

**Wissenschaftliche Berichte des Instituts für  
Meteorologie und Klimaforschung der  
Universität Karlsruhe (TH)**

**43**

**Michael Höpfner**

**Charakterisierung polarer  
stratosphärischer Wolken  
mittels hochauflösender  
Infrarotspektroskopie**



universitätsverlag karlsruhe



Michael Höpfner

**Charakterisierung polarer stratosphärischer Wolken mittels  
hochauflösender Infrarotspektroskopie**

Wissenschaftliche Berichte des Instituts für Meteorologie und  
Klimaforschung der Universität Karlsruhe (TH)  
Band 43

Herausgeber: Prof. Dr. Ch. Kottmeier

Institut für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe  
(TH) (gemeinsam betrieben mit dem Forschungszentrum Karlsruhe)  
Kaiserstr. 12, 76128 Karlsruhe

# **Charakterisierung polarer stratosphärischer Wolken mittels hochauflösender Infrarotspektroskopie**

von

Michael Höpfner



---

universitätsverlag karlsruhe

Habilitation, Universität Karlsruhe (TH)  
Fakultät für Physik, 2008

### **Impressum**

Universitätsverlag Karlsruhe  
c/o Universitätsbibliothek  
Straße am Forum 2  
D-76131 Karlsruhe  
[www.uvka.de](http://www.uvka.de)



Dieses Werk ist unter folgender Creative Commons-Lizenz  
lizenziert: <http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/2.0/de/>

Universitätsverlag Karlsruhe 2008  
Print on Demand

ISSN: 0179-5619  
ISBN: 978-3-86644-294-8

## Zusammenfassung

Polare stratosphärische Wolken (PSCs) spielen für die Ozonchemie der winterlichen arktischen und antarktischen Stratosphäre eine herausragende Rolle. Wechselwirkungen zwischen der global abkühlenden Stratosphäre und der Existenz von PSCs können die zukünftige Entwicklung der polaren Ozonschicht beeinflussen. Da wichtige Prozesse bei der Bildung von PSCs, wie beispielsweise der Nukleationsmechanismus von Salpetersäuretrihydrat (NAT) noch nicht vollständig verstanden sind, sind Modellvorhersagen zur PSC-Entwicklung mit Unsicherheiten behaftet. Ziel der vorliegenden Arbeiten war es, durch die Ableitung von Informationen über PSCs aus Fernerkundungsbeobachtungen im mittleren infraroten Spektralbereich ein globales Bild der Verteilung und der Zusammensetzung dieser dünnen Wolken zu erhalten und dadurch zu einem besseren Verständnis der mikrophysikalischen Prozesse beizutragen.

Die Entwicklung eines Vorwärts- und Retrievalalgorithmus und Untersuchungen zur Strahlungsübertragung bei der Horizontsondierung von Wolken bilden den grundlegenden methodischen Teil der Arbeit. Dabei wurden folgende Fortschritte erzielt:

1. Das Strahlungsübertragungsprogramm KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) wurde durch einen Einfachstreuansatz derart erweitert, dass breitbandige, spektral hochauflöste Messungen im mittleren IR auch in Horizontsondierungsgeometrie effizient modelliert werden können.
2. KOPRA wurde mittels eines Vielfachstreuprogramms validiert. Dabei zeigt sich, dass bei optisch dünnen Wolken in Horizontrichtung, insbesondere also bei PSCs, die Genauigkeit des wesentlich schnelleren Einfachstreualgorithmus zur Simulation von Fernerkundungsbeobachtungen ausreichend ist.
3. Aus diesen Simulationen geht hervor, dass selbst bei Horizontbeobachtungen im mittleren infraroten Spektralbereich die von den Teilchen gestreute Strahlung aus der Troposphäre und vom Erdboden einen großen Anteil der gesamten Strahldichte ausmachen und über der Strahldichte eines reinen Schwarzkörpers in Wolkenhöhe liegen kann.
4. Modellstudien verschiedener PSC-Szenarien bestätigen den hohen Anteil der gestreuten Strahlung für Teilchen mit Radien  $\gtrsim 1 \mu\text{m}$  und weisen auf Effekte bei Spektrallinien von Wasserdampf und Kohlendioxid hin, die nur durch spektral hochauflöste Messungen nachgewiesen werden können.

5. Die Rechnungen zeigen, dass wegen der Streustrahlung Horizontsondierungsbeobachtungen von PSCs stark von der atmosphärischen Situation unterhalb des Tangentialpunkts abhängen, insbesondere von der Erdoberflächentemperatur und der troposphärischen Bewölkung.
6. Zudem konnte nachgewiesen werden, dass solare Streuung an PSC-Partikeln zu einer starken Erhöhung der Strahldichten bei Wellenzahlen  $>1500 \text{ cm}^{-1}$  führen kann.
7. Zur direkten Ableitung mikrophysikalischer Teilcheneigenschaften aus IR-Spektren wurde erstmalig ein Mie-Modell inklusive analytischer Ableitungen an das Vorwärtsmodell gekoppelt und in eine Inversionsumgebung eingebunden. Dieser Algorithmus konnte anhand von Labormessungen verifiziert werden.

Die Methoden wurden zur Auswertung unterschiedlicher Fernerkundungsbeobachtungen, wie bodengebundener solarer Absorptions-, und ballon- bzw. satellitengetragener Emissionsmessungen im Infraroten angewandt. Dies führte zu folgenden Ergebnissen:

1. Mittels breitbandiger Simulationen konnte in bodengebundenen hochauflösten solaren Absorptionsspektren von PSCs Eis als Hauptbestandteil der Teilchen nachgewiesen werden. Auch war es möglich, den Teilchenradius auf  $1.1\text{--}2 \mu\text{m}$  und die kondensierte Menge an Wasserdampf auf ein Äquivalent von  $2.5 \text{ ppmv}$  auf  $20 \text{ hPa}$  Höhe zu bestimmen. Ein Vergleich mit einem flugzeuggetragenen Lidar, das die gleiche Wolke sondierte, ergab gute Übereinstimmung.
2. Der erstmalige experimentelle Nachweis von troposphärischer Streustrahlung bei Horizontbeobachtung von PSCs wurde durch eine Messung mit dem ballongetragenen Gerät MIPAS-B (Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung - Ballongerät) erbracht: hochauflöste Strukturen der Spektrallinen von Gasen konnten ausschließlich durch die Einbeziehung des Streuanteils in KOPRA modelliert werden. Nur durch dessen Berücksichtigung war es möglich, ein Höhenprofil der PSC-Volumendichte zu erhalten, das mit in-situ Beobachtungen und Gleichgewichtsrechnungen verträglich ist.
3. Die Analyse breitbandiger MIPAS/Envisat-PSC-Beobachtungen unter Verwendung neuer Brechungssindizes führte zum erstmaligen spektroskopischen Nachweis von NAT in der Atmosphäre. Zusätzlich konnten übersättigte  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen und Eis eindeutig detektiert werden.
4. Die Zusammensetzung und die aus den MIPAS/Envisat-Beobachtungen abgeleiteten mikrophysikalischen Parameter der Partikelverteilung waren konsistent mit räumlich und zeitlich nahen Lidarmessungen. Nur bei Eis-PSCs kam es zu einer Unterschätzung der Volumendichte. Dies ist durch eine zu große optische Dicke, die zu einer Sättigung des Signals führte, zu erklären.
5. Die von Spang und Remedios (2003) entwickelte Farbverhältnis-Methode zur Differenzierung von PSCs aus IR-Horizontbeobachtungen wurde quantitativ durch KOPRA-Simulationen analysiert und Nachweisgrenzen für NAT bezüglich Volumendichte und Teilchengröße bestimmt.

6. Eine Suche nach Signaturen von NAD (Salpetersäuredihydrat) in MIPAS/Envisat-Messungen verlief negativ. Damit kann die Existenz von NAD in der Atmosphäre zwar nicht ausgeschlossen, aber auf kleine Volumendichten bzw. große Teilchen eingegrenzt werden.

Aufgrund der homogenen Temperaturverteilung im antarktischen Polarwirbel wurden MIPAS/Envisat-Beobachtungen zu Beginn des Winters 2003 zur näheren Untersuchung der PSC-Entwicklung herangezogen. Hierbei gelang folgende atmosphärenphysikalisch interessante Entdeckung:

1. Obwohl PSCs schon seit dem 23. Mai 2003 durchgehend auftraten, wurde NAT zum ersten Mal am 10. Juni detektiert. In den darauf folgenden Tagen breitete sich die NAT-Wolke wie ein Gürtel in der Stratosphäre um die Antarktis aus.
2. Aus (a) dem Auftreten von NAT lediglich im Lee der antarktischen Halbinsel, (b) MIPAS-Beobachtungen von Eis-PSCs über der Halbinsel, und (c) der Korrelation mit wellenartigen Strukturen in den ECMWF-Temperaturanalysen wurde auf Leewellen als Ursache der NAT-Entwicklung geschlossen. Dies konnte durch Leewellenmodellierung bestätigt werden.
3. In mikrophysikalischen Simulationen konnten die Beobachtungen durch homogene NAT-Nukleation allein nicht reproduziert werden. Erst die Berücksichtigung von Leewellen brachte infolge der Nukleation von NAT auf Eis-PSCs sehr gute Übereinstimmung.
4. In der Zeit nach dem 10./11. Juni 2003 wurde an jedem Tag des antarktischen Winters NAT als häufiger PSC-Typ in MIPAS-Spektren nachgewiesen. Somit kann das Leewellenereignis als wahrscheinlicher Ausgangspunkt für das Entstehen von NAT angesehen werden.



## Abstract

Polar stratospheric clouds (PSCs) play a key role in wintertime high-latitude ozone chemistry. Thus, possible feedback mechanisms of global stratospheric cooling on the existence of PSCs might influence the future development of polar ozone concentrations. Modelling of PSC existence and development still remains uncertain since nucleation mechanisms of nitric acid containing solid PSC particles are not completely understood. The goal of this work is to contribute to a better understanding of microphysical processes of PSC development by analysis of remote sensing observation in the mid-infrared region.

The methodical part consists of the development of dedicated forward- and retrieval algorithms and the investigation of limb radiative transfer in presence of clouds. In detail:

1. The radiative transfer code KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) has been extended by including a single scattering scheme allowing the efficient simulation of broad-band, spectrally high-resolved measurements of any observational geometry in the mid-IR.
2. The single scattering approach in KOPRA has been validated by comparison with a multiple scattering algorithm. It has been shown that the accuracy of the much faster single scattering algorithm is by far sufficient for the simulation of limb observations of optically thin clouds like PSCs.
3. The simulation of limb-sounding measurements has shown that even in the mid-infrared, radiation from the lower atmosphere and the earth surface scattered by particles into the line-of-sight of the instrument contributes a large part of the detected radiance. This scattered radiation can even exceed the radiation of a purely emitting black-body at cloud altitude.
4. KOPRA model studies of various PSC-scenarios confirmed the large contribution of scattered radiation for particles with radii  $\gtrsim 1 \mu\text{m}$ . Additionally it has been shown that the shapes of spectral lines of  $\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{CO}_2$  can be altered significantly, which, however, can only be detected in spectrally high resolved observations.
5. Sensitivity studies showed that due to the large contribution of scattering, limb-sounding observations of PSCs depend on the situation below the tangent point, especially on the surface temperature and tropospheric cloud cover.
6. Simulations also indicate that scattering of mid-infrared solar radiation at PSC particles can lead to strongly enhanced radiances at wavenumbers  $> 1500 \text{ cm}^{-1}$ .

7. To directly retrieve microphysical particle properties from IR-spectra, for the first time a Mie-model including analytical Jacobians has been implemented in the forward model and adapted to an inversion tool. This algorithm has been validated on basis of laboratory measurements.

These methods have been used to analyse various mid-infrared observations of PSCs, like ground-based solar absorption and balloon- and space-borne thermal emission measurements. The following results have been obtained:

1. In ground-based high-resolution solar absorption spectra ice has been identified as the main component of the observed PSCs. It has been possible to derive the mean particle radius ( $1.1\text{--}2 \mu\text{m}$ ) and the condensed amount of  $\text{H}_2\text{O}$  was equivalent to 2.5 ppmv at 20 hPa altitude. A good agreement with airborne Lidar observations sounding the same PSC was found.
2. For the first time scattered IR radiation from the troposphere has been detected in high-resolution balloon-borne spectra of MIPAS-B (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding-Balloon) PSC observations: the shape of spectral lines of tropospheric trace gases could only be simulated by consideration of scattering in KOPRA. Only then it was possible to obtain a height profile of PSC-volume density comparable to co-incident in-situ observations and equilibrium calculation.
3. The analysis of broad-band PSC observations by MIPAS/Envisat resulted in the first spectroscopic detection of NAT (nitric acid trihydrate) in the atmosphere. Additionally, supercooled  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -particles and ice has been identified.
4. The composition and the derived microphysical parameters of the PSCs were in most cases consisted with co-incident ground-based Lidar observations. Only in case of ice-PSCs volume density from MIPAS observations have been underestimated due to the larger optical thickness of such clouds leading to a saturation of the spectral signal.
5. The colour ratio method for the discrimination of PSC types developed by Spang und Remedios (2003) has been quantitatively analysed and detection limits with respect to volume density and particle size have been determined.
6. No spectral signal of NAD (nitric acid trihydrate) could be found in MIPAS PSC spectra. Thus, the existence of NAD in the atmosphere can be constrained to small volume densities or large particles.

Because of the homogeneous temperature distribution in the Antarctic polar vortex MIPAS/Envisat observations at the beginning of winter 2003 have been used to analyse the PSC-development. This lead to the following discovery:

1. Though PSCs were continuously observed since 23 May 2003, NAT has been detected initially on 10 June. During the following days the NAT cloud extended belt-like around the Antarctic.

2. From (a) the detection of NAT only downwind the Antarctic Peninsula, (b) the MIPAS-observation of ice PSCs over the Peninsula and, (c) the correlation with wavelike structures in ECMWF temperature analyses, orographic waves extending into the stratosphere have been identified as a possible reason for the development of NAT. This has been confirmed by mesoscale leewave modelling.
3. An agreement between microphysical PSC simulations and observations could only be obtained by taking into account the leewave events leading to ice and subsequent nucleation of NAT on ice particles.
4. In the aftermath of 10 June NAT has been observed as frequent PSC-type during all days of the Antarctic winter 2003. Thus, the leewave event can be considered as the initial point for the vortex-wide development of NAT.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>1</b>
<b>Abstract</b>	<b>5</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>15</b>
1.1 Streifzug durch die Geschichte der Erforschung polarer stratosphärischer Wolken	15
1.2 PSCs und das Ozonloch . . . . .	18
1.3 Aktueller Stand der PSC-Forschung . . . . .	21
1.4 Der Einfluss von PSCs auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre . . . . .	23
1.5 Die Beobachtung polarer stratosphärischer Wolken mittels Fernerkundung .	25
1.5.1 Die Sonne als Strahlungsquelle . . . . .	26
1.5.2 Sterne als Strahlungsquelle . . . . .	31
1.5.3 Thermische Emission . . . . .	31
1.5.4 Künstliche Strahlungsquellen (Lidar) . . . . .	34
1.5.5 Indirekte Information über PSCs mittels Spurengasmessungen . . . . .	37
<b>2 Modellierung der Strahlungsübertragung im IR</b>	<b>39</b>
2.1 Grundlagen . . . . .	39
2.2 Diskretisierung der Strahlungsübertragung . . . . .	42
2.2.1 Strahlverfolgung und Schichtmittelwerte . . . . .	43
2.2.2 Wirkungsquerschnitte und Phasenfunktionen . . . . .	45
2.2.3 Strahlungsübertragung . . . . .	47
2.3 Optische Konstanten . . . . .	48

2.3.1	NAT . . . . .	49
2.3.2	NAD . . . . .	52
2.3.3	Optische Konstanten von STS . . . . .	53
2.3.4	Optische Konstanten von Eis . . . . .	56
2.4	Modellvalidierung . . . . .	56
2.4.1	Referenzmodell . . . . .	57
2.4.2	KOPRA-Modellversionen . . . . .	58
2.4.3	Testszenarien . . . . .	58
2.4.4	Modellvergleich für $\omega_0 = 0.24$ . . . . .	59
2.4.5	Modellvergleich für $\omega_0 = 0.84$ . . . . .	61
2.4.6	Bewertung . . . . .	63
2.5	Der Einfluss von PSCs auf Strahldichten bei Horizontsondierung . . . . .	64
2.5.1	Definition von PSC und Beobachter . . . . .	64
2.5.2	Abhängigkeit von der Teilchengröße und der Streuung von Strahlung aus der Troposphäre . . . . .	65
2.5.3	Einstreuung solarer Strahlung . . . . .	67
2.5.4	Differenzierung unterschiedlicher PSC-Zusammensetzung . . . . .	68
2.5.5	Abhängigkeit der Strahldichten von den Bedingungen in der Troposphäre	70
2.5.6	Zusammenfassung und Bewertung . . . . .	72
<b>3</b>	<b>Inversion von Teilchenparametern</b>	<b>77</b>
3.1	Bisherige Methoden . . . . .	77
3.2	Die direkte Methode . . . . .	80
3.3	Validierung des Inversionsmodells anhand von Labormessungen . . . . .	82
<b>4</b>	<b>Ableitung von PSC-Eigenschaften aus solaren Absorptionsmessungen</b>	<b>87</b>
4.1	Beschreibung der Messung . . . . .	87
4.2	Datenauswertung . . . . .	88
4.3	Vergleichsmessungen . . . . .	90

4.4	Zusammenfassung . . . . .	91
<b>5</b>	<b>Ableitung von PSC-Eigenschaften aus MIPAS-Ballonmessungen</b>	<b>93</b>
5.1	Beschreibung der Messung . . . . .	93
5.2	Grundlagen der Datenauswertung . . . . .	95
5.3	Ergebnisse . . . . .	97
5.4	Zusammenfassung . . . . .	99
<b>6</b>	<b>Ableitung von PSC-Eigenschaften aus MIPAS-Satellitenmessungen</b>	<b>103</b>
6.1	Das Instrument und der Datensatz . . . . .	103
6.2	Wolkenobergrenzen . . . . .	105
6.3	Nachweis der PSC-Zusammensetzung in Einzelmessungen . . . . .	108
6.3.1	Methode . . . . .	108
6.3.2	NAT, STS und Eis in MIPAS Spektren . . . . .	109
6.3.3	Die abgeleiteten Höhenprofile . . . . .	112
6.4	Validierung der PSC-Typenklassifikation auf Basis der Farbverhältnis-Methode	116
6.5	Die Entdeckung eines Leewellen-induzierten NAT-Gürtels über der Antarktis	120
6.6	Die Suche nach NAD . . . . .	126
6.7	Zusammenfassung . . . . .	127
<b>7</b>	<b>Schlussbetrachtung</b>	<b>131</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>135</b>
	<b>Literatur</b>	<b>136</b>
	<b>Symbole</b>	<b>165</b>
	<b>Akronyme</b>	<b>167</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>169</b>
	<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>173</b>



Das Licht muss auf seine Polarisation untersucht werden,  
und ebenso spektroskopisch analysirt,  
wodurch man in Stand gesetzt werden kann,  
die Ordnung der Spektralfarben zu bestimmen,  
was weiter zur besseren Erkenntniss der Konstitution  
und der Natur des Wolkenstoffes führen mag.

(H. Mohn, 1893)



# 1. Einleitung

## 1.1 Streifzug durch die Geschichte der Erforschung polarer stratosphärischer Wolken

Fast genau hundert Jahre bevor ihre Bedeutung für die Bildung des antarktischen „Ozonlochs“ erkannt wurde (Solomon et al. 1986, Crutzen und Arnold 1986, Toon et al. 1986), erschienen in der wissenschaftlichen Literatur die ersten Berichte über Sichtungen polarer stratosphärischer Wolken (Polar Stratospheric Clouds, PSCs) (Backhouse 1885, Geelmuyden 1885)<sup>1</sup>. In ihnen wurde die ab Anfang Dezember 1884 viele Tage andauernde Existenz von „brilliantly-coloured clouds“ über Großbritannien und Norwegen beschrieben. Dokumentierte Beobachtungen von PSCs reichen zurück bis ins Jahr 1870 (Kassner 1895)<sup>2</sup>.

Eine erste systematische Beschreibung und wissenschaftliche Auswertung von PSC-Beobachtungen unternahm Mohn (1893). Er bestimmte den wahrscheinlichsten Zeitraum ihres Auftretens als die Monate Dezember bis Februar und korrelierte sie mit der Wetterlage (Tiefdruckgebiet nördlich von Oslo, vorwiegend westlicher Wind und Föhnlage). Aus dem Ort der Wolke und dem Zeitpunkt ihres Eintritts in die Dunkelheit versuchte er ihre Höhe zu bestimmen. Mit 23-140 km liegen seine Ergebnisse jedoch fast immer zu hoch. Lediglich die Vermessung einer Wolke zum Zeitpunkt ihrer Rotfärbung lieferte mit 23 km ein richtiges Resultat (Störmer 1948). Weiterhin wird die Ursache der Farbigkeit diskutiert und angemerkt, dass die Wolkenteilchen das Sonnenlicht polarisieren.

Den ältesten Bericht von PSCs über der Antarktis im Juni 1898 lieferte Arctowskij (1902). Er war Meteorologe an Bord der „Belgica“ auf der ersten im Packeis der Antarktis überwinternden Expedition.<sup>3</sup>

---

<sup>1</sup>Man bezeichnete die Wolken in den ersten Veröffentlichungen als „irisierende Wolken“ (iridescent clouds). Wenig später bürgerte sich gleichbedeutend auch der Begriff „Perlmutterwolken“ (mother-of-pearl oder nacreous clouds) ein.

<sup>2</sup>Eine umfassende Dokumentation der Berichte von Sichtungen stratosphärischer Wolken im Zeitraum 1870-1972 liefern Stanford und Davis (1972). Der Stand des Wissens über PSCs zu Ende der 1970er Jahre ist in Stanford (1977) und Toon und Farlow (1981) dargelegt.

<sup>3</sup>Leiter der Expedition war Adrien de Gerlache. Bekannte Mitglieder der Mannschaft waren Frederick Cook und Roald Amundsen.



Abbildung 1.1: Die „Belgica“ während der Überwinterung im Packeis der Antarktis 1898.

Während zwischen 1870 und 1892 regelmäßig in einem Abstand von höchstens drei Jahren<sup>4</sup> PSCs in der Nordhemisphäre auftraten, gab es im Zeitraum von 1893 bis 1926 keine einzige Beobachtung (Stanford und Davis 1972, Störmer 1929)<sup>5</sup>. Danach folgten wieder kontinuierliche PSC-Sichtungen, ohne dass es bis heute ein zweites Mal zu einer vergleichbaren Lücke kam. Dass dies nicht auf einen Mangel an Beobachtungen zurückgeführt werden kann, betont Störmer (1929)<sup>6</sup>.

Störmer, der photographische Polarlichtstationen in Oslo und Oscarsborg leitete, war auch der erste, der durch Triangulation eine korrekte Höhenbestimmung von Perlmutterwolken durchführte (Störmer 1926; 1929; 1931), wobei er Höhen zwischen 22 und 25 km angibt. In Störmer (1933) wird die Teilchengröße aus einem in der Nacht vom 19. auf den 20.2.1932 beobachteten Kranz um den Mond abgeschätzt:

„Das Innere des Kranzes war blauweiß und darauf kam ein roter Ring mit innerem Radius von 14 bis 15°; dieser Radius wurde sehr genau beobachtet, weil der Ring nahe den Sternen Castor und Pollux verlief. Der äußere Radius des roten Ringes wurde leider nicht beobachtet, aber unter der Annahme, dass er mindestens 18° war, bekommt man für den linearen Durchschnitt der Wolkenpartikeln einen Wert, der nicht 0.0025 mm übersteigt, also bedeutend kleiner als für gewöhnliche Wolkenpartikeln.“

---

<sup>4</sup>Einige Ausnahme: keine Sichtungen zwischen 1874 und 1879.

<sup>5</sup>Bei denen in Stanford und Davis (1972) angegebenen Sichtungen von 1894 und 1895 von Berlin aus handelt es sich wahrscheinlich um troposphärische Wolken (Kassner 1895). Die ebenfalls von Stanford und Davis (1972) aufgeführte Beobachtung im April 1923 von Indien aus kann auch kaum als PSC gewertet werden.

<sup>6</sup>Dem Autor ist kein Erklärungsversuch dieses Phänomens bekannt.

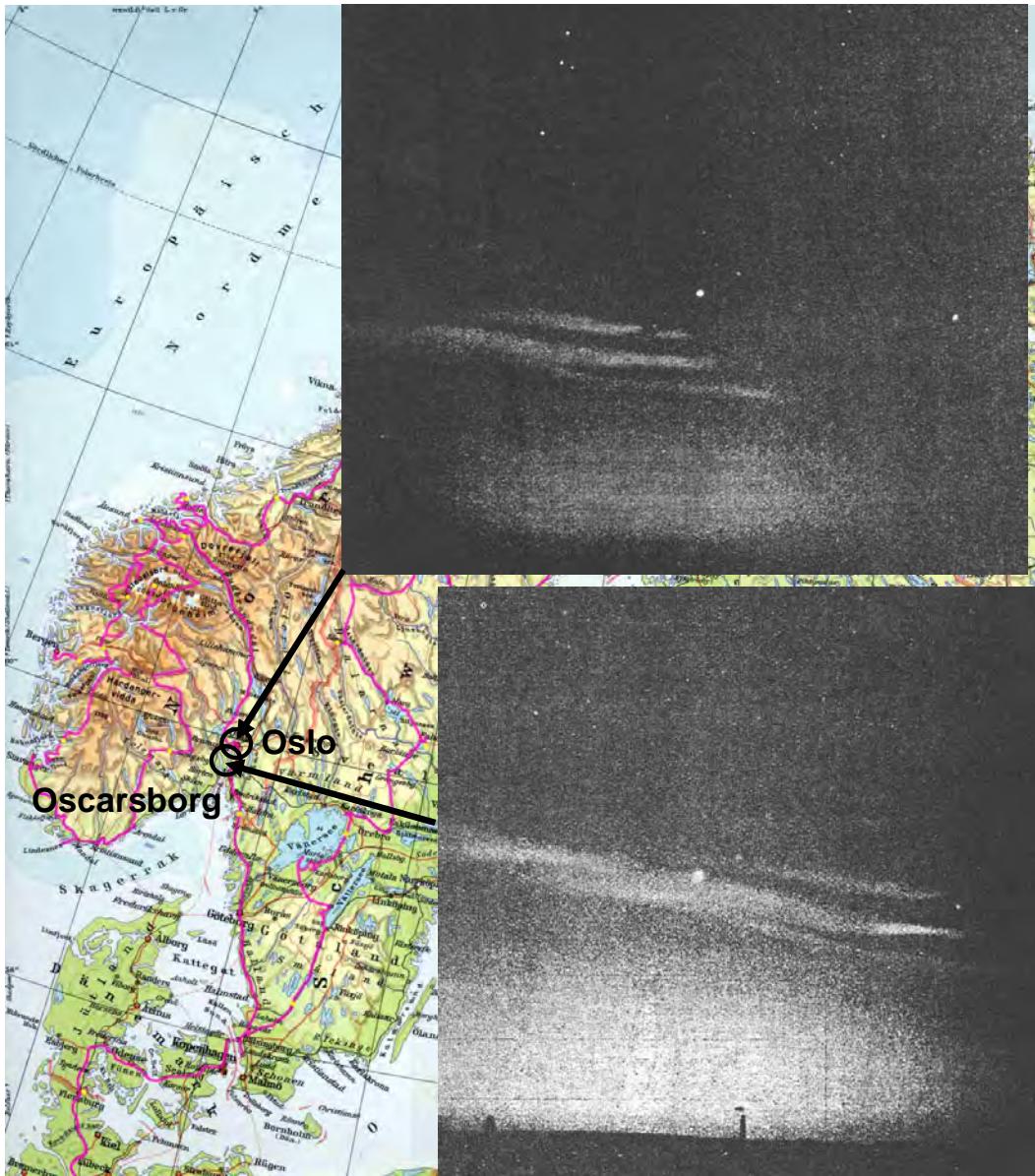


Abbildung 1.2: Bestimmung der Höhe von PSCs durch Triangulation am 13.1.1929. Die scheinbare Verschiebung der Wolke kann man im Vergleich zum Fixsternhimmel erkennen. Bei dem hellen Stern im Zentrum handelt es sich um Atair im Sternbild Adler. Quelle: Störmer (1929).

Diese Abschätzung, die mit heutigen Beobachtungen der Teilchengrößen von Eis-PSCs in Leewellen übereinstimmt, ist die erste Anwendung einer Fernerkundungsmethode zur Bestimmung von mikrophysikalischen PSC-Eigenschaften<sup>7</sup>. Störmer liegt mit dieser Methode deutlich näher an der Wirklichkeit als Chapman (1932), der aus einem scheinbaren Absinken einer PSC Teilchengrößen von  $100 \mu\text{m}$  ableitet.

---

<sup>7</sup>Störmers Berechnung beruht auf der Annahme der Fraunhofer-Beugung und des aus ihr resultierenden Airy-Scheibchens:  $\sin\alpha_{min} \approx 1.22\lambda/D$ , wobei  $\alpha_{min}$  das erste Minimum der Strahlungsintensität ist. Aus einer Mie-Rechnung ergibt sich ein maximaler Durchmesser von  $1.8 \mu\text{m}$ .

Die Ursache der intensiven Farbigkeit der Perlmuttwolken wurde schon von Mohn (1893) diskutiert. Es ist auffallend, dass die Farben oft der Form der Wolke folgen, d.h. dass sie in Bändern parallel zu den Wolkenrändern verlaufen. Wie Hesstvedt (1962) anmerkt, kann diese Farbigkeit nur teilweise durch Streuung an monodispers verteilten Teilchen erklärt werden, da sie auch bei kleinen Wolken auftritt, die nur einen kleinen Winkelbereich bezüglich der Sonne einnehmen. Weickmann (1949) erklärt dies durch Teilchenverteilungen, die zwar lokal monodispers sind, aber entlang der Wolke variieren. Unter dieser Annahme leitet Hesstvedt (1960) aus Beschreibungen von Störmer (1939) Teilchendurchmesser von 2.3 bis 3.3  $\mu\text{m}$  innerhalb einer beobachteten Perlmuttwolke ab.

Die erste mit einer PSC-Beobachtung in Oslo koordinierte stratosphärische Temperaturmessung erfolgte am 7.2.1934 - allerdings nicht am Ort der Wolke, sondern von Belgien aus (Jaumotte 1936, Störmer 1948). Dabei wurden minimale Temperaturen von 198 K beobachtet. Näher am Ort der Wolke lag eine Sondenmessung am 22.12.1939 bei Ås ca. 60 km südlich vom Beobachtungsort Oslo, deren Temperatur in 23.5 km Höhe mit 190 K besser zum Auftreten von PSCs passt (Störmer 1941; 1948).

Diese Messungen, die Beobachtung der troposphärischen Wetterverhältnisse bei PSC-Sichtung durch Mohn (1893) und die Beobachtungen von Störmer bilden u.a. die Grundlage der Arbeit von H. Dieterichs, der Perlmuttwolken als Leewellenwolken erklärte (Dieterichs 1950)<sup>8</sup>.

## 1.2 PSCs und das Ozonloch

Die „Moderne“ und gleichzeitig auch der „Boom“ in der Erforschung von PSCs begann mit ihrer Beobachtung aus dem All und der Erkenntnis ihrer Bedeutung für die Entstehung des Ozonlochs.

McCormick (1981) berichtete über die erste satellitengestützte Messung von PSCs mit dem Instrument SAM II (Stratospheric Aerosol Measurement II), das seit 1978 auf dem amerikanischen Forschungssatelliten Nimbus 7 betrieben wurde<sup>9</sup>. Das Gerät maß in Horizontsondierung im nahen Infrarot (IR) bei 1  $\mu\text{m}$  Wellenlänge die Extinktion der Sonnenstrahlung durch die Bestandteile der Erdatmosphäre. Diese Beobachtungen verdeutlichten zum einen die enge Korrelation zwischen tiefen Temperaturen und dem Auftreten von PSCs und zum anderen die Unterschiede in PSC-Häufigkeit und optischer Dicke im arktischen bzw. antarktischen Winter. McCormick (1981) zeigte, dass PSCs meistens bei Temperaturen unterhalb von 195 K existieren, woraus Steele et al. (1983) auf Eis als Hauptbestandteil der Wolkenpartikel schlossen.

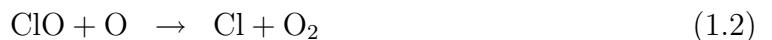
Diese Ansicht wurde jedoch drei Jahre später revidiert bzw. erweitert, als nach Erklärungen für die Ursache der ungewöhnlich starken Ausdünnung der stratosphärischen Ozonschicht

<sup>8</sup>Vorher hatten schon Cocheme (1948) und Küttner (1948) vermutet, dass es sich bei Perlmuttwolken um orographisch induzierte Wolken handelt. Auch Scorer (1949) interpretierte so die auf einem Foto von Störmer staffelweise hintereinander auftretenden Perlmuttwolken.

<sup>9</sup>In Zusammenhang mit diesen Beobachtungen wurde der Begriff „polar stratospheric clouds“ (PSCs) geprägt.

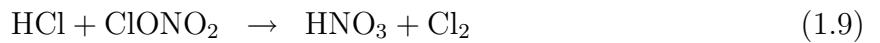
über der Antarktis im September und Oktober gesucht wurde. Dieses als „Ozonloch“ bezeichnete Phänomen, das seit Mitte der 70er Jahr auftritt, wurde von Farman et al. (1985) in Messungen der Ozonsäulendichte über Halley Bay entdeckt. Auch Chubachi (1984) berichtete schon über eine Ozonabnahme bei höhenaufgelösten Ozonmessungen von 1982. Diese Beobachtungen konnten durch Neuauswertungen von Satellitenmessungen mittels des TOMS-Geräts (Total Ozone Mapping Spectrometer) von Nimbus 7 aus bestätigt und räumlich auf das Gebiet über der Antarktis symmetrisch zum Südpol begrenzt werden (Stolarski et al. 1986).

Solomon et al. (1986) waren die ersten, die die richtige Erklärung für die Entstehung des Ozonlochs lieferten. Von der Beobachtung ausgehend, dass das Ozonloch sich in den 1970er Jahren entwickelt hat und langsam an Größe zunahm, wurde geschlossen, dass Chlor, das aufgrund der anthropogenen Produktion von Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKWs) in der Atmosphäre stark anstieg, wesentlich an dem Prozess beteiligt ist. FCKWs haben in der Troposphäre eine sehr lange Lebensdauer und werden erst in der unteren Stratosphäre durch Photolyse abgebaut. Der Großteil des frei werdenden Chlors wird in die Reservoirgase HCl und ClONO<sub>2</sub> überführt. Der Ozonabbau findet zudem sehr schnell statt, so dass nur katalytische Prozesse wie



dafür in Frage kommen<sup>10</sup>.

Das „aktive“ Chlor (Cl, ClO) muss aus den Reservoirgasen produziert werden. Hierfür schlugen Solomon et al. (1986) den heterogenen Prozess



vor, der auf der Oberfläche von PSC-Teilchen effektiv abläuft. Bei Sonnenaufgang im antarktischen Frühling wird Cl<sub>2</sub> schnell photolysiert und initiiert den katalytischen Ozonzabbau.

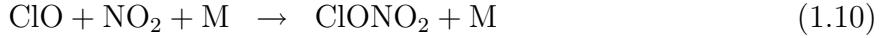
---

<sup>10</sup>(Molina und Molina 1987) zeigten, dass der katalytische Zyklus des ClO-Dimers



bei den tiefen Temperaturen und hohen ClO-Konzentrationen in der antarktischen Stratosphäre der wesentliche Abbauzyklus ist.

Außer der Bedeutung als Katalysator für solche heterogenen Prozesse spielen PSCs eine weitere wichtige Rolle, die von Toon et al. (1986) und Crutzen und Arnold (1986) erkannt wurde: die Denoxifizierung bzw. Denitrifizierung der stratosphärischen Luft. Wäre in ausreichendem Maße  $\text{NO}_2$  vorhanden, so kann  $\text{ClO}$  schnell durch die Reaktion



in das Reservoirgas zurückgeführt werden. Der Prozess (1.9) und weitere heterogene Reaktionen führen jedoch (über  $\text{ClONO}_2$  bzw.  $\text{N}_2\text{O}_5$ )  $\text{NO}_x$ , d.h.  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$ , in  $\text{HNO}_3$  über. Dies bezeichnet man als Denoxifizierung. Die wesentliche Erkenntnis von Toon et al. (1986) und Crutzen und Arnold (1986) war, dass  $\text{HNO}_3$  zusammen mit Wasser PSCs bilden kann. So verarmt  $\text{HNO}_3$  in der Gasphase und kann durch Sedimentation der Teilchen irreversibel entfernt werden (Denitrifizierung). Diese neue Art von Wolken besitzt eine wesentlich geringere Volumendichte als Eiswolken, da sie durch die Kondensation von  $\text{HNO}_3$  dominiert wird, das in der unteren Stratosphäre ca. im Verhältnis 3:100 zu  $\text{H}_2\text{O}$  vorkommt. Dies erklärt die geringeren Extinktionen von  $0.001\text{--}0.01 \text{ km}^{-1}$ , die von SAM II beobachtet wurden (Hamill et al. 1986). Im Vergleich dazu sollten Eis-PSCs Extinktionen von über  $0.1 \text{ km}^{-1}$  liefern. Weiterhin führt Toon et al. (1986) an, dass in der Arbeit von Steele et al. (1983) über SAM II-Messungen viele PSCs bei Temperaturen gefunden wurden, die bis zu 6 K oberhalb des Eisfrostpunkts lagen. Auch Auswertungen des LIMS (Limb Infrared Monitor of the Stratosphere)-Instruments zu Temperatur und Wasserdampf zeigten solche Fälle (Hamill und McMaster 1984).

Zu diesem Zeitpunkt war nicht bekannt, ob es sich um flüssige oder feste salpetersäurehaltige Teilchen handelte. Toon et al. (1986) erwähnen allerdings schon Salpetersäuretrihydrat (NAT, Nitric Acid Trihydrate,  $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ), das, wie bald danach gezeigt wurde, unter stratosphärischen Bedingungen oberhalb des Eisfrostpunkts stabil ist (Hanson und Mauersberger 1988). Lidar-Experimente zeigten das Auftreten zweier unterschiedlicher Typen von PSCs, die anhand der Stärke der Rückstreuung unterschieden werden können: unterhalb des Eis-Frostpunkts ( $T_{Eis}$ ) kommt es zur Bildung großer kristalliner Teilchen (PSC Typ 2) während sich bei 2–6 K oberhalb von  $T_{Eis}$  ein deutliches aber eingeschränktes Teilchenwachstum (PSC Typ 1) zeigt (Poole und McCormick 1988a;b, Poole et al. 1988). Ende der neunziger Jahre ging man davon aus, dass PSCs nach folgendem Schema gebildet werden: zuerst gefriert bei ca. 210 K das flüssige, aus Schwefelsäure bestehende Hintergrundaerosol zu dem dann thermodynamisch stabilen Schwefelsäuretetrahydraz (SAT, Sulfuric Acid Tetrahydrate,  $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ). Diese festen Partikel dienen als Keime für die Nukleation von NAT, die bei ca. 195 K einsetzt. Bei noch tieferen Temperaturen (ca. 188 K) bildet sich hierauf Eis (Poole und McCormick 1988b, Turco et al. 1989, Peter 1997).

Während einige PSC-Beobachtungen mit dieser Theorie konsistent waren (Fahey et al. 1989, Hofmann und Deshler 1991), erwies sich jedoch in den folgenden Jahren aus Feldbeobachtungen, Labormessungen und theoretischen Betrachtungen, dass das Schema so nicht aufrecht erhalten werden konnte (Peter 1997, Carslaw et al. 1997, Solomon 1999). So zeigten Lidarmessungen im arktischen Polarwirbel 1989, dass PSCs vom Typ 1 in zwei Klassen unterschieden werden können: Typ 1a mit relativ kleinen Rückstreuquerschnitten, aber starker Depolarisation des rückgestreuten Laserlichts und Typ 1b mit deutlich stärkerer Rückstreuung, aber verschwindender Depolarisation (Browell et al. 1990). Toon et al. (1990) zeigten, dass dies erklärt werden kann, wenn Teilchen vom Typ 1b kleiner als solche vom Typ 1a sind.

Aufgrund der Depolarisation müssen PSC-Teilchen vom Typ 1a fest sein, während Partikel vom PSC-Typ 1b kugelförmig feste aber auch flüssige Partikel sein können.

