Schwell M., Hübner O., Vortisch H., Leisner T., Rühl E., Baumgärtel H., Wöste L. (1996). Homogeneous ice nucleation observed in single levitated micro droplets. *Ber. Bunsenges. Phys. Chemie* 100: 1911–1914.
- Krämer B., Weidinger I., Schwell M., Hübner O., Vortisch H., Leisner T., Rühl E., Baumgärtel H., Wöste L. (1998a). Freezing dynamics of single supercooled sulfuric acid droplets. To be published.
- Krämer B., Weidinger I., Schwell M., Hübner O., Vortisch H., Leisner T., Rühl E., Baumgärtel H., Wöste L. (1998b). The freezing of single levitated droplets of HNO₃, H₂SO₄, H₂O solutions under stratospheric conditions. To be published.
- Labitzke K., van Loon H. (1988). Associations between the 11-year solar cycle, the QBO, and the atmosphere. Part I: the troposphere and the stratosphere in the Northern hemisphere in winter. J. Atmos. Terr. Phys. 50: 197–206.

- Larsen N., Knudsen B.M., Rosen J.M., Kjome N.T., Neuber R., Kyrö E. (1997). Temperatur histories in liquid and solid polar stratospheric cloud formation. J. Geophys. Res. 102(D19): 23.505-23.517.
- Macleod H.A. (1969). Thin film optical filters. Adam Hilger, London.
- Manney G.L., Froidevaux L., Waters J.W., Santee M.L., Read W.G., Flower D.A., Jarnot R.F., Zurek R.W. (1996). Arctic ozone depletion observed by UARS MLS during the 1994–95 winter. *Geophys. Res. Lett.* 23(1): 85–88.
- Marti J., Mauersberger K. (1993). A survey and new measurements of ice vapor pressure at temperatures between 170 and 250 K. *Geophys. Res. Lett.* 20(5): 363-366.
- Mc Cormick M.P., Steele H.M., Hamill P., Chu W.P., Swissler T.J. (1982). Polar stratospheric cloud sightings by SAM II. J. Atmos Sci. 39: 1387–1397.
- Mc Cormick P., Wang P., Pitts M. (1993). Background stratospheric aerosol and polar stratospheric cloud reference models. J. Space Res. 13: 7–23.
- Mc Gee T.J., Gross M., Ferrare R. Heaps W., Singh U. (1993). Measurements of stratospheric ozone in the presence of volcanic aerosols. *Geophys. Res. Lett.* 20(10): 995–998.
- McIntyre M.E., Palmer T.N. (1983). Breaking planetary waves in the stratosphere. *Nature* 305: 593-600.
- Measures R.M. (1984). Laser remote sensing, Fundamentals and Applications. John Wiley & Sons.
- Mehrtens H. (1998). ALOMAR: Lidarmessungen Jan. 97. priv. Mitteilung.
- Meilinger S., Koop T., Luo B., Huthwelker T., Carslaw K.S., Krieger U., Crutzen J.P., Peter T. (1995). Size-dependent stratospheric droplet composition in mesoscale temperature fluctuations and their potential role in PSC freezing. *Geophys. Res. Lett.* 22(22): 3031–3034.
- Meriwether J.W., Dao P.D., Mc Nutt R.T., Klemetti W., Moskowitz W., Davidson G. (1994). Rayleigh lidar observations of mesospheric temperature structure. J. Geophys. Res. 99(D8): 16.973-16.987.
- Mie G. (1908). Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. Ann. d. Physik 4(25): 377–445.
- Mishchenko M., Hovenier J. (1995). Depolarization of light backscattered by randomly oriented nonspherical particles. *Optics Letters* 20: 1356–1358.

- Mishchenko M.I., Sassen K. (1998). Depolarization of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails. *Geophys. Res. Lett.* 25(3): 309–312.
- Mishchenko M.I., Travis L.D., Macke A. (1996*a*). Scattering of light by polydisperse, randomly oriented, finite circular cylinders. *Applied Optics* 35(2): 4927–4940.
- Mishchenko M.I., Travis L.D., Mackowski D. (1996b). T-Matrix Computations of light scattering by nonspherical particles: A Review. J. Quant. Spec. Rad. Trans. 55(5): 535-575.
- Molina M., Zhang R., Woolbridge P., McMahon J., Kim J., Chang H., Beyer K. (1993). Physical Chemistry of the H₂SO₄/HNO₃/H₂O system: Implications for polar stratospheric clouds. *Science* 251: 1418–1423.
- Murphy D., Gary B. (1995). Mesoscale Temperature Fluctuations and Polar Stratospheric Clouds. Journal of the Atmospheric Sciences 52(10): 1753-1760.
- Naujokat B., Pawson S. (1996). The cold stratospheric winters 1995/1995 and 1995/96. *Geophys. Res. Lett.* 23(25): 3703-3706.
- Naujokat B., Pawson S. (1998). The unusually cold, persistent vortex in spring 1997. *BMBF Air Poll. Res. Rep.* (in press).
- Naujokat B., Petzoldt K., Labitzke K., Lenschow R., Rajewski B., Wiesner M., Wohlfart R.C. (1992). The stratospheric winter 1991/92: The winter of the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment. Beilage zur Berliner Wetterkarte.
- Nedoluha G., Bevilacqua R., Gomez R., Siskind D., Hicks B. (1998). Increases in middle atmospheric water vapor as observed by the Halogen Occultation Experiment and the ground-based Water Vapor Millimeter-wave Spectrometer from 1991 to 1997. J. Geophys. Res. 103(D3): 3531–3543.
- Neuber R., Krüger B. (1990). The stratospheric ozone layer above Spitsbergen in winter 1989. *Geophys. Res. Lett.* 17(4): 321–324.
- Neuber R., von der Gathen P., von Zahn U. (1988). Altitude and temperature of the Mesopause at 69° N latitude in winter. J. Geophys. Res. 93(D9): 11.093-11.101.
- Neuber R., Beyerle G., Schrems O. (1992a). LIDAR measurements of stratospheric aerosols in the Arctic. Ber. Bunsenges. Phys. Chem. 96(3): 351-353.
- Neuber R., Beyerle G., Schrems O., Fabian R., Krüger B., von der Gathen P. (1992b). Measurements of stratospheric ozone and aerosols above Spitsbergen. In Proc. of the Quadr. Ozone Symp. part 2.

- Neuber R., von der Gathen P., Biele J., Rosen J., Gernandt H. (1997). The Effect of Different PSC Particles on Local Ozone Depletion During Arctic Winter 1996/97. In European Ozone Research Coordinating Unit [1997]. Poster Nr. 48.
- Neuber R., Beyerle G., Beninga I., von der Gathen P., Rairoux P., Schrems O., Wahl P., Gross M., McGee T., Iwasaka Y., Fujiwara M., Shibata T., Klein U., Steinbrecht W. (1998). The Ny-Ålesund Aerosol and Ozone Measurement Intercomparison campaign 1997/98 (NAOMI-98). Abstract for the 19th International Laser Radar Conference, Annapolis, Maryland.
- van de Hulst H.C. (1957). Light Scattering by Small Particles. Dover Publications, New York.
- Notholt J., Toon G., Stordal F., Solberg S., Schmidbauer N., Becker E., Meier A., Sen B. (1997). Seasonal variations of atmospheric trace gases in the high Arctic at 79°N. J. Geophys. Res. 102: 12.855-12.861.
- Ovarlez J., Ovarlez H. (1994). Stratospheric water vapor content evolution during EASOE. *Geophys. Res. Lett.* 21(13): 1235-1238.
- Pawson S., Naujokat B. (1997). Trends in daily wintertime temperatures in the northern stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 24(5): 575-578.
- **Penndorf R.** (1957). Tables of the Refractive Index for Standard Air and the Rayleigh Scattering Coefficient for the Spectral Region between 0.2 and 20 μ and Their Application to Atmospheric Optics. J. Opt. Soc. Am. 47(2): 176–182.
- Peter T. (1996). Airborne Particle Analysis for Climate Studies. Science 273: 1352–1353.
- Peter T. (1997). Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds. Annu. Rev. Phys. Chem. 48: 785-822.
- Peter T., Carslaw K., Tsias A., Wirth M., Renger W., Neuber R., Bacmeister J. (1997). New PSC Type Observed during APE/POLECAT? In European Ozone Research Coordinating Unit [1997]. Poster Nr. 55.
- Peterson D., Margitan J. (1995). Upper atmospheric research satellite correlative measurement program (UARS-CMP) balloon data Atlas. Technischer Bericht, NASA, Washington, D.C.
- Pinnick R.G., Rosen J.M., Hofmann D.J. (1976). Stratospheric aerosol measurements III: Optical model calculations. J. Atmos. Sci. 33: 304–314.
- Pruppacher H.P., Klett J.D. (1978). Microphysics of clouds and precipitation. D. Reidel Publ., Dordrecht.

Rairoux P. (1997). Priv. Mitt.

- Ravishankara A., Hanson D. (1996). Differences in the reactivity of Type I polar stratospheric clouds depending on their phase. J. Geophys. Res. 101(D2): 3885-3890.
- Reimer E. (1998). Trajektorienprogramm. pers. Mitteilung. FU Berlin, Institut für Meteorologie.
- Reist P.C. (1984). Introduction to aerosol science. Macmillan Publ., New York.
- Rex M. (1997). Der Ozonabbau in der arktischen Stratosphäre: Ergebnisse einer neuen Meßstrategie (MATCH). Dissertation, Freie Universität Berlin.
- Rogers R.R., Yau M.K. (1989). A short course in cloud physics. Pergamon Press, Oxford.
- Rosen J.M., Kjome N.T. (1991). Backscattersonde: A new instrument for atmospheric aerosol research. *Applied Optics* 30(12): 1552–1561.
- Rosen J.M., Kjome N.T., Larsen N., Knudsen B., Kyrö E., Kivi R., Karhu J., Neuber R., Beninga I. (1997). Polar stratospheric cloud threshold temperatures in the 1995–1996 arctic vortex. J. Geophys. Res. 102(D23): 28195– 28202.
- Rosenfield J.E. (1993). Radiative Feedback of Polar Stratospheric Clouds on Antarctic Temperatures. *Geophys. Res. Lett.* 20(12): 1195–1198.
- Rosenfield J.E., Newman P.A., Schoeberl M.R. (1994). Computations of diabatic descent in the stratospheric polar vorte. J. Geophys. Res. 99(D8): 16.677-16.689.
- Rosenfield J.E., Considine D.B., Meade P.E., Bacmeister J.T., Jackman C.H., Schoeberl M.R. (1997). Stratospheric effects of Mount Pinatubo aerosol studied with a coupled two-dimensional model. J. Geophys. Res. 102(D3): 3649–3670.
- Ruhe W. (1996). Manual zum Program LIDAR.EXE, Version 4.1.0. AWI internes Manual.
- Ruhe W. (1997). mcstoasc Version 1.6. AWI internes Programm.
- Rummukainen M., Knudsen B., von der Gathen P. (1994). Dynamic diagnostics of the edges of the polar vortices. Ann. Geophysisicae 12: 1114–1118.