In-situ Messungen (Rosen et al. 1989, Kawa et al. 1990, Dye et al. 1990, Kawa et al. 1992, Arnold et al. 1992) zeigten, dass das Auftreten von PSCs oft nicht zur Thermodynamik von NAT passt. Dye et al. (1992) beobachteten, dass die stratosphärischen Schwefelsäureaerosole bis zu Temperaturen von 193 K, d.h. 2–3 K unterhalb der Existenztemperatur von NAT flüssig bleiben und dann erst die Bildung von PSCs einsetzt. Arnold et al. (1992) schlug als Alternative zu NAT die Existenz von ternären  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ - (STS, Supercooled Ternary Solution) Tröpfchen vor, und aus Labormessungen leitete Zhang et al. (1993) die gute Löslichkeit von  $\text{HNO}_3$  in  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  bei Temperaturen unter 196 K ab. Carslaw et al. (1994), Tabazadeh et al. (1994), Drdla et al. (1994) konnten die Beobachtungen von Dye et al. (1992) durch Annahme von STS als Zusammensetzung der entstehenden PSCs erklären. Diese These wird von Laborexperimenten gestützt, die zeigen, dass STS auch bei niedrigen Temperaturen in der Stratosphäre bis zu  $T_{Eis}$  flüssig bleibt und somit NAT nicht homogen aus der Lösung nukleiert (Koop et al. 1995; 1997, Anthony et al. 1997, Clapp et al. 1997, Bertram und Sloan 1998).

Die Hypothese über die PSC-Entwicklung musste dahingehend geändert werden, dass das stratosphärische Schwefelsäureaerosol bei Abkühlung flüssig bleibt und bei Temperaturen von ca. 193 K Wasser und  $\text{HNO}_3$  aufnimmt und STS-PSCs (Typ 1b) bildet. Wenige Kelvin unterhalb von  $T_{Eis}$  nukleiert dann Eis und es entstehen PSCs vom Typ 2. Nachdem das Pendel sich im Laufe der 90iger Jahre von NAT in Richtung der unterkühlten Tröpfchen bewegt hatte, kehrt es seine Richtung nun wieder um.

## 1.3 Aktueller Stand der PSC-Forschung

Die Existenz von NAT-PSCs, wurde zum ersten Mal mittels massenspektrometrischer insitu Messungen von Voigt et al. (2000) in der Atmosphäre nachgewiesen. Dass NAT-PSCs eine wesentliche Rolle für die Denitrifizierung der stratosphärischen Luft spielen, zeigen Auswertungen von Satellitendaten, die eine Denitrifizierung der antarktischen Stratosphäre vor einer signifikanten Dehydrierung feststellten (Tabazadeh et al. 2000). Dies steht in Einklang mit Messungen von Fahey et al. (2001), die in der Arktis sehr große salpetersäurehaltige (wahrscheinlich NAT-) Teilchen nachwiesen. Es wird angenommen, dass diese hauptsächlich für die Denitrifizierung verantwortlich sind.

In einer Zusammenfassung der aktuellen Fragen bezüglich polarer stratosphärischer Wolken stellten Tolbert und Toon (2001) die Bildung von salpetersäurehaltigen festen Teilchen und deren Zusammensetzung in den Vordergrund. Mögliche Ursachen für die Bildung von NAT sind die Nukleation über die Eisphase, homogenes Gefrieren der STS-Teilchen (Tabazadeh et al. 2001; 2002, Knopf et al. 2002, Tabazadeh 2003), die heterogene Nukleation von NAT durch feste Partikel (Biermann et al. 1996, Bogdan und Kulmala 1999, Bogdan et al. 2003) oder kosmische Strahlung (Yu 2004). Abb. 1.3 zeigt ein Schema zur möglichen Entstehung fester PSC-Teilchen. Es stellt die Grundlage eines mikrophysikalischen Modells zur Analyse von Messungen in der vorliegenden Arbeit dar (Larsen 2000) (Kapitel 6.5).

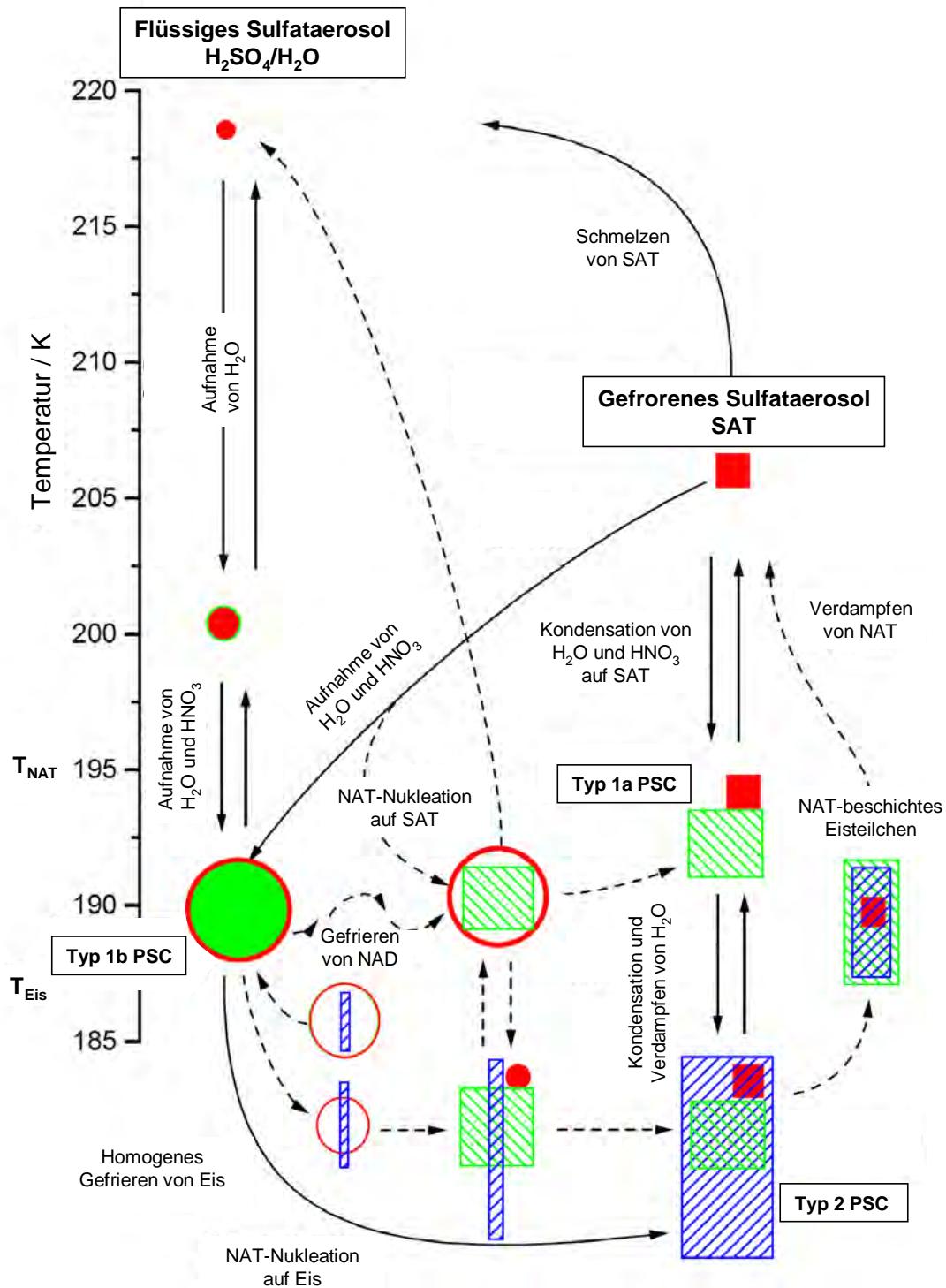


Abbildung 1.3: Mögliche Übergänge zwischen flüssiger (Kreise) und fester (Rechtecke, Quadrate) Phase in der Stratosphäre. NAT: grün, \\\-schraffiert, Eis: blau, //\\-schraffiert, SAT: rote Quadrate (Abbildung nach Larsen (2000), Fig. 2.5).

Für die Nukleation von NAT über die Eisphase gibt es eine Vielzahl von Hinweisen aus Beobachtungen von Leewellen über dem skandinavischen Gebirgsrücken und der Ostküste von Grönland (Carslaw et al. 1998a, Wirth et al. 1999, Tsias et al. 1999, Rivière et al. 2000,

Voigt et al. 2000, Larsen et al. 2002b, Dörnbrack et al. 2002, Hu et al. 2002, Voigt et al. 2003, Luo et al. 2003, Fueglistaler et al. 2003, Reichardt et al. 2004). Durch Modellstudien zeigten Carslaw et al. (1999), dass Leewellen eine bedeutende Quelle von festen salpetersäurehaltigen PSCs auf synoptischer Skala sein könnten. Sie könnten bei entsprechend tiefen Temperaturen Tausende von Kilometern hinter dem Gebirge weiter existieren. Solche Wolken bestehen aus relativ kleinen Teilchen hoher Anzahldichte. Durch Sedimentation und Wachstum der Teilchen in darunterliegenden Schichten könnten die beobachteten großen NAT-Partikel gebildet werden (Dhaniyala et al. 2002, Fueglistaler et al. 2002b). Auf Grundlage dieser Theorie zeigten Mann et al. (2005), dass ein Großteil der stratosphärischen Luft im Polarwirbel mit Temperaturen unter  $T_{NAT}$  Teilchen enthalten kann, die aus solchen „mother clouds“ (Fueglistaler et al. 2002b) sedimentiert sind. Bis zu 80% der beobachteten Denitrifizierung im arktischen Winter 1999/2000 konnte hierdurch erklärt werden (Mann et al. 2005).

Jedoch existieren auch Beobachtungen, die nicht durch heterogene Nukleation auf Eis erklärt werden können und daher einen Gefriermechanismus oberhalb von  $T_{Eis}$  erfordern (Pagan et al. 2004, Irie et al. 2004, Larsen et al. 2004, Voigt et al. 2005). Tabazadeh et al. (2001) sagten einen „polaren Gefriergürtel“ bei Temperaturen von 190–192 K in den Polarwirbeln auf der Basis von homogener Nukleation von NAT oder auch NAD (Nitric Acid Dihydrate, Salpetersäuredihydrat,  $HNO_3 \cdot 2H_2O$ ) aus STS voraus. Die Größe der verwendeten Nukleationsraten wurde jedoch in Zweifel gezogen (Knopf et al. 2002, Tabazadeh 2003). Im Folgenden schlügen Tabazadeh et al. (2002) einen oberflächenbasierten homogenen Nukleationsmechanismus vor, mit dem Irie et al. (2004) gemessene Denitrifizierung in der arktischen Stratosphäre reproduzierten. Mit diesem Mechanismus konnten Larsen et al. (2004) allerdings sehr frühe Beobachtungen von PSCs Anfang Dezember 2002 über Nordskandinavien nicht in Einklang bringen. Erst eine Reduktion der Gefrierraten um einen Faktor von 10–20 brachte das entsprechende Ergebnis. Modellstudien von Svendsen et al. (2005) zeigten, dass sich Lidarbeobachtungen von PSCs im arktischen Winter 1999/2000 am besten durch eine Kombination von Leewellen-induzierten PSCs und homogener NAT-Nukleation erklären lassen. Für den gleichen Winter argumentierten Drdla und Browell (2004), dass weder das volumen- noch das oberflächenbasierte homogene Gefrieren von STS die beobachtete PSC-Entwicklung und die Denitrifizierung erklären können. Daraus zogen sie den Schluss, dass ein anderer Mechanismus, etwa das heterogene Gefrieren auf festen Verunreinigungen, notwendig ist, um die frühe Bildung von festen PSCs zu ermöglichen. Dies deckt sich mit den Beobachtungen von Voigt et al. (2005), die ihre Messungen von salpetersäurehaltigen festen Teilchen, die bei geringen Übersättigungen gebildet wurden, durch heterogene Nukleation auf Meteoritenstaub erklärten.

## 1.4 Der Einfluss von PSCs auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre

Neben ihrer großen Bedeutung für die Chemie der winterlichen Stratosphäre beeinflussen PSCs als zusätzliche absorbierende und streuende Materie den Strahlungshaushalt der Atmosphäre. So schlügen Mahlman und Fels (1986) als Erklärung des Ozonlochs vor, dass die Aufheizung von PSCs durch die aufgehende Sonne über der Antarktis ein diabatisches Aufsteigen ozonärmer Luft von unten in den Polarwirbel hinein bewirken könnte. Tung und

Yang (1988) errechneten, dass eine zusätzliche, PSC-induzierte Erwärmung von 0.5 K/d dazu ausreichend wäre.

Nimmt man in einem einfachen Modell die Emissivität  $E_w$  der Wolke als wellenlängenunabhängig an (Graukörper) und vernachlässigt die solare Einstrahlung (Polarnacht), so ergibt sich als Nettoheizrate:

$$H = E_w \sigma T_{Boden}^4 - 2E_w \sigma T_{PSC}^4, \quad (1.11)$$

mit der Stefan-Boltzmann-Konstante  $\sigma$ . Die Wolke erwärmt sich durch die von der Erde abgestrahlte Energie und kühlt sich durch eigene Ausstrahlung nach oben und nach unten. Die Heizrate ist positiv, d.h. die Wolkenschicht erwärmt sich, falls  $T_{Boden} > \sqrt[4]{2}T_{PSC}$  und negativ, falls  $T_{Boden} < \sqrt[4]{2}T_{PSC}$ . Bei einer PSC-Temperatur von 190 K liegt dieser Übergangsbereich bei einer Temperatur des Bodens von 226 K. Bei dieser Betrachtung wird eine optisch dünne Atmosphäre vorausgesetzt, so dass die PSC über den gesamten Spektralbereich hinweg die Erdoberfläche sieht. Da dies aufgrund der Absorption durch Spurengase wie Wasserdampf und Kohlendioxid nicht bei allen Wellenlängen der Fall ist, reduziert sich die Abhängigkeit von der Bodentemperatur und der Übergangsbereich wird zu höheren Temperaturen hin verschoben. Hier zeigt sich die starke Abhängigkeit der PSC-Heizraten von der Wolkenbedeckung in der Troposphäre, die die effektiv emittierende Fläche nach oben und damit meist zu tieferen Temperaturen hin verschiebt. Weitere Einflussgrößen auf den Strahlungshaushalt sind die Positionen der Absorptionsbanden der Wolkenteilchen, die durch deren chemische Zusammensetzung bestimmt werden, und die Größenverteilung der Teilchen. Auch der sogenannte „indirekte Effekt“ durch die Aufnahme von Wasserdampf in den Wolken, der dann in der jeweiligen Schicht nicht mehr als Absorber von Strahlung zur Verfügung steht, muss bei der Modellierung von Heizraten berücksichtigt werden.

Erste detaillierte Strahlungsübertragungsrechnungen wurden von Blanchet (1985) und Pollack und McKay (1985) durchgeführt. Diese zeigen, dass Faktoren wie der Temperaturkontrast zwischen Boden und Wolke, die Teilchengröße, der spektrale Verlauf der Extinktion und die troposphärische Wolkenbedeckung wesentliche Einflussgrößen sind. Auch wird festgestellt, dass der direkte Effekt durch die Wolkenteilchen den indirekten durch reduzierten Wasserdampf in der Gasphase überwiegt. Während Pollack und McKay (1985) für ihre gewählten Szenarien immer Abkühlung berechnen, variiert das Vorzeichen der Heizraten bei Blanchet (1985) je nach dem verwendeten troposphärischen Temperaturprofil mit absoluten Werten bis zu 1 K/d. Shi et al. (1986) und Akiyoshi et al. (1988) berechnen für Schwefelsäure-PSCs positive Heizraten von 0.1–0.2 K/d auf Basis von in-situ Messungen der Temperatur, Ozon und Feuchte bzw. Satellitenmessungen von Spurengasen und Aerosolextinktion sowie Analysedaten der Temperatur. Kinne und Toon (1990) waren die ersten, die realistische Größenverteilungen von PSCs aus Beobachtungen während der Airborne Antarctic Ozone Expedition (AAOE) im antarktischen Winter 1987 für die Berechnung von Heizraten verwendeten. Dabei erhalten sie Werte von  $\pm 0.1$  K/d für NAT-PSCs, -0.2 bis 1.0 K/d für Eis-PSCs mit großen Teilchen und -0.5 bis 3.0 K/d für Eis-PSCs mit kleineren Teilchen, wie sie durch Leewellen gebildet werden. Rosenfield (1992) ging einen Schritt weiter und bestimmte geographisch aufgelöste Heizraten über längere Perioden während eines arktischen und eines antarktischen Winters. Dabei wird die Volumendichte der PSCs durch meteorologische Analysen der Temperatur und gemessenen Verteilungen von  $\text{HNO}_3$  und Wasserdampf aus Gleichgewichtsrechnungen bestimmt. Realistische Größenverteilungen ergeben sich durch Aneichung an SAM II Beobachtungen. Über der Antarktis erhält

man ohne troposphärische Wolken Heizraten von maximal 0.5 K/d. Bei Mittelung über die gesamte Periode verringern sich diese auf 0.1 K/d. Unter Annahme einer vollständigen Wolkenbedeckung erhält man eine Abkühlung mit Raten von -0.1 K/d. Über der Arktis sind die durch PSCs bedingten Heizraten zu vernachlässigen, da kaum Eis-PSCs auftreten. In einer weiteren Veröffentlichung benutzt Rosenfield (1993) Lidarmessungen von PSCs an unterschiedlichen antarktischen Stationen, um die PSC-Größenverteilungen einzuschränken. Die gemittelten Heizraten von  $\pm 0.1$  K/d stimmen mit den Ergebnissen aus Rosenfield (1992) überein. Ein auffälliger Unterschied zu allen vorausgehenden Publikationen besteht jedoch darin, dass NAT- und Eis-PSCs in Rosenfield (1993) zu vergleichbaren Heizraten führen, die durch die stark unterschiedliche Teilchengrößenverteilung begründet wird. Die Autoren der neuesten uns bekannten Studie zu Heizraten polarer stratosphärischer Wolken bemühen sich, möglichst realistische atmosphärische Szenarios, insbesondere der troposphärischen Wolkenbedeckung, zu verwenden (Hicke und Tuck 2001). Für August und September berechnen sie Heizraten von -0.25 bis -0.5 K/d über dem Südpol. Zum Vortexrand hin werden diese positiv und nehmen Werte von 0.3 K/d an. Hicke und Tuck (2001) benutzen für ihre Rechnungen Informationen über PSCs aus Kinne und Toon (1990), betonen jedoch, dass dies die größte Vereinfachung des Modells sei, die erst durch globale Satellitenmessungen der PSC-Verteilung überwunden werden kann.

Mit dem Einfluss von stratosphärischen Wolken auf die Troposphäre befasst sich eine Veröffentlichung von Sloan und Pollard (1998). In dieser paleoklimatologischen Untersuchung modellieren die Autoren den Effekt einer starken winterlichen PSC-Bedeckung der Pole auf die Oberflächentemperatur der Erde mittels eines GCMs (General Circulation Model). Die dabei angenommene Eis-PSC-Schicht hatte eine sehr hohe Emissivität (0.999), um den maximal möglichen Effekt auf die Troposphäre während vergangener Warmzeiten mit möglicherweise stark erhöhtem Wasserdampfgehalt in der Stratosphäre, zu bestimmen. Im Vergleich zu einem Referenzlauf ohne PSCs ergeben sich bis zu 20 K höhere Oberflächentemperaturen in winterlichen hohen Breiten. Durch den Rückgang des Meereises steigen auch im Sommer die Temperaturen durch verstärkte Absorption kurzwelliger Strahlung an. Insgesamt erhöht sich die mittlere globale Oberflächentemperatur um 2.6 K.

Die von Turner et al. (2006) beobachtete starke Erwärmung der mittleren antarktischen Troposphäre im Winter (0.5–0.7°C/Dekade) in den vergangenen 30 Jahren kann möglicherweise mit einem Anstieg der PSC-Bedeckung erklärt werden. So gelang es Lachlan-Cope et al. (2007b) und Lachlan-Cope et al. (2007a) durch Anwendung eines globalen Klimamodells den beobachteten Temperaturtrend unter bestimmten Annahmen über die Verteilung von Eis-PSCs im antarktischen Polarwirbel zu reproduzieren.

## 1.5 Die Beobachtung polarer stratosphärischer Wolken mittels Fernerkundung

Polare stratosphärische Wolken können einerseits in-situ von Stratosphärenballons und hochfliegenden Flugzeugen aus und andererseits durch Fernerkundung vom Boden, von Ballons, Flugzeugen und Satelliten aus untersucht werden. Dieses Kapitel soll eine möglichst umfassende Zusammenschau der zur Fernerkundung von PSCs benutzten Instrumente geben.

Hierbei ist auf einen vergleichbaren Überblick der Experimente zur Charakterisierung der stratosphärischen Aerosolschicht zu verweisen (Thomason und Peter 2006). Dort stehen ausführliche Instrumentbeschreibungen und die Experimente zur langfristigen Beobachtung der Aerosolschicht im Vordergrund, während hier auch kurzfristige Messungen aufgeführt und die für PSCs relevanten Ergebnisse dargestellt werden.

Von wenigen Ausnahmen abgesehen, analysieren die Methoden zur Fernerkundung der Atmosphäre die von dem zu untersuchenden Objekt in charakteristischer Weise modifizierte oder ausgesendete elektromagnetische Strahlung. Dabei gibt es verschiedene Möglichkeiten, diese Methoden zu klassifizieren: nach dem überdeckten Spektralbereich, der spektralen Auflösung, der räumlichen Auflösung, dem Träger des Instruments, oder der Lichtquelle<sup>11</sup>. Im Folgenden werden die zur Fernerkundung von PSCs benutzten Instrumente nach der Quelle der elektromagnetischen Strahlung eingeordnet. Zu den Strahlungsquellen der passiven Fernerkundung von PSCs zählen die Sonne (Abschnitt 1.5.1), Sterne (Abschnitt 1.5.2) und die Eigenemission von Infrarotstrahlung durch die PSC-Partikel (Abschnitt 1.5.3). Die aktive Fernerkundung benutzt hingegen künstliche Strahlungsquellen (Abschnitt 1.5.4).

Die erste Methode der Detektion von PSCs von Satelliten aus war die solare Extinktionsmessung. Diese hat den Vorteil einer recht einfachen Kalibrierung, da nach bzw. vor jeder Sonnenauf- bzw. -untergangsmessung die nicht gestörte Sonneneinstrahlung beobachtet, und im Vergleich zu Emissionsmessungen direkt die wahre Extinktion bestimmt werden kann. Der gravierende Nachteil ist die schlechte geographische Abdeckung: erstens ist man von der Sonne abhängig und kann nicht in der Polarnacht beobachten, und zweitens erhält man lediglich bis zu 30 Profile pro Tag. Eine kontinuierliche zeitliche und räumliche Erfassung der stratosphärischen Wolken ist nur mittels der Emission im Infraroten, auf der der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt, sowie mit aktiven Methoden möglich.

## 1.5.1 Die Sonne als Strahlungsquelle

### 1.5.1.1 Solare Okkultationsmessungen von Satelliten

**1.5.1.1.1 SAM II, SAGE I, SAGE II, SAGE III:** Die Fernerkundung von PSCs von Satelliten aus begann 1978 mit dem SAM II-Gerät auf Nimbus 7. Zusammen mit den Instrumenten SAGE I (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment I), SAGE II und SAGE III, lieferte dies die bis heute längste Beobachtungsreihe stratosphärischen Aerosols von Satelliten aus. Während SAM II mit einem Photometer bei 1000 nm Wellenlänge maß, werden bei SAGE III 12 Kanäle im UV/VIS/NIR zur Ableitung von Aerosolextinktion und verschiedenen Spurengasen verwendet.

Veröffentlichungen von SAM II-Beobachtungen bezüglich PSCs reichen von den ersten Messungen (McCormick 1981, McCormick et al. 1982) bis hin zu mehrjährigen Klimatologien (McCormick und Trepte 1986; 1987, McCormick et al. 1989, Poole und Pitts 1994). Die Daten wurden innerhalb der großen arktischen und antarktischen Messkampagnen Ende der achtziger Jahre verwendet (Osborn et al. 1990a), bei der auch der erste Vergleich ei-

---

<sup>11</sup>Eine ausführliche Darstellung der Taxonomie von Fernerkundungssystemen findet sich in Ehlers et al. (2001)

Instrument	Träger	Zeitraum	Geogr. Abdeckung [°]	Kanäle / spek. Auflösung	Wellenlängen
<b>Passiv, Okkultation</b>					
ACE-FTS ATMOS	ACE Spacelab 3	08/2003– 04/1985	max -88–88	FTS $0.02 \text{ cm}^{-1}$ FTS $0.01 \text{ cm}^{-1}$ Aufl.	$2.2\text{--}13.3 \mu\text{m}$
GOMOS HALOE	ATLAS 1 ATLAS 2 ATLAS 3 Envisat UARS	03/1992 04/1993 11/1994 07/2002– 10/1991–11/2005	-90–90 max -80–80	4 Spektrometer Gaskorrel. <sup>a</sup> Radiometer	250–950 nm 2.45, 3.4, 3.46, 5.26 $\mu\text{m}$
ILAS	ADEOS <sup>b</sup>	11/1996–06/1997	-63– -87, 55–70	0.1 nm 44	753–784 nm 6.21–11.77 $\mu\text{m}$
ILAS II	ADEOS II	04/2003–10/2003	-65– -90, 57–72	0.1 nm 22 44 22	753–784 nm 3.0–5.7 $\mu\text{m}$ 6.21–11.77 $\mu\text{m}$ 12.78–12.85 $\mu\text{m}$
POAM II POAM III SAGE I SAGE II SAGE III SAM II	SPOT-3 SPOT-4 SAGE ERBS Meteor-3M Nimbus 7	09/1993–11/1996 03/1998–12/2005 <sup>c</sup> 02/1979–11/1981 10/1984–08/2005 02/2002–heute 10/1978–12/1993	-63– -88, 55–71 -63– -88, 55–71 -80– -80 -80– -80 -30– -50, 50–80 -64– -83, 64–83	9 9 4 7 12 1	353–1060 nm 353–1018 nm 450–1000 nm 385–1000 nm 284–1560 nm 1000 nm
<b>Passiv, Horizontsondierung, Emission und Streuung</b>					
CLAES CRISTA	UARS ATLAS 3 ASTRO- SPAS	10/1991–05/1993 4.–12.11.1994 8.–16.8.1997	$\pm 34^\circ \mp 80^\circ$ <sup>b</sup> -73–73	0.5 $\text{cm}^{-1}$ , 9 Kan. 4 Spektrometer 26 Kan.	$3.5\text{--}12.9 \mu\text{m}$ $140\text{--}2500 \text{ cm}^{-1}$
ISAMS MIPAS SCIA- MACHY	UARS Envisat Envisat	09/1991–07/1992 06/2002– 04/2002–	$\pm 34^\circ \mp 80^\circ$ <sup>b</sup> -90–90 -90–90	2 $\text{cm}^{-1}$ Aufl. 13 Kan. 0.025 $\text{cm}^{-1}$ Aufl. 8 Kan. 0.21–1.56 nm Aufl.	$610\text{--}2200 \text{ cm}^{-1}$ $685\text{--}2410 \text{ cm}^{-1}$ 240–2380 nm
<b>Passiv, Nadirsondierung</b>					
AVHRR IRIS	TIROS, NOAA, Metop Nimbus 4	seit 10/1978 1970–1971		6 Kan. (AVHRR/3) FTS $2.8 \text{ cm}^{-1}$	$0.58\text{--}12.5 \mu\text{m}$ $400\text{--}1500 \text{ cm}^{-1}$
<b>Aktiv</b>					
GLAS CALIOP	Icesat CALIPSO	02/2003– 06/2006–	-88–88 -80–80		532, 1064 nm 532, 1064 nm 532 nm Depol.

<sup>a</sup> Zur Ableitung der Aerosolextinktion benutzt.

<sup>b</sup> Alternierend, 36d Periode.

<sup>c</sup> Letzter Stand zum Zeitpunkt der Arbeit: „The POAM III instrument has been in non-operational anomaly status since December 4, 2005. Currently, efforts are continuing to recover the instrument.“

Tabelle 1.1: Übersicht satellitengetragener Fernerkundungsexperimente aus denen Informationen über PSCs bzw. stratosphärische Aerosole abgeleitet wurden.

nes PSC-Extinktionsprofils von SAM II mit demjenigen eines Lidars durchgeführt wurde (Osborn et al. 1990b). In einer weitergehenden Interpretation wurden beispielsweise aus SAM II-Messungen das Ausmaß der Denitrifizierung und Dehydrierung in den Polarwirbeln abgeschätzt (Hamill und Toon 1990, Poole und Pitts 1994). Eine erste ungewöhnliche PSC-

Sichtung mittels SAGE II nahe 50°N wurde von Pitts et al. (1990) veröffentlicht. Fromm et al. (2003) erstellte eine einheitliche Datenbank von PSC-Extinktionsprofilen um 1  $\mu\text{m}$  aus SAM II-, SAGE II- und POAM II/III (Polar Ozone and Aerosol Measurement)-Messungen und diskutierte die Variationen in der PSC-Häufigkeit von Jahr zu Jahr im Zusammenhang mit Denitrifizierung und den Einfluss der Tropopausenhöhe auf das Auftreten von PSCs über der Arktis. PSC-Beobachtungen mittels SAGE III wurden erstmals von Poole et al. (2003) veröffentlicht. Hier wird in Anlehnung an Strawa et al. (2002) die Unterscheidbarkeit von Typ 1a- und Typ 1b-PSCs auf Basis der Extinktionen bei 449 nm und 1022 nm gezeigt.

**1.5.1.1.2 POAM II, POAM III:** POAM II (Polar Ozone and Aerosol Measurement II) und dessen Nachfolger POAM III, das den gleichen geographischen Bereich abdeckt, dienten zur Messung von Aerosolen, Temperatur und den Spurengasen Ozon, Wasserdampf und NO<sub>2</sub> bis nahe an den Südpol heran und ergänzten so die Beobachtungen von SAGE II und SAGE III bis in die Polargebiete hinein.

POAM II-Extinktionsmessungen bei 1060 nm dienten dazu, das Auftreten von PSCs über der Antarktis (Fromm et al. 1997) und über der Arktis (Fromm et al. 1999) im Zeitraum von 1993 bis 1996 zu untersuchen. Dabei wurde eine auffällige Erhöhung der PSC-Häufigkeit im Lee der antarktischen Halbinsel nachgewiesen. Daten über der Antarktis von POAM II und die ersten Messungen von POAM III wurden von Steele et al. (2002) benutzt, um die Rolle der Temperatur bei der Entstehung von PSCs zu untersuchen. Obwohl es Hinweise darauf gab, dass das Erreichen des Eisfrostpunkts einen Einfluss auf die Entstehung von PSCs hatte, konnte am Ende allerdings keine statistisch signifikante Schlussfolgerung gezogen werden. POAM III-PSC-Beobachtungen im arktischen Winter 1999/2000 wurden von Bevilacqua et al. (2002) mit flugzeuggetragenen Lidar-Messungen verglichen und zur Ableitung der Denitrifizierung im Polarwirbel benutzt. Die ungewöhnlich frühzeitige Störung und die damit verbundene Erwärmung des antarktischen Polarwirbels 2002 führte zu einem vorgeschobenen Ende der PSC-Periode um ca. einen Monat (Mitte September statt Mitte Oktober) (Nedoluha et al. 2003). Dies stimmt mit Ergebnissen unserer ersten PSC Beobachtungen mittels MIPAS/Envisat überein (Höpfner et al. 2004a). Einen wesentlichen Beitrag zur Unterscheidung von Typ 1a- und Typ 1b-PSCs aus POAM-Beobachtungen stellt die Veröffentlichung von Strawa et al. (2002) dar. Aufgrund der Annahme, dass Typ 1a- und Typ 1b-PSCs deutlich unterschiedliche Teilchengrößen besitzen, lassen sie sich durch die unterschiedliche Wellenlängenabhängigkeit mittels einer Zwei-Farben-Methode bei 603 nm und 1018 nm unterscheiden.

Benson et al. (2006a;b) versuchten durch einen Vergleich von mikrophysikalischer PSC-Modellierung auf der Grundlage von Trajektorienanalysen mit POAM III-Messungen von Wasserdampf und Aerosolextinktion in den antarktischen Wintern 1998–2003 unterschiedliche Modellparameter zu bestimmen. Unter der Annahme, dass zur Bildung von NAT heterogene Nukleation erforderlich ist, wurde ein Anteil von 0.02% an NAT-Gefrierkeimen relativ zur gesamten Aerosolanzahl dichte abgeleitet. Unserer Meinung nach müssen diese Studien allerdings mit Vorsicht betrachtet werden, da zum einen nur die Gesamttextinktion der PSCs betrachtet wurde, ohne Ihre Zusammensetzung unterscheiden zu können. Zum zweiten spielen Fehler in den verwendeten stratosphärischen Temperaturen bei der Ableitung der mikrophysikalischen Parameter eine große Rolle (Benson et al. 2006b). Drittens wurden aufgrund der Verwendung von synoptischen Temperaturfeldern keinerlei Effekte von

Schwerewellen auf die NAT-Bildung berücksichtigt. Diese haben jedoch, wie in der vorliegenden Arbeit gezeigt wird, einen wesentlichen Einfluss auf die Bildung von NAT-PSCs im antarktischen Polarwirbel.

**1.5.1.1.3 ILAS, ILAS II:** ILAS (Improved Limb Atmospheric Spectrometer) und ILAS II, die beide auf sonnensynchronen Bahnen die Erde umrundeten, beobachteten die solare Extinktion im sichtbaren und im infraroten Spektralbereich. Unglücklicherweise beendeten beide Instrumente ihren Betrieb vorzeitig, so dass im Fall von ILAS im wesentlichen PSCs im arktischen Winter 1996/1997 und von ILAS II solche im antarktischen Winter 2003 beobachtet wurden.

ILAS-PSC-Messungen im Sichtbaren wurden von Hayashida et al. (2000) bezüglich ihres Auftretens und von Saitoh et al. (2002) in Kombination mit ILAS-HNO<sub>3</sub>-Messungen bezüglich ihrer möglichen Zusammensetzung analysiert. Wang und Michelangeli (2006) benutzten den Datensatz zur Validierung einer mikrophysikalischen Modellrechnung zur PSC-Entwicklung.

ILAS- und ILAS II-Extinktionsmessungen im infraroten Spektralbereich wurden von Lee et al. (2003) und Kim et al. (2006) verwendet, um die Zusammensetzung von PSCs zu bestimmen. Kim et al. (2006) leiteten als Hauptbestandteile von PSCs  $\beta$ -NAT, binäre Salpetersäure/Wasser-Lösungen und Eis ab. Allerdings gibt es wahrscheinlich aufgrund der beschränkten räumlichen Abdeckung, keine Vergleiche mit koinzidenten Messungen anderer Instrumente. Trotzdem sind diese Analysen bezüglich unserer Auswertungen von MIPAS/Envisat-Messungen im gleichen Winter von Interesse (Kapitel 6).

**1.5.1.1.4 HALOE:** HALOE (Halogen Occultation Experiment) auf dem amerikanischen Forschungssatelliten UARS beobachtete die Atmosphäre über einen Zeitraum von mehr als 14 Jahren mit einer geographischen Abdeckung von maximal 80°N bis 80°S. Das Gerät benutzte vier Gaskorrelationsfilter im Infraroten zur Ableitung der Spurengase HF, HCl, CH<sub>4</sub>, NO und drei konventionelle Radiometerkanäle für NO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O und O<sub>3</sub>. Aus den Gaskorrelationsmessungen konnte außerdem die Aerosolextinktion abgeleitet werden (Herwig et al. 1996).

Eine empirische Methode zur Bestimmung von Volumen- und Oberflächendichten von Teilchen aus HALOE-, CLAES- (Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer) und ILAS-Beobachtungen wurde von Herwig et al. (1998) publiziert. Hierbei wurden in-situ Beobachtungen von Aerosolen und PSCs als Grundlage zur Parametrisierung der Zusammenhänge zwischen gemessenen Extinktionen und Teilcheneigenschaften verwendet.

In einer atmosphärenphysikalischen Anwendung dieser Methode leitete Hervig et al. (1997) aus HALOE-Beobachtungen über der Antarktis im Oktober 1993 die Bedeutung von Wasserdampf-Intrusionen aus niederen Breiten für die Bildung von polaren stratosphärischen Wolken im Frühling ab. Ein Vergleich der gemessenen Volumendichten mit Gleichgewichtsrechnungen für STS und NAT erlaubte keine eindeutige Klassifizierung der beobachteten Teilchen. Diese Beobachtungen waren auch Grundlage für eine Untersuchung von Chan et al. (1998), die zu den gleichen Schlussfolgerungen über den Transport von Luft aus mittleren Breiten wie Hervig et al. (1997) kamen. HALOE-PSC-Messungen über England im

März 1996 wurden über Gleichgewichtsrechnungen als NAT identifiziert. Trajektorienanalysen zeigten hierbei, dass vorausgegangene Eismukleation die NAT-Bildung verursacht haben könnte.

**1.5.1.1.5 ATMOS:** ATMOS (Atmospheric Trace Molecule Spectroscopic Experiment) war das erste Fourier-Transform-Spektrometer, das vom Weltraum aus Okkultationsmessungen durchführte und breitbandige hochaufgelöste Spektren der atmosphärischen Extinktion lieferte. ATMOS kam während vier Flügen des Space Shuttles zum Einsatz: im April 1985, März 1992, April 1993 und November 1994. Aufgrund der Messperioden im Frühjahr und Herbst wurden von ATMOS nach unserem Wissen keine PSCs beobachtet. Allerdings zeigen die Veröffentlichungen über stratosphärische Aerosolmessungen nach dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo den Informationsgehalt hochauflöster Messungen über Teilchen (Rinsland et al. 1994).

**1.5.1.1.6 ACE-FTS:** ACE-FTS (Atmospheric Chemistry Experiment-Fourier Transform Spectrometer) kann als Nachfolgeinstrument von ATMOS angesehen werden, das kontinuierlich seit August 2003 die Erde umrundet. Zum Zeitpunkt dieser Arbeit existieren noch keine Veröffentlichungen bzgl. PSC-Messungen durch ACE-FTS. Nach Vorträgen und persönlichen Mitteilungen bestätigen diese die Beobachtung der spektralen Signatur bei  $820\text{ cm}^{-1}$ , die nach unseren Arbeiten (Kapitel 6.3) eindeutig auf NAT hinweist.

### 1.5.1.2 Streulichtmessungen vom Satelliten

**1.5.1.2.1 SCIAMACHY:** Von Savigny et al. (2005) analysierten die an PSCs gestreute solare Strahlung, die von SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography) auf Envisat in Horizontsondierungsgeometrie gemessen wird. Zur Unterscheidung von Rayleighstreuung wird zur Detektion von PSCs eine Zweifarbenmethode beruhend auf Strahldichten bei 1090 und 750 nm verwendet. Als Grund für das beobachtete Absinken der PSCs im antarktischen Winter 2003 wird das langsame Absinken der Höhe des Temperaturminimums genannt, wie dies auch von Santacesaria et al. (2001) aus Lidarmessungen abgeleitet wurde.

### 1.5.1.3 Streulichtmessungen vom Ballon

**1.5.1.3.1 microRADIBAL:** In Brogniez et al. (2003) wird die Herleitung von mikrophysikalischen PSC-Parametern aus Messungen mit dem ballongetragenen micro RADiomètre BALLON (microRADIBAL) während eines Flugs am 25. Januar 2000 beschrieben. MicroRADIBAL misst in Horizonrichtung unter verschiedenen Azimutwinkel die gestreute solare Strahlung in fünf Kanälen im nahen IR von 730 bis 1620 nm. Mit Hilfe von Mie- und T-Matrix-Rechnungen konnten die Beobachtungen am besten mit einer bimodalen Partikelverteilung angepasst werden, die mit vorhandenen STS- und NAT-Teilchen während eines Leewellenereignisses erklärt wurden.

#### 1.5.1.4 Solare Absorptionsmessung vom Flugzeug und vom Boden

**1.5.1.4.1 Mark IV/DC-8:** Während der Airborne Antarctic Ozone Expedition maß das Interferometer Mark IV an Bord einer DC-8 an verschiedenen Tagen im September 1987 die Extinktion der solaren Strahlung durch PSCs im Wellenlängenbereich 1.8–15  $\mu\text{m}$  (Kinne et al. 1989). Es wurden PSCs vom Typ 1 und vom Typ 2 unterschieden und mikrophysikalische Parameter wie mittlerer Radius und Anzahldichte abgeleitet. Diese Messungen wurden von Toon und Tolbert (1995) auf der Basis von neu bestimmten Brechungsindizes (Toon et al. 1994) nochmals analysiert. Dabei kamen Toon und Tolbert (1995) zu dem Ergebnis, dass es sich bei den Messungen der Typ 1-PSCs nicht um NAT, sondern um eine andere Substanz (möglicherweise STS) gehandelt hat.

**1.5.1.4.2 FTIR/Kiruna:** Die einzigen uns bekannten Beobachtungen von PSCs mittels bodengebundener solarer FTIR-Spektroskopie werden im Rahmen dieser Arbeit in Kapitel 4 beschrieben (Höpfner et al. 2001).

### 1.5.2 Sterne als Strahlungsquelle

#### 1.5.2.1 Okkultation im VIS/NIR

**1.5.2.1.1 GOMOS:** Neben der thermischen Emission erlaubt nur die Sternokkultation als passive Methode eine Beobachtung von PSCs in der Polarnacht. Das bislang einzige Instrument, das nach dieser Methode arbeitet, ist GOMOS (Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars) auf Envisat. Vanhellemont et al. (2005) beschreibt erste Höhenprofile der Extinktion von PSCs, die für den antarktischen Winter 2003 aus GOMOS-Messungen abgeleitet wurden und das typische Absinken der Wolken im Laufe des Winters zeigen.

### 1.5.3 Thermische Emission

#### 1.5.3.1 Horizontsondierung von Satelliten

**1.5.3.1.1 CLAES:** CLAES (Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer), ein mit flüssigem Neon gekühltes Spektrometer auf UARS, maß in 9 Kanälen im Wellenzahlbereich 780–2840  $\text{cm}^{-1}$  in Horizontsondierung die Emission der Erdatmosphäre von Oktober 1991 bis Anfang Mai 1993. Dabei wurde kanalabhängig eine spektrale Auflösung von 0.2–0.7  $\text{cm}^{-1}$  erreicht. Der Auswerteprozess der CLAES-Daten besteht aus einer simultanen Ableitung von Druck, Temperatur, Spurengasen und Kontinuum, das als Aerosolextinktion behandelt wurde. Dabei wurde angenommen, dass die Teilchen keinen gestreuten Beitrag zur Gesamtstrahldichte liefern (Massie et al. 1996b). In einer ersten Veröffentlichung über CLAES-PSC-Beobachtungen versuchten Massie et al. (1994), die PSCs mittels der Extinktionen in drei Kanälen von stratosphärischem Sulfataerosol zu trennen. Hierbei wurde angenommen, dass es sich bei PSCs um NAT- bzw. Eisteilchen handelt. Allerdings wurde bei diesen Rechnungen wie auch bei nachfolgenden Arbeiten der Streubeitrag der Teilchen nicht berücksichtigt,

was, wie in der vorliegenden Arbeit gezeigt wird, zu erheblichen Fehlern führen kann. Es sind keine weiteren wissenschaftlichen Arbeiten bekannt, die die Methode von Massie et al. (1994) zur Analyse von PSC-Verteilungen weiter verfolgen.

Zwei Veröffentlichungen (Massie et al. 1998, Herwig und Deshler 1998) befassen sich mit der Herleitung von Beziehungen zwischen Aerosolextinktion und Oberflächen- bzw. Volumendichten von Aerosol- und PSC-Teilchen. Dabei stellen Massie et al. (1998) fest, dass die abgeleiteten Oberflächendichten, wie auch schon die Extinktionen, systematisch größer als Vergleichsmessungen von SAM II sind. Sie führen dabei unter anderem auch nicht berücksichtigte Vielfachstreueffekte als mögliche Erklärung der Diskrepanzen an. Auch im Vergleich zu HALOE- und zu in-situ-Messungen sind aus CLAES-Extinktionen abgeleitete Oberflächen- und Volumendichten von PSCs systematisch größer (Herwig und Deshler 1998). Wir vermuten, dass beides auf die Vernachlässigung von Streuung bei der Bestimmung der Extinktion zurückgeführt werden kann.

CLAES war das erste Instrument,<sup>12</sup> das die tägliche PSC-Bedeckung bei nahezu vollständiger Abdeckung des Südpolargebiets erfassste. Aufgrund der alternierenden Messgeometrie des UARS-Satelliten wurde allerdings nicht der gesamte antarktische Winter, sondern die Zeiträume 11. Juni – 10. Juli und 16. August – 18. September 1992 abgedeckt. Die Periode der ersten PSC-Entstehung ab Mitte Mai und die ihres letzten Auftretens im Oktober konnten daher nicht beobachtet werden. Mergenthaler et al. (1997) erarbeiteten eine Klimatologie des PSC-Auftretens auf Basis der CLAES-Extinktionen bei  $780\text{ cm}^{-1}$ . Die Autoren stellen dabei generell eine gute Übereinstimmung mit der SAM II Klimatologie fest. Auch konstatieren sie den Rückgang der PSC-Häufigkeit bei gleichbleibenden Temperaturen als Folge der Denitrifizierung bzw. Dehydrierung der Luftmassen des Polarwirbels. Ricaud et al. (1995) untersuchten das Auftreten von PSCs gegen Ende August 2002 über der westlichen Antarktis mittels einer Kombination von CLAES-Aerosolextinktion und  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{ClO}$ , die aus MLS-Messungen abgeleitet wurden. Dabei stellte sich heraus, dass die Wolken durch adiabatisches Heben der Luftmassen über einem Hochdruckgebiet über Südamerika und durch Leewelleneffekte erzeugt wurden. Erhöhte Werte von  $\text{ClO}$  zeigten Chloraktivierung an Teilchenoberflächen.

**1.5.3.1.2 ISAMS:** Der Improved Stratospheric and Mesospheric Sounder ISAMS beobachtete in 8 Kanälen im mittleren IR die Emission der Atmosphäre von 10 bis 100 km Tangentenhöhe von September 1991 bis Juli 1992. Dabei wurden verschiedene Spurengase aus acht druckmodulierten Gaszellen abgeleitet. Zur Detektion von Aerosolen diente ein Fensterkanal bei  $826\text{ cm}^{-1}$ .

Die einzige uns bekannte Veröffentlichung über PSC-Beobachtungen durch ISAMS stammt von Taylor et al. (1994). Dort werden zwei PSC-Perioden im arktischen Winter 1991/92 (27/28.12.1991 und 9.–12.1.1992) behandelt<sup>13</sup> und das Auftreten von PSCs mit erhöhten  $\text{ClO}$ -Werten von MLS korreliert. Es wird gezeigt, dass sich der spektrale Verlauf von Sulfataerosolen von demjenigen der beobachteten PSCs unterscheidet. Allerdings wird bei dem Vergleich mit Laborabsorptionsmessungen von NAT vorausgesetzt, dass keine Streueffekte vorliegen. Zudem wird lediglich mit Wassereis und NAT, jedoch nicht mit STS verglichen.

---

<sup>12</sup>Und blieb bis zum Start von MIPAS auch das einzige.

<sup>13</sup>Letztere wurde später, wie oben beschrieben, nochmal von Massie et al. (1997) näher analysiert.

**1.5.3.1.3 CRISTA:** CRISTA (Cryogenic Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere) konnte im August 1997 während seiner zweiten Mission (Grossmann et al. 2002) polare stratosphärische Wolken über der Antarktis beobachten. Das mit flüssigem Helium gekühlte, mit drei Teleskopen und vier Spektrometern ausgestattete Instrument vermaß mit einem Gesichtsfeld von  $2 \times 15$  km (vertikal  $\times$  horizontal) und mit einer Abtastung von 200 km entlang und 600 km senkrecht zum Orbit die Infrarotstrahlung der Atmosphäre.

Die PSC-Beobachtungen mittels CRISTA wurden in Spang et al. (2001b) und Spang und Remedios (2003) analysiert. In Spang et al. (2001b) wurde zum Nachweis von PSCs der „Cloud Indicator“ CI als Verhältnis eines CO<sub>2</sub>-Kanals ( $788\text{--}796\text{ cm}^{-1}$ ) zu einem Fensterkanal ( $832\text{--}834\text{ cm}^{-1}$ ) als relativ temperaturunabhängige Größe eingeführt. Anhand des gleichzeitig von CRISTA gemessenen gasförmigen HNO<sub>3</sub> und dessen Abnahme als Korrelation mit der Temperatur wurde auf PSCs vom Typ 1 geschlossen. Eine eindeutige Aussage zur Unterscheidung zwischen Typ 1a und 1b konnte aufgrund von Temperaturungenauigkeiten und fehlender Wasserdampfmessungen nicht gemacht werden. Spang und Remedios (2003) analysierten eine spektrale Signatur bei  $820\text{ cm}^{-1}$ , die sie in vielen der CRISTA-PSC-Spektren gefunden hatten. Dies wurde der  $\nu_2$ -Bande von NO<sub>3</sub><sup>-</sup> zugeordnet, die in NAT aber auch in STS auftreten kann. Aus der Korrelation dieser Signatur mit der Temperatur wurde der Schluss gezogen, dass es sich wahrscheinlich um NAT-Teilchen gehandelt hatte. In der vorliegenden Arbeit schließen wir an diese Veröffentlichung an, indem es uns gelang, diese auch in MIPAS-Messungen auftretende Bande mittels Strahlungsübertragungsrechnungen als NAT zu identifizieren (Kapitel 6.3, Höpfner et al. (2006b)).

**1.5.3.1.4 MIPAS-Envisat:** Das Auftreten von PSCs über hohen nördlichen Breiten im Winter 2002/03 wurde von Spang et al. (2005) anhand von MIPAS-Envisat-Beobachtungen analysiert. Die Existenz von PSCs wurde mittels des oben beschriebenen, schon bei CRISTA-Auswertungen angewandten „Cloud Indicators“ nachgewiesen und durch Vergleich mit POAM III, SAGE III und bodengebundenen Lidarmessungen validiert. Anhand der Signatur bei  $820\text{ cm}^{-1}$ , wurde das Vorkommen und die Entwicklung von NAT- im Vergleich zu STS- oder Eis-PSCs während des Winters beschrieben.

Bei der Analyse von MIPAS-PSC-Beobachtungen im antarktischen Winter 2003 wurde das Auftreten eines NAT-Gürtels um das Südpolargebiet analysiert (Kapitel 6.5, Höpfner et al. (2006a)).

### 1.5.3.2 Horizontsondierung vom Ballon

**1.5.3.2.1 MIPAS-B:** Ballongetragene Horizontsondierungsmessungen von PSCs in Emission wurden von MIPAS-B durchgeführt und werden in der vorliegenden Arbeit in Kapitel 5 behandelt (Höpfner et al. 2002).

### 1.5.3.3 Nadirsondierung

**1.5.3.3.1 AVHRR:** Das Advanced Very High Resolution Radiometer ist ein multispektraler Sensor, der auf polumlaufenden Satelliten der National Oceanic and Atmospheric

Administration (NOAA) verwendet wird. Das erste AVHRR besaß vier Kanäle und flog auf TIROS-N ab Oktober 1978. Ab Juni 1981 wurde auf NOAA-7 ein 5-Kanal-Instrument (AVHRR/2) betrieben. Die letzte Instrumentenversion ist das AVHRR/3 mit 6 Kanälen, das auf NOAA-15 ab Mai 1998 zum ersten Mal eingesetzt wurde. Es besitzt eine horizontale Auflösung in Nadirblickrichtung von 1.09 km. AVHRR/3-Instrumente werden auch auf den europäischen Metop Satelliten verwendet.

Garcia et al. (1995) zeigten, dass Strahldichten im AVHRR-Kanal 5 (11.5–12.5  $\mu\text{m}$ ) dazu verwendet werden können, optisch dicke PSCs zu detektieren und Foschi und Pagan (2002) benutzten die Strahldifferenz zwischen Kanal 4 (10.3–11.3  $\mu\text{m}$ ) und Kanal 5, um optisch dünneren PSCs nachzuweisen. In einer ausführlichen Simulationsstudie wiesen Hervig et al. (2001) nach, dass aus AVHRR Kanälen 4 und 5 zwar keine PSCs vom Typ 1, jedoch solche vom Typ 2 (Eisteilchen) mit vertikalen optischen Dicken größer als 0.05–0.1 (mittleres IR) detektierbar sind.

Auf Basis dieser Arbeiten verwendeten Pagan et al. (2004) und Irie et al. (2004) AVHRR-Daten um nachzuweisen, dass mit LIDAR beobachtete PSCs vom Typ 1a (Pagan et al. 2004) bzw. denitrifizierte Luftmassen (Irie et al. 2004) nicht mit dem vorherigen Auftreten von Eis-PSCs gekoppelt waren (siehe auch Kapitel 1.3).

**1.5.3.3.2 IRIS:** Das Infrared Interferometer Spectrometer (IRIS), das im April 1970 auf Nimbus 4 gestartet wurde, war ein nicht-scannendes, in Nadirrichtung sondierendes Instrument mit einer horizontalen Auflösung von 100 km. Es war das erste Infrarotinterferometer, das auf einem Satelliten die Erdatmosphäre beobachtete. Prabhakara et al. (1990) veröffentlichten die Untersuchung von IRIS-Spektren optisch dünner Zirren über hohen südlichen Breiten im Winter, die bei gestörten Bedingungen in der Troposphäre auch bis in die untere Stratosphäre hinein reichten. Die Autoren vermuten einen Zusammenhang mit denjenigen Beobachtungen von SAM II und SAGE, bei denen PSCs optisch so dick werden, dass eine Auswertung der Horizontsondierungsmessungen nicht mehr möglich ist.

## 1.5.4 Künstliche Strahlungsquellen (Lidar)

### 1.5.4.1 Flugzeuggetragene Messungen

**1.5.4.1.1 LaRC:** Wichtige Beobachtungen von PSCs wurden Mitte/Ende der 1980iger Jahre durch die flugzeuggetragenen LaRC- (NASA-Langley Research Center) Lidars durchgeführt. Das Rubin-Lasersystem (Wellenlänge 694.3 nm) wurde dabei in der Arktis im Januar 1984 und 1986 eingesetzt (Kent et al. 1986, Poole und McCormick 1988a). Während der Airborne Antarctic Ozone Expedition (AAOE) im antarktischen Winter 1987 (Kinne et al. 1989), in der Arktis im Januar 1988 (Poole et al. 1988), und im Januar/Februar 1989 im Rahmen der Airborne Arctic Stratospheric Expedition (AASE) (Browell et al. 1990, Kent et al. 1990, McCormick et al. 1990, Poole et al. 1990) wurden LaRC Nd:YAG Lidars (622 und 1064 nm) verwendet. Dabei wurden die beiden Haupttypen von PSCs unterschieden: Typ 1, der bei Temperaturen oberhalb des Eisfrostpunkts vorkommt und sich in die beiden Typen 1a (kleine Rückstreuung, starke Depolarisation) und 1b (stärkere Rückstreuung, wenig depo-

larisierend) aufteilt (Browell et al. 1990). Toon et al. (1990) folgerten, dass Typ 1a Teilchen größer als diejenigen vom Typ 1b und fest seien. PSCs vom Typ 1b konnten dagegen flüssig sein. Bei Temperaturen unterhalb des Eis-Frostpunkts wurde der Typ 2 beobachtet, der stark rückstreuete und depolarisierte (Eisteilchen). Aus einer Reanalyse des infraroten und des sichtbaren Kanals der Lidarbeobachtungen während AASE folgerte Toon et al. (2000), dass PSCs vom Typ 1 in vier Kategorien eingeteilt werden können: (1) nicht-depolarisierend bei beiden Wellenlängen: Typ 1b, wahrscheinlich STS, (2) stark depolarisierend bei beiden Wellenlängen und geringe Rückstreuung: Typ 1a, wahrscheinlich ein  $\text{HNO}_3$ -Hydrat mit Teilchengrößen  $>1 \mu\text{m}$ , (3) depolarisierend im Sichtbaren und nicht-depolarisierend im IR: Typ 1c, kleinere feste Teilchen, (4) nicht-depolarisierend im Sichtbaren und stark depolarisierend im IR: Mischung von Typ 1a und 1b PSCs.

Auch im Rahmen der SOLVE/THESEO- (SAGE III and Ozone Loss Validation Experiment/Third European Stratospheric Experiment on Ozone, Arktis 1999/2000) und der SOLVE II- (Arktis 2002/2003) Kampagnen wurden PSCs mit dem LaRC-Lidar beobachtet (Browell et al. 2003). Die Messungen wurden hinsichtlich ihres Informationsgehalts über mikrophysikalische PSC Eigenschaften (Hu et al. 2002), ihrer Vergleichbarkeit mit in-situ Beobachtungen (Brooks et al. 2004), der mikrophysikalischen Modellierung der beobachteten PSCs (Drdla et al. 2003, Drdla und Browell 2004) und speziell von Leewellen-PSCs und deren Bedeutung für die Entstehung von Typ 1a-Teilchen (Fueglistaler et al. 2002a; 2003, Pagan et al. 2004, Svendsen et al. 2005) ausgewertet. Zudem wurde die PSC-Bildung durch nicht-orographisch induzierte Wellen untersucht (Hitchman et al. 2003).

**1.5.4.1.2 OLEX:** Das erste flugzeuggetragene Lidarsystem des DLR zur Messung von PSCs und Ozonprofilen war das Ozone Lidar Experiment (OLEX) auf einer Transall. Dieses Gerät, das von 1991 bis 1995 in der Arktis eingesetzt wurde, maß das Rückstreuesignal bei 532 und 354 nm zusammen mit der Depolarisation des Signals bei 532 nm. OLEX/Transall-Beobachtungen von Leewellen-PSCs im Januar 1995 wurden hinsichtlich der Partikelentwicklung und des Potenzials zur Chloraktivierung von Carslaw et al. (1998a) und Carslaw et al. (1998b) analysiert. Weiterhin wurde aus OLEX/Transall Lidarmessungen im Dezember 1994 und Januar 1995 in Kombination mit MIPAS-FT Messungen der in der Gasphase verbliebenen Salpetersäure die Zusammensetzung synoptischer PSCs untersucht (Höpfner et al. 1998a).

Nachfolgend wurden OLEX-PSC-Messungen von einer Falcon F-20 aus im Winter 1996/97 während der APE-POLECAT- (Airborne Polar Experiment and Polar stratospheric clouds, Leewaves, Chemistry Aerosol and Transport) Kampagne (Wirth et al. 1999, Tsias et al. 1999) und im Januar-Februar 2000 während SOLVE/THESEO (Flentje et al. 2002, Fueglistaler et al. 2002a, Dörnbrack et al. 2002, Fueglistaler et al. 2003, Brooks et al. 2004, Höpfner et al. 2001) durchgeführt.

## 1.5.4.2 Bodengebundene Messungen

Bodengebundene Lidarmessungen von PSCs existieren an vielen Stationen in der Arktis und der Antarktis. Eine Übersicht über diese Beobachtungen findet sich in Tab. 1.2.

Station	Lage	Zeitraum der PSC Beobachtung	Referenzen
<b>Arktis</b>			
Eureka	80.0°N, 85.8°W	1994/95	Nagai et al. (1997)
Ny-Ålesund	78.9°N, 11.9°O	1992/93 1994/95 1994/95–1996/97 1995/96–1998/99 1996/97–1998/99 1994/95–1996/97	Beyerle et al. (1994) Beyerle et al. (1997) Shibata et al. (1997) Shibata et al. (1999) Beyerle et al. (2001) Müller et al. (2001) Biele et al. (2001)
Andøya	69.3°N, 16.0°O	1995/96 1994/95–96/97	Hansen und Hoppe (1997) Mehrtens et al. (1999)
Esranger	67.9°N, 21.1°O	1997	Dörnbrack et al. (2001)
Sodankylä	67.2°N, 26.6°O	1999/2000 1991/92 1994/95–1996/97 1996/97–1998/99	Fueglistaler et al. (2002a) Stein et al. (1994) Stein et al. (1999) Müller et al. (2001)
<b>Mittlere Breiten</b>			
Aberystwyth	52.4°N, 4.1°W	2003	Vaughan und Wareing (2004)
Haute-Provence	43.9°N, 5.7°O	2006	Keckhut et al. (2007)
<b>Antarktis</b>			
Dumont d'Urville	66.7°S, 140.2°O	1989 1990–1993 1989–1993 1989–1997	Stefanutti et al. (1991) Stefanutti et al. (1995) David et al. (1998) Santacesaria et al. (2001)
Syowa	69.0°S, 39.6°O	1983–1985	Iwasaka et al. (1985) Iwasaka (1986a) Iwasaka (1986b)
McMurdo	77.9°S, 166.7°O	1990 1991 1992 1993 1995 1993–2001 2003	Gobbi et al. (1991) Adriani et al. (1992) Gobbi und Adriani (1993) Adriani et al. (1995) Di Donfrancesco et al. (2000) Gobbi et al. (1998) Adriani et al. (2004)
Amundsen-Scott	89.98°S, 24.8°W	1988 1990 1992–1993	Höpfner et al. (2006b) Fiocco et al. (1992) Fuà et al. (1992) Deshler et al. (1991) Cacciani et al. (1997b) Cacciani et al. (1997a)

Tabelle 1.2: Publizierte PSC-Beobachtungen bodengebundener Lidars.

### 1.5.4.3 Satellitengetragene Messungen

**1.5.4.3.1 GLAS:** Die ersten Beobachtungen von PSCs mittels eines satellitengetragenen Lidars wurden durch das Geoscience Laser Altimeter System (GLAS) auf dem Ice, Cloud

and land Elevation Satellite (ICESat), der im Januar 2003 gestartet wurde, durchgeführt (Spinhirne et al. 2005). Palm et al. (2005) beschreibt Messungen über der Antarktis im September/Oktober 2003, in denen PSCs vom Typ 1 und 2 beobachtet und mit POAMIII und SAGEII verglichen wurden. Die PSC-Häufigkeit ist besonders groß in Gebieten, wo auch viele troposphärische Wolken vorkommen, was darauf hindeutet, dass troposphärische Störungen Einfluss auf die PSCs Bildung hat. Leider erfasst GLAS nicht die Depolarisation des Laserstrahls, so dass keine Aussagen über die Phase der Teilchen gewonnen werden kann.

**1.5.4.3.2 CALIOP:** Die Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation- (CALIPSO) Satellitenmission wurde im April 2006 in eine polare Umlaufbahn gestartet. An Bord befindet sich neben einem Infrarot Imager ein Lidar (CALIOP: Cloud-Aerosol LIdar with Orthogonal Polarization), das seit Juni 2006 kontinuierlich misst. CALIOP beobachtet bei 532 und 1064 nm Wellenlänge, wobei bei 532 nm auch die Depolarisation bestimmt wird, so dass eine Analyse der Phase von PSC-Typ 1-Teilchen möglich sein wird. In einer ersten Publikation beschreiben Pitts et al. (2007) die angewandte Methode zur PSC-Detektion aus CALIPSO-Daten und diskutieren die Entwicklung im antarktischen Winter 2006.

## 1.5.5 Indirekte Information über PSCs mittels Spurengasmessungen

Neben der Möglichkeit den Einfluss von PSCs auf das elektromagnetische Strahlungsfeld direkt zu untersuchen, kann aus Fernerkundungsmessungen auch indirekt Information über die Teilchen aus deren Einfluss auf die in der Gasphase verbleibende Salpetersäure abgeleitet werden. Gasförmiges  $\text{HNO}_3$  in der Atmosphäre kann einerseits sehr gut im mittleren Infrarot, zum anderen aber auch im Millimeterwellenbereich quantifiziert werden. In letzterem Spektralbereich wirken sich PSCs aufgrund ihrer geringen Volumendichte, des kleinen Teilchendurchmessers und der geringen Absorption praktisch nicht auf die gemessenen Strahldichten aus. Auf der einen Seite hat dies den Vorteil, dass die Auswertung der  $\text{HNO}_3$ -Signatur nicht gestört ist. Zum anderen aber kann man nicht gleichzeitig aus den Messungen das Vorhandensein von stratosphärischen Wolkenteilchen nachweisen, wie es im mittleren-IR der Fall ist.

Wichtige Beobachtungen von  $\text{HNO}_3$  in Verbindung mit PSCs im langwelligeren Spektralbereich wurden mittels des MLS (Microwave Limb Sounders) auf UARS durchgeführt. Santee et al. (1998) untersuchten die Bildung von PSCs während der fünf antarktischen Winter von 1992–1996. Sie verglichen die Entwicklung des gasförmigen  $\text{HNO}_3$  mit Gleichgewichtsrechnungen über NAT, NAD und STS. Dabei fanden Sie, dass die meisten ihrer Messungen im Mai und Juni deutlich besser zu STS als zu NAT passten, obwohl die Temperaturen deutlich unterhalb der NAT-Existenztemperatur lagen. Dieses Ergebnis liegt in Einklang zu unseren Ableitungen der PSC-Zusammensetzung über dem Südpolargebiet zu Anfang des Winters 2003, wie sie in Abschnitt 6.5 und in Höpfner et al. (2006a) beschrieben werden.

Santee et al. (2002) korrelierten MLS- $\text{HNO}_3$ -Beobachtungen mit POAM II-Aerosolextinktionen im arktischen Winter 1995/96. Dabei fanden sie einen deutlichen Zusam-

menhang des Auftretens von erhöhter PSC-Extinktion und der Abnahme von gasförmigem  $\text{HNO}_3$ , dessen Werte im Bereich zwischen STS- und NAT-Gleichgewichtsrechnungen lag. Eine eindeutige Zuordnung zur PSC-Phase war allerdings nicht möglich. Dies steht in Einklang mit dem Ergebnis unserer eigenen Messungen von gasförmigen  $\text{HNO}_3$  in Gegenwart von PSCs durch das MIPAS-FT Experiment im Dezember 1994 und Januar 1995 (Höpfner et al. 1998a). Hierbei konnte die PSC-Phase mittels koinzidenter Lidarbeobachtungen zwar als STS identifiziert werden, die gemessene  $\text{HNO}_3$ -Abnahme lag jedoch zwischen Gleichgewichtsrechnungen von STS und von NAT.

Eine weitere Übereinstimmung von UARS-Beobachtungen mit ersten MIPAS-FT-Messungen unter PSC-Einfluss ergab sich im Winter 1992: Massie et al. (1997) verwendete die Kombination aus drei Horizontsondierungsinstrumenten (CLAES, ISAMS und MLS) an Bord von UARS, um das Auftreten von PSCs am 9./10. Januar 1992 zu untersuchen. Die aus den Aerosolextinktionen der Infrarotgeräte CLAES und ISAMS abgeleiteten Volumendichten wurden mit der Temperatur und dem in der Gasphase vorhandenen  $\text{HNO}_3$ , abgeleitet aus CLAES und MLS Messungen, korreliert. Die Ergebnisse passten dabei besser zu STS bzw. zu NAT als Hauptbestandteil der PSCs. Dies wurde mit unseren Auswertungen von MIPAS-FT- $\text{HNO}_3$  Beobachtungen vom 9. Januar 1992 verglichen, die aufgrund ihrer niedrigen Gesamtsäulengehalte eher mit NAT als mit STS in Einklang waren (Höpfner et al. 1996). Es wurde festgestellt, dass unsere Messwerte räumlich nahe bei den niedrigsten  $\text{HNO}_3$ -Volumenmischungsverhältnissen von CLAES und MLS lagen. Auch diese konnten nicht eindeutig STS oder NAT zugeordnet werden. Möglicherweise ist dies durch Lidarbeobachtungen von Schäfer et al. (1994) zu erklären, die Typ 1b-Teilchen unterhalb von 20 km und Typ 1a-PSCs darüber detektierten.

Weitere Publikationen, auf die hier jedoch nicht eingegangen werden soll, befassen sich mit der Quantifizierung der durch PSCs verursachten dauerhaften Entfernung von Salpetersäure (Denitrifizierung) und von Wasserdampf (Dehydrierung) aus der Stratosphäre (Waibel et al. 1999, Santee et al. 2004, Tabazadeh et al. 2000, Nedoluha et al. 2002), bzw. mit der Chloraktivierung (z.B. Ricaud et al. (1995)).

# 2. Modellierung der Strahlungsübertragung im IR

Im vorliegenden Kapitel wird die Modellierung der Strahlungsübertragung in der Atmosphäre beschrieben. Sie ist die Grundlage für die Herleitung von atmosphärischen Parametern aus Fernerkundungsmessungen im Infraroten. Dabei wird der Schwerpunkt auf den durch Partikel verursachten Veränderungen des Strahlungsfelds liegen. Es soll jedoch betont werden, dass aufgrund der Überlagerung der Signaturen von Gasen mit denen von Aerosolen im Spektrum auch eine möglichst korrekte Beschreibung der Absorption und Emissionsvorgänge der gasförmigen Bestandteile der Atmosphäre erforderlich ist.

Zunächst werden einige grundlegenden Formeln der Strahlungsübertragung präsentiert. Danach wird auf deren Realisierung in dem Vorwärtsmodell KOPRA eingegangen. Es folgt eine Übersicht über die derzeit aus Labormessungen verfügbaren optischen Konstanten von Flüssigkeiten und Festkörpern, aus denen PSCs möglicherweise zusammengesetzt sind. Zum Schluss werden die Validierung des Modells und Ergebnisse von PSC-Simulationen beschrieben.

## 2.1 Grundlagen

Grundlage für die Auswertung von Fernerkundungsmessungen der Atmosphäre ist die Strahlungsübertragungsgleichung. Sie beschreibt die Strahldichte  $L_\nu(x, \vec{n})$  in Abhängigkeit von der Wellenzahl  $\nu$  am Ort  $x$  entlang des Sehstrahls und in Ausbreitungsrichtung  $\vec{n}$  der Strahlung:

$$\frac{dL_\nu(x, \vec{n})}{dx} = -k_{e,\nu}(x)L_\nu(x, \vec{n}) + k_{a,\nu}(x)B_\nu(x) + k_{s,\nu}(x)J_{s,\nu}(x, \vec{n}). \quad (2.1)$$

Der erste Summand beschreibt die Schwächung der Strahlung aufgrund von Extinktion. Hierbei handelt es sich um Absorption durch Moleküle und Aerosole und um das Herausstreuen durch Aerosole.<sup>1</sup> Dabei ist der Extinktionskoeffizient die Summe von Absorptions- und Streukoeffizient:  $k_{e,\nu} = k_{a,\nu} + k_{s,\nu}$ . Der zweite Term stellt die von Gasen und Aerosolen emittierte Strahlung dar, wobei  $B_\nu(x)$  die Planckfunktion für die Temperatur am Ort  $x$  in

---

<sup>1</sup>Streuung durch Luftpoleküle kann im mittleren Infrarot aufgrund der starken Abhängigkeit der Rayleighstreuung von der Wellenlänge vernachlässigt werden.

der Atmosphäre ist.<sup>2</sup> Der dritte Term beschreibt die Strahlung, die durch Aerosole am Ort  $x$  in Ausbreitungsrichtung  $\vec{n}$  in den Sehstrahl eingestreut wird. Die Quellfunktion  $J_{s,\nu}(x, \vec{n})$  ist das Integral über den vollen Raumwinkel der eintreffenden Strahlung gewichtet mit der Phasenfunktion  $P_\nu(x, \vec{n}, \vec{n}')$ :

$$J_{s,\nu}(x, \vec{n}) = \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega} L_\nu(x, \vec{n}') P_\nu(x, \vec{n}, \vec{n}') d\vec{n}'. \quad (2.2)$$

Die Strahldichte  $L_\nu(x_B)$  am Ort des Beobachters  $x_B$  erhält man durch Integration von (2.1) zu

$$\begin{aligned} L_\nu(x_B, \vec{n}) &= L_\nu(x_0, \vec{n}) \overbrace{\exp \left[ - \int_{x_0}^{x_B} k_{e,\nu}(x') dx' \right]}^{t_\nu(x_0, x_B)} \\ &\quad + \int_{x_0}^{x_B} [k_{a,\nu}(x) B_\nu(x) + k_{s,\nu}(x) J_{s,\nu}(x, \vec{n})] \underbrace{\exp \left[ - \int_x^{x_B} k_{e,\nu}(x') dx' \right]}_{t_\nu(x, x_B)} dx. \end{aligned} \quad (2.3)$$

Der erste Term der Summe ist die auf dem Weg zum Beobachter geschwächte Strahlung des Hintergrunds  $L_\nu(x_0, \vec{n})$ . Im Falle von Absorptionsspektroskopie der Atmosphäre mittels hochauflösenden Fourierspektrometern handelt es sich hierbei um Sonne oder Mond. Bei Emissionsbeobachtungen im mittleren IR dagegen kann dieser Term aufgrund des geringen Beitrags durch die Hintergrundstrahlung des Weltalls vernachlässigt werden. Der zweite Summand stellt die Aufsummierung jedes entlang des Lichtwegs an der Stelle  $x$  in Richtung des Beobachters emittierten bzw. gestreuten Photons dar, das aber auf seinem Weg zum Beobachter seinerseits wieder aus dem Sehstrahl durch Absorption oder Streuung entfernt werden kann. Dies wird durch die Transmission  $t(x, x_B)$  zwischen  $x$  und dem Beobachterort  $x_B$  beschrieben.

Der eigentliche Informationsgehalt über die Gase und Aerosole in der Atmosphäre verbirgt sich hinter  $k_{a,\nu}(x)$ ,  $k_{s,\nu}(x)$  und  $P_\nu(x, \vec{n}, \vec{n}')$ . Den Absorptionskoeffizienten kann man in die Beiträge von Molekülen (*gas*) und Teilchen zerlegen:

$$k_{a,\nu}(x) = \sum_i N_{gas,i}(x) \sigma_{a,gas,\nu,i}(x) + \sum_j N_j(x) \sigma_{a,\nu,j}^e(x). \quad (2.4)$$

Hierbei läuft  $i$  über die unterschiedlichen Gase und  $j$  über die Aerosoltypen unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung.  $N_{gas,i}(x)$  und  $N_j(x)$  sind die Teilchenzahldichten und  $\sigma_{a,gas,\nu,i}(x)$ ,  $\sigma_{a,\nu,j}^e(x)$  die Absorptionsquerschnitte. Der letztere stellt dabei den effektiven Absorptionsquerschnitt der Größenverteilung des Aerosoltyps  $j$  dar und wird unten näher definiert. Der Absorptionsquerschnitt eines Moleküls ergibt sich als Überlagerung der mit

---

<sup>2</sup>Wir gehen hierbei von der Annahme lokalen thermodynamischen Gleichgewichts aus, d.h. die Besetzungsverhältnisse der molekularen Energieniveaus werden durch die Boltzmannverteilung bestimmt. Diese Annahme ist für den Höhenbereich in welchem PSCs vorkommen, gegeben.

der jeweiligen Intensität  $A_{i,l}(T(x))$  gewichteten und aufgrund von verschiedenen Prozessen verbreiterten Linien der Rotations- und Rotations-Vibrationsübergänge zu:

$$\sigma_{a,gas,\nu,i}(x) = \sum_l A_{i,l}(T(x)) f_{\nu-\nu_{0,l}}(p(x), T(x)), \quad (2.5)$$

wobei  $f_{\nu-\nu_{0,l}}(p(x), T(x))$  die druck- und temperaturabhängige Linienform eines Übergangs der Frequenz  $\nu_{0,l}$  beschreibt.

Den Streukoeffizienten und die Phasenfunktion von Aerosolen kann man entsprechend Gleichung (2.4) definieren als

$$k_{s,\nu}(x) = \sum_j N_j(x) \sigma_{s,\nu,j}^e(x) \quad (2.6)$$

bzw.

$$P_\nu(x, \vec{n}, \vec{n}') = k_{s,\nu}^{-1}(x) \sum_j N_j(x) p_{\nu,j}^e(x, \vec{n}, \vec{n}'). \quad (2.7)$$

Hierbei sind  $\sigma_{s,\nu,j}^e(x)$  der effektive Streuquerschnitt und  $p_{\nu,j}^e(x)$  die effektive Streufunktion des Aerosoltyps  $j$ . Für letztere ist  $(4\pi)^{-1} \int_\Omega p_{\nu,j}^e(x, \vec{n}, \vec{n}') d\vec{n}' = \sigma_{s,\nu,j}^e(x)$ . Die effektiven Querschnitte und die Streufunktion sind die mit der Größenverteilung gewichteten Mittel über die Querschnitte und Streufunktionen der Einzelteilchen:

$$\sigma_{a,\nu,j}^e(x) = N_j^{-1}(x) \int_0^\infty \sigma_{a,\nu,j}(x, r) n_j(x, r) dr, \quad (2.8)$$

$$\sigma_{s,\nu,j}^e(x) = N_j^{-1}(x) \int_0^\infty \sigma_{s,\nu,j}(x, r) n_j(x, r) dr, \quad (2.9)$$

$$p_{\nu,j}^e(x, \vec{n}, \vec{n}') = N_j^{-1}(x) \int_0^\infty p_{\nu,j}(x, \vec{n}, \vec{n}', r) n_j(x, r) dr. \quad (2.10)$$

Alle bisherigen Betrachtungen beziehen sich auf die reine Strahlungübertragung in der Atmosphäre ohne die messtechnischen Beschränkungen des sondierenden Instruments zu berücksichtigen. Im wesentlichen handelt es sich dabei um die endliche spektrale Auflösung und das endliche Gesichtsfeld. Erstere beschreibt man durch Faltung des idealen Spektrums mit der spektralen Filterfunktion ( $ILS(\nu)$ , engl. instrumental line shape). Da diese Funktion bei Fouriertransform-Spektrometern in erster Ordnung einen  $\sin(\nu)/\nu$ -förmigen Verlauf zeigt, faltet man sie häufig noch mit einer Apodisationsfunktion zur Unterdrückung der Nebenschwingungen (z.B. Norton und Beer (1976)). Dies führt zu der so genannten apodisierten  $ILS$ , der  $AILS(\nu)$ . Zur Beschreibung des endlichen Gesichtsfelds wird die aus verschiedenen Richtungen am Beobachter einfallende Strahlung mit der Gesichtsfeldfunktion ( $FOV(\vec{n})$ ,

engl. field-of-view) gewichtet integriert. Daraus folgt letztendlich für das beobachtete Spektrum.<sup>3</sup>

$$\tilde{L}_\nu(x_B, \vec{n}) = \int_{\Delta\nu} AILS(\nu - \nu') \int_{\Omega_{FOV}} FOV(\vec{n}, \vec{n}') L_{\nu'}(x_B, \vec{n}') d\vec{n}' d\nu'. \quad (2.11)$$

## 2.2 Diskretisierung der Strahlungsübertragung

Aus den aufgeführten Grundlagen ergeben sich folgende Bedingungen an ein Strahlungsübertragungsmodell zur Auswertung von PSC-Messungen durch Fouriertransform-Spektrometer:

- Simulation aller relevanten physikalischen Prozesse, die bei der Strahlungsübertragung in der rein gasförmigen Atmosphäre eine wesentliche Rolle spielen.
- Hohe spektrale Auflösung, da die Messungen selbst sehr hoch aufgelöst sind, so dass einzelne Linien von Rotations-Vibrationsübergängen unterschieden werden.
- Berücksichtigung von Instrumenteneigenschaften.
- Unterstützung von verschiedenen Beobachtungsgeometrien, wie beispielsweise Aufwärtssondierung in Absorption und Emission, Horizontsondierung oder Nadirsondierung.
- Simulation von Einflüssen von Aerosolen auf die Strahlungsübertragung, speziell Emission, Absorption und Streuung auf Basis von mikrophysikalischen Eingabegrößen.
- Rechenzeitoptimierung wegen der zur Berechnung von eingestreuter Strahlung nötigen Raumwinkelintegration, wegen breitbandigen Rechnungen und wegen Anwendung auf Satellitendaten.
- Zum vorigen Punkt zählt auch die schnelle Berechnung von Jacobi-Matrizen, d.h. den partiellen Ableitungen des simulierten Spektrums nach den gesuchten Parametern. Hierauf wird in Kapitel 3 noch näher eingegangen.

Existierende Strahlungsübertragungsmodelle zur Simulation hochauflöster Spektren genügten diesen Anforderungen aus verschiedenen Gründen nicht. Linie-für-Linie Modelle wie FASCODE (Clough et al. 1986) oder GENLN2 (Edwards 1988) berücksichtigen zwar größtenteils vollständig die Physik der Strahlungsübertragung in der gasförmigen Atmosphäre, berechnen jedoch keine analytischen Ableitungen und sind, wie im Fall von GENLN2, nicht rechenzeitoptimiert. Andere Modelle, die für die Auswertung von Satellitenmessungen konzipiert wurden, beruhen auf vorausberechneten Transmissionen (McMillin und Fleming 1976, Scott und Chedin 1981, Turner 1995) oder Absorptionsquerschnitten, wie das für die

---

<sup>3</sup>Hierbei wurden z.B. Effekte der inhomogenen Beleuchtung des Gesichtsfelds auf die Linienform vernachlässigt (Hase 2000a). Auch fehlt der Anteil des spektralen Rauschens.