Salawitch R.J. (1998). A greenhouse warming connection. Nature 392: 551-552.

- Sato M., Hansen J.E., Mc Cormick M.P., Pollack J.B. (1993). Stratospheric aerosol optical depths, 1850–1990. J. Geophys. Res. 98(D12): 22.987–22.994.
- Schiller C., Engel A., Schmidt U., Borchers R., Ovarlez J. (1996). The partitioning of hydrogen species in the Arctic winter stratosphere: Implications for microphysical parameters. J. Geophys. Res. 101(D9): 14.489–14.493.
- Schoeberl M.R., Hartmann D.L. (1991). The dynamics of the stratospheric polar vortex and its relation to springtime ozone depletions. *Science* 51: 46–52.
- Schoeberl M.R., Lait L.R., Newman P.A., Rosenfield J.E. (1992). The structure of the polar vortex. J. Geophys. Res. 97(D8): 7859-7882.
- Seinfeld J.D. (1986). Atmospheric chemistry and physics of air pollution. John Wiley & Sons, New York.
- Sessler J., Good P., MacKenzie A., Pyle J. (1996). What role do type I PSC and aerosol parameterizations play in modeled lower stratospheric chlorine activation an ozone loss? J. Geophys. Res. 101: 28,817–28,835.
- Sheridan P.J., Brock C.A., Wilson J.C. (1994). Aerosol particles in the upper troposphere and lower stratosphere: Elemental composition and morphology of individual particles in northern latitudes. *Geophys. Res. Lett.* 21(23): 2587–2590.
- Shibata T., Iwasaka Y., Fujiwara M., Hayashi M., Nagatani M., Shiraishi K., Adashi H., Sakai T., Susumu K., Nakura Y. (1997). Polar stratospheric clouds observed by lidar over Spitsbergen in the winter 1994/95: Liquid particles and vertical 'sandwich' structure. J. Geophys. Res. 102(D9): 10.829–10.840.
- Shindell D.T., Rind D., Lonergan P. (1998). Increased polar stratospheric ozone losses and delayed eventual recovery owing to increased greenhouse-gas concentrations. *Nature* 392: 589–592.
- Shurcliff W.A. (1962). *Polarized light: Production and use*. Harvard University Press, Cambridge.
- Solomon S. (1988). The mystery of the Antarctic ozone "hole". *Rev. Geophys.* 26: 131–148.
- Solomon S. (1990). Progress towards a quantitative understanding of Antarctic ozone depletion. *Nature* 347: 347–354.
- Stanford J.L., Davis J.S. (1974). A century of stratospheric cloud reports: 1870– 1972. Bulletin American Meteorological Soc., 55(3): 213–219.
- Stebel K. (1998). Lidar-Beobachtungen stratosphärischer Aerosole in der Arktis über Spitzbergen (79 ° N, 12 ° O). Dissertation, Universität Bremen, Kiruna/Schweden.

- Steele H.M., Hamill P. (1981). Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulphuric acid-water droplets in the stratosphere. J. Aerosol Sci. 12(6): 517-528.
- Stein B. (1994). Charakterisierung von stratosphärischen Aerosolen mit multispektralem Lidar. Dissertation, Freie Universität Berlin, Berlin.
- Steinbrecht W. (1987). Messungen des stratosphärischen Ozons in der Arktis und über dem Äquator mit dem DIAL-Verfahren. Diplomarbeit, Universität München.
- Steinbrecht W. (1994). Lidar measurements of Ozone, Aerosol and Temperature in the Stratosphere. PhD thesis, York University, North York, Ontario, Canada.
- Steinbrecht W., Carswell A.I. (1995). Evaluation of the effects of Mount Pinatubo aerosol on differential absorption lidar measurements of stratospheric ozone. J. Geophys. Res. 100(D1): 1215-1233.
- Steinbrecht W., Gross M., McGee T., Neuber R., von der Gathen P., Wahl P., Klein U., Langer J. (1998). Results of The Ny-Ålesund Ozone Measurements Intercomparison NAOMI. Abstract for the 19th International Laser Radar Conference, Annapolis, Maryland,.
- Størmer C. (1929). Remarkable clouds at high altitudes. Nature 3094(123): 260–261.
- Tabazadeh A., Toon O.B. (1996). The presence of metastable HNO₃/H₂O solid phases in the stratosphere inferred from ER2 data. J. Geophys. Res. 101(D4): 9071–9078.
- Tabazadeh A., Turco R., Drdla K., Jacobson M., Toon O. (1994a). A study of type I polar stratospheric cloud formation. *Geophys. Res. Lett.* 21: 1619–1622.
- Tabazadeh A., Turco R., Jabobson M. (1994b). A model for studying the composition and chemical effects of stratospheric aerosols. J. Geophys. Res. 99: 12.897-12.914.
- Tabazadeh A., Toon O.B., Gary B.L., Bacmeister J.T., Schoeberl M.R. (1996). Observational constraints on the formation of Type Ia polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.* 23(16): 2109–2112.
- Tabazadeh A., Toon O., Jensen E. (1997). Formation and implications of ice particle nucleation in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 24(16): 2007–2010.
- Thomason L.W. (1991). A diagnostic stratospheric aerosol size distribution inferred from SAGE II measurements. J. Geophys. Res. 96(D12): 22501–22508.

- Tie X., Brasseur G. (1995). The response of stratospheric ozone to volcanic eruptions: sensitivity to atmospheric chlorine loading. *Geophys. Res. Lett.* 22: 3035-3038.
- Toon O.B., Hamill P., Turco R.P., Pinto J. (1986). Condensation of HNO₃ and HCl in the winter polar stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 13(12): 1284–1287.
- Toon O.B., Turco R.P., Jordan J., Goodman J., Ferry G. (1989). Physical processes in polar stratospheric ice clouds. J. Geophys. Res. 94(D9): 11359–11380.
- Toon O.B., Browell E.V., Kinne S., Jordan J. (1990). An analysis of lidar observations of polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.* 17(4): 393–396.

Tsias A. (1998). Pers. Mitt.

- Tsias A., Carslaw K., Luo B., Peter T., Wirth M., Renger W., Thomas A., Borrman S. (1997a). Microphysical and Optical Simulation of PSCs: A Case Study for the January 9, 1997 PSC Event over Norwegian Mountains. In European Ozone Research Coordinating Unit [1997]. Poster Nr. 22.
- Tsias A., Prenni A., Carslaw K., Onasch. T. P.and Luo B., M.A. T., Peter T. (1997b). Freezing of polar stratospheric clouds in orographically induced strong warming events. *Geophys. Res. Lett.* 24(18): 2303–2306.
- **Turco R.** (1985). The photochemistry of atmospheres; Earth, the other planets and comets., Kapitel The photochemistry of the stratosphere. Academic Press, Orlando.
- Vaisala (1991). Ozonesonde OES, Users Guide. Vaisala Oy, SF-00421 Helsinki, Finland, OES-T0533-1.3 Auflage.
- Vömel H., Rummukainen M., Kivi R., Karhu J., Turunen T., Kyrö, Rosen J., Kjome N., Oltmans S. (1997). Dehydration and sedimentation of ice particles in the Arctic stratospheric vortex. *Geophys. Res. Lett.* 24(7): 795–798.
- von der Gathen P. (1995). Aerosol extinction and backscatter profiles by means of a multiwavelength Raman lidar: a new method without a priori assumptions. Applied Optics 34(3): 463-466.
- Wandiger U., Ansmann A., Reichardt J., Deshler T. (1995). Determination of stratospheric aerosol microphysical properties from independent extinction and backscattering measurements with a Raman lidar. *Applied Optics* 34(36): 8315–8329.
- Warneck P. (1988). Chemistry of the natural atmosphere. Academic Press. Inc., San Diego.

- Watanabe M., Iwasaka Y., Hayashi M., Nagatani M., Nakada H., Adachi H., Fujiwara M., Gernandt H., Neuber R. (1997). Distribution of particulate sulfur in the winter arctic stratosphere: Balloon-borne measurements of particle number concentration. In *Proceedings of the NIPR Symposion on Polar Meteorology and Glaciology*, Band 11, S. 138–149. National Institute of Polar Research, Tokyo.
- Wedekind C. (1997). Lidar-Untersuchungen von Bildung und Dynamik polarer Stratosphärenwolken in der Arktis. Dissertation, Freie Universität Berlin.
- Werner J., Rothe K.W., Walther H. (1983). Monitoring of the stratospheric ozone layer by laser radar. *Appl. Phys.* B 32: 113-118.
- Whiteway J.A., Carswell A.I. (1995). Lidar observations of gravity wave activity in the upper stratosphere over Toronto. J. Geophys. Res. 100(D7): 14.113-14.124.
- Wiscombe W.J. (1980). Improved Mie scattering algorithms. Appl. Opt. 19(9): 1505–1509.
- Wittrock F. (1994). Lidar-Untersuchungen der Arktischen Stratosphäre. Diplomarbeit, Universität Bremen.
- WMO (1991). Scientific assessment of ozone depletion: 1991. Global Ozone Res. and Monit. Proj. Rep. 25, World Meteorological Organization (WMO), Geneva.
- WMO (1994). Scientific assessment of ozone depletion: 1994. Global Ozone Res. and Monit. Proj. Rep. 37, World Meteorological Organization (WMO), Geneva.
- Young A.T. (1980). Revised depolarization corrections for atmospheric extinction. *Applied Optics* 19(20): 3427–3428.
- Young A.T. (1981). Rayleigh scattering. Appl. Opt. 20(4): 533-535.
- Young A.T. (1982). Rayleigh scattering. *Physics Today* S. 42–48.
- Zhang R., Wolldridge P.J., Abbatt J.P.D., Molina M.J. (1993). Physical chemistry of the H₂SO₄/H₂O binary system at low temperatures: Stratospheric implications. J. Phys. Chem. 97: 7351-7358.
- Zhang R., Leu M.T., Molina M.J. (1995). Formation of polar stratospheric clouds on preactivated background aerosols. *Geophys. Res. Lett.* 23(13): 1669– 1672.
- Zhao J., Turco R., Toon O. (1995). A model simulation of Pinatubo volcanic aerosols in the stratosphere. J. Geophys. Res. 100: 1493-1496.