Standardprozessierung von MIPAS/Envisat von der ESA verwendete OFM (Optimized Forward Model) (Carli et al. 1997, Ridolfi et al. 2000). Obwohl diese Programme sehr effektiv sind und teilweise analytische Ableitungen zur Verfügung stellen (Carli et al. 1997, Ridolfi et al. 2000, Cheruy et al. 1995), berücksichtigen sie oft nicht vollständig die physikalischen Prozesse der Strahlungsübertragung, wie beispielsweise line-mixing oder nicht-lokales thermodynamisches Gleichgewicht, oder sind wenig flexibel in der Definition der abzuleitenden Parameter. Allen Modellen fehlt zudem eine ausreichende Behandlung von Aerosolen. Diese werden fast immer in Form von Absorptionskoeffizientenprofilen parametrisiert. Dies erlaubt zum einen die Verwendung von mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften als Eingabe- und Retrievalgrößen. Zum anderen verhindert es die Simulation von Streueffekten, da das Aerosol lediglich wie ein nicht-streuender grauer Körper behandelt wird.

Aus diesen Gründen wurde mit der Zielsetzung der wissenschaftliche Auswertung von MIPAS/Envisat Messungen das Strahlungsübertragungsprogramm KOPRA (Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm) unter wesentlicher Mitwirkung des Autors entwickelt (Höpfner et al. 1998b, Stiller 2000, Stiller et al. 2002). Dieses Modell wurde durch Angliederung eines Mie-Modells und durch die Berechnung von Einfachstreuung und analytischen Ableitungen bei der Strahlungsübertragung auf eine physikalische Simulation von Aerosolen hin erweitert (Höpfner und Echle 2000, Höpfner 2004).

Im Folgenden wird das Modell beschrieben, wobei der Schwerpunkt auf der Aerosolbehandlung liegt. Weiterhin werden die wesentlichen aus Labormessungen verfügbaren spektroskopischen Eingabegrößen für die Modellierung von PSCs diskutiert. Zum Schluss wird auf die Validierung des Modells eingegangen.

## 2.2.1 Strahlverfolgung und Schichtmittelwerte

Bei KOPRA handelt es sich um ein Strahlungsübertragungsprogramm, das die Atmosphäre in Schichten, die parallel zur ellipsoidförmigen Erdoberfläche ausgerichtet sind, diskretisiert behandelt (Höpfner 2000b). Eingabegrößen sind dabei die Werte der atmosphärischen Parameter Druck, Temperatur und Volumenmischungsverhältnisse der Spurengase an den Schichtgrenzen.<sup>4</sup> Im Fall von Aerosolen handelt es sich dabei um Anzahldichte  $N_{j,m}(h)$ , Modenradius  $R_{j,m}(h)$  und Modenbreite  $S_{j,m}(h)$  der M-modalen logarithmischen Normalverteilung (kurz: Log-Normalverteilung)  $n_j(h, r)$  des Aerosoltyps  $j$ :

$$n_j(h, r) = \sum_{m=1}^M \frac{N_{j,m}(h)}{r S_{j,m}(h) \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{\ln^2(r/R_{j,m}(h))}{2S_{j,m}(h)^2} \right], \quad (2.12)$$

wobei  $h$  die Höhenabhängigkeit beschreibt.

Die mit der Höhe sich ändernden Konzentrationen der chemischen Bestandteile von flüssigen Mischaerosolen wie z.B. von wässriger Salpetersäure ( $H_2SO_4/H_2O$ ) oder STS

---

<sup>4</sup>Es werden aber auch beliebige Parametrisierungen der Höhenabhängigkeit von atmosphärischen Größen unterstützt.

$(H_2SO_4/H_2O/HNO_3)$  werden durch Konzentrationsprofile  $c_j^b(h)$  der Bestandteile  $b$  beschrieben.

Der erste Programmschritt besteht aus der Strahlverfolgung und der Bestimmung von Schichtmittelwerten auf den Teilstücken des Sehstrahls zwischen den Schichtgrenzen. Die Berücksichtigung der atmosphärischen Brechung erfolgt bei den meisten Modellen, wie z.B. bei FASCODE (Clough et al. 1986), GENLIN (Edwards 1988), LINEPAK (Gordley et al. 1994), OFM (Ridolfi et al. 2000) oder RFM (Dudhia und Raspollini 1996) durch Anwendung des Brechungsgesetzes für kugelsymmetrische Medien (Born und Wolf 1965, Thompson et al. 1982). Dieses hat jedoch den Nachteil numerischer Instabilität bei Annäherung an den Tangentenpunkt bei Horizontsondierung. Zudem nimmt seine Komplexität bei Anwendung auf die nicht-sphärische Form der Erdoberfläche stark zu und erlaubt auch keine Simulation von horizontal inhomogenen Verteilungen der Luftdichte in der Atmosphäre. Aus diesen Gründen wurde die Methode der tangentialen Verschiebung entwickelt und implementiert (Hase und Höpfner 1999; 2000). Diese Methode ist frei von numerischen Instabilitäten und stellt keine Anforderung an die Symmetrie des Systems. Da die Methode auf Skalarprodukten von Vektoren in einem kartesischen Koordinatensystem basiert, erlaubt sie den Verlauf des Sehstrahls in einer beliebig aufgebauten Atmosphäre zu bestimmen.

Parallel zur Strahlverfolgung werden massengewichtete Mittelwerte von Druck und Temperatur, die so genannten Curtis-Godson-Werte, und die Säulengehalte der Spurengase für jede durchlaufene Schicht bestimmt. Im speziellen Fall der Aerosole werden Säulengehalte  $C_{j,m,k}$  der Teilchenzahlen pro Aerosoltyp  $j$ , Mode  $m$  und Schicht  $k$  berechnet:

$$C_{j,m,k} = \int_{x_{1,k}}^{x_{2,k}} N_{j,m}(h(x)) dx, \quad (2.13)$$

wobei  $x_{1,k}$  und  $x_{2,k}$  die Positionen der Schichtgrenzen entlang des Sehstrahls bezeichnen.

Der Säulengehalt des Aerosoltyps  $j$  in Schicht  $k$  ist folglich

$$C_{j,k} = \sum_{m=1}^M C_{j,m,k}. \quad (2.14)$$

Die Modenradien  $R_{j,m,k}$ , Modenbreiten  $S_{j,m,k}$  und Konzentrationen der Zusammensetzung eines Aerosoltyps  $c_{j,k}^b$  werden als Curtis-Godson-Mittelwerte der Schichten  $k$  folgendermaßen bestimmt:

$$R_{j,m,k} = C_{j,k}^{-1} \int_{x_{1,k}}^{x_{2,k}} N_j(h(x)) R_{j,m}(h(x)) dx, \quad (2.15)$$

$$S_{j,m,k} = C_{j,k}^{-1} \int_{x_{1,k}}^{x_{2,k}} N_j(h(x)) S_{j,m}(h(x)) dx, \quad (2.16)$$

$$c_{j,k}^b = C_{j,k}^{-1} \int_{x_{1,k}}^{x_{2,k}} N_j(h(x)) c_j^b(h(x)) dx. \quad (2.17)$$

## 2.2.2 Wirkungsquerschnitte und Phasenfunktionen

Im weiteren Programmablauf werden die Absorptionsquerschnitte der Spurengase, die effektiven Absorptions- und Streuquerschnitte und die Phasenfunktionen der Partikel berechnet. Die Curtis-Godson Schichtmittelwerte von Druck und Temperatur sind dabei die Grundlage für die Berechnung der Absorptionsquerschnitte der Spurengase. Bei Molekülen, für die spektroskopische Liniendaten zur Verfügung stehen, werden die Beiträge der einzelnen Spektrallinien aufsummiert. Hierbei setzt sich jede Linie aus der Multiplikation der temperaturabhängigen Linienstärke mit der druck- und temperaturabhängigen Profilfunktion zusammen. Als Profilfunktion wird dabei die Voigtfunktion, also die Faltung zwischen Doppler- und Lorentzfunktion verwendet.<sup>5</sup> Da es sich in vielen Fällen um eine sehr große Anzahl von Spektrallinien handelt und zudem die Voigtfunktion keine analytische Lösung besitzt, ist eine Optimierung der Routinen bzgl. der Rechenzeit unerlässlich. Zur Bestimmung der Voigtfunktion wird ein optimiertes, auf der Methode von Humlicek (1982) basierendes Verfahren eingesetzt (Kuntz 1997, Kuntz und Höpfner 2000). Die weitaus größte Rechenzeitsparnis geht jedoch auf eine auf vorgegebene Genauigkeit der Absorptionskoeffizienten hin automatisch bestimmt Diskretisierung der Wellenzahlachse pro Spektrallinie zurück (Kuntz und Höpfner 1999, Kuntz 2000). Der Abstand zwischen den Stützstellen, für die die Voigtfunktion berechnet werden muss, wird derart bestimmt, dass eine absolute Genauigkeit in Bezug auf die Interpolation auf ein feines Gitter erreicht wird. Die folgende Aufsummierung aller Linien beginnt mit dem gröbsten Gitter. Nur in den jeweils erforderlichen Spektralintervallen erfolgt dann sukzessiv die Interpolation auf feinere Gitter. Die resultierenden Absorptionsquerschnitte sind somit auf einem nicht-äquidistanten Gitter abgelegt, was, zusätzlich zur ersparten Rechenzeit, den Bedarf an Speicherplatz minimiert.

Die Absorptionsquerschnitte der Moleküle, für die keine spektroskopischen Liniendaten verfügbar sind<sup>6</sup> oder die noch nicht ausreichend genau durch Liniendaten beschrieben werden<sup>7</sup>, werden durch Interpolation von Labormessungen auf die jeweiligen Curtis-Godson Schichtmittelwerte von Druck und Temperatur bestimmt (Zorn et al. 2000).

Die Breite der spektralen Signaturen, die mit den beiden obigen Verfahren berechnet werden, reichen von der Dopplerhalbwertsbreite einer Spektrallinie ( $10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ ) bis zu einigen  $10 \text{ cm}^{-1}$ , der Breite der Vibrationsbande eines schweren Moleküls. In der unteren Atmosphäre kommt es durch Druckverbreiterung und Überlapp von Flügeln benachbarter Linien zu kontinuumsähnlichen Signaturen, wie beispielsweise die  $15 \mu\text{m}$ - und  $4.3 \mu\text{m}$ -Banden von  $\text{CO}_2$ .

Mehrere hundert Wellenzahlen breite, und damit denen von Aerosolen ähnliche spektrale Signaturen sind die stoßinduzierten, verbotenen Übergänge der Fundamentalbanden von  $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$  sowie das  $\text{H}_2\text{O}$ -Kontinuum, dessen Ursache mit hoher Wahrscheinlichkeit die Überlagerung der Linienflügel von weit entfernten starken Wasserlinien mit super-lorentzförmigem

---

<sup>5</sup>Je nach Molekül wird diese noch mit einem wellenzahlabhängigen Korrekturterm, dem so genannten  $\chi$ -Faktor versehen (Menoux et al. 1987; 1991).

<sup>6</sup>Hier handelt es sich um schwere Moleküle wie beispielsweise die Fluorchlorkohlenwasserstoffe FCKW-11 ( $\text{CCl}_3\text{F}$ ) oder FCKW-12 ( $\text{CCL}_2\text{F}_2$ ). Diese haben aufgrund ihres hohen Trägheitsmoments sehr eng beieinander liegende Rotationsübergänge, die im allgemeinen nicht aufgelöst werden.

<sup>7</sup>Z.b.  $\text{SF}_6$  oder  $\text{ClONO}_2$ .

Verlauf ist. Die Absorptionsquerschnitte dieser Kontinua werden durch empirische Modelle beschrieben (Lafferty et al. 1996, Thibault et al. 1997, Clough et al. 1989).

Die Berechnung der optischen Eigenschaften von Aerosolen erfolgt mittels eines in KOPRA implementierten Mie-Modells. Mie (1908) löste die Maxwellgleichungen für den Fall der Streuung ebener Wellen an kugelförmige Teilchen. Die optischen Eigenschaften des Partikels, d.h. Streuquerschnitt, Absorptionsquerschnitt und Phasenfunktion, werden aus grundlegenden physikalischen Eigenschaften, nämlich dem Teilchenradius  $r$ , der Wellenzahl  $\nu$  des Lichts und den optischen Konstanten der Substanz, d.h. dem komplexen Brechungsindex  $\tilde{m}_\nu(c^b, T) = \tilde{m}_{1,\nu}(c^b, T) + i\tilde{m}_{2,\nu}(c^b, T)$  bestimmt. Letztere sind charakteristische Materialgrößen und abhängig von der Zusammensetzung  $c^b$  und der Temperatur  $T$  des Aerosolteilchens.

Das Integrieren eines Mie-Modell in ein Strahlungsübertragungsprogramm birgt Vorteile gegenüber anderen Modellen, bei denen extern berechnete optische Eigenschaften eingehen. Erstens wird die Anzahl der Eingabeparameter wesentlich verringert. So hat man lediglich die oben aufgeführten Profile der die Größenverteilung bestimmenden Größen, also Anzahldichte, Modenradius und -breite, und evtl. die Zusammensetzung von flüssigen Mischaerosolen zu berücksichtigen. Ohne internes Mie-Modell müsste man Höhenprofile der optischen Eigenschaften, die wellenzahlabhängig sind, zur Verfügung stellen. Zweitens kann KOPRA direkt die spektralen Ableitungen nach den gesuchten Parametern der Größenverteilung oder Zusammensetzung von Aerosolen berechnen. Es ist damit optimal geeignet, innerhalb eines Inversionsprogramms betrieben zu werden (siehe Kapitel 3).

Als Grundlage der Implementierung in KOPRA diente das Mie-Modell von Quenzel und Müller (1978). Dieses wurde dahingehend erweitert, dass Partikelgrößenverteilungen berücksichtigt und Ableitungen der optischen Eigenschaften nach den Parametern der Größenverteilung und nach den optischen Konstanten berechnet werden können (Höpfner und Echle 2000).

Aus Gleichung (2.12) ergeben sich die Größenverteilungsfunktionen  $n_{j,k}(r)$  des Aerosoltyps  $j$  für die atmosphärische Schicht  $k$  zu

$$n_{j,k}(r) = \sum_{m=1}^M \frac{C_{j,m,k}}{r S_{j,m,k} \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{\ln^2(r/R_{j,m,k})}{2S_{j,m,k}^2} \right]. \quad (2.18)$$

Hieraus folgen die effektiven optischen Eigenschaften gemäß den Gleichungen (2.8) - (2.10):

$$\sigma_{a,\nu,j,k}^e = C_{j,k}^{-1} \int_0^\infty \sigma_{a,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k)) n_{j,k}(r) dr, \quad (2.19)$$

$$\sigma_{s,\nu,j,k}^e = C_{j,k}^{-1} \int_0^\infty \sigma_{s,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k)) n_{j,k}(r) dr, \quad (2.20)$$

$$p_{\nu,j,k}^e(\vec{n}, \vec{n}') = C_{j,k}^{-1} \int_0^\infty p_{\nu,j}(\vec{n}, \vec{n}', r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k)) n_{j,k}(r) dr. \quad (2.21)$$

Durch die Substitution  $z = \ln(r/R_{j,m,k})/(\sqrt{2}S_{j,m,k})$  können die obigen Integrale der Form  $\int_0^\infty f(r)n(r)dr$ , zu  $\pi^{-1/2} \int_{-\infty}^\infty f(r(z)) \exp(-z^2)dz$  umgeformt werden. Integrale dieser Form können unter Anwendung der Gauss-Hermiteschen Quadraturformel effizient gelöst werden (Press et al. 1992).

Bevor jedoch die Mie-Rechung durchgeführt werden kann, muss der komplexe Brechungsindex  $\tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k)$  des Aerosoltyps  $j$  mit der Zusammensetzung  $c_{j,k}^b$  und der Temperatur  $T_k$  in der Schicht  $k$  bestimmt werden.

### 2.2.3 Strahlungsübertragung

Betrachtet man eine homogene<sup>8</sup> Schicht der Dicke  $D$  so reduziert sich Gleichung (2.3) auf

$$\begin{aligned} L_\nu(D, \vec{n}) &= L_\nu(0, \vec{n}) \exp \left[ - \int_0^D k_{e,\nu} dx' \right] \\ &\quad + \int_0^D [k_{a,\nu} B_\nu + k_{s,\nu} J_{s,\nu}(\vec{n})] \exp \left[ - \int_0^x k_{e,\nu} dx' \right] dx \end{aligned} \quad (2.22)$$

und kann analytisch gelöst werden:

$$L_\nu(D, \vec{n}) = L_\nu(0, \vec{n}) \exp(-k_{e,\nu} D) + \frac{k_{a,\nu} B_\nu + k_{s,\nu} J_{s,\nu}(\vec{n})}{k_{e,\nu}} [1 - \exp(-k_{e,\nu} D)]. \quad (2.23)$$

Im Schichtenmodell durchläuft der Sehstrahl insgesamt  $K$  solcher homogenen Pfadsegmente, die jeweils durch ihre Curtis-Godson Mittelwerte beschrieben werden. Durch Hintereinanderschalten von Gleichung (2.23) ergibt sich

$$L_\nu(x_B, \vec{n}) = L_\nu(x_0, \vec{n}) \prod_{k=1}^K t_{\nu,k} + \sum_{k=1}^K \left[ \frac{k_{a,\nu,k} B_{\nu,k} + k_{s,\nu,k} J_{s,\nu,k}(\vec{n})}{k_{e,\nu,k}} (1 - t_{\nu,k}) \prod_{k'=k+1}^K t_{\nu,k'} \right], \quad (2.24)$$

wobei  $t_{\nu,k} = \exp(-k_{e,\nu,k} D_k)$  ist und  $k$  die Pfadsegmente indiziert. Der bei weitem rechenzeit-aufwändigste Schritt bei der numerischen Lösung dieser Gleichung besteht in der Berechnung der Quellfunktion:

$$J_{s,\nu,k}(\vec{n}) = C_{j,k} \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega} p_{\nu,j,k}^e(\vec{n}, \vec{n}') L_{\nu,k}(\vec{n}') d\vec{n}'. \quad (2.25)$$

---

<sup>8</sup>Das heißt konstanter Druck, Temperatur, Gas-/Aerosolkonzentrationen, optische Eigenschaften des Aerosols und konstante eintreffende Strahlung entlang des Sehstrahls.

Dabei muss die aus allen Raumwinkeln auf das Pfadsegment  $k$  eintreffende Strahlung  $L_{\nu,k}$  integriert werden. Hierzu wird am Ort jedes Pfadsegments für ausgewählte Zenitwinkel<sup>9</sup> die einfallende Strahldichten nach Gleichung (2.24) berechnet und für zwischenliegende Winkel interpoliert. Term  $k_{s,\nu,k} J_{s,\nu,k}$ , d.h. die Einstreuung in den Lichtweg, wird vernachlässigt und  $k_{a,\nu,k} B_{\nu,k}$  durch  $k_{e,\nu,k} B_{\nu,k}$  ersetzt. Es handelt sich also um einen Ansatz mit Einfachstreuung dessen Gültigkeitsbereich für den Fall der Horizontsondierung in Abschnitt 2.4 untersucht wird.

## 2.3 Optische Konstanten

Der imaginäre Anteil  $\tilde{m}_{2,\nu}$  des Brechungsindexes beschreibt die Absorption der elektromagnetischen Strahlung im Medium, während der Realteil  $\tilde{m}_{1,\nu}$  die Verringerung der Phasengeschwindigkeit anzeigt.<sup>10</sup>

Zur Bestimmung der optischen Konstanten von Substanzen aus denen PSCs bestehen könnten, wurden im wesentlichen drei Methoden angewandt. Dies sind wellenzahlabhängige Messungen erstens der Absorption von Licht an dünnen Schichten oder Flüssigkeitsfilmen (AF), zweitens der Extinktion durch Aerosole (EA) und drittens der Reflexion an Oberflächen (RO). Mittels einer Kramers-Kronig-Analyse werden aus dem so bestimmten Imaginärteil der Realteil des Brechungsindexes (AF, EA) bzw. aus dem Reflexionsvermögen (RO) die komplexe Reflektivität und daraus schließlich der komplexe Brechungsindex berechnet.<sup>11</sup>

Die Güte der derart im Labor bestimmten optischen Konstanten wirkt sich direkt auf die Genauigkeit der Strahlungsübertragungsrechnung aus. Bei überwiegender Absorption, d.h. bei kleinen Teilchen ist der Imaginärteil ausschlaggebend, während bei größeren Aerosolen, bei denen die Streuung nicht vernachlässigt werden kann, die Güte des Realteils immer wichtiger wird. Tab. 2.1 fasst die wichtigsten Quellen optischer Konstanten von möglichen PSC-Zusammensetzungen zusammen. Angegeben sind zudem die Messmethode, die gültigen Temperaturen und die Konzentrationen im Fall wässriger Lösungen.

Im Folgenden werden die Labormessungen optischer Konstanten von NAT, NAD, STS und Eis etwas näher diskutiert.

---

<sup>9</sup>Es zeigt sich, dass für Horizontbeobachtungen eine feine Diskretisierung gerade im Übergangsbereich zwischen Erdoberfläche und tangentialer Richtung notwendig ist, da hier die größten Gradienten in der Strahldichte in Abhängigkeit vom Zenitwinkel auftreten.

<sup>10</sup>Die Intensität einer ebenen elektromagnetischen Welle ist  $I \propto E^2 = [E_0 \exp(i2\pi\nu x - i\omega t)]^2$ , wobei  $\omega$  die Kreisfrequenz und  $t$  die Zeit ist. Ersetzt man die Wellenzahl  $\nu$  im Medium durch  $\tilde{m}\nu_{vac}$ , so folgt  $I \propto E_0^2 \exp(-4\pi\tilde{m}_2\nu x) \exp(i4\pi\tilde{m}_1\nu x - i2\omega t)$ . Die erste exp-Funktion beschreibt die exponentielle Abschwächung der Strahlung, d.h. das Lambert-Beersche Gesetz. Der Absorptionskoeffizient ist somit  $4\pi\tilde{m}_2\nu$ .

<sup>11</sup>Grundlage dazu ist die Kramers-Kronig-Beziehung, die auch Dispersionsrelation genannt wird, und den Zusammenhang zwischen Real- und Imaginärteil des Brechungsindexes angibt. Es gilt:  $m_1(\lambda) = 1 + 2\lambda^2/\pi \int_0^\infty \frac{m_2(\lambda')}{\lambda'(\lambda^2 - \lambda'^2)} d\lambda'$ .

Substanz	Messmethode <sup>a</sup>	Temperatur [K]	Konzentration [Gewichts-%]	Quelle
<b>Flüssige Phase</b>				
H <sub>2</sub> O	RO,AF AF AF	300 300 263–293		Downing und Williams (1994) Wieliczka et al. (1989) Biermann et al. (2000)
HNO <sub>3</sub> /H <sub>2</sub> O	RO RO EA AF	296 300 220 213–293	68 0.03–72 35–70 10–53.8	Remsberg et al. (1974) Querry und Tyler (1980) Norman et al. (1999) Biermann et al. (2000)
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> O	RO RO AF EA AF RO	296 300 215 200–300 183–293 203–298	75, 90 25–95.6 45–80 32–87 10–80 38–81	Remsberg et al. (1974) Palmer und Williams (1975) Tisdale et al. (1998) Niedziela et al. (1998b) Niedziela et al. (1999) Biermann et al. (2000) Myhre et al. (2003)
H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> /HNO <sub>3</sub> /H <sub>2</sub> O	RO AF EA	293 213–293 220	75/10 10–40/10–20 10–40/15–45	Adams und Downing (1986) Biermann et al. (2000) Norman et al. (2002)
<b>Glasphase</b>				
amorphes NAT	AF	153	54	Toon et al. (1994)
amorphes NAD	AF	153	64	Toon et al. (1994)
amorphes NAM	AF	153	78	Toon et al. (1994)
<b>Feste Phase</b>				
$\alpha$ -NAT	AF EA	181 160		Toon et al. (1994) Richwine et al. (1995)
$\beta$ -NAT	AF	196		Toon et al. (1994)
NAD	AF EA	184 160–190		Toon et al. (1994) Niedziela et al. (1998a)
NAM	AF	179		Toon et al. (1994)
Eis	RO AF EA	266 163 130–210		Warren (1984) Schaaf und Williams (1973) Toon et al. (1994) Clapp et al. (1995)

<sup>a</sup>AF: Absorption an Filmen, EA: Extinktion an Aerosolen, RO: Reflexion an Oberflächen

Tabelle 2.1: Labormessungen optischer Konstanten.

### 2.3.1 NAT

Koehler et al. (1992) identifizierten zwei unterschiedliche Phasen von kristallinem NAT:  $\alpha$ -NAT bildet sich bei Temperaturen unter 185 K und wandelt sich oberhalb von 188 K irreversibel in  $\beta$ -NAT um. Bei Kristallisation aus der Gasphase entsteht  $\beta$ -NAT oberhalb 183 K (Tisdale et al. 1999). Während somit  $\alpha$ -NAT metastabil ist, stellt  $\beta$ -NAT wahrscheinlich die stabile Phase von NAT dar. Unterhalb von 160 K bilden sich aus HNO<sub>3</sub> und H<sub>2</sub>O Gläser der Salpetersäure, da aufgrund der hohen Viskosität eine Kristallisation unterbunden wird (Ritzhaupt und Devlin 1991, Koehler et al. 1992, Toon et al. 1994).

Erste Messungen optischer Konstanten von NAT im Infraroten wurden von Toon et al. (1994) mittels Messung der Absorption durch dünne Schichten, die aus der Gasphase bei konstanter Temperatur ( $\alpha$ -NAT: 181 K,  $\beta$ -NAT: 196 K) gebildet wurden, durchgeführt. Der zweite derzeit verfügbare Satz komplexer Brechungsindizes von  $\alpha$ -NAT stammt von Richwine et al. (1995). Er wurde aus Messungen der Extinktion an Aerosolen, die durch homogene Nukleation aus der Gasphase gebildet wurden, bei 160 K bestimmt.

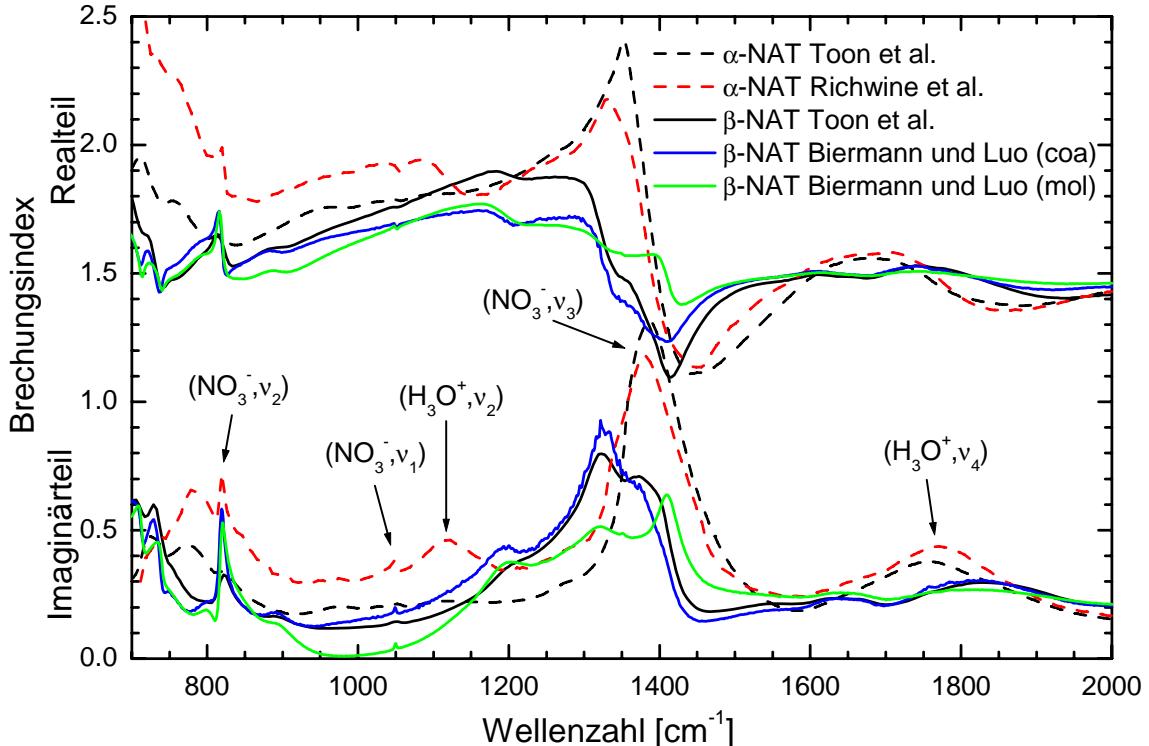


Abbildung 2.1: Gegenüberstellung der optischen Konstanten von  $\alpha$ -NAT von Toon et al. (1994) und Richwine et al. (1995) und derjenigen von  $\beta$ -NAT von Toon et al. (1994) und Biermann (1998) (Luo, pers. Mitteilung).

Abb. 2.1 zeigt einen Vergleich der Imaginär- und der Realteile der beiden Messungen von  $\alpha$ -NAT im Spektralbereich von MIPAS/Envisat. Die größten Unterschiede bei Toon et al. im Vergleich zu den Messungen von Richwine et al. bestehen (1) in der stärkeren Absorption der  $\nu_3$ -Bande von  $\text{NO}_3^-$  bei  $1390 \text{ cm}^{-1}$ , (2) in dem Fehlen der  $\nu_2$ -Bande von  $\text{H}_3\text{O}^+$  bei  $1120 \text{ cm}^{-1}$  und (3) der wesentlich schwächeren  $\nu_2$ -Bande von  $\text{NO}_3^-$  bei  $820 \text{ cm}^{-1}$ .

Zur Erklärung dieser Unterschiede maßen Tisdale et al. (1999) Absorptionsspektren von  $\alpha$ -NAT-Filmen, die bei unterschiedlichen Temperaturen entstanden waren. Es zeigte sich, dass das Spektrum, das bei 162 K aufgenommen wurde, besser zu der Messung von Richwine et al. (1995) passte, während die Messung bei 180 K besser mit den Ergebnissen von Toon et al. (1994) übereinstimmte. Tisdale et al. (1999) geben zwei mögliche Erklärungen an: entweder könnte es spektroskopisch unterschiedliche Formen von  $\alpha$ -NAT geben, die auf ein unterschiedliches Maß an Kristalldefekten zurückzuführen sind oder  $\alpha$ -NAT könnte doppelbrechend sein. Wenn die Kristallorientierung in den vermessenen dünnen Schichten dann noch von der Temperatur abhinge, könnten die unterschiedlichen Spektren dadurch erklärt werden, dass bei niedrigen Temperaturen in den Filmen eine ähnlich zufällige Orientierung,

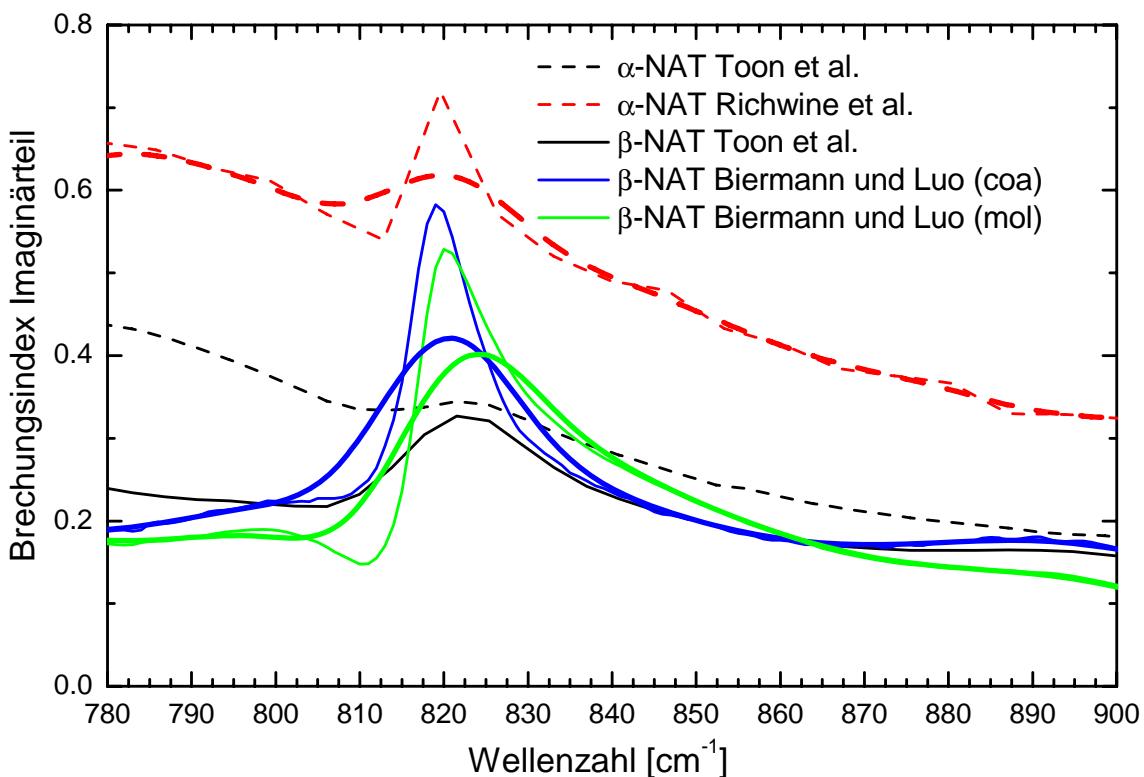


Abbildung 2.2: Ausschnittsvergrößerung der  $\nu_2$ -Normalschwingungsbande von  $\text{NO}_3^-$  aus Abb. 2.1.

wie in den Aerosolen von Tisdale et al. (1999) auftrat, während bei höheren Temperaturen eine bestimmte Orientierung bevorzugt wäre.

Träfe die erste Erklärung zu, dann sollten zur Interpretation von atmosphärischen PSC-Messungen die Brechungsindizes von Toon et al. (1994) verwendet werden, da diese näher an den wirklichen Temperaturen der Stratosphäre liegen. Für den Fall, dass  $\alpha$ -NAT doppelbrechend ist, wäre es mit Mie-Rechnungen nur schwer möglich, atmosphärische Infrarotspektren zu erklären.

Alternativ besteht die Möglichkeit, dass  $\alpha$ -NAT sich in der Stratosphäre zu  $\beta$ -NAT umwandelt oder direkt  $\beta$ -NAT entsteht und die optischen Konstanten von  $\beta$ -NAT zu einer Beschreibung von Messungen geeigneter sind. Abb. 2.1 zeigt die bisher einzigen veröffentlichten Brechungsindizes von  $\beta$ -NAT die von Toon et al. (1994) bestimmt wurden. Zusätzlich konnten im Rahmen der vorliegenden Arbeit neue Brechungsindizes von  $\beta$ -NAT verwendet werden, die aus Messungen von Biermann (1998) abgeleitet wurden (B. Luo, pers. Mitteilung). Hierbei handelt es sich zum einen um eine Messungen, bei der  $\beta$ -NAT aus einer stöchiometrischen Lösung mit 53.8 gw%  $\text{HNO}_3$  (1:3  $\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}$ ) auskristallisiert wurde (Bezeichnung „mol“ in Abb. 2.1). Zum anderen wurde NAT aus Gasphasen von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$  unterhalb des Eisfrostpunkts zusammen mit Eis kondensiert und nach Aufwärmen bis oberhalb des Frostpunkts NAT aufkondensiert (Bezeichnung „coa“ in Abb. 2.1). Trotz leichter Unterschiede konnten beide Spektren eindeutig als  $\beta$ -NAT identifiziert werden (Biermann 1998). Besondere Bedeutung im Rahmen dieser Arbeit erhält die schmale Absorptionssignatur der  $\nu_2$ -Normalschwingungsbande von  $\text{NO}_3^-$  mit Zentrum bei  $820 \text{ cm}^{-1}$ . Dieser Bereich ist in Abb. 2.2 vergrößert dargestellt. Diese Bande ist bei dem  $\beta$ -NAT-Datensatz von Bier-

mann (1998) besonders stark ausgeprägt. Für einen Vergleich einer solch schmalen Bande muss die spektrale Auflösung der Labormessung mit berücksichtigt werden. Diese lag bei Biermann (1998) und bei Richwine et al. (1995) bei  $1\text{-}2 \text{ cm}^{-1}$ , während Toon et al. (1994) mit  $8 \text{ cm}^{-1}$  Auflösung maßen. In Abb. 2.2 sind die Daten von Richwine et al. (1995) und von Biermann (1998) auf die Auflösung von Toon et al. (1994) angepasst worden. Man erkennt, dass für beide NAT-Phasen sich die gemessenen Bandenformen angleichen, die Intensitäten jedoch bei den Daten von Biermann (1998) und von Richwine et al. (1995) diejenigen der Beobachtungen von Toon et al. (1994) um ungefähr das doppelte übertreffen.

In einer neueren Arbeit vergleichen Ortega et al. (2006) eigene Labormessungen von  $\beta$ -NAT mit denjenigen von Toon et al. (1994) und von Biermann (1998). Dabei passen generell über den gesamten Spektralbereich hinweg die Toon'sche Daten am besten, wobei jedoch im Bereich der  $\text{NO}_3^-$ - $\nu_2$ -Bande die Messungen von Biermann (1998) überlegen sind. Als bester Kompromiss werden die Brechungsindizes von Biermann (1998) (coa) bezeichnet.

### 2.3.2 NAD

Während NAT unter stratosphärischen Bedingungen die stabile Phase des Systems  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  darstellt, könnte auch NAD eine Komponente von PSCs sein, da es eine niedrigere Nukleationsenergie aufweist (Worsnop et al. 1993). Wie im Fall von NAT existieren auch bei NAD zwei Modifikationen ( $\alpha$ -NAD und  $\beta$ -NAD), deren Bildung von der Zusammensetzung der Ausgangslösung und der Temperatur abhängt (Lebrun et al. 2001, Tizek et al. 2002, Grothe et al. 2004).

Optische Konstanten von NAD wurden erstmals von Toon et al. (1994) mittels Messung der Absorption durch dünne Schichten, die aus der Gasphase bei konstanter Temperatur (184 K) gebildet wurden, bestimmt. Der zweite verfügbare Satz komplexer Brechungsindizes von NAD wurde von Niedziela et al. (1998a) veröffentlicht. Er wurde aus Messungen der Extinktion an Aerosolen, die bei 160–190 K durch homogene Nukleation aus der Gasphase gebildet wurden, berechnet. Die wesentlichen Unterschiede im Vergleich zu NAT sind die starke Aufspaltung der  $\text{NO}_3^-$ - $\nu_3$ -Bande und die hohe Intensität der  $\text{NO}_3^-$ - $\nu_1$ -Bande bei NAD. Ein Vergleich mit den spektroskopischen Messungen von  $\alpha$ -NAD und  $\beta$ -NAD durch Grothe et al. (2004) zeigt, dass es sich bei beiden Datensätzen optischer Konstanten um  $\alpha$ -NAD handelt (Wagner et al. 2005a).

Die Brechungsindexkurven sind in Abb. 2.3 dargestellt. Deutlich ist das Fehlen der Bande bei  $1150 \text{ cm}^{-1}$  in den Messungen von Toon et al. (1994). Weiterhin sind die Intensitäten der Banden bei 745, 810 und  $1030 \text{ cm}^{-1}$  in dem Toon'schen Datensatz kleiner als bei Niedziela et al. (1998a). Wie im Fall von NAT suchten Tisdale et al. (1999) die Gründe für diese Unterschiede indem sie Infrarotspektren von NAD, das bei verschiedensten experimentellen Bedingungen hergestellt wurde, verglichen und Mie-Fits auf Grundlage der Daten von Toon et al. (1994) und Niedziela et al. (1998a) an ihre Spektren durchführten. Sie beobachteten jedoch je nach den Bildungsbedingungen unterschiedliche Spektren von NAD, was im Nachhinein mit den verschiedenen Modifikationen zu erklären ist (Grothe et al. 2004). Auch Vergleiche zwischen gemessenen IR-Spektren von  $\alpha$ -NAD-Teilchen in der AIDA- (Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere)-Kammer des Instituts für Meteorologie und Klimateforschung

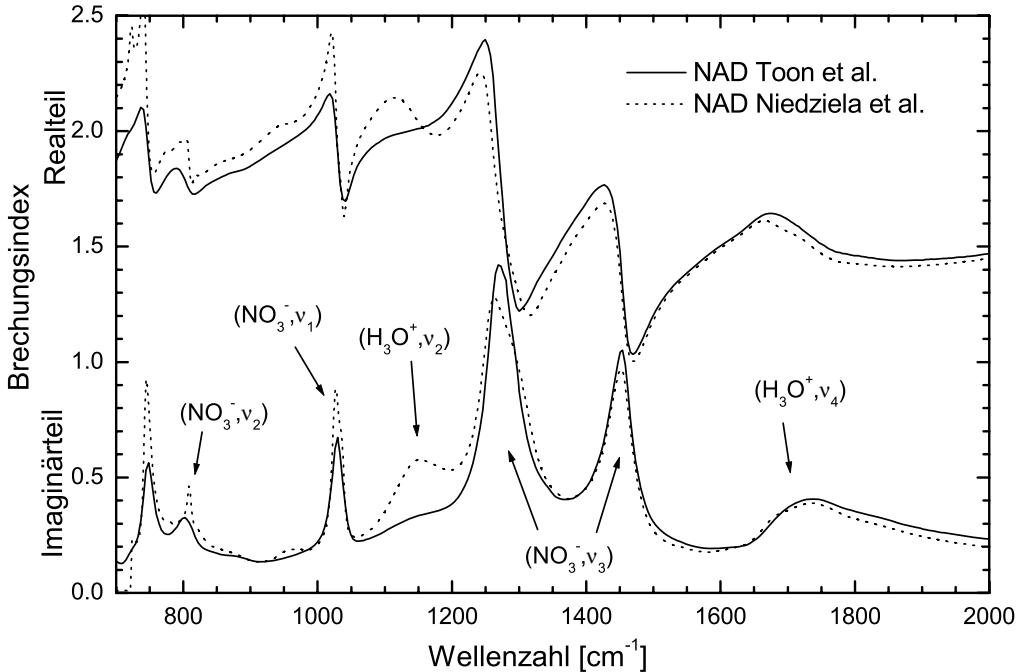


Abbildung 2.3: Gegenüberstellung der optischen Konstanten von NAD von Toon et al. (1994) und Niedziela et al. (1998a).

im Forschungszentrum Karlsruhe und den beiden Brechungsindex-Datensätzen brachten kein eindeutiges Ergebnis (Wagner et al. 2005a)<sup>12</sup>.

### 2.3.3 Optische Konstanten von STS

Die erste Messung optischer Konstanten des ternären Systems  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  wurde von Adams und Downing (1986) durchgeführt. Diese untersuchten bei Zimmertemperatur eine Lösung mit der Zusammensetzung 75 gw%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und 10 gw%  $\text{HNO}_3$  (siehe Tab. 2.1). Diese Daten sind allerdings für die Untersuchung von PSCs nicht geeignet, da bei den tiefen Temperaturen in der polaren winterlichen Stratosphäre STS immer mehr Wasser und Salpetersäure aufnimmt und an  $\text{H}_2\text{SO}_4$  verarmt (Carslaw et al. 1994). Zur Beschreibung der dadurch hervorgerufenen starken Variationen in der Zusammensetzung von STS ist es zudem günstiger, wenn die optischen Konstanten einer ternären Lösung aus denen der binären Bestandteile  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  berechnet werden könnten. Luo et al. (1996) gaben hierfür eine Mischungsregel für die optischen Konstanten von STS im nahen IR, VIS und UV Bereich an. Diese wurde von Biermann et al. (2000) ins mittlere Infrarot übertragen:

$$\tilde{m}_\nu^{tern}(c_s, c_n, T) = \frac{c_s}{c_{tot}} \tilde{m}_\nu^{bin,s}(c_{tot}, T) + \frac{c_n}{c_{tot}} \tilde{m}_\nu^{bin,n}(c_{tot}, T). \quad (2.26)$$

---

<sup>12</sup>Bei kugelförmigen Teilchen konnte mit den Brechungsindizes von Niedziela et al. (1998a) und bei nicht-kugelförmigen mit denjenigen von Toon et al. (1994) ein etwas besseres Filtergebnis erzielt werden

Hierbei sind  $c_s$  und  $c_n$  die Konzentrationen von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und  $\text{HNO}_3$  in relativen Gewichtsanteilen und  $c_{tot} = c_s + c_n$ .

Mögliche Fehlerquellen bei der Berechnung von STS-Brechungsindizes sind also zum einen Unsicherheiten der optischen Konstanten der binären Systeme  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$   $\tilde{m}_\nu^{bin,s}(c, T)$  und  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$   $\tilde{m}_\nu^{bin,n}(c, T)$  sowie Fehler in der Mischungsregel selbst.

### 2.3.3.1 $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$

Abb. 2.4 zeigt einen Vergleich der verfügbaren optischen Konstanten von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  bei tiefen Temperaturen (Tisdale et al. 1998, Niedziela et al. 1999, Biermann et al. 2000, Myhre et al. 2003). Größte Unterschiede zeigen sich in den Sulfat- und Bisulfatbanden um 1000–1100  $\text{cm}^{-1}$  bei den Daten von Biermann et al. (2000), die wesentlich schwächer als in den anderen Untersuchungen sind. Wagner et al. (2003) testeten die Qualität dieser vier Datensätze anhand von FTIR Extinktionsmessungen an unterkühlten  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  Aerosolen. Mie-Anpassungsrechnungen der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration und -Volumendichte an die gemessenen Spektren und Vergleich mit unabhängigen Messungen dieser Größen stimmten gut mit den optischen Konstanten von Niedziela et al. (1999) überein. Mit den optischen Konstanten von Biermann et al. (2000) konnte, gerade im Bereich 1000–1500  $\text{cm}^{-1}$ , keine gute Anpassung an die gemessenen Spektren erzielt werden. Es wurde gezeigt, dass diese Diskrepanzen und die Unterschiede zu den optischen Konstanten anderer Gruppen wahrscheinlich auf eine zu stark vereinfachte Auswertung der Absorptionsmessungen an dünnen Filmen bei Biermann et al. (2000) zurückgeführt werden kann. Über die Qualität der Daten von Tisdale et al. (1998) und Myhre et al. (2003) konnte keine definitive Aussage getroffen werden, da sich die Temperaturen der Messung und diejenige der optischen Konstanten stark unterschieden.

### 2.3.3.2 $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$

Zwei Datensätze optischer Konstanten von  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  sind für tiefe Temperaturen verfügbar (Norman et al. 1999, Biermann et al. 2000). Beide sind für 45 gw%  $\text{HNO}_3$  bei 220 K in Abb. 2.5 gegenübergestellt. Wie im Fall von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  ist der Imaginärteil des Brechungsindexes bei Biermann et al. (2000) deutlich kleiner. Wagner et al. (2003) fanden, dass der Datensatz von Norman et al. (1999) besser zu gemessenen  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Aerosolspektren passte.

### 2.3.3.3 Mischungsregel

Zur Validierung ihres Ansatzes (Gleichung 2.26) zur Berechnung optischer Konstanten von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  aus denjenigen von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  wurden die komplexen Brechungsindizes der binären Systeme aus Absorptionsmessungen an dünnen Filmen bestimmt und die sich aus der Mischungsregel ergebenden Konstanten mit Messungen der ternären Lösungen verglichen (Biermann et al. 2000). Hierbei wurde eine gute Übereinstimmung, gerade bei den Absorptionsstrukturen der Ionen im Bereich von 500–2000  $\text{cm}^{-1}$  erzielt. Obwohl, wie oben beschrieben, die Auswertung der Dünnfilmmessungen möglicherweise mit

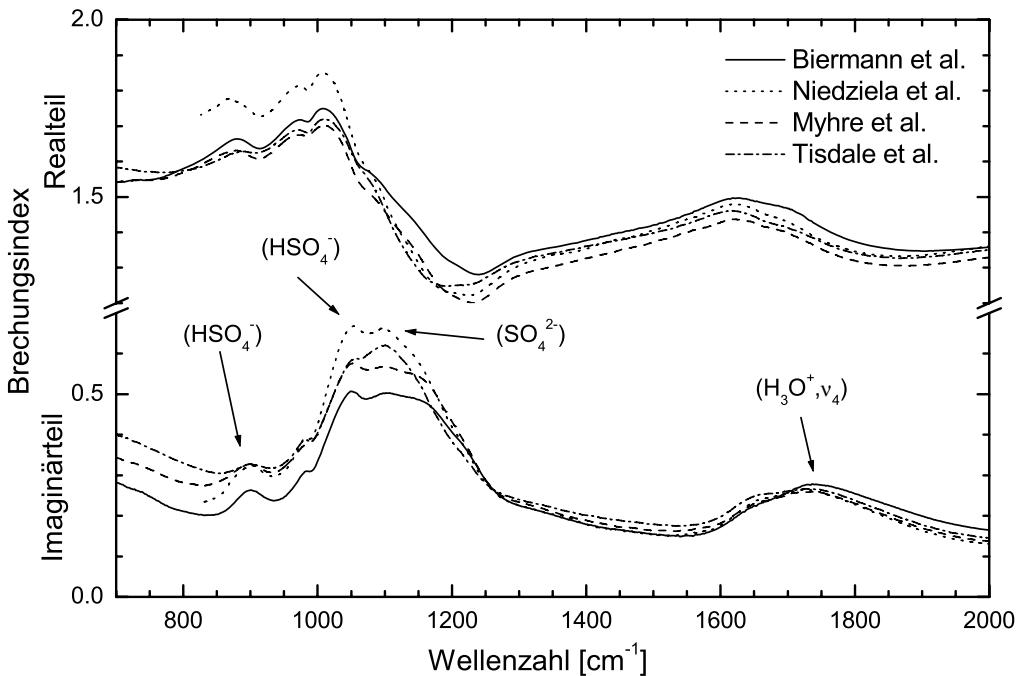


Abbildung 2.4: Vergleich von Labormessungen der optischen Konstanten wässriger  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Lösung bei einer Temperatur von 215 K und einer Konzentration von 45 gw%.

systematischen Fehlern behaftet ist (Wagner et al. 2003), spricht die interne Konsistenz für die Anwendbarkeit der Mischungsregel.

Norman et al. (2002) bestimmten optische Konstanten von STS durch Extinktionsmessungen an Aerosolen bei stratosphärischen Temperaturen. Sie führten Vergleiche dieser Messungen mit denen mittels Gleichung (2.26) aus den binären Konstanten von Biermann et al. (2000) bzw. Niedziela et al. (1999) und Norman et al. (1999) berechneten Konstanten durch. Auch hier gab es bei Verwendung der Daten von Biermann et al. (2000) die größeren Unterschiede, die im wesentlichen auf die Probleme bei den binären Systemen zugeschrieben wurden. Es wurde allerdings eine verbesserte Mischungsregel angekündigt, die die Differenzen zu den anderen Daten noch verkleinern sollte. Dieser Ankündigung folgte jedoch bisher keine weitere Veröffentlichung (Stand 2007).

Dass die Mischungsregel auch für eine quantitative Auswertung von IR Spektren eine sehr gute Grundlage bildet, zeigten Wagner et al. (2005b). Bei der Auswertung von Messungen die an der Aerosolkammer AIDA durchgeführt wurden, fanden sie eine sehr gute Übereinstimmung der beobachteten Infrarotspektren von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Aerosolen unterschiedlicher Zusammensetzung und Rechnungen auf Grundlage der binären optischen Konstanten von Niedziela et al. (1999) und Norman et al. (1999) mittels der Mischungsregel. Die abgeleiteten Zusammensetzungen stimmten auf 3–4% und die Massenkonzentrationen auf unter 20% (meist um die 10%) mit unabhängigen Messungen überein.

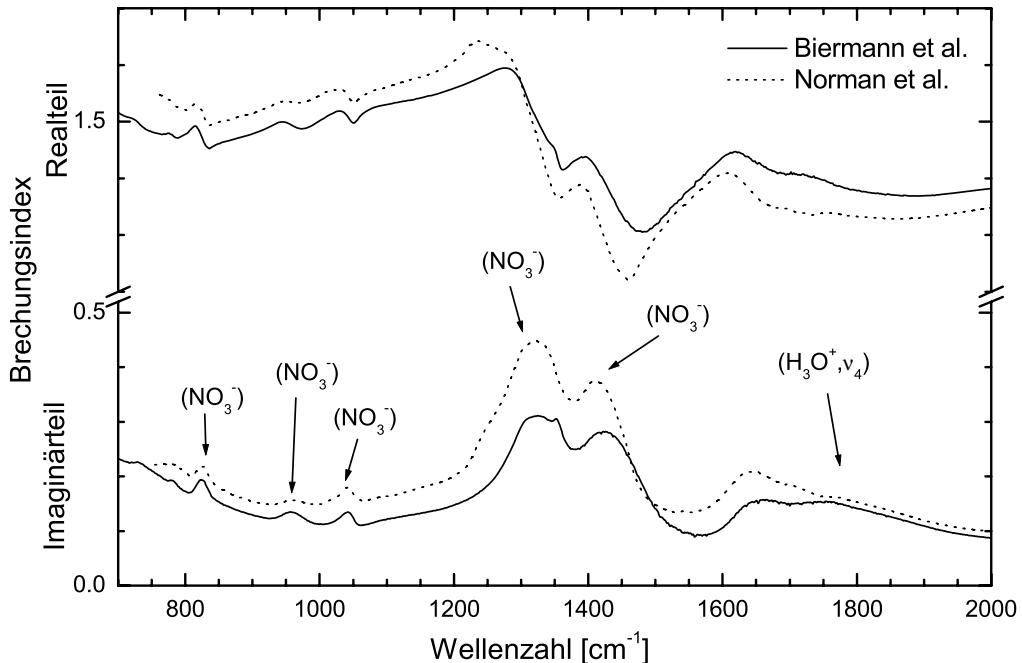


Abbildung 2.5: Vergleich von Labormessungen der optischen Konstanten wässriger  $\text{HNO}_3$ -Lösung bei einer Temperatur von 220 K und einer Konzentration von 45 gw%.

### 2.3.4 Optische Konstanten von Eis

Die aktuellsten Werte der Brechungsindizes von Eis im mittleren Infrarot wurden von Clapp et al. (1995) aus Extinktionsspektren an Aerosolen bei stratosphärischen Temperaturen bestimmt. Abb. 2.6 zeigt diese im Vergleich mit optischen Konstanten von Toon et al. (1994), die bei 163 K aus Transmissionsmessungen an dünnen Schichten abgeleitet wurden. Optischen Konstanten von Eis bei 266 K wurden aus einer Zusammenstellung von Warren (1984) entnommen. Dieser greift dabei auf die Bestimmung des Imaginärteils mittels Reflektionsmessungen durch Schaaf und Williams (1973) zurück.

Wie Clapp et al. (1995) hervorheben, können die großen Unterschiede zu den Daten von Warren (1984) durch die Temperaturabhängigkeit der optischen Konstanten von Eis erklärt werden. Daher sind die Daten von Warren (1984) eher ungeeignet, die optischen Eigenschaften von Eis-PSCs zu beschreiben. Die bleibenden Unterschiede zwischen den Brechungsindizes von Toon et al. (1994) und Clapp et al. (1995) bei 160 K müssen als die zur Zeit bestehenden Messfehler angesehen werden.

## 2.4 Modellvalidierung

Die Validierung von KOPRA bezüglich der Strahlungsübertragung in einer rein gasförmigen Atmosphäre, wurde bereits in unterschiedlichen Studien für Beobachtungsgeometrien in Horizont- (Glatthor et al. 1999; 2000, von Clarmann et al. 2002; 2003b) sowie in Nadir-

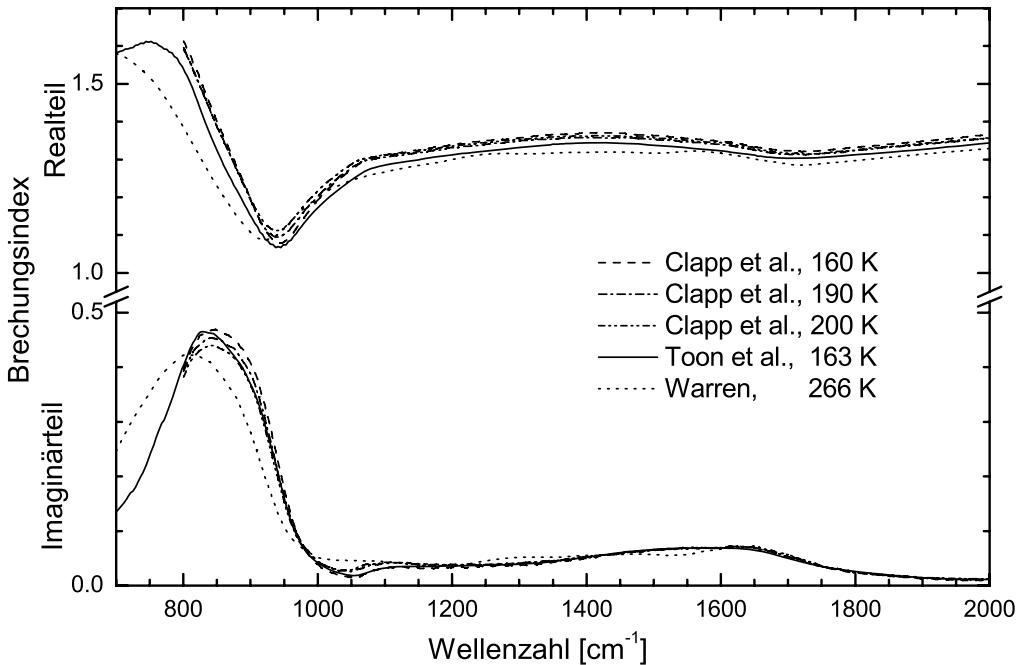


Abbildung 2.6: Vergleich von Labormessungen der optischen Konstanten von Eis.

richtung durchgeführt (Tjemkes et al. 2001; 2003). Die Berechnung der Strahlungsübertragung in einer horizontal inhomogenen Atmosphäre mittels KOPRA wurde im Rahmen einer ESA-Studie (Kerridge et al. 2004) durch Vergleich mit dem RFM der Universität Oxford überprüft.

Im Folgenden wird die Gültigkeit der Strahlungsübertragung in Beisein von Aerosolen dargestellt. Diese Arbeiten fanden innerhalb einer ESA-Studie (Kerridge et al. 2004) statt und wurden in Höpfner und Emde (2004) veröffentlicht.

#### 2.4.1 Referenzmodell

Referenzmodell war das Strahlungsübertragungsprogramm ARTS (Atmospheric Radiative Transfer Simulator) (Buehler et al. 2005), welches im Rahmen der o.g. ESA-Studie durch ein Mehrfachstreumodell erweitert wurde. Das Modell beruht auf dem Discrete Ordinate Iterative (DOIT) -Ansatz, um die Strahlungsübertragungsgleichung im Beisein von Aerosolen zu lösen (Eriksson et al. 2003, Sreelekha et al. 2002, Emde 2005). ARTS wurde im wesentlichen für den Mikrowellenbereich entwickelt. Um einen Vergleich im Infraroten zu ermöglichen und um die Konsistenz bei der Strahlungsübertragung in der gasförmigen Atmosphäre zu gewährleisten, wurden die Absorptionsquerschnitte der Spurengase mit KOPRA für ein definiertes Höhenprofil von Druck und Temperatur vorausberechnet und von ARTS verwendet.

## 2.4.2 KOPRA-Modellversionen

Es wurden vier unterschiedliche Optionen der Berechnung des Aerosolbeitrags zur Strahldichte in KOPRA mit ARTS verglichen, die im Folgenden mit KOPRA(0)–KOPRA(3) bezeichnet werden. Bei KOPRA(0) und KOPRA(1) wird der Quellterm der Streuung in den direkten Lichtweg vernachlässigt, d.h. in Gleichung (2.24) wird der Term  $k_{s,\nu,k} J_{s,\nu,k}$ , also die Einstreuung in den Lichtweg vernachlässigt. Im Fall von KOPRA(1) wird zusätzlich noch  $k_{a,\nu,k} B_{\nu,k}$  durch  $k_{e,\nu,k} B_{\nu,k}$  ersetzt. Bei KOPRA(2) und KOPRA(3) handelt es sich um Einfachstreuungsätze, bei denen der Quellterm der Streuung in den direkten Lichtweg berücksichtigt wird. Hingegen wird dieser Quellterm bei der Berechnung der eingestreuten Strahldichten, d.h. bei der Berechnung der Strahlungsbeiträge zur Bestimmung von  $J_{s,\nu,k}$  nach Gleichung 2.2 vernachlässigt. Bei KOPRA(3) wird außerdem  $k_{a,\nu,k} B_{\nu,k}$  durch  $k_{e,\nu,k} B_{\nu,k}$  bei der Berechnung der eingestreuten Strahlung ersetzt.

## 2.4.3 Testszenarien

Als Testfälle wurden Wolken aus kugelförmigen, log-normal verteilten Eisteilchen (Gleichung 2.12:  $R=4 \mu\text{m}$ ,  $S=0.3$ ) mit höhenkonstanten Anzahldichten zwischen 10 und 12 km definiert (siehe Tab. 2.2). Die Volumendichten des Testszenarios 1 entsprechen denen einer PSC vom Typ 1, während Szenario 2 typisch für eine PSC vom Typ 2 ist.

Da es aus Rechenzeitgründen nicht möglich war mit dem Mehrfachstreuemodell breitbandige Rechnungen durchzuführen, wurde ein begrenzter Spektralbereich ( $946.149\text{--}950.837 \text{ cm}^{-1}$ ) ausgewählt. Dieser enthält Linien von Wasserdampf und  $\text{CO}_2$ , durch die eingestraute troposphärische Signaturen erkennbar werden. Zwischen den Spektrallinien bestehen ausreichend breite Fenster, in denen der Strahlungsbeitrag der Wolkenteilchen überwiegt.

Die Einfachstreuereigenschaften der Wolkenteilchenverteilung wurden mittels des internen Mie-Algorithmus von KOPRA auf Basis der Brechungsindizes für Eis von Toon et al. (1994) bestimmt. Dieser beträgt im untersuchten Spektralbereich ( $1.07+0.17i$ ) und resultiert in einem Absorptionquerschnitt von  $5.1 \times 10^{-7} \text{ cm}^2$  und einem Streuquerschnitt von  $1.6 \times 10^{-7} \text{ cm}^2$  (Einfachstreuualbedo  $\omega_0 = 0.24$ ). Hier übertrifft die Absorption die Streuung, da man sich auf der kurzweligen Flanke der Eisabsorptionsbande mit dem Maximum bei  $830 \text{ cm}^{-1}$  befindet (siehe Abb. 2.6). Um den Extremfall hoher Streuung zu untersuchen, wurde für das gleiche Spektralintervall ein Brechungsindex von ( $1.25+0.018i$ ) angenommen, wie er im Datensatz von Toon et al. (1994) bei  $1056.8 \text{ cm}^{-1}$  vorkommt. Daraus ergab sich ein Absorptionquerschnitt von  $1.1 \times 10^{-7} \text{ cm}^2$  und ein Streuquerschnitt von  $5.9 \times 10^{-7} \text{ cm}^2$  ( $\omega_0 = 0.84$ ).

In Abb. 2.7 ist die Einfachstreuualbedo als Funktion der Teilchengröße und der Wellenzahl im mittleren infraroten Spektralbereich aufgetragen. Man erkennt, dass die beiden gewählten Werte für  $\omega_0$  dessen Variabilität gut abdecken. Tab. 2.2 gibt für die Testszenarien verschiedener Anzahldichten und Brechungsindizes Transmissionen in Nadir- und in Horizonrichtung an. In den Szenarien 1 und 2 ist die betrachtete Wolke in beiden Richtungen optisch dünn; in 3 und 4 ist sie dünn in Nadirrichtung, hingegen undurchsichtig für ein Horizontsondierungsgerät. Wolke 5 ist in beiden Richtungen optisch dick.

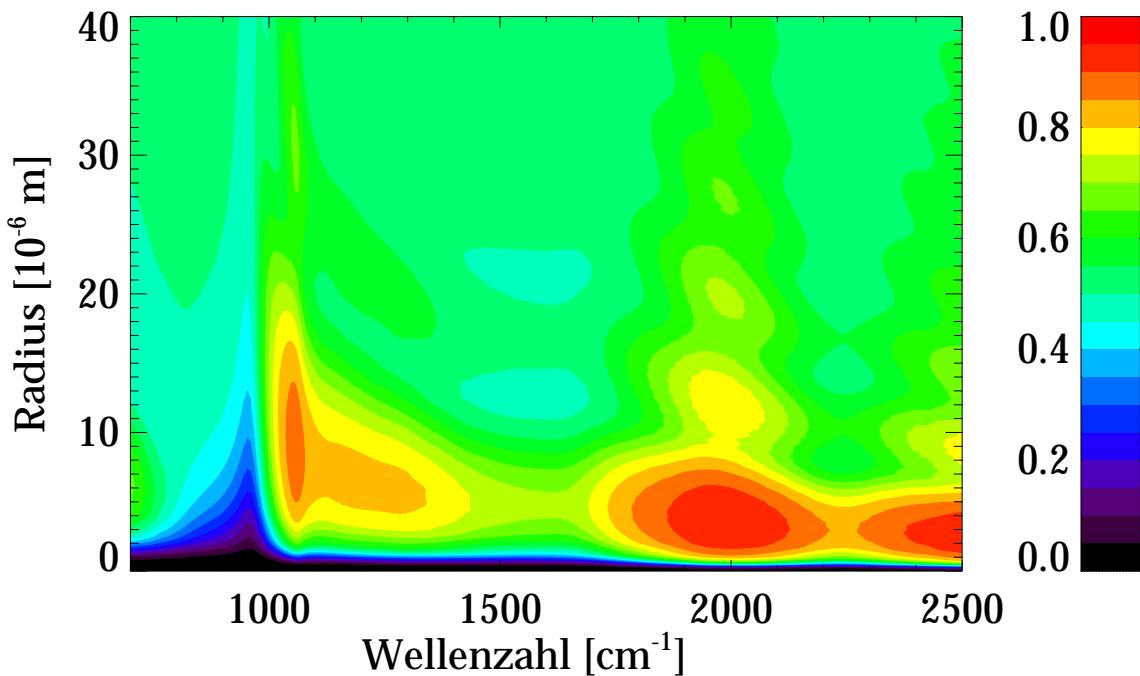


Abbildung 2.7: Einfachstreualbedo  $\omega_0$  kugelförmiger Eisteilchen als Funktion von Radius und Wellenzahl.

Szenario	Anzahldichte [cm <sup>-3</sup> ]	Volumendichte [μm <sup>3</sup> cm <sup>-3</sup> ]	Transmission Nadir	Transmission Horizont <sup>a</sup>
1	0.01	4.0194	0.998(0.998)	0.844(0.839)
2	0.1	40.194	0.983(0.983)	0.183(0.172)
3	1	401.94	0.845(0.839)	4(2)×10 <sup>-8</sup>
4	10	4019.4	0.186(0.173)	1×10 <sup>-74</sup> (4×10 <sup>-77</sup> )
5	100	40194	5(3)×10 <sup>-8</sup>	≈0(≈0)

<sup>a</sup> Tangentenhöhe 11 km

Tabelle 2.2: Testfälle unterschiedlicher Teilchenanzahldichten für den Vergleich von KOPRA mit dem Mehrfachstreumodell ARTS. Transmissionswerte außerhalb der Klammern gelten für das Szenario mit einer Einfachstreualbedo von  $\omega_0 = 0.84$ , diejenigen in Klammern für  $\omega_0 = 0.24$ .

#### 2.4.4 Modellvergleich für $\omega_0 = 0.24$

Abb. 2.8 zeigt die Ergebnisse der verschiedenen Testszenarien unterschiedlicher Anzahldichte für den Fall starker Absorption ( $\omega_0 = 0.24$ ) zusammen mit dem Modellvergleich für die rein gasförmige Atmosphäre. Letzterer zeigt zwischen den Linien von H<sub>2</sub>O eine Übereinstimmung der Modelle von kleiner 0.5%. Im Bereich der Linien von H<sub>2</sub>O sind die Differenzen von bis zu 2.5% etwas höher. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im Höhenintervall der Wolken- schicht ARTS nicht das gleiche Gitter für die Vorwärtsmodellierung wie KOPRA benutzt kann. Oberhalb der Wolke ist das Gitter identisch, wodurch bei den starken CO<sub>2</sub>-Linien die Differenzen wesentlich kleiner werden.

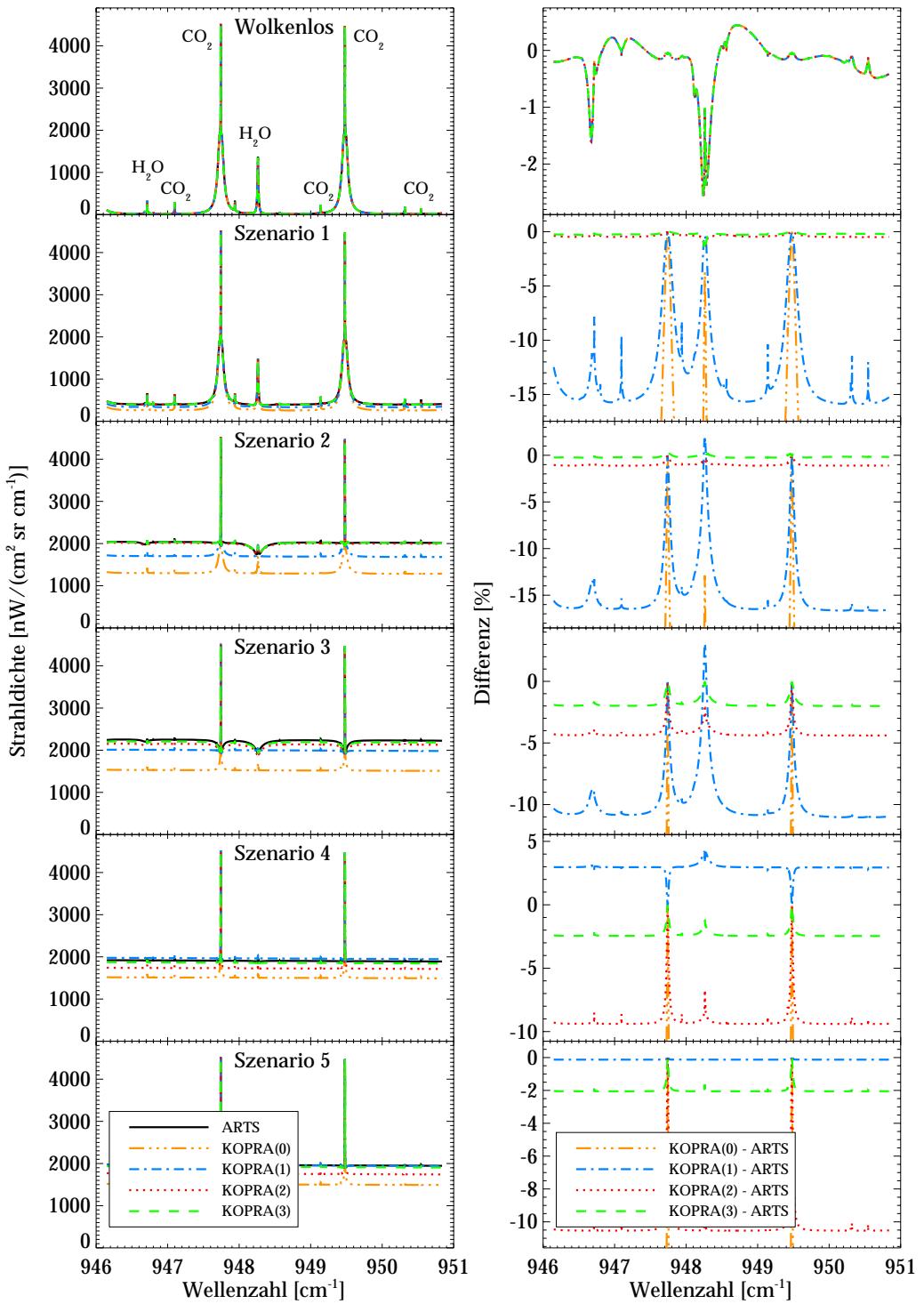


Abbildung 2.8: Modellvergleich zwischen ARTS und KOPRA: Emissionsspektren bei Horizontsondierung (11 km Tangentenhöhe) für Szenarien unterschiedlicher Anzahldichte von Wolkenteilchen (Tab. 2.2) im Fall  $\omega_0 = 0.24$ .

Im Fall der optisch dünnen Wolke 1 zeigt sich im Vergleich zu den Referenzrechnungen ohne Aerosol ein breitbandiger Strahlungsuntergrund, der durch die Eigenemission der Wolkenteilchen und der Streuung von Strahlung, im wesentlichen aus der warmen Troposphäre,

hervorgerufen wird. Den Anteil der gestreuten Strahlung kann man aus der Differenz von KOPRA(0) und ARTS mit ca. 35% beziffern. KOPRA(1) berechnet einen etwas größeren Strahlungsbeitrag, da es die Streuung durch die Eigenemission der Partikel kompensiert. Jedoch besteht immer noch ein Fehler von 15%. Hingegen zeigen die Einfachstreuansätze in KOPRA(2) und KOPRA(3) Unterschiede zum Mehrfachstreumodell von kleiner 0.5%.

Der durch die Wolke verursachte Strahlungsuntergrund ist im Fall von Szenario 2 im Vergleich zu Szenario 1 deutlich erhöht. Mit  $2000 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$  erreicht er den Wert der Planckfunktion an der Wolkenobergrenze. Die Spektren der Einfach- und des Mehrfachstreuprogramms zeigen mit den nach unten weisenden Signaturen im Bereich der  $\text{H}_2\text{O}$ -Linien deutliche Zeichen von eingestreuter Strahlung troposphärischen Ursprungs. Diese Signaturen fehlen bei den Rechnungen mit KOPRA(0) und KOPRA(1), bei denen keine Einstreuung berücksichtigt wird. Ihre relativen Fehler liegen im gleichen Bereich wie in Szenario 1. Die Unterschiede der Einfachstreuansätze KOPRA(2) und KOPRA(3) zu ARTS sind auch hier mit maximal 1% bzw. 0.5% gering.

Die Mehrfachstreuerechnungen im Fall des in Horizontrichtung optisch dicken, aber in Nadirrichtung noch dünnen Wolkenszenarios 3 zeigen noch eine leichte Erhöhung des Strahlungsuntergrunds auf Werte, die größer sind als diejenigen eines Schwarzkörpers mit der Temperatur der Wolkenobergrenze. Letztere sind im wesentlichen identisch mit den Ergebnissen von KOPRA(1). Die Erhöhung über den Schwarzkörperwert beruht wieder auf dem zusätzlich eingestreuten Strahlungsbeitrag aus der Troposphäre, was an den Signaturen der Wasserlinien sichtbar ist. Daher zeigen die Modelle, die keine Streuung berücksichtigen, immer noch Unterschiede von mehr als 10%. Aber auch die Fehler in den Einfachstreumodellen simulierten Spektren erhöhen sich auf 4.5% im Fall von KOPRA(2) und 2% im Fall von KOPRA(3).

In Szenario 4 nimmt der Strahlungsuntergrund im Vergleich zu Szenario 3 wieder leicht ab, was darauf zurückzuführen ist, dass aufgrund der größeren optischen Dicke in Nadirrichtung, weniger gestreute troposphärische Strahlung den Beobachter erreicht. Auch sind die typischen Signaturen troposphärischer Strahlung nicht mehr im Spektrum zu erkennen. KOPRA(1) liegt mit 3% Unterschied näher am Ergebnis von ARTS als KOPRA(2), das die Strahlung um 9% unterschätzt. KOPRA(3) liefert mit maximal 2.5% Unterschied immer noch das beste Ergebnis.

Die in Nadir- und Horizontrichtung optisch dicke Wolke 5 zeigt im wesentlichen das Verhalten eines Schwarzkörpers und wird am besten mit KOPRA(1) modelliert (maximale Unterschiede 0,1%). Mit KOPRA(3) ergeben sich Unterschiede von 2%.

#### 2.4.5 Modellvergleich für $\omega_0 = 0.84$

Die Ergebnisse des Modellvergleichs für den Fall starker Streuung ( $\omega_0 = 0.84$ ) sind in Abb. 2.9 zu sehen. Obwohl die Transmissionen sich nicht stark voneinander unterscheiden (siehe Tab. 2.2) ist der Strahlungsuntergrund beim optisch dünnen Szenario 1 um einen Faktor 1.4 im Vergleich zum gleichen Szenario für den Fall ( $\omega_0 = 0.24$ ) erhöht. Zudem scheinen die Flügel der  $\text{H}_2\text{O}$ -Linien schon etwas in negative Richtung zu deuten. Beides wird durch die stärkere Streuung troposphärischer Strahlung zum Beobachter hin verursacht. Die Mo-

dellversionen ohne Streuung (KOPRA(0) und KOPRA(1)) unterschätzen mit über 40% die Referenzstrahldichten bei weitem. Hingegen unterscheiden sich die Einfachstreueralgorithmen nur um 1.5% bzw. 1% von ARTS.

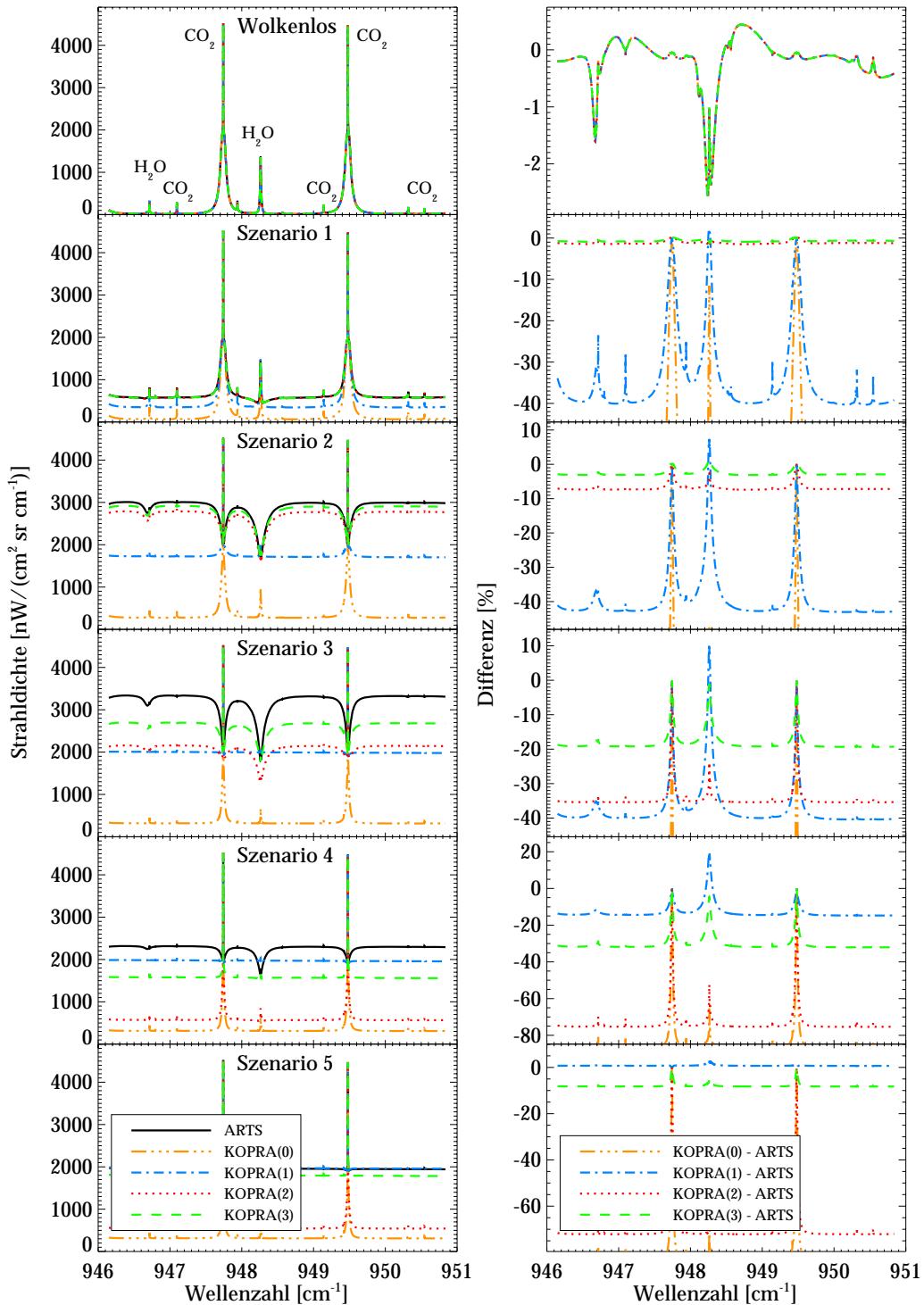


Abbildung 2.9: Modellvergleich zwischen ARTS und KOPRA: Emissionsspektren bei Horizontsondierung (11 km Tangentenhöhe) für Szenarien unterschiedlicher Anzahldichte von Wolkenteilchen (Tab. 2.2) im Fall  $\omega_0 = 0.84$ .