Folgende Hefte der Reihe "Berichte zur Polarforschung" sind bisher erschienen:

• Sonderheft Nr. 1/1981 – "Die Antarktis und ihr Lebensraum" Eine Einführung für Besucher – Herausgegeben im Auftrag von SCAR Heft Nr. 1/1982 - "Die Filchner-Schelfeis-Expedition 1980/81" zusammengestellt von Heinz Kohnen * Heft-Nr. 2/1982 – "Deutsche Antarktis-Expedition1980/81 mit FS ,Meteor'" First International BIOMASS Experiment (FIBEX) – Liste der Zooplankton- und Mikronektonnetzfänge zusammengestellt von Norbert Klages. Heft Nr. 3/1982 – "Digitale und analoge Krill-Echolot-Rohdatenerfassung an Bord des Forschungs-schiffes "Meteor"" (im Rahmen von FIBEX 1980/81, Fahrtabschnitt ANT III), von Bodo Morgenstern Heft Nr. 4/1982 - "Filchner-Schelfeis-Expedition 1980/81" Liste der Planktonfänge und Lichtstärkemessungen zusammengestellt von Gerd Hubold und H. Eberhard Drescher Heft Nr. 5/1982 - "Joint Biological Expedition on RRS 'John Biscoe', February 1982" by G. Hempel and R. B. Heywood * Heft Nr. 6/1982 - "Antarktis-Expedition 1981/82 (Unternehmen , Eiswarte')" zusammengestellt von Gode Gravenhorst Heft Nr. 7/1982 - "Marin-Biologisches Begleitprogramm zur Standorterkundung 1979/80 mit MS "Polarsirkel' (Pre-Site Survey)" - Stationslisten der Mikronekton- und Zooplanktonfänge sowie der Bodenfischerei zusammengestellt von R. Schneppenheim Heft Nr. 8/1983 - "The Post-Fibex Data Interpretation Workshop" by D. L. Cram and J.-C. Freytag with the collaboration of J. W. Schmidt, M. Mall, R. Kresse, T. Schwinghammer * Heft Nr. 9/1983 - "Distribution of some groups of zooplankton in the inner Weddell Sea in summer 1979/80" by I. Hempel, G. Hubold, B. Kaczmaruk, R. Keller, R. Weigmann-Haass Heft Nr. 10/1983 - "Fluor im antarktischen Ökosystem" - DFG-Symposium November 1982 zusammengestellt von Dieter Adelung Heft Nr. 11/1983 - "Joint Biological Expedition on RRS 'John Biscoe', February 1982 (II)" Data of micronecton and zooplankton hauls, by Uwe Piatkowski Heft Nr. 12/1983 - "Das biologische Programm der ANTARKTIS-I-Expedition 1983 mit FS "Polarstern" Stationslisten der Plankton-, Benthos- und Grundschleppnetzfänge und Liste der Probennahme an Robben und Vögeln, von H. E. Drescher, G. Hubold, U. Piatkowski, J. Plötz und J. Voß • Heft Nr. 13/1983 – "Die Antarktis-Expedition von MS "Polarbjörn' 1982/83" (Sommerkampagne zur Atka-Bucht und zu den Kraul-Bergen), zusammengestellt von Heinz Kohnen Sonderheft Nr. 2/1983 - "Die erste Antarktis-Expedition von FS "Polarstern" (Kapstadt, 20. Januar 1983 -Rio de Janeiro, 25. März 1983)", Bericht des Fahrtleiters Prof. Dr. Gotthilf Hempel Sonderheft Nr. 3/1983 - "Sicherheit und Überleben bei Polarexpeditionen" zusammengestellt von Heinz Kohnen Heft Nr. 14/1983 - "Die erste Antarktis-Expedition (ANTARKTIS I) von FS "Polarstern" 1982/83" herausgegeben von Gotthilf Hempel Sonderheft Nr. 4/1983 - "On the Biology of Krill Euphausia superba" - Proceedings of the Seminar and Report of the Krill Ecology Group, Bremerhaven 12.-16. May 1983, edited by S. B. Schnack Heft Nr. 15/1983 - "German Antarctic Expedition 1980/81 with FRV 'Walther Herwig' and RV 'Meteor' " -First International BIOMASS Experiment (FIBEX) - Data of micronekton and zooplankton hauls by Uwe Piatkowski and Norbert Klages Sonderheft Nr. 5/1984 - "The observatories of the Georg von Neumayer Station", by Ernst Augstein Heft Nr. 16/1984 - "FIBEX cruise zooplankton data" by U. Piatkowski, I. Hempel and S. Rakusa-Suszczewski Heft Nr. 17/1984 - "Fahrtbericht (cruise report) der "Polarstern"-Reise ARKTIS I, 1983" von E. Augstein, G. Hempel und J. Thiede Heft Nr. 18/1984 - "Die Expedition ANTARKTIS II mit FS ,Polarstern' 1983/84", Bericht von den Fahrtabschnitten 1, 2 und 3, herausgegeben von D. Fütterer Heft Nr. 19/1984 - "Die Expedition ANTARKTIS II mit FS ,Polarstern' 1983/84", Bericht vom Fahrtabschnitt 4, Punta Arenas-Kapstadt (Ant-II/4), herausgegeben von H. Kohnen Heft Nr. 20/1984 - "Die Expedition ARKTIS II des FS "Polarstern" 1984, mit Beiträgen des FS "Valdivia" und des Forschungsflugzeuges, Falcon 20' zum Marginal Ice Zone Experiment 1984 (MIZEX) von E. Augstein, G. Hempel, J. Schwarz, J. Thiede und W. Weigel Heft Nr. 21/1985 - "Euphausiid larvae in plankton samples from the vicinity of the Antarctic Peninsula, February 1982" by Sigrid Marschall and Elke Mizdalski Heft Nr. 22/1985 - "Maps of the geographical distribution of macrozooplankton in the Atlantic sector of the Southern Ocean" by Uwe Platkowski Heft Nr. 23/1985 – "Untersuchungen zur Funktionsmorphologie und Nahrungsaufnahme der Larven des Antarktischen Krills Euphausia superba Dana" von Hans-Peter Marschall

Heft Nr: 24/1985 - "Untersuchungen zum Periglazial auf der König-Georg-Insel Südshetlandinseln/ Antarktika. Deutsche physiogeographische Forschungemin der Antarktis. – Bericht über die Kampagne 1983/84" von Dietrich Barsch, Wolf-Dieter Blümel, Wolfgang Flügel, Roland Mäusbacher, Gerhard Stablein, Wolfgang Zick Heft-Nr. 25/1985 – "Die Expedition ANTARKTIS III mit FS ,Polarstern' 1984/1985" herausgegeben von Gotthilf Hempel. *Heft-Nr. 26/1985 - "The Southern Ocean"; A survey of oceanographic and marine meteorological research work by Helimer et al. Heft Nr. 27/1986 - "Spätpleistozäne Sedimentationsprozesse am antarktischen Kontinentalhang vor Kapp Norvegia, östliche Weddell-See" von Hannes Grobe Heft Nr. 28/1986 - "Die Expedition ARKTIS III mit "Polarstern" 1985" mit Beiträgen der Fahrtteilnehmer, herausgegeben von Rainer Gersonde Heft Nr. 29/1986 - "5 Jahre Schwerpunktprogramm ,Antarktisforschung" der Deutschen Forschungsgemeinschaft." Rückblick und Ausblick. Zusammengestellt von Gotthilf Hempel, Sprecher des Schwerpunktprogramms Heft Nr. 30/1986 - "The Meteorological Data of the Georg-von-Neumayer-Station for 1981 and 1982" by Marianne Gube and Friedrich Obleitner Heft Nr. 31/1986 - "Zur Biologie der Jugendstadien der Notothenioidei (Pisces) an der Antarktischen Halbinsel" von A. Kellermann Heft Nr. 32/1986 - "Die Expedition ANTARKTIS IV mit FS "Polarstern" 1985/86" mit Beiträgen der Fahrtteilnehmer, herausgegeben von Dieter Fütterer Heft Nr. 33/1987 - "Die Expedition ANTARKTIS-IV mit FS "Polarstern" 1985/86 -Bericht zu den Fahrtabschnitten ANT-IV/3--4" von Dieter Karl Fütterer Heft Nr. 34/1987 - "Zoogeographische Untersuchungen und Gemeinschaftsanalysen an antarktischem Makroplankton" von U. Piatkowski Heft Nr. 35/1987 - "Zur Verbreitung des Meso- und Makrozooplanktons in Oberflächenwasser der Weddell See (Antarktis)" von E. Boysen-Ennen Heft Nr. 36/1987 - "Zur Nahrungs- und Bewegungsphysiologie von Salpa thompsoni und Salpa fusiformis" von M. Reinke Heft Nr. 37/1987 - "The Eastern Weddell Sea Drifting Buoy Data Set of the Winter Weddell Sea Project (WWSP)" 1986 by Heinrich Hoeber und Marianne Gube-Lehnhardt Heft Nr. 38/1987 - "The Meteorological Data of the Georg von Neumayer Station for 1983 and 1984" by M. Gube-Lenhardt Heft Nr. 39/1987 - "Die Winter-Expedition mit FS "Polarstern' in die Antarktis (ANT V/1-3)" herausgegeben von Sigrid Schnack-Schiel Heft Nr. 40/1987 - "Weather and Synoptic Situation during Winter Weddell Sea Project 1986 (ANT V/2) July 16-September 10, 1986" by Werner Rabe Heft Nr. 41/1988 - "Zur Verbreitung und Ökologie der Seegurken im Weddellmeer (Antarktis)" von Julian Gutt Heft Nr. 42/1988 - "The zooplankton community in the deep bathyal and abyssal zones of the eastern North Atlantic" by Werner Beckmann Heft Nr. 43/1988 - "Scientific cruise report of Arctic Expedition ARK IV/3" Wissenschaftlicher Fahrtbericht der Arktis-Expedition ARK IV/3, compiled by Jörn Thiede Heft Nr. 44/1988 - "Data Report for FV 'Polarstern' Cruise ARK IV/1, 1987 to the Arctic and Polar Fronts" by Hans-Jürgen Hirche Heft Nr. 45/1988 - "Zoogeographie und Gemeinschaftsanalyse des Makrozoobenthos des Weddellmeeres (Antarktis)" von Joachim Voß Heft Nr. 46/1988 - "Meteorological and Oceanographic Data of the Winter-Weddell-Sea Project 1986 (ANT V/3)" by Eberhard Fahrbach Heft Nr. 47/1988 – "Verteilung und Herkunft glazial-mariner Gerölle am Antarktischen Kontinentalrand des östlichen Weddellmeeres" von Wolfgang Oskierski Heft Nr. 48/1988 - "Variationen des Erdmagnetfeldes an der GvN-Station" von Arnold Brodscholl * Heft Nr. 49/1988 - "Zur Bedeutung der Lipide im antarktischen Zooplankton" von Wilhelm Hagen Heft Nr. 50/1988 - "Die gezeitenbedingte Dynamik des Ekström-Schelfeises, Antarktis" von Wolfgang Kobarg Heft Nr. 51/1988 - "Ökomorphologie nototheniider Fische aus dem Weddellmeer, Antarktis" von Werner Ekau Heft Nr. 52/1988 - "Zusammensetzung der Bodenfauna in der westlichen Fram-Straße" von Dieter Piepenburg * Heft Nr. 53/1988 – "Untersuchungen zur Ökologie des Phytoplanktons im südöstlichen Weddellmeer (Antarktis) im Jan./Febr. 1985" von Eva-Maria Nöthig Heft Nr. 54/1988 - "Die Fischfauna des östlichen und südlichen Weddellmeeres: geographische Verbreitung, Nahrung und trophische Stellung der Fischarten" von Wiebke Schwarzbach Heft Nr. 55/1988 - "Weight and length data of zooplankton in the Weddell Sea in austral spring 1986 (Ant V/3)" by Elke Mizdalski Heft Nr. 56/1989 - "Scientific cruise report of Arctic expeditions ARK IV/1, 2 & 3"