Schon für das in Horizonrichtung noch transparente Szenario 2 übersteigt der Strahlungsuntergrund mit ungefähr  $3000 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$  die Schwarzkörperstrahlung um 50%. Zudem treten starke eingestreute Absorptionssignaturen im Bereich der  $\text{H}_2\text{O}$ -Linien und in den Flügeln der  $\text{CO}_2$ -Linien auf. Die Modellversionen ohne Streuung zeigen ähnlich große Fehler wie im vorigen Szenario, während die Einfachstreuemodelle KOPRA(2) mit 7% und vor allem KOPRA(3) mit maximal 3% Unterschieden dieses Szenario noch gut beschreiben können.

Die Mehrfachstreuerechnungen für das erste in Horizonrichtung intransparente, aber in Nadirrichtung noch durchsichtige Szenario 3 liefern mit  $3400 \text{ nW}/(\text{cm}^2 \text{ sr cm}^{-1})$  eine um den Faktor 1.7 erhöhte Strahlung im Vergleich zur Planckfunktion. Die Einfachstreuemodelle können dieser im Vergleich zu Szenario 2 nochmals erhöhten Strahldichte nicht folgen und unterschätzen das Ergebnis des Mehrfachstreuemodells um 35% (KOPRA(2)) und 20% (KOPRA(3)).

Aufgrund der niedrigeren Transmission in Nadirrichtung geht die eingestreute Strahlung und daher der Strahlungsuntergrund im Fall von Szenario 4 auf nur noch den 1.2-fachen Wert eines Schwarzkörpers auf Wolkenhöhe zurück. Nun erreicht das Modell ohne Streuung (KOPRA(1)) eine Genauigkeit von 13% während KOPRA(3) als zweitbeste Modellversion 32% niedrigere Strahldichten liefert.

Im optisch dicken Szenario 5 stimmen die Ergebnisse von ARTS und KOPRA(1) sehr gut überein, was bedeutet, dass praktisch keine Photonen aus der wärmeren Troposphäre und der Erdoberfläche den Beobachter erreichen. Mit 8% Unterschieden liegen die Ergebnisse von KOPRA(3) wieder näher an der Wirklichkeit als bei den vorhergehenden beiden Szenarien.

## 2.4.6 Bewertung

Aus der Konvergenz von Simulationen mit dem Vielfachstreuemodell ARTS und dem Einfachstreuemodell KOPRA bei kleiner werdenden Teilchendichten lässt sich auf eine korrekte Implementierung der Streuung in den Modellen schließen. Weiterhin folgt aus den berechneten Spektren für die in Horizonrichtung noch transparenten Wolkenszenarien 1 und 2, dass die Einfachstreuansätze in KOPRA (mit maximalen Fehlern von 3%) ausreichen, um Beobachtungen von polaren stratosphärischen Wolken des Typs 1 und 2, die Thema dieser Arbeit sind, zu simulieren. Hingegen unterschätzen Modelle, die keine Einstreuung in die Blickrichtung des Messgeräts simulieren, die wirklichen Strahldichten um 15–40%, abhängig von der Einfachstreuualbedo. Diese Modelle können daher lediglich in Bereichen hoher Absorption, d.h. für Teilchenradien kleiner  $1 \mu\text{m}$  im langwelligen und kleiner  $0.2 \mu\text{m}$  im kurzweligen Spektralbereich von MIPAS (siehe Abb. 2.7) angewandt werden.

Die Genauigkeit von Einfachstreuerechnungen für den Fall optisch dicker Wolken in Horizonrichtung hängt von der sich stark mit der Wellenzahl ändernden Einfachstreuualbedo ab. Die dabei auftretenden Fehler reichen von 2–3% für  $\omega_0 = 0.24$  bis zu 10–30% für  $\omega_0 = 0.84$  (KOPRA(3)). Die hohen Fehler treten bei den in Nadirrichtung noch transparenten Wolken auf, da diese immer noch eine große Anzahl von Photonen, die ihren Ursprung in der Troposphäre, bzw. auf dem Erdboden haben, in die Blickrichtung des Beobachters streuen. Aus Abb. 2.7 ist abzulesen, dass die Gebiete hoher Einfachstreuualbedo, für die die hohen Ungenauigkeiten

ten in der Einfachstreuerechnung gelten, hauptsächlich für Teilchenradien zwischen 1 und  $10\text{--}20 \mu\text{m}$  oberhalb von  $1000 \text{ cm}^{-1}$  auftreten. Im atmosphärischen Fenster unterhalb dieser Wellenzahl, d.h. Bereich des Absorptionsmaximums von Eis, liefern Einfachstreuerechnungen auch für Teilchen kleiner als ca.  $20 \mu\text{m}$  verlässliche Ergebnisse. Für größere Wolkenpartikel, bei denen die Einfachstreuualbedo um den Wert 0.5 schwankt, wird die Genauigkeit der Einfachstreuerechnungen auf 5–15% geschätzt.

Vergleicht man die Genauigkeiten der unterschiedlichen Ansätze in KOPRA, so wird deutlich, dass diejenigen Implementierungen bei denen der Absorptionskoeffizient als Vorfaktor der Planckfunktion durch den Extinktionskoeffizienten ersetzt wurde (KOPRA(1) und KOPRA(3)), genauere Ergebnisse liefern, als diejenigen, bei denen dies nicht geschah (KOPRA(0) und KOPRA(2)). Letztere unterschätzen die Strahldichten, während erstere durch Erhöhung der lokal emittierten Strahlung dies kompensieren.

Bemerkenswerterweise zeigen unsere Rechnungen, dass im Fall von Wolken, die in Hori-zontrichtung optisch dick aber in Nadirrichtung noch transparent sind, eine Erhöhung der gemessenen Strahldichte bis um das 1.7-fache im Vergleich zur Schwarzkörperstrahlung ei-ner optisch wesentlich dickeren Wolke auftreten kann. Dies ist die Folge der Streuung von Strahlung mit Ursprung in der unterhalb der Wolke liegenden warmen Troposphäre.

## 2.5 Der Einfluss von PSCs auf Strahldichten bei Horizontsondierung

Wie im vorigen Kapitel 2.4 gezeigt wurde, ist für die Modellierung von Horizontsondierungs-beobachtungen polarer stratosphärischer Wolken ein Einfachstreuansatz, wie er in KOPRA verwendet wird, ausreichend. Dies hat den Vorteil stark verminderter Rechenzeiten im Ver-gleich zu Vielfachstreuerechnungen, wodurch es möglich wird, die Strahldichten breitbandiger Spektralbereiche mit hoher spektraler Auflösung, wie sie von Fouriertransformspektrometern gemessen werden, zu bestimmen. Die folgenden Simulationen sollen zeigen, wie sich das atmosphärische Spektrum im Beisein von PSCs in Abhängigkeit von Teilchenradius, Zusam-mensetzung, troposphärischer Situation und Sonneneinstrahlung verändert.

### 2.5.1 Definition von PSC und Beobachter

Grundlage für die Simulationen war eine Wolke, die sich über einen Höhenbereich von 20–25 km mit konstanter Teilchenanzahldichte erstreckt. Als Größenverteilungen wurden monomodale Log-Normalverteilung nach Gleichung (2.12) mit verschiedenen mittleren Radien ( $0.1\text{--}7 \mu\text{m}$ ) und einer konstanten Breite (0.1) verwendet. Durch Variation der Anzahldichten wurde die Volumendichte auf einem Wert von  $0.483 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  konstant gehalten (siehe Tab. 2.3). Unter Annahme einer PSC-Zusammensetzung aus NAT entspricht dies auf 20 km ca. 2.2 ppbv und auf 25 km ca. 5.1 ppbv kondensierter Salpetersäure in den Wolkenteilchen. Basis für die Mie-Rechnungen in KOPRA waren Brechungsindizes für  $\alpha$ -NAT von Toon et al. (1994) (Abb. 2.15).

	A	B	C	D	E	F
$R$ [ $\mu\text{m}$ ]	0.1	1	2	3	5	7
$N$ [ $\text{cm}^{-3}$ ]	100	0.1	$1.25 \times 10^{-2}$	$3.70 \times 10^{-3}$	$8 \times 10^{-4}$	$2.92 \times 10^{-4}$
$S$	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
$V$ [ $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ ]	0.438	0.438	0.438	0.438	0.438	0.438

Tabelle 2.3: Größenparameter der Log-Normalverteilungen für die verschiedenen PSC-Szenarien. Die Parameter sind im Höhenbereich der Wolke (20–25 km) konstant.

Das ausgewählte Spektralintervall von  $750 \text{ cm}^{-1}$  bis  $2200 \text{ cm}^{-1}$  überdeckt weitgehend den Frequenzbereich von MIPAS/Envisat. Auch die spektrale Auflösung wurde entsprechend einer maximalen Weglängendifferenz von  $20 \text{ cm}^{-1}$  derjenigen von MIPAS/Envisat gleichgesetzt. Zusätzlich wurde zur Unterdrückung von Nebenschwingungen der sinc-förmigen Linienform eine starke Apodisierung nach Norton und Beer (1976) verwendet. Dies ermöglicht die Identifizierung von Änderungen der beobachteten Linienform infolge von in den Sehstrahl eingestreuter Strahlung. Die Beobachtungsgeometrie entsprach derjenigen eines horizontsondierenden Satelliteninstruments mit einer Tangentenhöhe von 20 km.

## 2.5.2 Abhängigkeit von der Teilchengröße und der Streuung von Strahlung aus der Troposphäre

Abb. 2.10 zeigt die Ergebnisse der Strahlungstransportrechnungen für den wolkenfreien Fall und für die Szenarien mit zunehmendem mittlerem Teilchenradius (Tab. 2.3). Die schwarzen Kurven schließen in den Sehstrahl eingestreute Strahlung mit ein, wohingegen die grauen Kurven ohne solche Einstreuung berechnet wurden.

Der wichtigste Einfluss von PSCs auf die beobachteten Spektren ist die breitbandige Untergrundstrahlung infolge der Eigenemission der Partikel und der Einstreuung troposphärischer Strahlung. Der Einfluss der letzteren wird aus der Differenz zwischen den schwarzen und grauen Kurven deutlich. Für sehr kleine Teilchen ist die Einfachstreualbedo sehr gering und nahezu der gesamte Strahlungsbeitrag resultiert aus der Eigenemission. Ab Radien von  $1 \mu\text{m}$  wird der eingestreute Strahlungsanteil am langwelligen Ende des Spektrums langsam sichtbar, während im kurzwelligen Bereich um  $2000 \text{ cm}^{-1}$  schon der Großteil des Strahlungsuntergrunds auf Einstreuung basiert. Für noch größere Radien wächst das Kontinuum im wesentlichen aufgrund des zunehmenden Streuanteils weiter an und erreicht im Kurzwelligen bei ca.  $2 \mu\text{m}$  und im Langwelligen bei  $3 \mu\text{m}$  Teilchenradius ein Maximum. Danach nimmt der Strahlungsuntergrund wieder ab. Abb. 2.11 zeigt das Verhalten von Absorptions- ( $Q_a$ ) und Streueffizienz ( $Q_s$ )<sup>13</sup> und Einfachstreualbedo ( $\omega_0$ ) am Beispiel von  $\alpha$ -NAT (und  $\alpha$ -NAD) bei  $1000 \text{ cm}^{-1}$ . Man sieht den starken Anstieg des Streuanteils bis zum Maximum bei ca.  $4 \mu\text{m}$  und den darauf folgenden Abfall mit etwas geringerer Steigung. Es fällt auf, dass, obwohl bei einem Radius von  $1 \mu\text{m}$  der Absorptionsanteil noch stark überwiegt, der Unterschied zwischen Rechnungen mit und ohne Einstreuung schon deutlich ist (Abb. 2.10). Dies liegt

---

<sup>13</sup>Die Absorptions- bzw. Streueffizienz ist definiert als der Quotient von Absorptions-  $\sigma_a$  bzw. Streuquerschnitt  $\sigma_a$  und Querschnittsfläche  $A$  des Teilchens:  $Q_a = \sigma_a/A$ ,  $Q_s = \sigma_s/A$

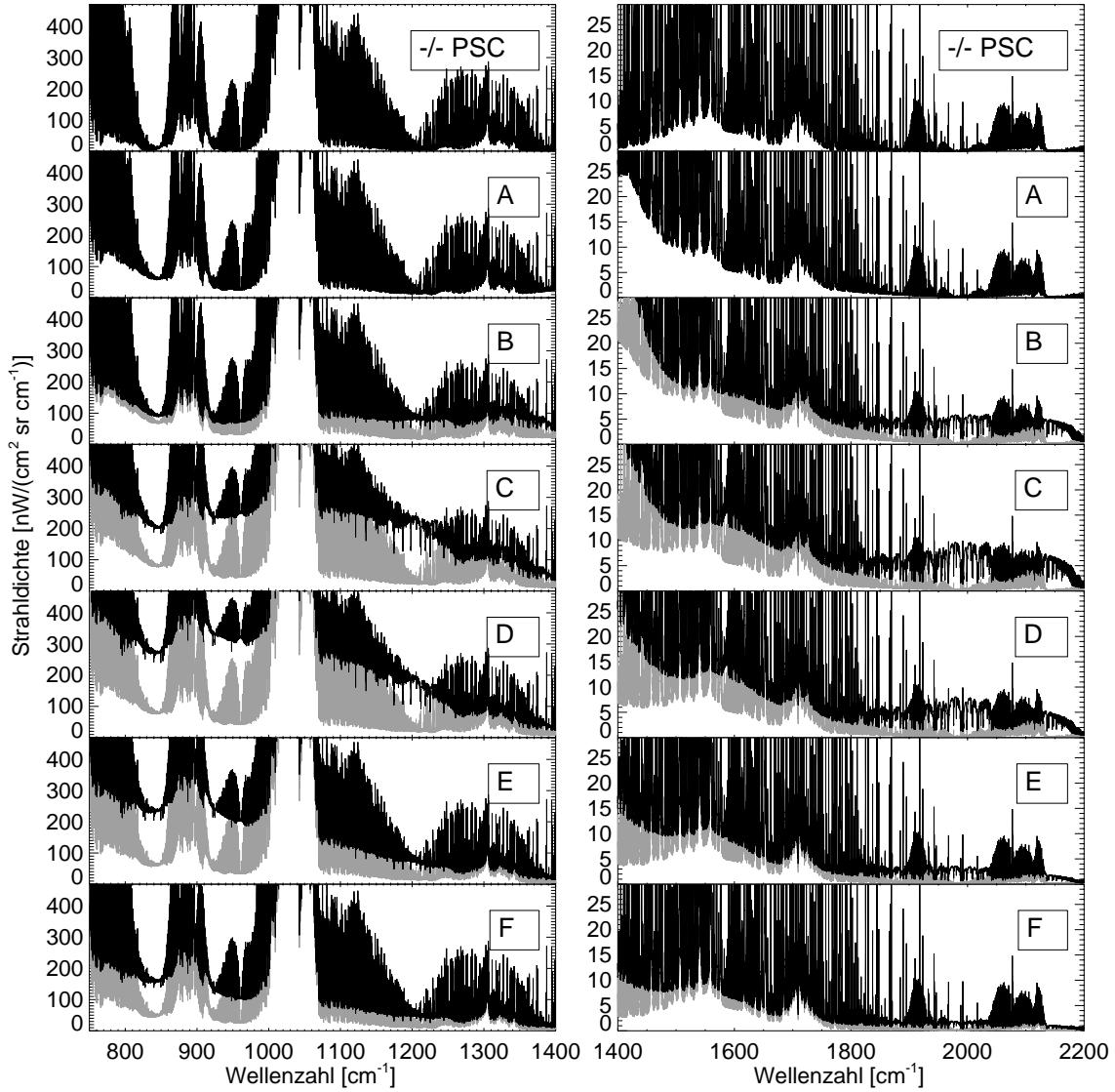


Abbildung 2.10: Breitbandige Simulation einer spektral hochauflösten Horizontsondierungsmessung vom Satelliten für 20 km Tangentenhöhe: Referenz ohne PSC (erste Zeile) und mit einer PSC in 20–25 km Höhe für unterschiedliche Teilchenradien bei konstanter Volumendichte (siehe Tab. 2.3). Die schwarzen Kurven zeigen die Rechnungen einschließlich Einstreuung, während die Simulationen ohne Streuterm grau gezeichnet sind.

zum einen daran, dass für die Strahlungstransportrechnungen eine Teilchenzahlverteilung angenommen wurde, die auch die stark wachsende Streuung bei größeren Teilchen berücksichtigt. Zum anderen kommt bei den Rechnungen der eingestreuten Strahlung der Kontrast zwischen dem kalten Höhenbereich der Wolke und der warmen Troposphäre zum tragen.

Ein deutliches Zeichen dafür, dass troposphärische Strahlungsbeiträge eine wichtige Rolle spielen, sind die hochauflösten Absorptionsstrukturen im Bereich von Wasserdampflinien, wie sie in den breitbandigen Rechnungen (siehe z.B. Szenario C in Abb. 2.10) um  $840\text{ cm}^{-1}$ ,  $950\text{ cm}^{-1}$ ,  $1200\text{ cm}^{-1}$  oder  $2000\text{ cm}^{-1}$  sichtbar sind. Abb. 2.12 zeigt eine Vergrößerung des

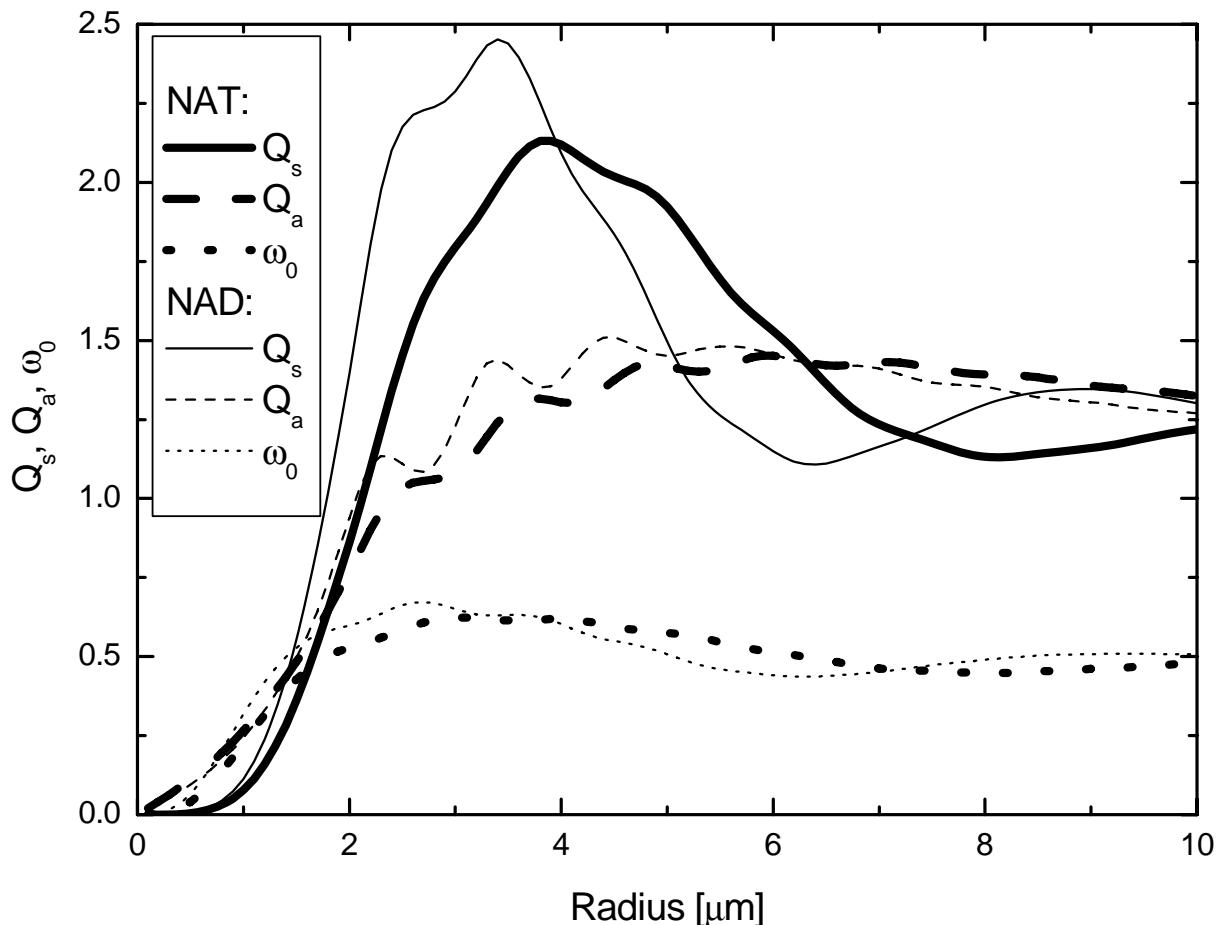


Abbildung 2.11: Abhangigkeit der Absorptions- und Streueffizienz und der Einfachstreualbedo vom Teilchenradius bei  $1000 \text{ cm}^{-1}$  fur kugelformige Teilchen aus  $\alpha$ -NAT bzw.  $\alpha$ -NAD.

Spektralintervalls bei  $950 \text{ cm}^{-1}$ . Es treten deutlich die in negative Richtung weisenden Wasserdampflinien hervor. Auch sind im Bereich der Linienflugel von  $\text{CO}_2$  absorptionsahnliche Strukturen zu erkennen, die in den Rechnungen ohne Einstreuung fehlen. Wie in Abb. 2.13 skizziert, sind beides Resultate der  $\text{\O}$ berlagerung des rein stratospharischen Emissionsspektrums mit dem eingestreuten tropospharischen Spektrum, welches starke und druckverbreiterte Absorptionslinien von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{CO}_2$  aufweist.

### 2.5.3 Einstreuung solarer Strahlung

Die im vorigen Abschnitt besprochenen Simulationen wurden ohne Bercksichtigung solarer Einstreuung durchgefuhrt - Bedingungen wie sie in der Polarnacht nicht gerade selten angetroffen werden. Der Einfluss der Sonne auf die beobachteten Strahldichten kann man aus Abb. 2.14 ersehen. Diesen Rechnungen ist Vorwartsstreuung mit einem Abstand der Sonne vom Sehstrahl des Beobachters von  $30^\circ$  zugrunde gelegt.

Fur Wellenzahlen kleiner als  $1400 \text{ cm}^{-1}$  uberwiegt die terrestrische Komponente der Strahlung bei weitem diejenige der eingestreuten Solarstrahlung. Bei hoheren Frequenzen jedoch

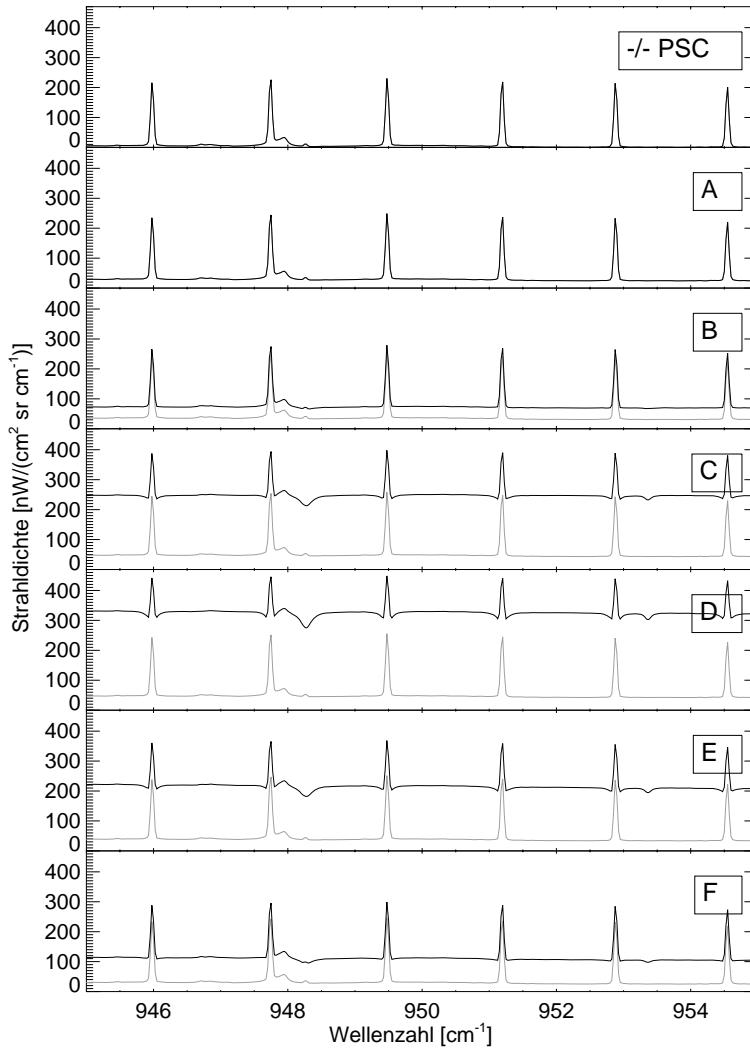


Abbildung 2.12: Ausschnittsvergrößerung aus Abb. 2.10.

ist der Einfluss der solaren Photonen groß und stark abhängig vom Teilchenradius. Während für Teilchengrößen von  $0.1 \mu\text{m}$  die Streuung sehr gering ist, erreicht sie bei  $2 \mu\text{m}$  ein Maximum und überwiegt den terrestrischen Strahlungsanteil um das 7–10-fache bei  $2150 \mu\text{m}$ . Bei  $3 \mu\text{m}$  Teilchenradius ist der Einfluss der solaren Strahlung noch groß, nimmt für noch größere Teilchen allerdings rasch ab und ist bei  $5\text{--}7 \mu\text{m}$  schon um einen Faktor 10 kleiner als im Maximum.

## 2.5.4 Differenzierung unterschiedlicher PSC-Zusammensetzung

Im Folgenden wird untersucht, wie sich unterschiedliche Zusammensetzungen von PSCs auf gemessene Strahldichten auswirken können. Dazu wurden auf Basis des gleichen Höhenprofils und Größenverteilung der Wolkenteilchen und gleicher Beobachtungsgeometrie wie in den in Abschnitt 2.5.2 gezeigten Rechnungen für  $\alpha$ -NAT auch solche für  $\alpha$ -NAD und STS durchgeführt. Im Fall von  $\alpha$ -NAD kamen die Brechungsindizes von Toon et al. (1994) und im

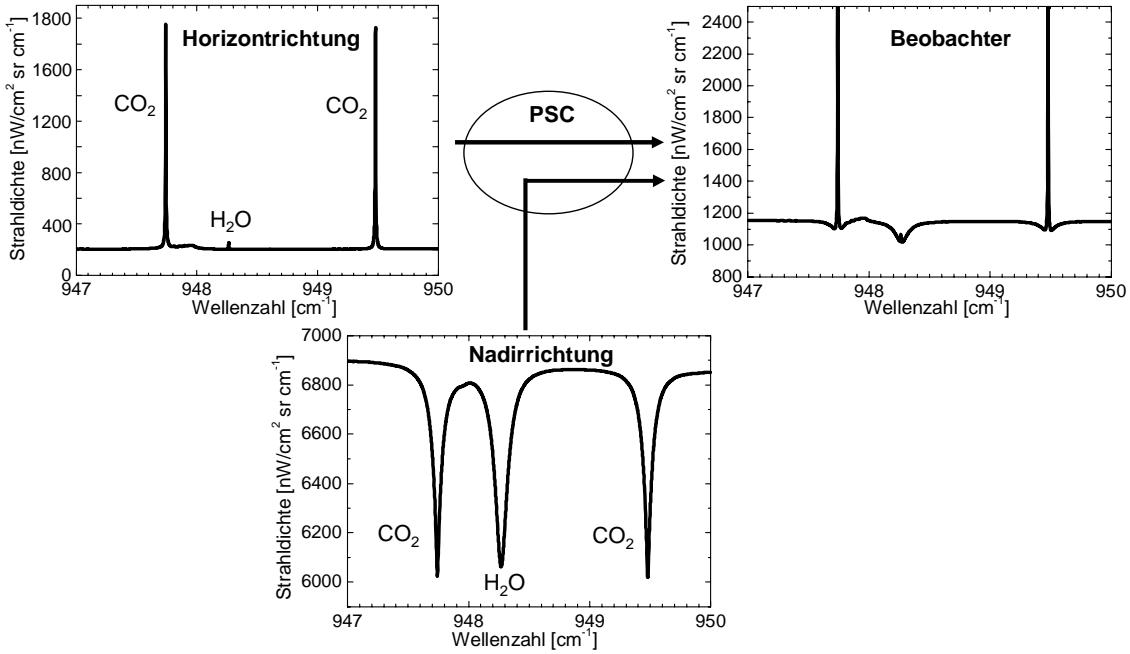


Abbildung 2.13: Verdeutlichung des Effekts von eingestreuter troposphärischer Strahlung auf spektral hochauflöste Horizontsondierungsmessungen.

Fall von STS diejenigen von Biermann et al. (2000) für eine Zusammensetzung von 5 gw%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und 42 gw%  $\text{HNO}_3$  und einer Temperatur von 190 K zur Anwendung.

In Abb. 2.16 werden die Simulationen für  $\alpha$ -NAD mit denjenigen für  $\alpha$ -NAT verglichen. Für das Szenario kleiner Teilchen (A), bei dem die Absorption und Emission bei weitem die Streuung überwiegt, dominieren die Strukturen des Brechungsindex-Imaginärteils den Strahlungsuntergrund. So sind die Maxima in den simulierten Strahldichten bei  $1270 \text{ cm}^{-1}$  und  $1450 \text{ cm}^{-1}$  sichtbar.  $\alpha$ -NAT hingegen zeigt bei  $1390 \text{ cm}^{-1}$  eine ausgeprägte spektrale Struktur. Bei größeren Wolkenteilchen bestimmt die Streuung den Strahlungsuntergrund und die Signaturen im Brechungsindex-Realteil spiegeln sich im simulierten Spektrum wieder. Besonders für mittlere Radien von  $2\text{--}3 \mu\text{m}$  gibt es große Unterschiede zwischen NAD- und NAT-Spektren zwischen  $800 \mu\text{m}$  und  $1500 \mu\text{m}$ . Für Teilchenradien von  $7 \mu\text{m}$  und mehr verschwinden die spektralen Unterschiede und es ist nicht mehr möglich zwischen den Zusammensetzungen der PSC-Teilchen zu differenzieren. Abb. 2.11 verdeutlicht dieses Verhalten anhand der Streu- und Absorptionseffizienten von  $\alpha$ -NAT und  $\alpha$ -NAD bei  $1000 \text{ cm}^{-1}$ . Die Absorption dominiert bis ca.  $1 \mu\text{m}$  Radius. Dagegen gibt es im dominanten Bereich der Streuung bis ungefähr  $6 \mu\text{m}$  große Unterschiede zwischen  $\alpha$ -NAT und  $\alpha$ -NAD. Für noch größere Teilchen treten nur noch geringe Unterschiede zwischen den Steu- und Absorptionseffizienten der beiden Substanzen auf und die Kurven nähern sich dem Wert 1.

Obwohl allgemein nicht angenommen wird, dass PSC-Teilchen aus STS Radien größer als  $1 \mu\text{m}$  erreichen, wurden Spektren für alle Szenarien berechnet. Die Ergebnisse sind in Abb. 2.17 dargestellt. Für den Fall der kleinsten Teilchen ergeben sich die größten Unterschiede unterhalb von  $850 \mu\text{m}$  und im Bereich  $1350\text{--}1450 \text{ cm}^{-1}$ . Teilchen mit größeren Radien unterscheiden sich wiederum aufgrund der Unterschiede in den Realteilen der Brechungsindizes,

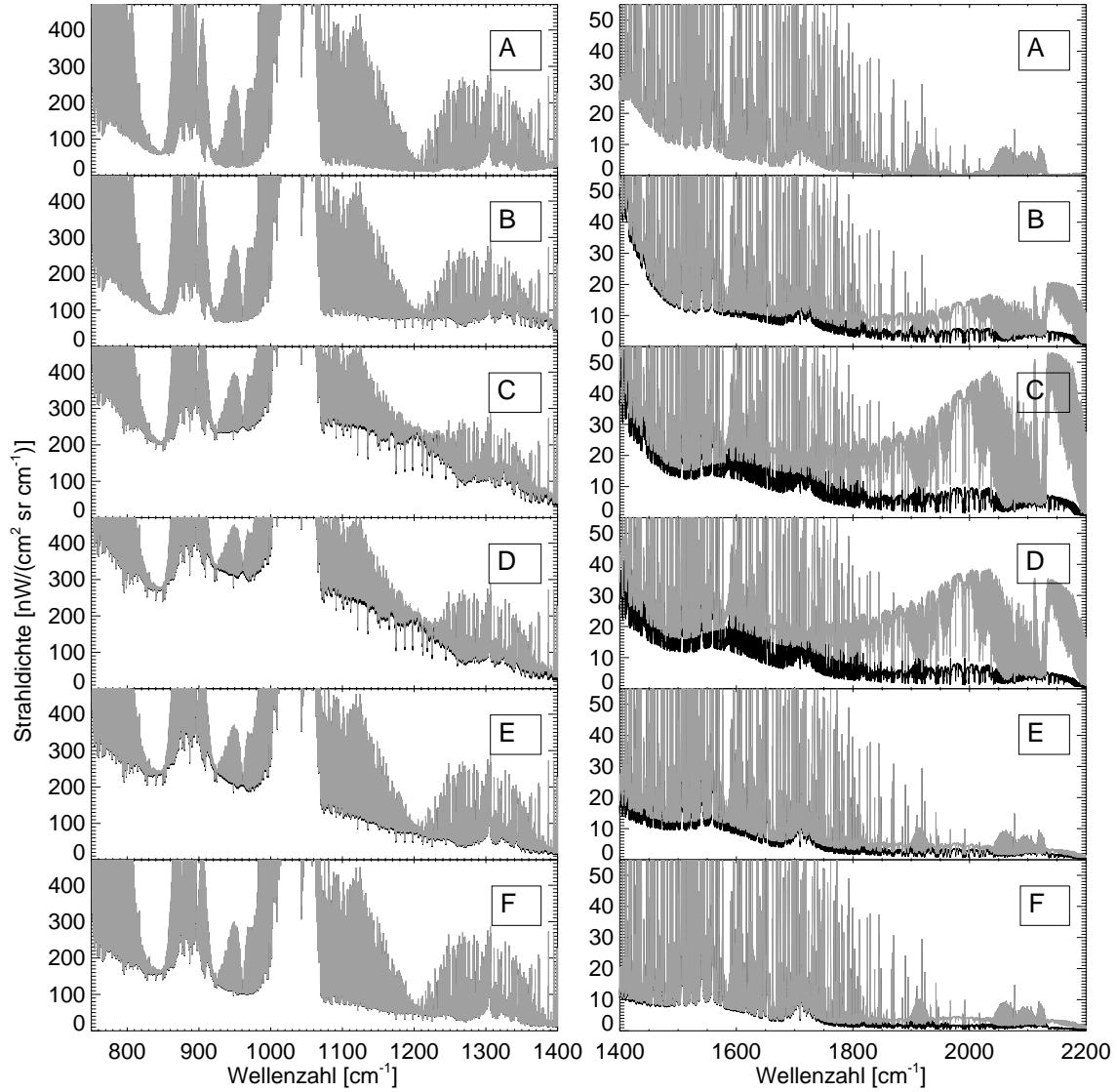


Abbildung 2.14: Vergleich zwischen simulierten Spektren für die unterschiedlichen PSC-Größenverteilungen A–F ohne (schwarz) und mit solarer Streuung (grau). Für letztere wurde Vorwärtsstreuung mit einem Winkelabstand zwischen Sonne und Beobachtungsrichtung von  $30^\circ$  angenommen.

die bei Wellenzahlen unterhalb von  $1400 \text{ cm}^{-1}$  im Fall von STS deutlich kleiner als diejenigen von  $\alpha$ -NAT sind (siehe Abb. 2.15).

## 2.5.5 Abhängigkeit der Strahldichten von den Bedingungen in der Troposphäre

Wie in Abschnitt 2.5.2 gezeigt wurde, macht für mittlere Teilchenradien von  $>1 \mu\text{m}$  der Anteil gestreuer Photonen, deren Ursprung in der wärmeren Troposphäre bzw. der Erd-

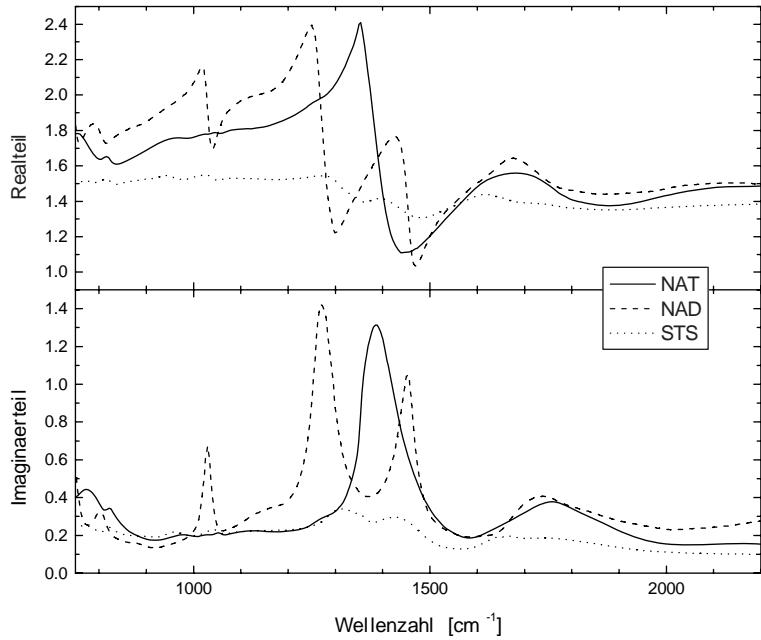


Abbildung 2.15: Vergleich der zur Simulation verwendeten komplexen Brechungsindizes von  $\alpha$ -NAT (Toon et al. 1994),  $\alpha$ -NAD (Toon et al. 1994) und STS ((Biermann et al. 2000), Zusammensetzung: 5 gw%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und 42 gw%  $\text{HNO}_3$ )

oberfläche liegt, einen Großteil des beobachteten Strahlungsuntergrunds aus. Dies bedeutet auch, dass die gemessenen Spektren mit Tangentenpunkten in der Stratosphäre von den aktuellen Bedingungen in der Troposphäre abhängen. Im Folgenden soll diese Abhängigkeit beispielhaft für die Wolkenbedeckung, die Oberflächentemperatur und den Wasserdampfgehalt aufgezeigt werden (siehe Abb. 2.18).

Vergleicht man die Ursprungsspektren in der zweiten Zeile von Abb. 2.18, die ohne troposphärische Wolken berechnet wurden, mit denjenigen in der dritten Zeile, für die eine optisch dicke Wolkenschicht mit Obergrenze 8.5 km angenommen wurde, so erkennt man den starken Einfluss von Wolken auf die Messungen. Da das Emissionsniveau in der Troposphäre nach oben verschoben wurde, ist dessen Temperatur deutlich gesunken - von 273 K an der Erdoberfläche auf ungefähr 220 K am Ort der Wolkenobergrenze. Außerdem wird die effektive absorbierende und emittierende troposphärische Gassäule stark verkleinert. Dies führt dazu, dass keine hochauflösten Absorptionssignaturen von Wasserdampf mehr im Spektrum sichtbar sind. Zudem geht der Strahlungsuntergrund um das 2–4-fache im Bereich 750–1400  $\text{cm}^{-1}$  und bis zu einem Faktor 9 zwischen 1800  $\text{cm}^{-1}$  und 2200  $\text{cm}^{-1}$  zurück.

Die Auswirkungen einer von 273 auf 253 K reduzierten Oberflächentemperatur der Erde auf die beobachteten Strahldichten sind nicht so ausgeprägt wie diejenigen von hohen Wolken. Das spektrale Kontinuum vermindert sich um ungefähr das 1.3-fache im Langwelligen und um die Hälfte zwischen 1800 und 2200  $\text{cm}^{-1}$ . Die herausragenden Absorptionsstrukturen von Wasserdampf sind noch vorhanden und lediglich die schwachen Linien unterhalb von 1000  $\text{cm}^{-1}$  sind verschwunden.

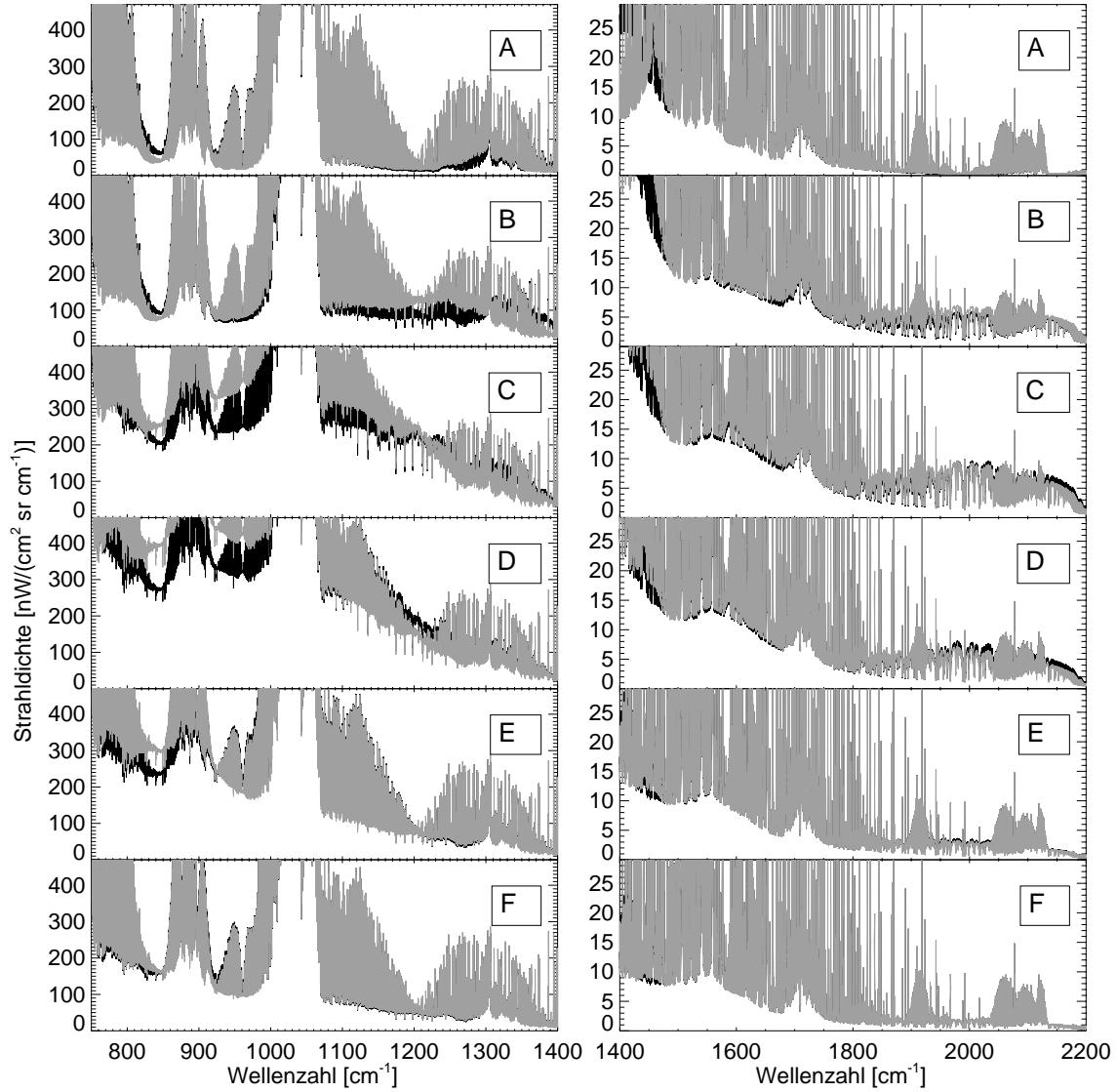


Abbildung 2.16: Vergleich zwischen simulierten Spektren für PSCs bestehend aus  $\alpha$ -NAT (schwarz) und aus  $\alpha$ -NAD (grau) für die unterschiedlichen Teilchengrößen der Szenarien A–F.

Eine Reduktion des atmosphärischen Wasserdampfprofils um die Hälfte führt ebenfalls zu einer Verkleinerung der Absorptionssignaturen bei Wellenzahlen unterhalb von  $1300 \text{ cm}^{-1}$ . Der Strahlungsuntergrund hingegen ändert sich nur unwesentlich. Lediglich bei  $2000 \text{ cm}^{-1}$  vergrößert sich das Kontinuumssignal, da das Emissionsniveau durch die erhöhte Transparenz der Troposphäre absinkt.

## 2.5.6 Zusammenfassung und Bewertung

Auf Grund von Einfachstreuerechnungen konnte gezeigt werden, dass Horizontsondierungsmessungen in mittleren infraroten Spektralbereich sehr sensitiv auf das Vorhandensein von

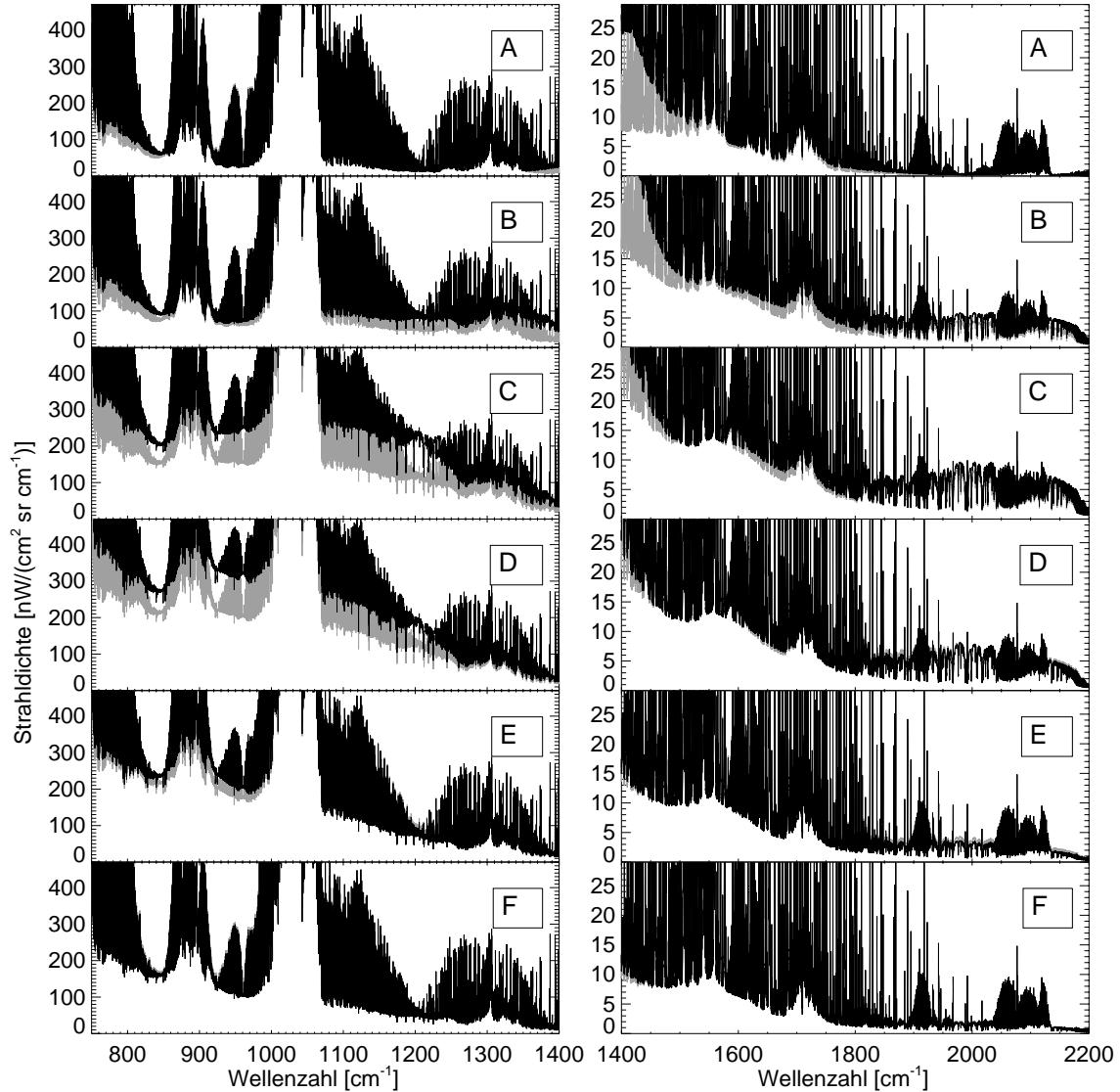


Abbildung 2.17: Vergleich zwischen simulierten Spektren für PSCs bestehend aus  $\alpha$ -NAT (schwarz) und aus STS (grau) für die unterschiedlichen Teilchengrößen der Szenarien A–F.

PSCs im Sehstrahl sind. Dabei spielt für mittlere Teilchenradien von  $>1 \mu\text{m}$  Streuung von Strahlung aus der Troposphäre und von der Erdoberfläche eine große Rolle. Dieser gestreute Beitrag ist der Grund für die starke Abhängigkeit der Strahldichten von der Teilchengröße für Radien zwischen 1 und  $7 \mu\text{m}$ . Er wirkt sich auf spektral hochauflöste Messungen zweifach aus: zum einen wird das spektrale Kontinuum erhöht und zum anderen treten Absorptionsstrukturen von Wasserdampf und Kohlendioxid hervor. Diese Signaturen in Horizontsonderungsspektren sind demnach charakteristisch für die Einstreuung troposphärischer Photonen in den Lichtweg des Beobachters. Ihr Auftreten in realen Messungen kann als Nachweis für einen solchen Prozess angesehen werden. Dies ist im Rahmen dieser Arbeiten zum ersten mal gelungen (siehe Kapitel 5). Die Differenzierung von PSCs verschiedener Zusammensetzung ist für Teilchen mit Radien kleiner  $1 \mu\text{m}$  aufgrund von Unterschieden im Imaginärteil ihres Brechungsindexes möglich. Bei Radien zwischen 1 und  $5 \mu\text{m}$  hingegen spielen wegen

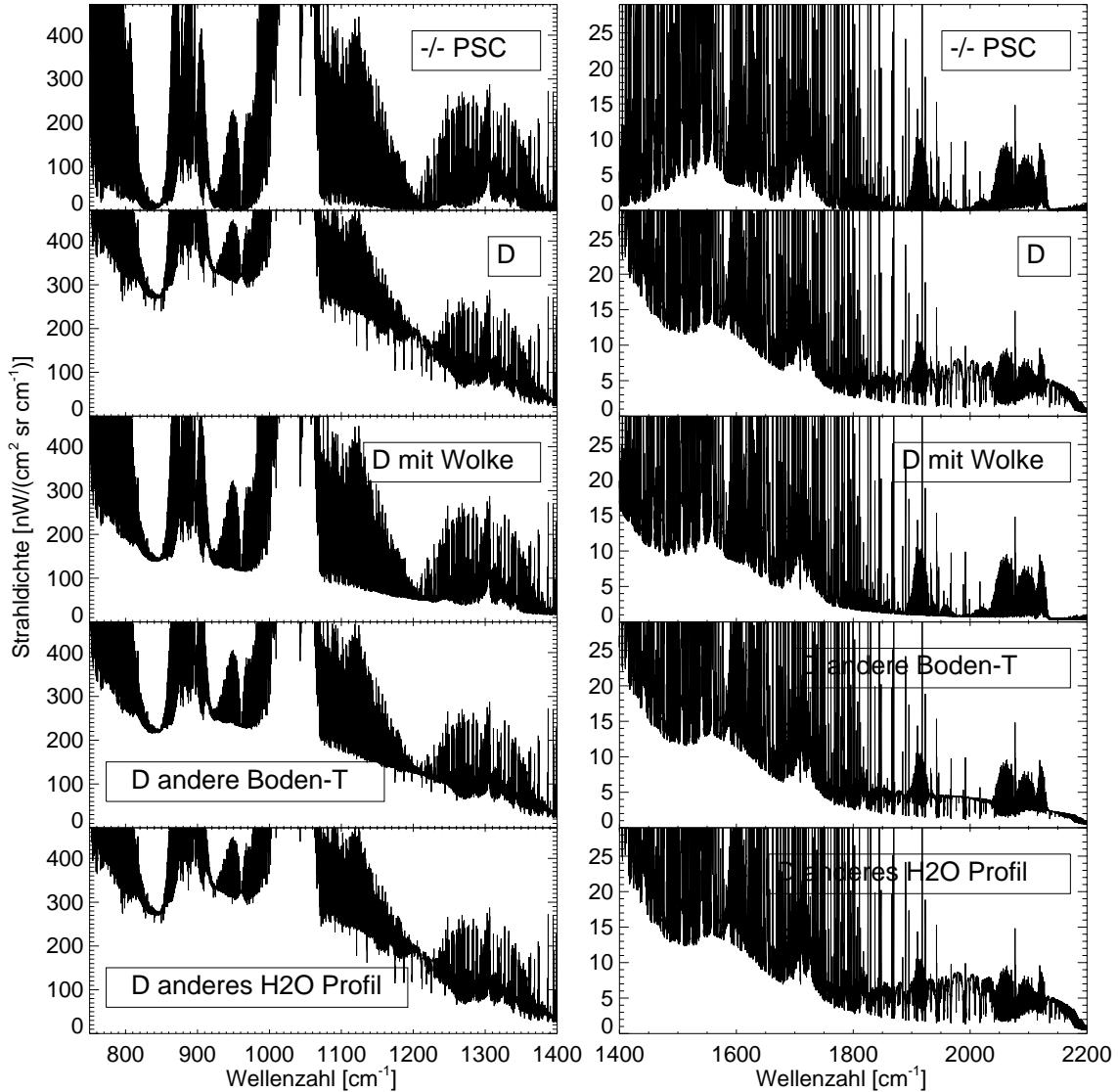


Abbildung 2.18: Einfluss von Bedingungen in der Troposphäre und der Erdoberfläche auf simulierte Horizontsondierungsspektren von PSCs mit der Größenverteilung des Szenarios D (siehe Tab. 2.3).

des hohen Streuanteils die Unterschiede im Realteil die größere Rolle. Ab ca.  $7 \mu\text{m}$  Radius ist keine Unterscheidung von PSCs verschiedener Zusammensetzung mehr möglich.

Der große Beitrag von eingestreuten Photonen zum gemessenen Spektrum kann einerseits die Bestimmung von Teilchengröße und -zusammensetzung ermöglichen. Andererseits besteht eine hohe Abhängigkeit von der aktuellen troposphärischen Situation - im Besonderen von Wolkenbedeckung und Temperatur der Erdoberfläche. Stünden keinerlei Informationen über die Gegebenheiten in der Troposphäre zur Verfügung, so erlaubt das Vorhandensein von Absorptionslinien zumindest eine Aussage über eine untere und für starke Signaturen eventuell eine obere Grenze der Teilchengröße.

Für Messgeometrien bei denen ein geringer Abstand zwischen Beobachtungsrichtung und Richtung zur Sonne auftritt, machen gestreute solare Photonen für Teilchen von  $1\text{--}4 \mu\text{m}$  Radius den Großteil der Strahldichte oberhalb von  $1700 \text{ cm}^{-1}$  aus. Dieser erstmals vorhergesagte Einfluss der Sonnenstrahlung auf Horizontsondierungsbeobachtungen im mittleren Infraroten konnte im Nachhinein mittels Messungen des MIPAS-Ballongeräts bestätigt werden (Höpfner et al. 2003).



# 3. Inversion von Teilchenparametern

Das Thema dieses Kapitels ist die Entwicklung einer Methode zur Ableitung von mikrophysikalischen Aerosolparametern<sup>1</sup> aus Fernerkundungsbeobachtungen im mittleren Infraroten Spektralbereich. Ausgehend von der Erläuterung bisheriger Ansätze wird dargelegt, weshalb es vorteilhaft, und im Fall von Messungen der Emission polarer stratosphärischer Wolken sogar unabdingbar war, eine neue Methodik zu entwickeln. Die Implementierung dieses Schemas in das Strahlungstransportmodell KOPRA und dessen Einbau in einen Inversionsalgorithmus wird erläutert. Am Ende des Kapitels erfolgt eine Validierung des Ansatzes an Hand von Labormessungen der spektralen Transmission von Aerosolen verschiedener Zusammensetzung.

## 3.1 Bisherige Methoden

Bisherige Methoden zur Bestimmung von mikrophysikalischen Aerosolparametern aus Hori-zontbeobachtungen im IR basieren auf einem im Folgenden als „indirekt“ bezeichneten An-satz. Dies bedeutet, dass aus den gemessenen Strahldichten bzw. Transmissionen an einem oder mehreren spektralen Stützstellen in einem ersten Schritt Höhenprofile der atmosphäri-schen Extinktion abgeleitet werden. In einem zweiten Schritt werden diese Extinktionen zu-grunde gelegt, um höhenabhängige mikrophysikalische Parameter des Aerosols herzuleiten. Diese Vorgehensweise entspricht dem linken Zweig des Schemas in Abb. 3.1.

Exemplarisch kann diese Methode anhand der Aerosolauswertung der drei auf UARS in Hori-zontsondierung im IR messenden Geräte HALOE, ISAMS und CLAES verdeutlicht werden. Der erste Schritt, nämlich die Ableitung von Höhenprofilen der Aerosolextinktion, wird von Herwig et al. (1995; 1996) für HALOE, von Lambert et al. (1996) für ISAMS und von Massie et al. (1996b) für CLAES beschrieben und validiert.

Basierend auf den Extinktionen von ISAMS entwickelte Grainger et al. (1995) eine Methode zur Ableitung von Oberflächendichte und effektivem Radius<sup>2</sup> aus der Volumendichte. Letztere wird in dieser Arbeit beispielhaft aus den Extinktionsprofilen des  $12.1 \mu\text{m}$ -Kanals von ISAMS bestimmt. Die Methode basiert auf der Verwendung von Korrelationen, die aus in-

---

<sup>1</sup>Als „Aerosole“ werden in diesem Kapitel allgemein Teilchen in der Atmosphäre bezeichnet, also auch Wolken- und PSC-Partikel.

<sup>2</sup>Definiert als das Verhältnis der dreifachen Volumendichte zur Oberflächendichte.

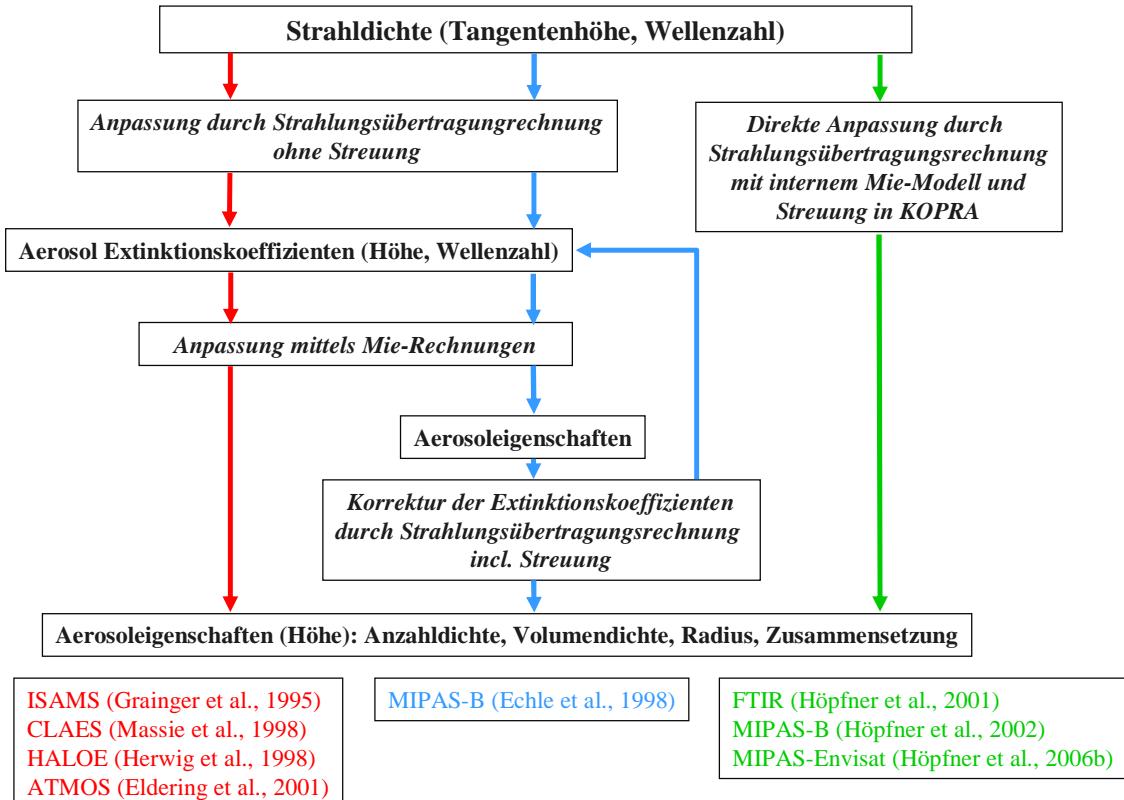


Abbildung 3.1: Drei Methoden zur Herleitung von mikrophysikalischen Teilcheneigenschaften aus Messungen im infraroten Spektralbereich mit Beispielreferenzen für deren Anwendung.

situ Ballonmessungen der Teilchengrößenverteilung in der Aerosolwolke nach dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo (15./16. Juni 1991) gewonnen wurden. Massie et al. (1996a) leiten auf ähnliche Art Beziehungen zwischen Oberflächen- bzw. Volumendichte des Pinatubo-Aerosols und Extinktionskoeffizienten von CLAES ab. Für den Fall von STS-PSCs bestimmten Massie et al. (1998) ebenfalls aus in-situ Messungen und Mie-Rechnungen Polynome zur Ableitung von Volumen- und Oberflächendichte aus Extinktionen für alle IR-Kanäle von HALOE, ISAMS und CLAES. Ähnliche Relationen wurden aufgrund einer anderen in-situ-Datenbasis für Sulfataerosole im Fall von HALOE (Herwig et al. 1998) und für Sulfataerosole, NAT und STS-PSCs für HALOE und CLAES bestimmt (Herwig und Deshler 1998).

Bei der Ableitung der Aerosolextinktion aus den Messungen von HALOE, ISAMS und CLAES gibt es erstens die Schwierigkeit, dass nur einzelne spektrale Kanäle im IR beobachtet werden. Dies bedeutet, dass Beiträge von Spurengassignaturen einen Fehler im Aerosolextinktionskoeffizienten verursachen, soweit im Vorwärtsmodell nicht die exakte Gaskonzentrationen verwendet wurden. Zusätzlich wirken sich Modellfehler, wie beispielsweise Fehler bei der Simulation der spektralen Kontinua von Wasserdampf, Sauerstoff oder Stickstoff, sowie Fehler in den spektralen Liniendaten auf die Güte der abgeleiteten Aerosolextinktionskoeffizienten aus.

Bei breitbandigen Messungen mit hoher spektraler Auflösung wie sie von Interferometern erzeugt werden, sind diese Probleme deutlich reduziert. So können sehr schmale spektrale

Bereiche bestimmt werden, in denen der Anteil der Spurengasabsorption minimal ist. Oder es kann der volle Spektralbereich herangezogen werden, um möglichst alle darin vorkommenden Spurengase optimal zu beschreiben. Im Fall des spektral hochauflösenden Interferometers ATMOS, das in solarer Absorption Horizontsondierungsspektren in der Wolke des Vulkans Pinatubo aufnahm, bestimmten Rinsland et al. (1994) Aerosolextinktionen in schmalen spektralen Fenstern mit niedriger Gasabsorption. Sie konnten dabei typische Sulfataerosolbanden detektieren. Eldering et al. (2001) benutzten im Gegensatz dazu den vollständigen Spektralbereich von ATMOS, um breitbandige Extinktionsspektren herzuleiten. Der Beitrag der Gasabsorption wurde durch Anpassung der Spurengase entfernt. Aus den Extinktionen wurden im zweiten Schritt Höhenprofile der Volumendichte von stratosphärischem Aerosol bzw. von Zirren mittels Mie-Rechnungen abgeleitet.

Ein weiteres Problem des zweistufigen Schemas ist von prinzipieller Natur und bezieht sich auf die Herleitung von Aerosolextinktionskoeffizienten aus Messungen der atmosphärischen Emission, wie es bei ISAMS und CLAES der Fall war. Wie in den Abschnitten 2.4 und 2.5 gezeigt wurde, spielt bei Teilchengrößen ab  $0.2\text{--}1 \mu\text{m}$  der gestreute Anteil der Strahlung eine wesentliche Rolle. Wird dies, wie bei ISAMS und CLAES, bei der Vorwärtsrechnung nicht berücksichtigt so kann es, abhängig von der wahren Teilchengröße, zu gravierenden Fehlern in den abgeleiteten Extinktionskoeffizienten führen. Dies bedeutet auch, dass die beschriebene zweistufige Herangehensweise nicht mehr praktikabel ist, da eine Veränderung von mikrophysikalischen Teilchenparametern auch eine Änderung in den im ersten Schritt abgeleiteten Extinktionskoeffizienten zur Folge hat.

Echle (1996) und Echle et al. (1998) wandten erstmals ein mehrstufiges, reziprokes Schema zur Bestimmung von Aerosolparametern aus MIPAS-B Horizontsondierungsmessungen an (siehe Abb. 3.1). Hierbei wurden zuerst Anfangswerte der Extinktion und der Spurengasvolumenmischungverhältnisse mit Hilfe eines spektral hochauflösenden Line-für-Line-Strahlungübertragungsmodells bestimmt. Aus diesen Pseudo-Extinktionskoeffizienten wurden mittels eines Mie-Modells mikrophysikalische Parameter abgeleitet, die daraufhin in einem spektral niedrig auflösenden Vorwärtsmodell benutzt wurden, um die Extinktionskoeffizienten zu korrigieren. Dieses Vorgehen wurden solange wiederholt, bis Konvergenz erreicht war, d.h. die simulierten (niedrigauflösten) Spektren mit den gemessenen übereinstimmten. Diese Methode hat den Vorteil, dass Streueffekte explizit berücksichtigt werden<sup>3</sup>. Nachteile sind erstens, dass es sich um ein kompliziertes Schema handelt, das im Kern immer noch den Umweg über abgeleitete Extinktionskoeffizienten geht. Zum Zweiten erschwert die Verwendung eines spektral niedrig auflösenden Strahlungstransportmodells die gleichzeitige Bestimmung von Spurengaskonzentrationen und Teilcheneigenschaften aus spektral hochauflösten Spektren. Zudem werden spektral hochauflöste Effekte durch die Aerosole, wie beispielsweise die in negative Richtung zeigenden Flanken von CO<sub>2</sub>-Linien (siehe Abschnitt 2.5) nicht simuliert.

---

<sup>3</sup>Bei dem betrachteten Fall waren diese allerdings eher gering, da gealtertes Vulkanaerosol kaum Teilchen einer Größe enthält, die zu starker Streuung führen. Auch gehen die simulierten Streueffekte nach unserer heutigen Kenntnis in die falsche Richtung, was wahrscheinlich auf ein Problem im verwendeten spektral niedrigauflösenden Vorwärtsmodell zurückzuführen ist.

## 3.2 Die direkte Methode

Wegen der oben aufgezeigten Schwierigkeiten, wurde eine Methode entwickelt, welche die direkte Ableitung von Teilchenparametern und Gaskonzentrationen aus den gemessenen hochauflösten IR-Spektren ermöglicht (Höpfner et al. 2001, Höpfner et al. 2002, Höpfner et al. 2006b, Höpfner 2006). Das Schema, das in Abb. 3.1 rechts dargestellt ist, basiert auf der Anwendung eines hochauflösenden Strahlungstransportprogramms, das direkt die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften als Eingabegröße verwendet und Streuung bei der Strahlungsübertragung berücksichtigt. Diese Anforderungen wurden, wie im vorigen Kapitel beschrieben, mit der Einbindung eines Mie-Modells in KOPRA verwirklicht.

Zur Lösung des nichtlinearen inversen Strahlungstransportproblems, d.h. zur Ableitung von atmosphärischen Parametern  $\mathbf{x}$  aus gemessenen Strahldichtespektren  $\mathbf{y}_{meas}$ , wird folgende Newtonsche Iterationsgleichung verwendet (z.B. Rodgers (2000), von Clarmann (2003) und darin enthaltene Referenzen):

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i + (\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_i + \mathbf{R})^{-1} [\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y}_{meas} - \mathbf{y}(\mathbf{x}_i)) - \mathbf{R}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)]. \quad (3.1)$$

$\mathbf{S}_y$  ist dabei die zu  $\mathbf{y}_{meas}$  gehörende Fehlerkovarianzmatrix und  $\mathbf{y}(\mathbf{x}_i)$  ist der Vektor der Strahldichten, die mit dem Strahlungstransportmodell für den aktuellen Parametervektor  $\mathbf{x}_i$  simuliert wurden. Die Jacobimatrix  $\mathbf{K}_i$  besteht aus den partiellen Ableitungen der simulierten Strahldichte nach dem aktuellen Zustand, d.h.  $\partial \mathbf{y}(\mathbf{x}_i) / \partial \mathbf{x}_i$ .  $\mathbf{R}$  ist eine Matrix, die zur Regularisierung des Ergebnisprofils bei Unterbestimmtheit dient (Steck und von Clarmann 2001, Steck 2002, Rodgers 2000, von Clarmann 2003).

Die Herleitung der Jacobimatrix könnte mittels Bildung des Differenzenquotienten erfolgen. Dabei wird nacheinander auf jeden Parameter ein Inkrement aufgeschlagen und die vollständige Vorwärtsrechnung wiederholt. Dies bedeutet, dass für jeden Iterationsschritt (Anzahl der Parameter + 1) Vorwärtsrechnungen nötig wären, was einen erheblichen Rechenzeitaufwand bedeutet. KOPRA ist eines der ersten Linie-für-Linie Strahlungstransportmodelle, das im Fall des Spurengasretrievals die Jacobimatrix analytisch, also parallel zur direkten Vorwärtsrechnung, berechnen und damit eine für Satellitendatenauswertung praktikable Rechenzeit erzielen konnte (Höpfner et al. 1998b, Höpfner 2000a). Leitet man die Gleichung der diskretisierten Strahlungsübertragung (2.24) nach den atmosphärischen Parametern  $y$  ab, so erhält man<sup>4</sup>:

$$\begin{aligned} \frac{\partial L_\nu(x_B, \vec{n})}{\partial y} &= \sum_{k=1}^K \frac{\partial L_\nu(x_B, \vec{n})}{\partial k_{e,\nu,k}} \frac{\partial k_{e,\nu,k}}{\partial y} + \sum_{k=1}^K \frac{\partial L_\nu(x_B, \vec{n})}{\partial k_{a,\nu,k}} \frac{\partial k_{a,\nu,k}}{\partial y} \\ &\quad + \sum_{k=1}^K \frac{\partial L_\nu(x_B, \vec{n})}{\partial B_{\nu,k}} \frac{\partial B_{\nu,k}}{\partial y} + \sum_{k=1}^K \frac{\partial L_\nu(x_B, \vec{n})}{\partial J_{s,\nu,k}(\vec{n})} \frac{\partial J_{s,\nu,k}(\vec{n})}{\partial y}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Der dritte Summand, d.h. die Ableitung der Planckfunktion in Abhängigkeit von der Curtis-Godson-Temperatur der Schicht nach den Aerosolparametern, ist im Fall unseres Modells

---

<sup>4</sup> $k_{s,\nu,k}$  wurde dabei durch  $k_{e,\nu,k} - k_{a,\nu,k}$  ersetzt.

identisch Null, da hier nur spurengasgewichtete Schichtmitteltemperaturen verwendet werden<sup>5</sup> (Höpfner 2000b). Der letzte Term fällt lediglich bei nicht-streuenden Teilchen, d.h. im Rayleigh-Limit weg und muss für unsere Anwendung berücksichtigt werden.

Zur Berechnung von (3.2) werden die Nachableitungen gebildet. Aus  $k_{a,\nu,k}D_k = \sigma_{a,\nu,j,k}^e C_{j,k}$  folgt

$$\frac{\partial k_{a,\nu,k}}{\partial y} = \sigma_{a,\nu,j,k}^e \frac{\partial C_{j,k}}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{a,\nu,j,k}^e}{\partial y} C_{j,k}. \quad (3.3)$$

Entsprechendes gilt für den Extinktionskoeffizienten  $k_{e,\nu,k}$ . Die Bestimmung des vierten Terms von (3.2) erfordert die Ableitung des Streuintegrals (2.25):

$$\begin{aligned} \frac{\partial J_{s,\nu,k}(\vec{n})}{\partial y} &= \frac{1}{4\pi} \frac{\partial C_{j,k}}{\partial y} \int_{\Omega} p_{\nu,j,k}^e L_{\nu,k}(\vec{n}') d\vec{n}' \\ &\quad + \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega} \left( p_{\nu,j,k}^e(\vec{n}, \vec{n}') C_{j,k} \frac{\partial L_{\nu,k}(\vec{n}')}{\partial y} + \frac{\partial p_{\nu,j,k}^e}{\partial y} C_{j,k} L_{\nu,k}(\vec{n}') \right) d\vec{n}'. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Die atmosphärischen Aerosolparameter  $y$  sind in unserem Fall die Teilchenzahldichte  $N_j(h)$ , der Modenradius  $R_j(h)$ , die Modenbreite  $S_j(h)$  und die chemische Zusammensetzung  $c_j^b(h)$  des Aerosoltyps  $j$  in Abhängigkeit der Höhe  $h$  (siehe auch Abschnitt 2.2).

In Gleichung (3.3) ist die Bildung der spektralen Ableitungen nach der Teilchenzahldichte im Vergleich zu den übrigen Parametern einfach, da sie keine explizite Ableitung des Mie-Modells erfordert. Aus  $k_{a,\nu,k}D_k = \sigma_{a,\nu,j,k}^e C_{j,k}$  ergibt sich

$$\frac{\partial k_{a,\nu,k}}{\partial N_j(h)} = \sigma_{a,\nu,j,k}^e \frac{\partial C_{j,k}}{\partial N_j(h)}. \quad (3.5)$$

In (3.4) fällt der dritte Summand weg, da  $\frac{\partial p_{\nu,j,k}^e}{\partial C_{j,k}} = 0$  ist.

Die verbleibende Ableitung der Aerosol-Teilsäule  $C_{j,k}$  nach der Teilchenzahldichte erfolgt, je nach Höhenparametrisierung der Teilchenzahldichte, bei der Berechnung der Schichtintegrale. Im Fall von KOPRA wird dies numerisch ausgeführt, da so eine sehr flexible Definition der Höhenparametrisierung möglich ist (Höpfner et al. 1998b, Höpfner 2000a).

Will man Ableitungen nach Modenradius, -breite oder chemischer Zusammensetzung berechnen, ist es nötig, das Mie-Modell soweit zu erweitern, dass  $\frac{\partial \sigma_{a,\nu,j,k}^e}{\partial R_{j,k}}$ ,  $\frac{\partial \sigma_{a,\nu,j,k}^e}{\partial S_{j,k}}$ ,  $\frac{\partial \sigma_{a,\nu,j,k}^e}{\partial c_{j,k}^b}$  und die gleichen Ausdrücke für  $\sigma_{a,\nu,j,k}^e$  und  $p_{\nu,j,k}^e(\vec{n}, \vec{n}')$  bestimmt werden. Beispielsweise folgt aus Gleichung (2.19) für den effektiven Absorptionsquerschnitt:

---

<sup>5</sup>Bei einer entsprechend feinen Diskretisierung der Vorwärtsmodellschichten, wie es bei Strahlungstransportrechnungen im Beisein von dünnen Wolken nötig ist, besteht keine Notwendigkeit einer solchen Gewichtung (Höpfner und Kellmann 2000).

$$\frac{\partial \sigma_{a,\nu,j,k}^e}{\partial y} = C_{j,k}^{-1} \int_0^\infty \left( \sigma_{a,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k)) \frac{\partial n_{j,k}(r)}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{a,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k))}{\partial y} n_{j,k}(r) \right) dr. \quad (3.6)$$

Für  $y = R_{j,k}$  bzw.  $y = S_{j,k}$  bleibt unter dem Integral nur der erste Summand übrig. Wie gegen Ende des Abschnitts 2.2.2 beschrieben, wird im Vorwärtsmodell-internen Mie-Modul Gleichung (2.19) über eine Gauss-Hermiteschen Quadratur gelöst. Diese wurde dahingehend erweitert, dass auch die Integration über die aus Gleichung (2.18) analytisch zu berechnenden Ableitung der Größenverteilung nach  $R_{j,k}$  und  $S_{j,k}$  (multipliziert mit  $\sigma_{a,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k))$ ) rechenzeitoptimiert bestimmt werden kann. Will man dagegen nach der chemischen Zusammensetzung von Mischaersolpartikel differenzieren (d.h.  $y = c_{j,k}^b$ ) so folgt aus (3.6):

$$\begin{aligned} \frac{\partial \sigma_{a,\nu,j,k}^e}{\partial c_{j,k}^b} &= C_{j,k}^{-1} \frac{\partial \tilde{m}_{1,\nu}(c_{j,k}^b, T_k)}{\partial c_{j,k}^b} \int_0^\infty \frac{\partial \sigma_{a,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k))}{\partial \tilde{m}_{1,\nu}(c_{j,k}^b, T_k)} n_{j,k}(r) dr \\ &\quad + C_{j,k}^{-1} \frac{\partial \tilde{m}_{2,\nu}(c_{j,k}^b, T_k)}{\partial c_{j,k}^b} \int_0^\infty \frac{\partial \sigma_{a,\nu,j}(r, \tilde{m}_\nu(c_{j,k}^b, T_k))}{\partial \tilde{m}_{2,\nu}(c_{j,k}^b, T_k)} n_{j,k}(r) dr. \end{aligned} \quad (3.7)$$

Die partiellen Differenziale des Absorptionsquerschnitts (bzw. Extinktionsquerschnitts oder Phasenfunktion) nach dem Realteil ( $\tilde{m}_{1,\nu}(c_{j,k}^b, T_k)$ ) und dem Imaginärteil ( $\tilde{m}_{2,\nu}(c_{j,k}^b, T_k)$ ) des Brechungsexponenten werden im Mie-Modul numerisch berechnet. Die Ableitungen des Brechungsexponenten nach der Aerosolzusammensetzung werden in den für die Berechnung des Brechungsexponenten spezifischen Unterprogrammen bestimmt und sind Eingabegrößen des Mie-Moduls.

### 3.3 Validierung des Inversionsmodells anhand von Labormessungen

Zur Validierung des Inversionsmodells mit realen Daten wurden Laborspektren verwendet, die an der Aerosolkammer AIDA (Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere) (Wagner et al. 2006b) des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung am Forschungszentrum Karlsruhe gemessen wurden (R. Wagner und H. Saathoff, pers. Mitteilung). Während verschiedener Labormesskampagnen wurden binäre  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ , ternäre  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}/\text{HNO}_3$  Tröpfchen und die homogene bzw. heterogene Bildung von Eisteilchen untersucht (Wagner et al. 2003; 2005b; 2006a). Abb. 3.2 zeigt die gemessenen Spektren (schwarze Kurven), für die eine Analyse mittels des KOPRA-Inversionsmodells durchgeführt wurde. Man erkennt beispielsweise bei den Spektren von Eisteilchen (s42, s62, s65, Eis1, Eis2) die typischen Absorptionssignaturen um  $850$  und  $3200 \text{ cm}^{-1}$ , wobei vor allem letztere durch die stärkeren Streueffekte bei größeren Teilchen (s62, s65, Eis1, Eis2) zu längeren Wellenlängen hin verschoben sind. Auch unterscheiden sich die Spektren der Tröpfchen, die  $\text{HNO}_3$  enthalten (Tern1, Tern2), durch die  $\text{NO}_3^-$ -Signatur zwischen  $1300$  und  $1500 \text{ cm}^{-1}$  von den übrigen. Weiterhin zeichnet sich s41, bei dem die Tröpfchen einen großen Anteil

$\text{H}_2\text{SO}_4$  enthielten durch die Sulfatbande zwischen 1000 und 1200  $\text{cm}^{-1}$  aus. Schmalbandige Signaturen in einzelnen Spektren stammen von Spurengasen, die in der Aerosolkammer vorhanden waren (z.B.  $\text{CO}_2$ : 2300–2400  $\text{cm}^{-1}$  und 3600–3750  $\text{cm}^{-1}$ ,  $\text{O}_3$ : 1000–1100  $\text{cm}^{-1}$  und um 2100  $\text{cm}^{-1}$ ,  $\text{NO}_2$ : 1600–1650  $\text{cm}^{-1}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ : 1400–1800  $\text{cm}^{-1}$  und 3600–3900  $\text{cm}^{-1}$ ).