by G. Krause, J. Meincke und J. Thiede

Heft Nr. 57/1989 - "Die Expedition ANTARKTIS V mit FS "Polarstern" 1986/87" Bericht von den Fahrtabschnitten ANT V/4-5 von H. Miller und H. Oerter * Heft Nr. 58/1989 - "Die Expedition ANTARKTIS VI mit FS "Polarstern" 1987/88" von D. K. Fütterer Heft Nr. 59/1989 - "Die Expedition ARKTIS V/1a, 1b und 2 mit FS ,Polarstern' 1988" von M. Spindler Heft Nr. 60/1989 - "Ein zweidimensionales Modell zur thermohalinen Zirkulation unter dem Schelfers" von H. H. Hellmer Heft Nr. 61/1989 - "Die Vulkanite im westlichen und mittleren Neuschwabenland, Vestfjella und Ahlmannryggen, Antarktika" von M. Peters * Heft-Nr, 62/1989 - "The Expedition ANTARKTIS VII/1 and 2 (EPOS I) of RV 'Polarstern' in 1988/89", by I. Hempel Heft Nr. 63/1989 – "Die Eisalgenflora des Weddellmeeres (Antarktis): Artenzusammensetzung und Biomasse sowie Ökophysiologie ausgewählter Arten" von Annette Bartsch Heft Nr. 64/1989 - "Meteorological Data of the G.-v,-Neumayer-Station (Antarctica)" by L. Helmes Heft Nr. 65/1989 - "Expedition Antarktis VII/3 in 1988/89" by I. Hempel, P. H. Schalk, V. Smetacek Heft Nr. 66/1989 - "Geomorphologisch-glaziologische Detailkartierung des arid-hochpolaren Borgmassivet, Neuschwabenland, Antarktika" von Karsten Brunk Heft-Nr. 67/1990 - "Identification key and catalogue of larval Antarctic fishes", edited by Adolf Kellermann Heft-Nr. 68/1990 - "The Expediton Antarktis VII/4 (Epos leg 3) and VII/5 of RV 'Polarstern' in 1989", edited by W. Arntz, W. Ernst, I. Hempel Heft-Nr. 69/1990 - "Abhängigkeiten elastischer und rheologischer Eigenschaften des Meereises vom Eisgefüge", von Harald Hellmann Heft-Nr. 70/1990 - "Die beschalten benthischen Mollusken (Gastropoda und Bivalvia) des Weddellmeeres, Antarktis", von Stefan Hain Heft-Nr. 71/1990 - "Sedimentologie und Paläomagnetik an Sedimenten der Maudkuppe (Nordöstliches Weddellmeer)", von Dieter Cordes. Heft-Nr. 72/1990 - "Distribution and abundance of planktonic copepods (Crustacea) in the Weddell Sea in summer 1980/81", by F. Kurbjeweit and S. Ali-Khan Heft-Nr. 73/1990 - "Zur Frühdiagenese von organischem Kohlenstoff und Opal in Sedimenten des südlichen und östlichen Weddellmeeres", von M. Schlüter Heft-Nr. 74/1990 - "Expeditionen ANTARKTIS-VIII/3 und VIII/4 mit FS "Polarstern" 1989" von Rainer Gersonde und Gotthilf Hempel Heft-Nr. 75/1991 - "Quartäre Sedimentationsprozesse am Kontinentalhang des Süd-Orkey-Plateaus im nordwestlichen Weddellmeer (Antarktis)", von Sigrun Grünig Heft-Nr. 76/1990 - "Ergebnisse der faunistischen Arbeiten im Benthal von King George Island (Südshetlandinseln, Äntarktis)", von Martin Rauschert Heft-Nr. 77/1990 - "Verteilung von Mikroplankton-Organismen nordwestlich der Antarktischen Halbinsel unter dem Einfluß sich ändernder Umweltbedingungen im Herbst", von Heinz Klöser Heft-Nr. 78/1991 – "Hochauflösende Magnetostratigraphie spätquartärer Sedimente arktischer Meeresgebiete", von Norbert R. Nowaczyk Heft-Nr. 79/1991 - "Ökophysiologische Untersuchungen zur Salinitäts- und Temperaturtoleranz antarktischer Grünalgen unter besonderer Berücksichtigung des ß-Dimethylsulfoniumpropionat (DMSP) - Stoffwechsels", von Ulf Karsten Heft-Nr. 80/1991 - "Die Expedition ARKTIS VII/1 mit FS ,Polarstern' 1990", herausgegeben von Jörn Thiede und Gotthilf Hempel Heft-Nr. 81/1991 – "Paläoglaziologie und Paläozeanographie im Spätquartär am Kontinentalrand des südlichen Weddellmeeres, Antarktis", von Martin Melles Heft-Nr. 82/1991 – "Quantifizierung von Meereseigenschaften: Automatische Bildanalyse von Dünnschnitten und Parametrisierung von Chlorophyll- und Salzgehaltsverteilungen", von Hajo Eicken Heft-Nr. 83/1991 - "Das Fließen von Schelfeisen - numerische Simulationen mit der Methode der finiten Differenzen", von Jürgen Determann Heft-Nr. 84/1991 – "Die Expedition ANTARKTIS-VIII/1-2, 1989 mit der Winter Weddell Gyre Study der Forschungsschiffe "Polarstern" und "Akademik Fedorov", von Ernst Augstein, Nikolai Bagriantsev und Hans Werner Schenke Heft-Nr. 85/1991 – "Zur Entstehung von Unterwassereis und das Wachstum und die Energiebilanz des Meereises in der Atka Bucht, Antarktis", von Josef Kipfstuhl Heft-Nr. 86/1991 ~ "Die Expedition ANTARKTIS-VIII mit "FS Polarstern" 1989/90. Bericht vom Fahrtabschnitt ANT-VIII / 5", von Heinz Miller und Hans Oerter Heft-Nr. 87/1991 - "Scientific cruise reports of Arctic expeditions ARK VI / 1-4 of RV "Polarstern" in 1989", edited by G. Krause, J. Meincke & H. J. Schwarz

Heft-Nr. 88/1991 – "Zur Lebensgeschichte dominanter Copepodenarten (*Calanus finmarchicus*, *C. glacialis*, *C. hyperboreus*, *Metridia longa*) in der Framstraße", von Sabine Diel

Heft-Nr. 89/1991 – "Detaillierte seismische Untersuchungen am östlichen Kontinentalrand des Weddell-Meeres vor Kapp Norvegia, Antarktis", von Norbert E. Kaul Heft-Nr. 90/1991 - "Die Expedition ANTARKTIS-VIII mit FS "Polarstern" 1989/90 Bericht von den Fahrtabschnitten ANT-VIII/6-7", herausgegeben von Dieter Karl Fütterer und Otto Schrems Heft-Nr. 91/1991 - "Blood physiology and ecological consequences in Weddell Sea fishes (Antarctica)", by Andreas Kunzmann Heft-Nr. 92/1991 – "Zur sommerlichen Verteilung des Mesozooplanktons im Nansen-Becken, Nordpolarmeer", von Nicolai Mumm Heft-Nr. 93/1991 - "Die Expedition ARKTIS VII mit FS "Polarstern", 1990. Bericht vom Fahrtabschnitt ARK VII/2", herausgegeben von Gunther Krause Heft-Nr. 94/1991 – "Die Entwicklung des Phytoplanktons im östlichen Weddellmeer (Antarktis) beim Übergang vom Spätwinter zum Frühjahr", von Renate Scharek Heft-Nr. 95/1991 – "Radioisotopenstratigraphie, Sedimentologie und Geochemie jungquartärer Sedimente des östlichen Arktischen Ozeans", von Horst Bohrmann Heft-Nr. 96/1991 – "Holozäne Sedimentationsentwicklung im Scoresby Sund, Ost-Grönland", von Peter Marienfeld Heft-Nr, 97/1991 – "Strukturelle Entwicklung und Abkühlungsgeschichte der Heimefrontfjella (Westliches Dronning Maud Land/Antarktika)", von Joachim Jacobs Heft-Nr. 98/1991 ~ "Zur Besiedlungsgeschichte des antarktischen Schelfes am Beispiel der Isopoda (Crustacea, Malacostraca)", von Angelika Brandt Heft-Nr. 99/1992 - "The Antarctic ice sheet and environmental change: a three-dimensional modelling study", by Philippe Huybrechts Heft-Nr. 100/1992 – "Die Expeditionen ANTARKTIS IX/1-4 des Forschungsschiffes "Polarstern" 1990/91", herausgegeben von Ulrich Bathmann, Meinhard Schulz-Baldes, Eberhard Fahrbach, Victor Smetacek und Hans-Wolfgang Hubberten Heft-Nr. 101/1992 – "Wechselbeziehungen zwischen Schwermetallkonzentrationen (Cd, Cu, Pb, Zn) im Meewasser und in Zooplanktonorganismen (Copepoda) der Arktis und des Atlantiks", von Christa Pohl Heft-Nr. 102/1992 – "Physiologie und Ultrastruktur der antarktischen Grünalge Prasiola crispa ssp. antarctica unter osmotischem Streß und Austrocknung", von Andreas Jacob Heft-Nr. 103/1992 - "Zur Ökologie der Fische im Weddelmeer", von Gerd Hubold Heft-Nr. 104/1992 – "Mehrkanalige adaptive Filter für die Unterdrückung von multiplen Reflexionen in Verbindung mit der freien Oberfläche in marinen Seismogrammen", von Andreas Rosenberger Heft-Nr. 105/1992 – "Radiation and Eddy Flux Experiment 1991 (REFLEX I)", von Jörg Hartmann, Christoph Kottmeier und Christian Wamser Heft-Nr. 106/1992 – "Ostracoden im Epipelagial vor der Antarktischen Halbinsel - ein Beitrag zur Systematik sowie zur Verbreitung und Populationsstruktur unter Berücksichtigung der Saisonalität", von Rüdiger Kock Heft-Nr. 107/1992 – "ARCTIC '91: Die Expedition ARK-VIII/3 mit FS "Polarstern" 1991", von Dieter K. Fütterer Heft-Nr. 108/1992 – "Dehnungsbeben an einer Störungszone im Ekström-Schelfeis nördlich der Georg-von-Neumayer Station, Antarktis. – Eine Untersuchung mit seismologischen und geodätischen Methoden", von Uwe Nixdorf. Heft-Nr. 109/1992 – "Spätquartäre Sedimentation am Kontinentalrand des südöstlichen Weddellmeeres, Antarktis", von Michael Weber. Heft-Nr. 110/1992 – "Sedimentfazies und Bodenwasserstrom am Kontinentalhang des nordwestlichen Weddellmeeres", von Isa Brehme. Heft-Nr. 111/1992 - "Die Lebensbedingungen in den Solekanälchen des antarktischen Meereises", von Jürgen Weissenberger. Heft-Nr. 112/1992 – "Zur Taxonomie von rezenten benthischen Foraminiferen aus dem Nansen Becken, Arktischer Ozean", von Jutta Wollenburg. Heft-Nr. 113/1992 – "Die Expedition ARKTIS VIII/1 mit FS "Polarstern" 1991", herausgegeben von Gerhard Kattner. * Heft-Nr. 114/1992 – "Die Gründungsphase deutscher Polarforschung, 1865-1875", von Reinhard A. Krause. Heft-Nr. 115/1992 – "Scientific Cruise Report of the 1991 Arctic Expedition ARK VIII/2 of RV "Polarstern" (EPOS II)", by Eike Rachor. Heft-Nr. 116/1992 – "The Meteorological Data of the Georg-von-Neumayer-Station (Antarctica) for 1988, 1989, 1990 and 1991", by Gert König-Langlo. Heft-Nr. 117/1992 – "Petrogenese des metamorphen Grundgebirges der zentralen Heimefrontfjella (westliches Dronning Maud Land / Antarktis)", von Peter Schulze. Heft-Nr. 118/1993 – "Die mafischen Gänge der Shackleton Range / Antarktika: Petrographie, Geochemie, Isotopengeochemie und Paläomagnetik", von Rüdiger Hotten. * Heft-Nr. 119/1993 – "Gefrierschutz bei Fischen der Polarmeere", von Andreas P.A. Wöhrmann. * Heft-Nr. 120/1993 – "East Siberian Arctic Region Expedition '92: The Laptev Sea - its Significance for Arctic Sea-Ice Formation and Transpolar Sediment Flux", by D. Dethleff, D. Nürnberg, E. Reimnitz, M. Saarso and Y. P. Sacchenko, – "Expedition to Novaja Zemlja and Franz Josef Land with RV. 'Dalnie Zelentsy'", by D. Nürnberg and E. Groth.

* Heft-Nr. 121/1993 – "Die Expedition ANTARKTIS X/3 mit FS 'Polarstern' 1992", herausgegeben von Michael Spindler, Gerhard Dieckmann und David Thomas. Heft-Nr. 122/1993 – "Die Beschreibung der Korngestalt mit Hilfe der Fourier-Analyse: Parametrisierung der morphologischen Eigenschaften von Sedimentpartikeln", von Michael Diepenbroek. Heft-Nr. 123/1993 – "Zerstörungsfreie hochauflösende Dichteuntersuchungen mariner Sedimente", von Sebastian Gerland. Heft-Nr. 124/1993 – "Umsatz und Verteilung von Lipiden in arktischen marinen Organismen unter besonderer Berücksichtigung unterer trophischer Stufen", von Martin Graeve. Heft-Nr. 125/1993 – "Ökologie und Respiration ausgewählter arktischer Bodenfischarten", von Christian F. von Dorrien. Heft-Nr. 126/1993 – "Quantitative Bestimmung von Paläoumweltparametern des Antarktischen Oberflächenwassers im Spätquartär anhand von Transferfunktionen mit Diatomeen", von Ulrich Zielinski Heft-Nr. 127/1993 – "Sedimenttransport durch das arktische Meereis: Die rezente lithogene und biogene Materialfracht", von Ingo Wollenburg. Heft-Nr. 128/1993 - "Cruise ANTARKTIS X/3 of RV 'Polarstern': CTD-Report", von Marek Zwierz. Heft-Nr. 129/1993 – "Reproduktion und Lebenszyklen dominanter Copepodenarten aus dem Weddellmeer, Antarktis", von Frank Kurbjeweit Heft-Nr. 130/1993 – "Untersuchungen zu Temperaturregime und Massenhaushalt des Filchner-Ronne-Schelfeises, Antarktis, unter besonderer Berücksichtigung von Anfrier- und Abschmelzprozessen", von Klaus Grosfeld Heft-Nr. 131/1993 – "Die Expedition ANTARKTIS X/5 mit FS 'Polarstern' 1992", herausgegeben von Rainer Gersonde Heft-Nr. 132/1993 – "Bildung und Abgabe kurzkettiger halogenierter Kohlenwasserstoffe durch Makroalgen der Polarregionen", von Frank Laturnus Heft-Nr. 133/1994 – "Radiation and Eddy Flux Experiment 1993 (*REFLEX II*)", by Christoph Kottmeier, Jörg Hartmann, Christian Wamser, Axel Bochert, Christof Lüpkes, Dietmar Freese and Wolfgang Cohrs * Heft-Nr. 134/1994 - "The Expedition ARKTIS-IX/1", edited by Hajo Eicken and Jens Meincke Heft-Nr. 135/1994 – "Die Expeditionen ANTARKTIS X/6-8", herausgegeben von Ulrich Bathmann, Victor Smetacek, Hein de Baar, Eberhard Fahrbach und Gunter Krause Heft-Nr. 136/1994 – "Untersuchungen zur Ernährungsökologie von Kaiserpinguinen (Aptenodytes forsteri) und Königspinguinen (Aptenodytes patagonicus)", von Klemens Pütz Heft-Nr. 137/1994 - "Die känozoische Vereisungsgeschichte der Antarktis", von Werner U. Ehrmann Heft-Nr. 138/1994 – "Untersuchungen stratosphärischer Aerosole vulkanischen Ursprungs und polarer stratosphärischer Wolken mit einem Mehrwellenlängen-Lidar auf Spitzbergen (79° N, 12° E)", von Georg Beyerle Heft-Nr. 139/1994 – "Charakterisierung der Isopodenfauna (Crustacea, Malacostraca) des Scotia-Bogens aus biogeographischer Sicht: Ein multivariater Ansatz", von Holger Winkler. Heft-Nr. 140/1994 - "Die Expedition ANTARKTIS X/4 mit FS 'Polarstern' 1992", herausgegeben von Peter Lemke Heft-Nr. 141/1994 – "Satellitenaltimetrie über Eis – Anwendung des GEOSAT-Altimeters über dem Ekströmisen, Antarktis", von Clemens Heidland Heft-Nr. 142/1994 – "The 1993 Northeast Water Expedition. Scientific cruise report of RV'Polarstern' Arctic cruises ARK IX/2 and 3, USCG 'Polar Bear' cruise NEWP and the NEWLand expedition", edited by Hans-Jürgen Hirche and Gerhard Kattner Heft-Nr. 143/1994 – "Detaillierte refraktionsseismische Untersuchungen im inneren Scoresby Sund Ost-Grönland", von Notker Fechner Heft-Nr. 144/1994 – "Russian-German Cooperation in the Siberian Shelf Seas: Geo-System Laptev Sea", edited by Heidemarie Kassens, Hans-Wolfgang Hubberten, Sergey M. Pryamikov und Rüdiger Stein * Heft-Nr. 145/1994 – "The 1993 Northeast Water Expedition. Data Report of RV 'Polarstern' Arctic Cruises IX/2 and 3", edited by Gerhard Kattner and Hans-Jürgen Hirche. Heft-Nr. 146/1994 – "Radiation Measurements at the German Antarctic Station Neumayer 1982-1992", by Torsten Schmidt and Gert König-Langlo. Heft-Nr. 147/1994 - "Krustenstrukturen und Verlauf des Kontinentalrandes im Weddell Meer / Antarktis", von Christian Hübscher. Heft-Nr. 148/1994 – "The expeditions NORILSK/TAYMYR 1993 and BUNGER OASIS 1993/94 of the AWI Research Unit Potsdam", edited by Martin Melles. Heft-Nr. 149/1994 – "Die Expedition ARCTIC' 93. Der Fahrtabschnitt ARK-IX/4 mit FS 'Polarstern' 1993", herausgegeben von Dieter K. Fütterer. Heft-Nr. 150/1994 - "Der Energiebedarf der Pygoscelis-Pinguine: eine Synopse", von Boris M. Culik. Heft-Nr. 151/1994 – "Russian-German Cooperation: The Transdrift I Expedition to the Laptev Sea", edited by Heidemarie Kassens and Valeriy Y. Karpiy. Heft-Nr. 152/1994 – "Die Expedition ANTARKTIS-X mit FS 'Polarstern' 1992. Bericht von den Fahrtabschnitten / ANT-X / 1a und 2", herausgegeben von Heinz Miller. Heft-Nr. 153/1994 - "Aminosäuren und Huminstoffe im Stickstoffkreislauf polarer Meere", von Ulrike Hubberten.

Heft-Nr. 154/1994 – "Regional und seasonal variability in the vertical distribution of mesozooplankton in the Greenland Sea", by Claudio Richter.

Heft-Nr, 155/1995 - "Benthos in polaren Gewässern", herausgegeben von Christian Wiencke und Wolf Arntz. Heft-Nr. 156/1995 – "An adjoint model for the determination of the mean oceanic circulation, air-sea fluxes und mixing coefficients", by Reiner Schlitzer. Heft-Nr. 157/1995 - "Biochemische Untersuchungen zum Lipidstoffwechsel antarktischer Copepoden", von Kirsten Fahl Heft-Nr. 158/1995 - "Die Deutsche Polarforschung seit der Jahrhundertwende und der Einfluß Erich von Drygalskis", von Cornelia Lüdecke. Heft-Nr. 159/1995 – The distribution of ∂ ¹⁸O in the Arctic Ocean: Implications for the freshwater balance of the halocli and the sources of deep and bottom waters", by Dorothea Bauch. Heft-Nr. 160/1995 – "Rekonstruktion der spätquartären Tiefenwasserzirkulation und Produktivität im östlichen Südatlantik anhand von benthischen Foraminiferenvergesellschaftungen", von Gerhard Schmiedl. Heft-Nr. 161/1995 – "Der Einfluß von Salinität und Lichtintensität auf die Osmolytkonzentrationen, die Zellvolumina und die Wachstumsraten der antarktischen Eisdiatomeen *Chaetoceros* sp. und *Navicula* sp. unter besonderer Berücksichtigung der Aminosäure Prolin", von Jürgen Nothnagel. Heft-Nr. 162/1995 - "Meereistransportiertes lithogenes Feinmaterial in spätquartären Tiefseesedimenten des zentrale östlichen Arktischen Ozeans und der Framstraße", von Thomas Letzig. Heft-Nr. 163/1995 – "Die Expedition ANTARKTIS-XI/2 mit FS "Polarstern" 1993/94", herausgegeben von Rainer Gersonde. Heft-Nr. 164/1995 – "Regionale und altersabhängige Variation gesteinsmagnetischer Parameter in marinen Sedimenten der Arktis", von Thomas Frederichs. Heft-Nr. 165/1995 - "Vorkommen, Verteilung und Umsatz biogener organischer Spurenstoffe: Sterole in antarktischer Gewässern", von Georg Hanke. Heft-Nr. 166/1995 – "Vergleichende Untersuchungen eines optimierten dynamisch-thermodynamischen Meereismode mit Beobachtungen im Weddellmeer", von Holger Fischer. Heft-Nr. 167/1995 – "Rekonstruktionen von Paläo-Umweltparametern anhand von stabilen Isotopen und Faunen-Vergesellschaftungen planktischer Foraminiferen im Südatlantik", von Hans-Stefan Niebler Heft-Nr. 168/1995 – "Die Expedition ANTARKTIS XII mit FS 'Polarstern' 1993/94. Bericht von den Fahrtabschnitten ANT XII/1 und 2", herausgegeben von Gerhard Kattner und Dieter Karl Fütterer. Heft-Nr. 169/1995 – "Medizinische Untersuchung zur Circadianrhythmik und zum Verhalten bei Überwinterern auf ein antarktischen Forschungsstation", von Hans Wortmann. Heft-Nr. 170/1995 - DFG-Kolloquium: Terrestrische Geowissenschaften - Geologie und Geophysik der Antarktis. Heft-Nr. 17/1995 – "Strukturentwicklung und Petrogenese des metamorphen Grundgebirges der nördlichen Heimefrontfjella (westliches Dronning Maud Land/Antarktika)", von Wilfried Bauer. Heft-Nr. 172/1995 – "Die Struktur der Erdkruste im Bereich des Scoresby Sund, Ostgrönland: Ergebnisse refraktionsseismischer und gravimetrischer Untersuchungen", von Holger Mandler. Heft-Nr. 173/1995 – "Paläozoische Akkretion am paläopazifischen Kontinentalrand der Antarktis in Nordvictorialand – P-T-D-Geschichte und Deformationsmechanismen im Bowers Terrane", von Stefan Matzer. Heft-Nr. 174/1995 - "The Expedition ARKTIS-X/2 of RV 'Polarstern' in 1994", edited by Hans-W. Hubberten. Heft-Nr. 175/1995 - "Russian-German Cooperation: The Expedition TAYMYR 1994", edited by Christine Siggert and Dmitry Bolshiyanov. Heft-Nr. 176/1995 – "Russian-German Cooperation: Laptev Sea System", edited by Heidemarie Kassens, Dieter Piepenburg, Jörn Thiede, Leonid Timokhov, Hans-Wolfgang Hubberten and Sergey M. Priamikov. Heft-Nr. 177/1995 - "Organischer Kohlenstoff in spätquartären Sedimenten des Arktischen Ozeans: Terrigener Eintra und marine Produktivität", von Carsten J. Schubert. Heft-Nr. 178/1995 - "Cruise ANTARKTIS XII/4 of RV 'Polarstern' in 1995; CTD-Report", by Jüri Sildam, Heft-Nr. 179/1995 - "Benthische Foraminiferenfaunen als Wassermassen-, Produktions- und Eisdriftanzeiger im Arkt schen Ozean", von Jutta Wollenburg. Heft-Nr. 180/1995 - "Biogenopal und biogenes Barium als Indikatoren für spätquartäre Produktivitätsänderungen am antarktischen Kontinentalhang, atlantischer Sektor", von Wolfgang J. Bonn. Heft-Nr. 181/1995 - "Die Expedition ARKTIS X/1 des Forschungsschiffes ,Polarstern' 1994", herausgegeben von Eberhard Fahrbach. Heft-Nr. 182/1995 - "Laptev Sea System: Expeditions in 1994", edited by Heidemarie Kassens. Heft-Nr. 183/1996 - "Interpretation digitaler Parasound Echolotaufzeichnungen im östlichen Arktischen Ozean auf de Grundlage physikalischer Sedimenteigenschaften", von Uwe Bergmann. Heft-Nr. 184/1996 - "Distribution and dynamics of inorganic nitrogen compounds in the troposphere of continental, coastal, marine and Arctic areas", by María Dolores Andrés Hernández. Heft-Nr. 185/1996 - "Verbreitung und Lebensweise der Aphroditiden und Polynoiden (Polychaeta) im östlichen Wedc meer und im Lazarevmeer (Antarktis)", von Michael Stiller. Heft-Nr. 186/1996 – "Reconstruction of Late Quaternary environmental conditions applying the natural radionuclides 200Th, 10Be, 231Pa and 238U: A study of deep-sea sediments from the eastern sector of the Antrotic Circumpolar Current System", by Martin Frank. Heft-Nr. 187/1996 - "The Meteorological Data of the Neumayer Station (Antarctica) for 1992, 1993 and 1994", by Gert König-Langlo and Andreas Herber. Heft-Nr. 188/1996 - "Die Expedition ANTARKTIS-XI/3 mit FS 'Polarstern' 1994", herausgegeben von Heinz Miller und Hannes Grobe. Heft-Nr. 189/1996 - "Die Expedition ARKTIS-VII/3 mit FS 'Polarstern' 1990",

herausgegeben von Heinz Miller und Hannes Grobe.

Heft-Nr. 190/1996 - "Cruise report of the Joint Chilean-German-Italian Magellan 'Victor Hensen' Campaign in 1994", edited by Wolf Arntz and Matthias Gorny. Heft-Nr. 191/1996 - "Leitfähigkeits- und Dichtemessung an Eisbohrkernen", von Frank Wilhelms. Heft-Nr. 192/1996 - "Photosynthese-Charakteristika und Lebensstrategie antarktischer Makroalgen", von Gabriele Wevkam. Heft-Nr. 193/1996 - "Heterogene Raktionen von N2O5 und HBr und ihr Einfluß auf den Ozonabbau in der polaren Stratosphäre", von Sabine Seisel. Heft-Nr. 194/1996 - "Ökologie und Populationsdynamik antarktischer Ophiuroiden (Echinodermata)", von Corinna Dahm. Heft-Nr. 195/1996 - "Die planktische Foraminifere Neogloboquadrina pachyderma (Ehrenberg) im Weddellmeer, Antarktis", von Doris Berberich. Heft-Nr. 196/1996 – "Untersuchungen zum Beitrag chemischer und dynamischer Prozesse zur Variabilität des stratosphärischen Ozons über der Arktis", von Birgit Heese. Heft-Nr. 197/1996 - "The Expedition ARKTIS-XI/2 of 'Polarstern' in 1995", edited by Gunther Krause. Heft-Nr. 198/1996 - "Geodynamik des Westantarktischen Riftsystems basierend auf Apatit-Spaltspuranalysen", von Frank Lisker. Heft-Nr. 199/1996 - "The 1993 Northeast Water Expedition. Data Report on CTD Measurements of RV 'Polarstern' Cruises ARKTIS IX/2 and 3", by Gereon Budéus and Wolfgang Schneider. Heft-Nr. 200/1996 - "Stability of the Thermohaline Circulation in analytical and numerical models", by Gerrit Lohmann Heft-Nr. 201/1996 - "Trophische Beziehungen zwischen Makroalgen und Herbivoren in der Potter Cove (King George-Insel, Antarktis)", von Katrin Iken. Heft-Nr. 202/1996 - "Zur Verbreitung und Respiration ökologisch wichtiger Bodentiere in den Gewässern um Svalbard (Arktis)", von Michael K. Schmid. Heft-Nr. 203/1996 - "Dynamik, Rauhigkeit und Alter des Meereises in der Arktis - Numerische Untersuchungen mit einem großskaligen Modell", von Markus Harder. Heft-Nr. 204/1996 - "Zur Parametrisierung der stabilen atmosphärischen Grenzschicht über einem antarktischen Schelfeis", von Dörthe Handorf. Heft-Nr. 205/1996 - "Textures and fabrics in the GRIP ice core, in relation to climate history and ice deformation", by Thorsteinn Thorsteinsson. Heft-Nr. 206/1996 - "Der Ozean als Teil des gekoppelten Klimasystems: Versuch der Rekonstruktion der glazialen Zirkulation mit verschieden komplexen Atmosphärenkomponenten", von Kerstin Fieg. Heft-Nr. 207/1996 - "Lebensstrategien dominanter antarktischer Oithonidae (Cyclopoida, Copepoda) und Oncaeidae (Poecilostomatoida, Copepoda) im Bellingshausenmeer", von Cornelia Metz. Heft-Nr. 208/1996 - "Atmosphäreneinfluß bei der Fernerkundung von Meereis mit passiven Mikrowellenradiometern", von Christoph Oelke. Heft-Nr. 209/1996 - "Klassifikation von Radarsatellitendaten zur Meereiserkennung mit Hilfe von Line-Scanner-Messur gen", von Axel Bochert, Heft-Nr. 210/1996 - "Die mit ausgewählten Schwämmen (Hexactinellida und Demospongiae) aus dem Weddellmeer, Antarktis, vergesellschaftete Fauna", von Kathrin Kunzmann. Heft-Nr. 211/1996 - "Russian-German Cooperation: The Expediton TAYMYR 1995 and the Expedition KOLYMA 1995" by Dima Yu. Bolshiyanov and Hans-W. Hubberten. Heft-Nr. 212/1996 - "Surface-sediment composition and sedimentary processes in the central Arctic Ocean and along the Eurasian Continental Margin", by Ruediger Stein, Gennadij I. Ivanov, Michael A. Levitan, and Kirsten Fahl. Heft-Nr. 213/1996 - "Gonadenentwicklung und Eiproduktion dreier Calanus-Arten (Copepoda): Freilandbeobachtunger Histologie und Experimente", von Barbara Niehoff. Heft-Nr. 214/1996 - "Numerische Modellierung der Übergangszone zwischen Eisschild und Eisschelf", von Christoph Maver. Heft-Nr. 215/1996 - "Arbeiten der AWI-Forschungsstelle Potsdam in Antarktika, 1994/95", herausgegeben von Ulrich Wand. Heft-Nr. 216/1996 - "Rekonstruktion quartärer Klimaänderungen im atlantischen Sektor des Südpolarmeeres anhand von Radiolarien", von Uta Brathauer. Heft-Nr. 217/1996 – "Adaptive Semi-Lagrange-Finite-Elemente-Methode zur Lösung der Flachwassergleichungen: Implementierung und Parallelisierung", von Jörn Behrens. Heft-Nr. 218/1997 - "Radiation and Eddy Flux Experiment 1995 (REFLEX III)", by Jörg Hartmann, Axel Bochert, Dietmar Freese, Christoph Kottmeier, Dagmar Nagel and Andreas Reuter. Heft-Nr. 219/1997 - "Die Expedition ANTARKTIS-XII mit FS 'Polarstern' 1995. Bericht vom Fahrtabschnitt ANT-XII/3", herausgegeben von Wilfried Jokat und Hans Oerter. Heft-Nr. 220/1997 - "Ein Beitrag zum Schwerefeld im Bereich des Weddellmeeres, Antarktis. Nutzung von Altimetermessungen des GEOSAT und ERS-1", von Tilo Schöne. Heft-Nr. 221/1997 - "Die Expeditionen ANTARKTIS-XIII/1-2 des Forschungsschiffes 'Polarstern' 1995/96", herausgegeben von Ulrich Bathmann, Mike Lucas und Victor Smetacek. Heft-Nr. 222/1997 - "Tectonic Structures and Glaciomarine Sedimentation in the South-Eastern Weddell Sea from Seismic Reflection Data", by László Oszkó.

Heft-Nr. 223/1997 – "Bestimmung der Meereisdicke mit seismischen und elektromagnetisch-induktiven Verfahren", von Christian Haas.

Heft-Nr. 224/1997 – "Troposphärische Ozonvariationen in Polarregionen", von Silke Wessel.

Heft-Nr. 225/1997 – "Biologische und ökologische Untersuchungen zur kryopelagischen Amphipodenfauna des arktischen Meereises", von Michael Poltermann.

Heft-Nr. 226/1997 - "Scientific Cruise Report of the Arctic Expedition ARK-XI/1 of RV 'Polarstern' in 1995", edited by Eike Rachor.

Heft-Nr. 227/1997 – "Der Einfluß kompatibler Substanzen und Kyroprotektoren auf die Enzyme Malatdehydrogenase (MDH) und Glucose-6-phosphat-Dehydrogenase (G6P-DH) aus Acrosiphonia arcta (Chlorophyta) der Arktis", von Katharina Kück.

Heft-Nr. 228/1997 – "Die Verbreitung epibenthischer Mollusken im chilenischen Beagle-Kanal", von Katrin Linse. Heft-Nr. 229/1997 – "Das Mesozooplankton im Laptevmeer und östlichen Nansen-Becken - Verteilung und

Gemeinschaftsstrukturen im Spätsommer", von Hinrich Hanssen.

Heft-Nr. 230/1997 – "Modell eines adaptierbaren, rechnergestützten, wissenschaftlichen Arbeitsplatzes am Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung", von Lutz-Peter Kurdelski.

Heft-Nr. 231/1997 – "Zur Ökologie arktischer und antarktischer Fische: Aktivität, Sinnesleistungen und Verhalten", von Christopher Zimmermann.

Heft-Nr. 232/1997 – "Persistente clororganische Verbindungen in hochantarktischen Fischen", von Stephan Zimmermann.

Heft-Nr. 233/1997 – "Zur Ökologie des Dimethylsulfoniumpropionat (DMSP)-Gehaltes temperierter und polarer Phytoplanktongemeinschaften im Vergleich mit Laborkulturen der Coccolithophoride *Emiliania huxleyi* und derantarktischen Diatomee *Nitzschia lecointei*", von Doris Meyerdierks.

Heft-Nr. 234/1997 – "Die Expedition ARCTIC '96 des FS 'Polarstern' (ARK XII) mit der Arctic Climate System Study (ACSYS)", von Ernst Augstein und den Fahrtteilnehmern.

Heft-Nr. 235/1997 – "Polonium-210 und Blei-219 im Südpolarmeer: Natürliche Tracer für biologische und hydrographische Prozesse im Oberflächenwasser des Antarktischen Zirkumpolarstroms und des Weddellmeeres", von Jana Friedrich.

Heft-Nr. 236/1997 – "Determination of atmospheric trace gas amounts and corresponding natural isotopic rations by means of ground-based FTIR spectroscopy in the high Arctic", by Arndt Meier.

Heft-Nr. 237/1997 – "Russian-German Cooperation: The Expedition TAYMYR / SEVERNAYA ZEMLYA 1996", edited by Martin Melles, Birgit Hagedorn and Dmitri Yu. Bolshiyanow.

Heft-Nr. 238/1997 - "Life strategy and ecophysiology of Antarctic macroalgae", by Iván M. Gómez.

Heft-Nr. 239/1997 - "Die Expedition ANTARKTIS XIII/4-5 des Forschungsschiffes 'Polarstern' 1996",

herausgegeben von Eberhard Fahrbach und Dieter Gerdes.

Heft-Nr. 240/1997 – "Untersuchungen zur Chrom-Speziation im Meerwasser, Meereis und Schnee aus ausgewählten Gebieten der Arktis", von Heide Giese.

Heft-Nr. 241/1997 – "Late Quaternary glacial history and paleoceanographic reconstructions along the East Greenlan continental margin: Evidence from high-resolution records of stable isotopes and ice-rafted debris", by Seung-II Nam.

Heft-Nr. 242/1997 – "Thermal, hydrological and geochemical dynamics of the active layer at a continuous site, Taymy Peninsula, Siberia", by Julia Boike.

Heft-Nr. 243/1997 – "Zur Paläcozeanographie hoher Breiten: Stellvertreterdaten aus Foraminiferen", von Andreas Mackensen.

Heft-Nr. 244/1997 – "The Geophysical Observatory at Neumayer Station, Antarctica. Geomagnetic and seismological observations in 1995 and 1996", by Alfons Eckstaller, Thomas Schmidt, Viola Gaw, Christian Müller and Johannes Rogenhagen.

Heft-Nr. 245/1997 – "Temperaturbedarf und Biogeographie mariner Makroalgen - Anpassung mariner Makroalgen an tiefe Temperaturen", von Bettina Bischoff-Bäsmann.

Heft-Nr. 246/1997 - "Ökologische Untersuchungen zur Fauna des arktischen Meereises", von Christine Friedrich.

Heft-Nr. 247/1997 – "Entstehung und Modifizierung von marinen gelösten organischen Substanzen", von Berit Kirchhr Heft-Nr. 248/1997 – "Laptev Sea System: Expeditions in 1995", edited by Heidemarie Kassens.

Heft-Nr. 249/1997 – "The Expedition ANTARKTIS XIII/3 (EASIZ I) of RV 'Polarstern' to the eastern Weddell Sea in 1996 edited by Wolf Arntz and Julian Gutt.

Heft-Nr. 250/1997 – "Vergleichende Untersuchungen zur Ökologie und Biodiversität des Mega-Epibenthos der Arktis und Antarktis", von Andreas Starmans.

Heft-Nr. 251/1997 – "Zeitliche und räumliche Verteilung von Mineralvergesellschaftungen in spätquartären Sedimente des Arktischen Ozeans und ihre Nützlichkeit als Klimaindikatoren während der Glazial/Interglazial-Wechsel", von Christoph Vogt.

Heft-Nr. 252/1997 – "Solitäre Ascidien in der Potter Cove (King George Island, Antarktis). Ihre ökologische Bedeutung und Populationsdynamik", von Stephan Kühne.

Heft-Nr. 253/1997 - "Distribution and role of microprotozoa in the Southern Ocean", by Christine Klaas.

Heft-Nr. 254/1997 – "Die spätquartäre Klima- und Umweltgeschichte der Bunger-Oase, Ostantarktis", von Thomas Kulbe.

Heft-Nr. 255/1997 - "Scientific Cruise Report of the Arctic Expedition ARK-XIII/2 of RV 'Polarstern' in 1997", edited by Ruediger Stein and Kirsten Fahl. Heft-Nr. 256/1998 - "Das Radionuklid Tritium im Ozean: Meßverfahren und Verteilung von Tritium im Südatlantik und im Weddellmeer", von Jürgen Sültenfuß. Heft-Nr. 257/1998 - "Untersuchungen der Saisonalität von atmosphärischen Dimethylsulfid in der Arktis und Antarktis von Christoph Kleefeld. Heft-Nr. 258/1998 - "Bellinghausen- und Amundsenmeer: Entwicklung eines Sedimentationsmodells", von Frank-Oliver Nitsche. Heft-Nr. 259/1998 - "The Expedition ANTARKTIS-XIV/4 of RV 'Polarstern' in 1997", by Dieter K. Fütterer. Heft-Nr. 260/1998 - "Die Diatomeen der Laptevsee (Arktischer Ozean): Taxonomie und biogeographische Verbreitung von Holger Cremer. Heft-Nr. 261/1998 - "Die Krustenstruktur und Sedimentdecke des Eurasischen Beckens, Arktischer Ozean: Resultate aus seismischen und gravimetrischen Untersuchungen", von Estella Weigelt. Heft-Nr. 262/1998 - "The Expedition ARKTIS-XIII/3 of RV 'Polarstern' in 1997", by Gunther Krause. Heft-Nr. 263/1998 - "Thermo-tektonische Entwicklung von Oates Land und der Shackleton Range (Antarktis) basieren auf Spaltspuranalysen", von Thorsten Schäfer. Heft-Nr. 264/1998 – "Messungen der stratosphärischen Spurengase CIO, HCI, O₃, N₂O, H₂O und OH mittels flugzeugg-tragener Submillimeterwellen-Radiometrie", von Joachim Urban. Heft-Nr. 265/1998 - "Untersuchungen zu Massenhaushalt und Dynamik des Ronne Ice Shelfs, Antarktis", von Astrid Lambrecht. Heft-Nr. 266/1998 - "Scientific Cruise Report of the Kara Sea Expedition of RV 'Akademik Boris Petrov' in 1997", edited by Jens Matthiessen and Oleg Stepanets. Heft-Nr. 267/1998 - "Die Expedition ANTARKTIS-XIV mit FS 'Polarstern' 1997. Bericht vom Fahrtabschnitt ANT-XIV/3" herausgegeben von Wilfried Jokat und Hans Oerter. Heft-Nr. 268/1998 - "Numerische Modellierung der Wechselwirkung zwischen Atmosphäre und Meereis in der arktischen Eisrandzone", von Gerit Birnbaum. Heft-Nr. 269/1998 - "Katabatic wind and Boundary Layer Front Experiment around Greenland (KABEG '97)", by Günther Heinemann. **Heft-Nr. 270/1998** – "Architecture and evolution of the continental crust of East Greenland from integrated geophysical studies", by Vera Schlindwein. Heft-Nr. 271/1998 - "Winter Expedition to the Southwestern Kara Sea - Investigations on Formation and Transport of Turbid Sea-Ice", by Dirk Dethleff, Peter Loewe, Dominik Weiel, Hartmut Nies, Gesa Kuhlmann, Christian Bahe and Gennady Tarasov. Heft-Nr. 272/1998 – "FTIR-Emissionsspektroskopische Untersuchungen der arktischen Atmosphäre", von Edo Becker Heft-Nr. 273/1998 - "Sedimentation und Tektonik im Gebiet des Agulhas Rückens und des Agulhas Plateaus ('SETA-RAP')", von Gabriele Uenzelmann-Neben. Heft-Nr. 274/1998 - "The Expedition ANTARKTIS XIV/2", by Gerhard Kattner. Heft-Nr. 275/1998 - "Die Auswirkung der 'NorthEastWater'-Polynya auf die Sedimentation vor NO-Grönland und Untersuchungen zur Paläo-Ozeanographie seit dem Mittelwechsel", von Hanne Notholt. Heft-Nr. 276/1998 - "Interpretation und Analyse von Potentialfelddaten im Weddellmeer, Antarktis: der Zerfall des Superkontinents Gondwana". von Michael Studinger. Heft-Nr. 277/1998 - "Koordiniertes Programm Antarktisforschung". Berichtskolloquium im Rahmen des Koordinierten Programms "Antarktisforschung mit vergleichenden Untersuchungen in arktischen Eisgebieten", herausgegeben von Hubert Miller. Heft-Nr. 278/1998 – "Messung stratosphärischer Spurengase über Ny-Ålesund, Spitzbergen, mit Hilfe eines bodengebundenen Mikrowellen-Radiometers", von Uwe Raffalski. Heft-Nr. 279/1998 - "Arctic Paleo-River Discharge (APARD). A New Research Programme of the Arctic Ocean Science Board (AOSB)", edited by Ruediger Stein. Heft-Nr. 280/1998 - "Fernerkundungs- und GIS-Studien in Nordostgrönland", von Friedrich Jung-Rothenhäusler. Heft-Nr. 281/1998 - "Rekonstruktion der Oberflächenwassermassen der östlichen Laptevsee im Holozän anhand aquatischen Palynomorphen", von Martina Kunz-Pirrung. Heft-Nr. 282/1998 - "Scavenging of 231Pa and 230Th in the South Atlantic: Implications for the use of the 231Pa/230Th ratio as a paleoproductivity proxy", by Hans-Jürgen Walter. Heft-Nr. 283/1998 - "Sedimente im arktischen Meereis - Eintrag, Charakterisierung und Quantifizierung", von Frank Lindemann. Heft-Nr. 284/1998 - "Langzeitanalyse der antarktischen Meereisbedeckung aus passiven Mikrowellendaten", von Christian H. Thomas. Heft-Nr. 285/1998 - "Mechanismen und Grenzen der Temperaturanpassung beim Pierwurm Arenicola marina (L.)", von Angela Sommer. Heft-Nr. 286/1998 - "Energieumsätze benthischer Filtrierer der Potter Cove (King George Island, Antarktis)", von Jens Kowalke.

Heft-Nr. 287/1998 – "Scientific Cooperation in the Russian Arctic: Research from the Barents Sea up to the Laptev Sea", edited by Eike Rachor.

Heft-Nr. 288/1998 – "Alfred Wegener. Kommentiertes Verzeichnis der schriftlichen Dokumente seines Lebens und Wirkens", von Ulrich Wutzke.

Heft-Nr. 289/1998 – "Retrieval of Atmospheric Water Vapor Content in Polar Regions Using Spaceborne Microwave Radiometry", by Jungang Miao.

Heft-Nr. 290/1998 – "Strukturelle Entwicklung und Petrogenese des nördlichen Kristallingürtels der Shackleton Range Antarktis: Proterozoische und Ross-orogene Krustendynamik am Rand des Ostantarktischen Kratons", von Axel Brommer.

Heft-Nr. 291/1998 – "Dynamik des arktischen Meereises - Validierung verschiedener Rheologieansätze für die Anwendung in Klimamodellen", von Martin Kreyscher.

Heft-Nr. 292/1998 – "Anthropogene organische Spurenstoffe im Arktischen Ozean. Untersuchungen chlorierter Biphenyle und Pestizide in der Laptevsee, technische und methodische Entwicklungen zur Probenahme in der Arktis und zur Spurenstoffanalyse", von Sven Utschakowski.

Heft-Nr. 293/1998 – "Rekonstruktion der spätquartären Klima- und Umweltgeschichte der Schirmacher Oase und des Wohlthat Massivs (Ostantarktika)", von Markus Julius Schwab.

Heft-Nr. 294/1998 – "Besiedlungsmuster der benthischen Makrofauna auf dem ostgrönländischen Kontinentalhang", von Klaus Schnack.

Heft-Nr. 295/1998 – "Gehäuseuntersuchungen an planktischen Foraminiferen hoher Breiten: Hinweise auf Umweltveränderungen während der letzten 140.000 Jahre", von Harald Hommers.

Heft-Nr. 296/1998 – "Scientific Cruise Report of the Arctic Expedition ARK-XIII/1 of RV 'Polarstern' in 1997",

edited by Michael Spindler, Wilhelm Hagen and Dorothea Stübing.

Heft-Nr. 297/1998 – "Radiometrische Messungen im arktischen Ozean - Vergleich von Theorie und Experiment", von Klaus-Peter Johnsen.

Heft-Nr. 298/1998 – "Patterns and Controls of CO₂ Fluxes in Wet Tundra Types of the Taimyr Peninsula, Siberia - the Contribution of Soils and Mosses", by Martin Sommerkorn.

Heft-Nr. 299/1998 – "The Potter Cove coastal ecosystem, Antarctica. Synopsis of research performed within the fram of the Argentinean-German Cooperation at the Dallmann Laboratory and Jubany Station (King George Island, Antarcti 1991-1997)", by Christian Wiencke, Gustavo Ferreyra, Wolf Arntz & Carlos Rinaldi.

Heft-Nr. 300/1999 – "The Kara Sea Expedition of RV 'Akademik Boris Petrov' 1997: First results of a Joint Russian-German Pilot Study", edited by Jens Matthiessen, Oleg V. Stepanets, Ruediger Stein, Dieter K. Fütterer, and Eric M. Galimov.

Heft-Nr. 301/1999 - "The Expedition ANTARKTIS XV/3 (EASIZ II)", edited by Wolf E. Arntz and Julian Gutt.

Heft-Nr. 302/1999 – "Sterole im herbstlichen Weddellmeer (Antarktis): Großräumige Verteilung, Vorkommen und Umsatz", von Anneke Mühlebach.

Heft-Nr. 303/1999 – "Polare stratosphärische Wolken: Lidar-Beobachtungen, Charakterisierung von Entstehung und Entwicklung", von Jens Biele.

* vergriffen / out of print.

** nur noch beim Autor / only from the author.