Bei der Analyse der Spektren wurden mikrophysikalischen Größen wie Anzahldichte, Modenradius und Modenbreite einer Log-Normalverteilung (siehe auch Gleichung 2.12) und Konzentrationen von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in der flüssigen Phase gemeinsam mit den Spurengasen angepasst. Dabei ist zu beachten, dass im Fall kleinerer Teilchen oft nicht alle drei Größenparameter gleichzeitig abgeleitet werden konnten, da Modenbreite und der mittlere Radius dann linear stark voneinander abhängen (z.B. Echle et al. (1998)). Abb. 3.2 zeigt den Vergleich der Messungen mit bestangepassten Rechnungen. Die Ergebnisse der Anpassungsrechnung werden in Tab. 3.1 mit unabhängigen Messungen verglichen (R. Wagner und H. Saathoff, pers. Mitteilung).

Messung/ KOPRA	Anzahldichte $N [\text{cm}^{-3}]$	Modenradius $R [\mu\text{m}]$	Modenbreite $S$	Volumendichte $V [\mu \text{ m}^3 \text{ cm}^{-3}]$	$\text{H}_2\text{SO}_4$ gw%	$\text{HNO}_3$ gw%
s42 in-situ		0.5	0.095			
s42 IR-fit <sup>a</sup>	1235	0.39	0.095 <sup>f</sup>	319.6		
s65 in-situ	798	0.7	0.307	1752.2		
s65 IR-fit <sup>a</sup>	737	0.807	0.27	2252.4		
s62 in-situ	28	2.1	0.122	1161.4		
s62 IR-fit <sup>a</sup>	30.2	2.07	0.127	1206.5		
s62 IR-fit <sup>b</sup>	29.9	2.09	0.154	1272.2		
Eis1 in-situ	200			7500		
Eis1 IR-fit <sup>a</sup>	215.8	1.91	0.19	7464		
Eis1 IR-fit <sup>b</sup>	238.9	1.78	0.261	7641		
Eis2 in-situ	210			19500		
Eis2 IR-fit <sup>a</sup>	190.3	2.7	0.21	19191		
Eis2 IR-fit <sup>b</sup>	188.0	2.69	0.24	19887		
s41 in-situ	13000	0.0805	0.548	109.7	35	
s41 IR-fit <sup>c</sup>	16200	0.104	0.548 <sup>f</sup>	294.8	36.0	
s41 IR-fit <sup>d</sup>	15400	0.103	0.548 <sup>f</sup>	272.3	38.3	
Tern1 in-situ				1000	14	33
Tern1 IR-fit <sup>c</sup>	27681	0.18	0.3 <sup>f</sup>	1012	14.4	34.5
Tern1 IR-fit <sup>e</sup>	30518	0.178	0.3 <sup>f</sup>	1087	19.6	33.5
Tern2 in-situ				1700	8	42
Tern2 IR-fit <sup>c</sup>	45822	0.192	0.3 <sup>f</sup>	2045	10.3	57.7
Tern2 IR-fit <sup>e</sup>	44755	0.194	0.3 <sup>f</sup>	2049	11.4	45.5

<sup>a</sup>Brechungsindizes von Clapp et al. (1995), <sup>b</sup>Brechungsindizes von Toon et al. (1994),

<sup>c</sup>Brechungsindizes von Biermann et al. (2000), <sup>d</sup>Brechungsindizes von Niedziela et al. (1998b; 1999),

<sup>e</sup>Brechungsindizes von Niedziela et al. (1998b; 1999) und Norman et al. (1999), <sup>f</sup>fest vorgegeben.

Tabelle 3.1: Ergebnisse der Anpassungsrechnungen an die AIDA-Spektren mittels KOPRA im Vergleich zu unabhängigen Messungen.

Die gemessenen Eisspektren (s42, s65, s62, Eis1, Eis2) konnten gut durch einen Fit der Größenparameter angepasst werden. Lediglich bei dem Spektrum der kleinsten Teilchen (s42)

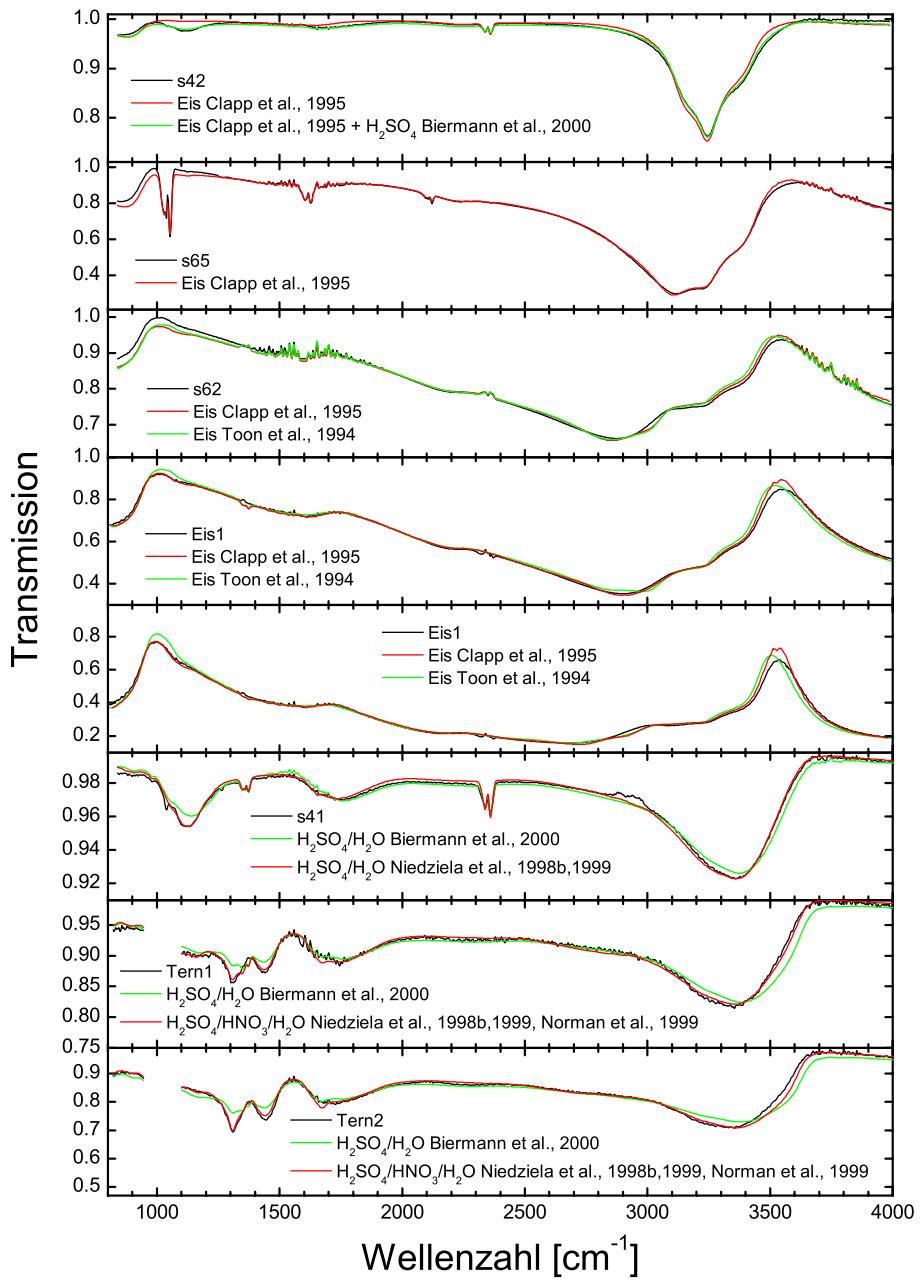


Abbildung 3.2: Anpassung von KOPRA-Rechnungen an Laborspektren aus AIDA-Messkampagnen.

musste die Modenbreite vorgegeben werden, da die Verwendung aller drei Größenparameter nicht zu einer Konvergenz führte. Um eine gute Übereinstimmung zwischen  $1000$  und  $1200 \text{ cm}^{-1}$  und um  $1700 \text{ cm}^{-1}$  zu erreichen, war es bei diesem Spektrum nötig, zusätzlich zu Eis einen Beitrag von Schwefelsäure anzupassen. Allgemein ist die Qualität der Anpassung an die Spektren von Eisteilchen sehr gut, wobei größte Differenzen zwischen Rechnung

und Messung in den Wellenzahlbereichen um  $1000\text{ cm}^{-1}$  und um  $3500\text{ cm}^{-1}$  auftreten. Die Ergebnisse der abgeleiteten Parameter (Tab. 3.1) zeigen für s65 und s62, die im Jahr 2000 gemessen wurden, im Vergleich zu unabhängig bestimmten Parametern Unterschiede von ca. 8% in der Anzahldichte, 0.5–15% im mittleren Radius, 4–26% in der Modenbreite und 3.9–28% in der Volumendichte. Bei Messungen aus dem Jahr 2003 (Eis1 und Eis2) liegen die Unterschiede in der Anzahldichte im Bereich von 8–20% und in der Volumendichte bei lediglich 0.5–2%.

Im allgemeinen treten größere Unterschiede zwischen gemessenem Spektrum und Rechnung, wie auch bei den abgeleiteten Größen und den unabhängig bestimmten Parametern bei Verwendung der Brechungsindizes von Eis, die von Toon et al. (1994) bestimmt wurden, auf. Ein Grund dafür könnte die Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes sein, da die Daten von Toon et al. (1994) bei 166 K bestimmt wurden, während diejenigen von Clapp et al. mit 200 bzw. 210 K näher an denen der Messung (um 200 K für s42, s62, s65 und um 220 K für Eis1 und Eis2) lagen. Eine weitere Unsicherheit in der Anpassung von Eisteilchen-Spektren mit KOPRA besteht in der Verwendung eines Mie-Modells, das streng genommen nur für sphärische Partikel gültig ist. Eine sehr gute Übersicht über Effekte, beispielsweise durch nicht-sphärische Partikel oder Annahmen über die Größenverteilungen, die die Bestimmung von mikrophysikalischen Eigenschaften von Eisteilchen aus Infrarotspektren beeinflussen können, geben Wagner et al. (2006a).

An das Laborspektrum von Schwefelsäuretröpfchen (s41) wurden drei freie Parameter angepasst: die Anzahldichte, der Modenradius und die Schwefelsäurekonzentration. Die Modenbreite wurde auf dem von unabhängigen Messungen bestimmten Werte festgehalten (Tab. 3.1). Auch wurden die Rechnungen mit zwei unterschiedlichen Sätzen von Brechungsindizes durchgeführt: Biermann et al. (2000) und Niedziela et al. (1998b; 1999). Wie Abb. 3.2 zeigt, scheinen dabei Daten von Niedziela et al. (1998b; 1999) gerade im Bereich der Sulfatbande um  $1100\text{ cm}^{-1}$  besser zu den Messungen zu passen. Dies wurde von Wagner et al. (2003) gezeigt (siehe auch Abschnitt 2.3.3.1). Die erhaltenen Größenparameter (Tab. 3.1) zeigen, verglichen mit der unabhängigen Messung, um ca. 30% größere mittlere Radien und um 18–25% höhere Anzahldichten. Die abgeleitete Konzentration von Schwefelsäure in den Tröpfchen ist mit 3–9% geringfügig höher als die Referenz.

Auch bei den Anpassungsrechnungen an die Spektren von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen (Tern1, Tern2) wurden unterschiedliche Brechungsindex-Datensätze von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und  $\text{HNO}_3$  verwendet: zum einen diejenigen von Biermann et al. (2000) und zum anderen diejenigen von Niedziela et al. (1998b; 1999) für  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in Verbindung mit Brechungsindizes von Norman et al. (1999) für  $\text{HNO}_3$ . Um aus den Brechungsindizes der binären Lösungen diejenigen der ternären zu erhalten, wurde in beiden Fällen die Mischungsregel von Biermann et al. (2000) (siehe auch Abschnitt 2.3.3.3) verwendet. Der Vergleich von simulierten und gemessenen Spektren (Abb. 3.2) zeigt eine deutlich bessere Übereinstimmung im Fall des (Niedziela et al. 1998b; 1999, Norman et al. 1999)-Datensatzes, wie in der Studie von Wagner et al. (2003) dargelegt wurde. Diese Verbesserung zeigt sich besonders deutlich im Bereich der Nitratbanden zwischen 1200 und  $1500\text{ cm}^{-1}$ . Auch liegen die abgeleiteten Gewichtsanteile von  $\text{HNO}_3$  bei beiden Beispielen für (Niedziela et al. 1998b; 1999, Norman et al. 1999) mit 0.5 und 3.5 gw% deutlich besser bei den unabhängigen Messungen als diejenigen von Biermann et al. (2000) (1.5 und 15.7 gw%). Im Gegensatz dazu passen die Ergebnisse von  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , die auf der Grundlage der Biermann et al. (2000)-Brechungsindizes bestimmt wurden mit Un-

terschieden von 0.4 bzw. 2.3 gw% besser als bei Verwendung der optischen Konstanten von Niedziela et al. (1998b; 1999), Norman et al. (1999), die zu Differenzen von 5.6 und 3.4 gw% führen. Eine systematische Überschätzung der Ergebnisse wurde auch von Wagner et al. (2005b) festgestellt. Die Differenzen im spektralen Fit bzw. den abgeleiteten Parametern werden durch Verwendung der Mischungsregel, durch eine nicht beschriebene Temperaturabhängigkeit der Brechungsindizes oder durch Ungenauigkeiten der binären Daten erklärt (Wagner et al. 2005b).

Ziel dieses Abschnitts war die Überprüfung des entwickelten Inversionsmodells von mikrophysikalischen Teilcheneigenschaften (Anzahldichte, Modenradius, Modenbreite und Zusammensetzung) anhand von Laborspektren. Aus der im Rahmen von diskutierten Fehlern guten Übereinstimmung von (a) simulierten mit gemessenen Spektren und (b) von abgeleiteten und unabhängig gemessenen Parametern kann von der Eignung des Modells für atmosphärische Anwendungen ausgegangen werden.

# 4. Ableitung von PSC-Eigenschaften aus solaren Absorptionsmessungen

Erstmalig wurde das in den Kapiteln 2 und 3 beschriebene Strahlungsübertragungsprogramm in Verbindung mit dem Inversionsschema zur Auswertung von PSC-Messungen im Januar 2000 durch ein vom Boden aus betriebenes FTIR-Spektrometer angewandt (Zimmermann 2000, Höpfner et al. 2001). In den folgenden Abschnitten werden Messung und Datenauswertung beschrieben und mögliche Fehlerquellen diskutiert. Die Ergebnisse wurden mit flugzeuggebundenen Lidar-Beobachtungen verglichen, die PSCs am selben Ort wie das FTIR sondierten.

## 4.1 Beschreibung der Messung

Abb. 4.1 zeigt zwei Spektren der durch die Gasabsorption und Partikelextinktion der Erdatmosphäre geschwächten solaren Strahldichte, wie sie von Kiruna aus im Januar 2000 aufgenommen wurden. Das hierzu verwendete Messgerät war ein spektral hochauflösendes FTIR-Spektrometer (Bruker IFS 120 HR).<sup>1</sup> Obwohl beide Messungen unter ähnlichem Sonnenelevationswinkel aufgenommen wurden und daher der Lichtpfad durch die Atmosphäre eine vergleichbare Länge hatte, wurden am 26. Januar wesentlich kleinere Strahldichtewerte als am 22. Januar beobachtet. Der Grund dafür waren PSCs, die sich am 26.1.2000 im Sehstrahl des Instruments befanden, während am 22.1.2000 der Himmel wolkenfrei war. Diese PSCs konnten am 26. Januar auch mit dem Auge wahrgenommen werden (F. Hase, pers. Mitteilung). Eine Abschätzung der spektralen optischen Dicke der Wolke kann durch Quotientenbildung und Logarithmieren der wolkenfreien und wolken-beeinflussten Strahldichtewerte gewonnen werden. Das Ergebnis ist im unteren Teil der Abb. 4.1 dargestellt. Vergleicht man den Verlauf der optischen Dicke in spektralen Fenstern, die wenig von Spurengasabsorption beeinflusst sind (z.B. um  $840$  und  $950\text{ cm}^{-1}$ ) mit den Imaginärteilen von Brechungsindizes verschiedener PSC-Kandidaten so zeigt sich die größte Übereinstimmung mit der Absorption von Wassereis.

<sup>1</sup>Die Messungen wurden mittels eines Laborschwarzkörpers kalibriert. Ein Strahldichteuntergrund, wie er durch Nichtlinearität des Detektors verursacht wird, kann im Bereich der optisch dicken Ozonbande abgeschätzt werden. Im betrachteten Fall ist er kleiner  $0.01\text{ mW}/(\text{cm}^2\text{ sr cm}^{-1})$ . Zudem wurde regelmäßig die spektrale Linienform mittels Gaszellenmessungen überprüft (Hase et al. 1999, Hase 2000b).

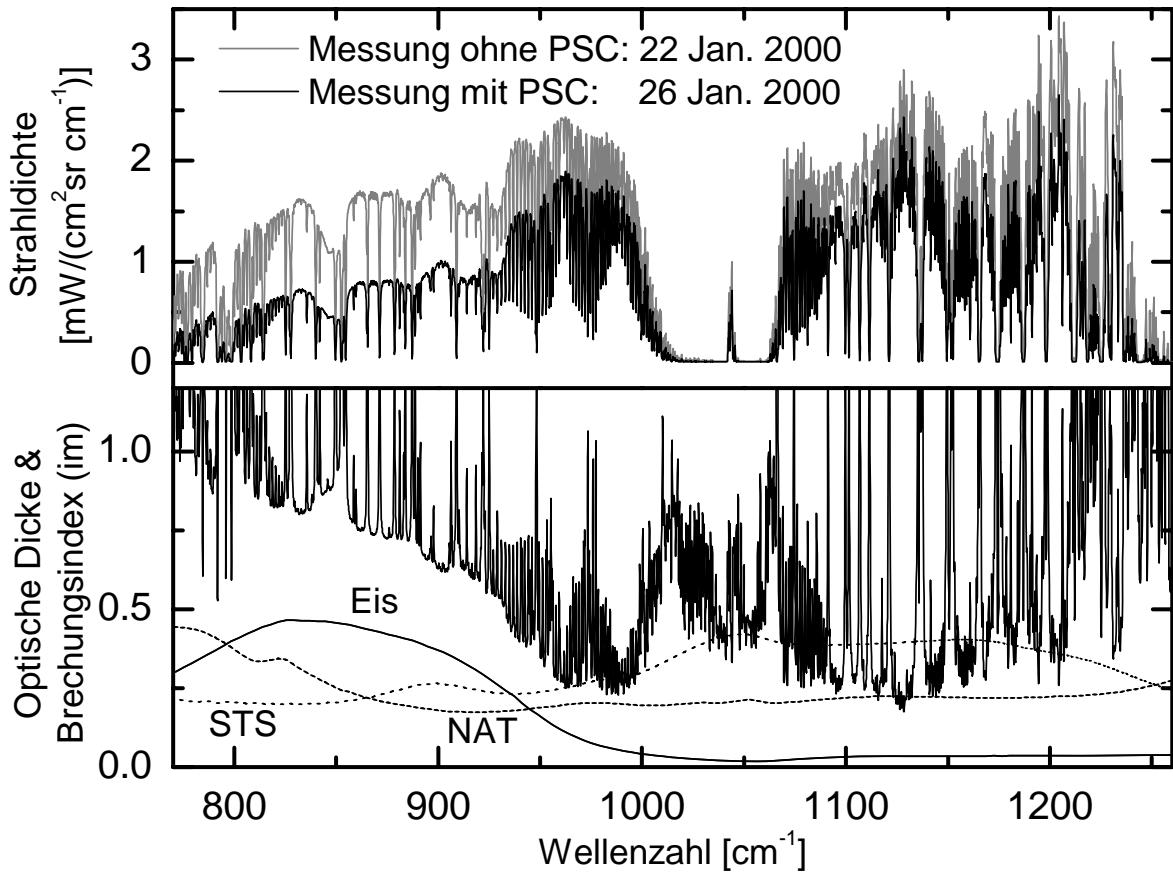


Abbildung 4.1: Oben: Vergleich einer PSC-freien FTIR-Messung vom 22.1.2000 mit einem Spektrum vom 26.1.2000, das durch PSCs im Sehstrahl beeinflusst war. Die spektrale Auflösung beträgt  $0.14 \text{ cm}^{-1}$ . Unten: Optische Dicke der PSC vom 26.1.2000 entlang des Sehstrahls im Vergleich mit den Imaginärteilen verschiedener Brechungsindizes (NAT, ICE: Toon et al. (1994), STS: Biermann et al. (2000)).

## 4.2 Datenauswertung

Zur Ableitung von PSC-Eigenschaften aus der Messung vom 26.1.2000 wurden in einem ersten Schritt Höhenprofile der Spurengase mit den dominierenden spektralen Signaturen ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  und  $\text{HNO}_3$ ) aus einer wolkenfreien, spektral hoch aufgelösten Messung des gleichen Tages bestimmt (F. Hase, pers. Mitteilung). Auf Grundlage dieser Profile wurden breitbandige Anpassungsrechnungen an das PSC-beeinflusste Spektrum durchgeführt. Freie Parameter der Aerosolgrößenverteilung waren dabei die Teilchenanzahldichte  $N$  und die Modenbreite  $R$  einer monomodalen Log-Normalverteilung (Gleichung 2.12). Diese wurden über den Bereich der Wolke (23–25.5 km)<sup>2</sup> als konstant angenommen und in den anderen Höhen auf Null gesetzt. Zur Beschreibung von Unsicherheiten in der absoluten Kalibrierung der Spektren infolge der Vernachlässigung der Umlenkspiegel des Sonnensuchers wurde zusätzlich ein Korrekturfaktor mit angepasst. Die Anpassungsrechnungen wurden für unterschiedliche Werte der Modenbreite  $S$  wiederholt, da, ähnlich wie im Falle von Labormessun-

<sup>2</sup>Hierfür wurde die Höheninformation aus Lidarmessungen am Ort der PSC verwendet (siehe unten).

gen kleiner Teilchen (siehe Abschnitt 3.3),  $S$  nicht als freier Fitparameter verwendet werden konnte<sup>3</sup>.

Es wurden Brechungsindex-Datensätze unterschiedlicher Substanzen als Grundlage für die obigen Rechnungen verwendet (siehe Abschnitt 2.3). Die eindeutig beste Anpassung ergab sich bei Annahme von Wassereis. Abb. 4.2 zeigt die Messung im Vergleich zu den besten Ergebnissen für  $\alpha$ -NAT und für Wassereisteilchen. Bei  $\alpha$ -NAT ist deutlich, dass die Absorptionsbande unterhalb  $1000 \text{ cm}^{-1}$  nicht beschrieben werden kann, während dies bei Eis eindeutig der Fall ist.

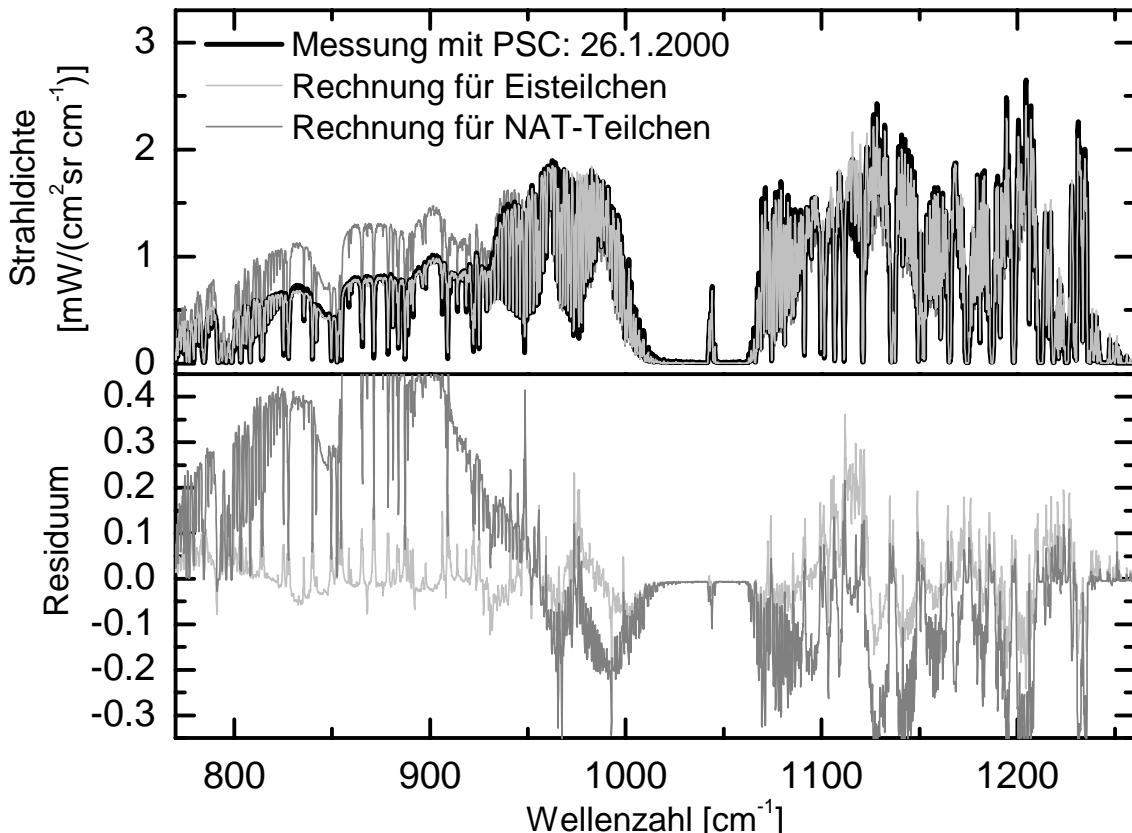


Abbildung 4.2: Oben: Vergleich der FTIR-PSC Beobachtung vom 26.1.2000 mit Anpassungsrechnungen für Eisteilchen und für  $\alpha$ -NAT-Teilchen. Unten: Residuen der Anpassung (Rechnung-Messung).

In Tab. 4.1 sind die Ergebnisse der Anpassungsrechnungen für Eispartikelverteilungen mit unterschiedlichen Modenbreiten eingetragen. Bei Variation der Modenbreite von 0.05–0.4 kam es zu keiner wesentlichen Änderung der Anpassungsgüte. Die resultierenden Teilchenzahldichten liegen im Bereich  $1.85\text{--}5.06 \text{ cm}^{-3}$  und die Radien zwischen  $2.01$  und  $1.11 \mu\text{m}$ . Hingegen ist die abgeleitete Volumendichte mit  $63.8\text{--}60.2 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  wesentlich besser bestimmt. Dies röhrt daher, dass man sich mit Teilchenradien von  $1\text{--}2 \mu\text{m}$  noch nahe am Rayleighlimit befindet.

---

<sup>3</sup>Dort war dies zwar für größere Teilchen möglich, jedoch nur wegen der breiteren spektralen Abdeckung zu kürzeren Wellenlängen hin.

$S$	Skalierungsfaktor	$N$ [ cm $^{-3}$ ]	$R$ [ $\mu\text{m}$ ]	Oberflächendichte [ $\mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ ]	Volumendichte [ $\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ ]	Anpassungsgüte RMS [ $\frac{\text{mW}}{\text{cm}^2\text{srcm}^{-1}}$ ]
0.05	0.68	1.85	2.01	94.7	63.8	0.659
0.1	0.68	1.96	1.95	95.6	63.8	0.660
0.2	0.68	2.37	1.75	98.7	63.5	0.661
0.4	0.68	5.06	1.11	108.7	60.2	0.666

Tabelle 4.1: Ergebnisse der Anpassungsrechnung unter Annahme unterschiedlicher Modenbreiten  $S$  einer monomodalen Log-Normalverteilung (siehe Gleichung 2.12).

Fehlerquelle	$\Delta N\%$	$\Delta R\%$	$\Delta S\%$	$\Delta$ Volumendichte %
Brechungsindex	+7.3	-2.3	+2.2	+0.0
T+5 K gesamter Höhenbereich	+6.1	-0.1	+5.8	+5.9
T-10 K untere Stratosphäre	+3.3	-1.6	+0.0	-1.6
Spurengasprofile $\times 1.05$	+9.4	-3.4	+2.0	-1.2
Nicht-sphärische Teilchen	+3.8	-2.2	-1.2	-4.0

Tabelle 4.2: Einfluss verschiedener systematischer Fehler auf das Ergebnis der Ausgleichsrechnung.

Zur Fehlerabschätzung wurden Sensitivitätstests hinsichtlich von Unsicherheiten in den angenommenen Brechungsindizes, im Temperaturprofil, in den Spurengasprofilen und der Partikelform durchgeführt. Die Einzelergebnisse sind in Tab. 4.2 aufgeführt. Alle abgeschätzten Fehler der Volumendichte liegen unter 6%. Hierbei ist natürlich zu beachten, dass es sich nicht um einen lokalen Wert, sondern um eine mittlere Volumendichte über den angenommenen Höhenbereich von 23–25.5 km handelt. Durch den verwendeten breiten Spektralbereich liegt der Fehler, der durch Rauschen in der Messung zustande kommt, bei <1%.

Zur Überprüfung der Plausibilität der erhaltenen Volumendichte wurde diese unter Annahme des Drucks und der Temperatur in das äquivalente Volumenmischungsverhältnis von Wasserdampf auf 24 km Höhe umgerechnet. Mit 2.5 ppmv liegt das Ergebnis in einem für die untere Stratosphäre realistischen Bereich. Hiermit kann auch ein größerer Einfluss troposphärischer Wolken weitgehend ausgeschlossen werden, da sonst wesentlich höhere Werte der Volumendichten zu erwarten wären. Auch das Ergebnis, dass es sich um Wassereis- und nicht um NAT- oder STS-Teilchen handelt, wird hierdurch bestätigt: da das verfügbare gasförmige  $\text{HNO}_3$  in der unteren Stratosphäre in der Größenordnung von 10 ppbv liegt, ist es unmöglich einen derart hohen Wert der Volumendichte, wie er aus der FTIR-Messung abgeleitet wurde, zu erhalten.

### 4.3 Vergleichsmessungen

Im Rahmen der SOLVE/THESEO-Kampagne fand ebenfalls am 26.1.2000 über Nordskandinavien ein Messflug des Forschungsflugzeugs Falcon des DLR statt. Im oberen Teil von Abb. 4.3 ist der südliche Teil des Flugs, der ungefähr zwei Stunden nach der FTIR-PSC-Messung

von Westen nach Osten über den skandinavischen Gebirgsrücken hinweg verlief, dargestellt. Ebenfalls eingezeichnet ist der Sehstrahl des FTIR während der PSC-Beobachtung, wobei der Bereich, in dem der Strahl eine Höhe von 23–25.5 km erreicht, hervorgehoben ist. An Bord der Falcon befand sich das OLEX-Lidar des DLR, das PSCs oberhalb des Flugzeugs erfasst (siehe Abschnitt 1.5.4). Die beiden Graphen im mittleren und unteren Teil von Abb. 4.3 stellen das Rückstreuverhältnis bei 1064 nm und die Depolarisation bei 532 nm dar, die durch das Lidar entlang der Flugtrajektorie beobachtet wurden. Die hohen Werte des Rückstreuverhältnisses und der Depolarisation im zentralen Teil der Wolke belegen, dass es sich um eine Eis-PSC (Typ 2) gehandelt hat. Dies mag angesichts der Temperaturen von über 192 K, die als Isolinien auf der Abbildung dargestellt sind, überraschen, da Eis in diesen Höhen erst unterhalb von ca. 185 K existiert. Hierbei handelt es sich jedoch um synoptische Temperaturen, die lokale Effekte nicht oder nur im Ansatz erfassen. Am unteren Rand der Wolke erkennt man wellenartige Strukturen mit einer Amplitude von über einem Kilometer vertikaler Ausdehnung. Eine entsprechende Hebung der Luft kann zu adiabatischer Abkühlung von ca. 10 K, d.h. zu Temperaturen unterhalb von 185 K führen, was die Bildung von Eis-PSCs ermöglicht. Der vertikale weiße Balken, der den Lidar Messungen in Abb. 4.3 überlagert ist, zeigt, dass das Gesichtsfeld des FTIR an der Stelle des Flugpfads im Höhenbereich der größten vertikalen Ausdehnung der PSC lag. Das Lidar bestätigt also die Aussage des FTIR, dass es sich größtenteils um eine Eis-Wolke handelte. S. Fueglistaler simulierte die Lidar Beobachtungen mit Hilfe eines T-matrix Programms, das die Berechnung optischer Teilcheneigenschaften auch bei nicht-sphärischen Teilchen erlaubt (Mishchenko 1991, Mishchenko et al. 1996). Unter Anwendung der mit dem FTIR abgeleiteten Größenparameter (Tab. 4.1) ergaben sich Lidar-Rückstreuverhältnisse von 522, 492, 423 und 273 bei Variation der Modenbreite  $S$  von 0.05 bis 0.4. Diese Ergebnisse sind konsistent mit den gemessenen Werten des Rückstreuverhältnisses, das im Bereich  $\pm 15$  km um den Ort des FTIR-Sehstrahls bei  $384 \pm 62$  lag. Dieses Ergebnis war robust gegenüber einer Variation der Teilchenform.

## 4.4 Zusammenfassung

Zum ersten Mal wurden aus einer bodengebundenen solaren Absorptionsmessung mit einem FTIR im mittleren IR Eigenschaften von PSCs abgeleitet. Aus dem spektralen Verlauf und der Stärke der Absorption konnte eindeutig gezeigt werden, dass es sich um Eisteilchen handelte. Mittels breitbandiger Anpassungsrechnungen wurde eine mittlere Volumendichte im Bereich der Wolke von  $63 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  mit einem systematischen Fehler von  $\pm 8\%$  bestimmt. Dies entspricht einem Volumenmischungsverhältnis kondensierten Wassers von 2.5 ppmv in 20 hPa Höhe und ist daher verträglich mit dem verfügbaren Wasserdampfgehalt. Die Ergebnisse konnten weiterhin durch Messungen mit einem flugzeuggetragenen Lidar hinsichtlich der PSC-Zusammensetzung und der abgeleiteten Größenparameter bestätigt werden.

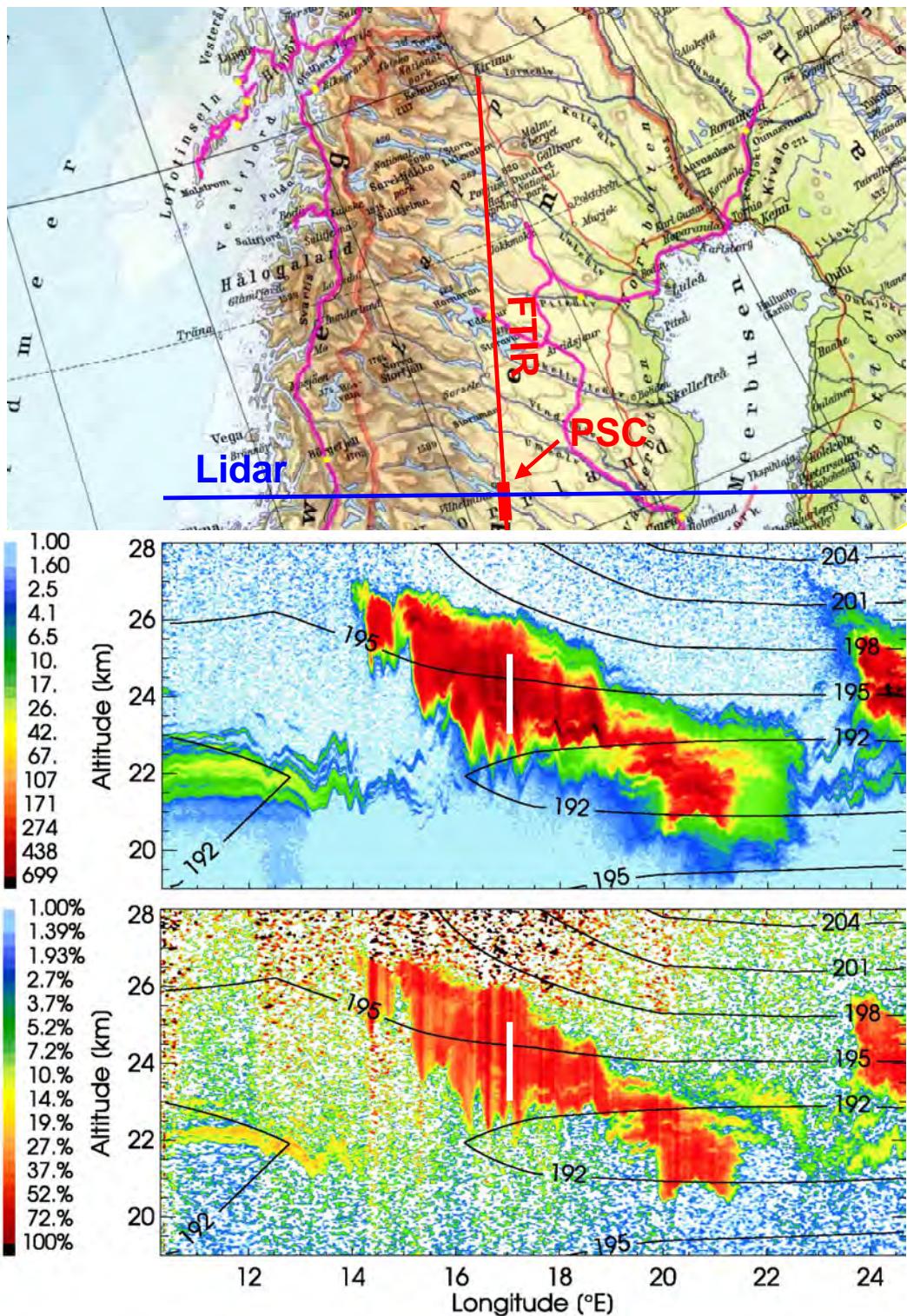


Abbildung 4.3: Oben, rote Linie: Verlauf des FTIR-Sehstrahls von Kiruna aus in Richtung der Sonne. Der verdickte Bereich zeigt das Intervall an, in dem sich das Zentrum des Sehstrahls in einer Höhe von 23-25 km befand. Blaue Linie: Trajektorie der Messung des OLEX-Lidars der DLR auf der Falcon. Mitte: Lidar-Rückstreusignalverhältnis bei 1064 nm. Die vertikale weiße Linie zeigt den Bereich an in dem das Gesichtsfeld des FTIR die Lidarmessung durchschneidet. Isolinien der synoptischen Temperatur (ECMWF) sind überlagert. Unten: Lidar-Depolarisation bei 532 nm. (Adapted from Höpfner et al. (2001), ©2001 American Geophysical Union, reproduced by permission of American Geophysical Union.)

# 5. Ableitung von PSC-Eigenschaften aus MIPAS-Ballonmessungen

Wie in Abschnitt 2.5 mittels Strahlungstransportrechnungen gezeigt wurde, können Photonen, die ihren Ursprung in der Troposphäre haben, erheblich zu der von PSCs ausgehenden und von horizontbeobachtenden Instrumenten gemessenen Strahldichte im mittleren IR beitragen. Zum ersten Mal konnte dieser Effekt anhand von Messungen mit dem ballongetragenen MIPAS-B Instrument bei einem Flug am 11. Januar 2001 von Kiruna aus nachgewiesen werden (Höpfner et al. 2002)<sup>1</sup>.

## 5.1 Beschreibung der Messung

MIPAS-B ist ein Fouriertransformspektrometer zur Beobachtung der Atmosphäre in Horizontsondierung von Stratosphärenballons aus. Es misst die von Molekülen emittierte und von Aerosolen und Wolkenteilchen emittierte und gestreute Strahlung in vier Kanälen im mittleren IR ( $770\text{-}1950\text{ cm}^{-1}$ ) mit einem optischen Hub von 14.7 cm, entsprechend einer spektralen Auflösung von  $0.034\text{ cm}^{-1}$ .

Abb. 5.1 zeigt die Flugtrajektorie und die Position der Horizontsondierungsmessungen des MIPAS-B Flugs vom 11.1.2000, der von Esrange bei Kiruna aus startete. Die Flughöhe betrug rund 28.5 km mit tiefsten Tangentenhöhen von 10 km. Alle Messungen fanden innerhalb des Polarwirbels statt. Anhand des unterlegten Temperaturfelds deutet sich an, dass im Bereich der nördlichen Tangentenpunkte die Temperaturen eher unterhalb der NAT-Temperatur lagen, während im Süden kaum mit PSCs zu rechnen war.

Dies wurde durch die Messungen bestätigt von denen zwei - die eine davon nach Norden (blau) und die andere nach Süden blickend (rot) - in Abb. 5.2 dargestellt sind. Der spektrale Verlauf der Messung in Blickrichtung Norden unterscheidet sich in vier wesentlichen Punkten von dem südlichen Spektrum:

1. Ein stark erhöhter, breitbandiger Strahlungsuntergrund.
2. Eine auffällige Kante bei  $820\text{ cm}^{-1}$ .

---

<sup>1</sup>Diese Messungen waren der eigentliche Ausgangspunkt für die Implementierung von Streuung in KOPRA und die darauf folgenden Studien.

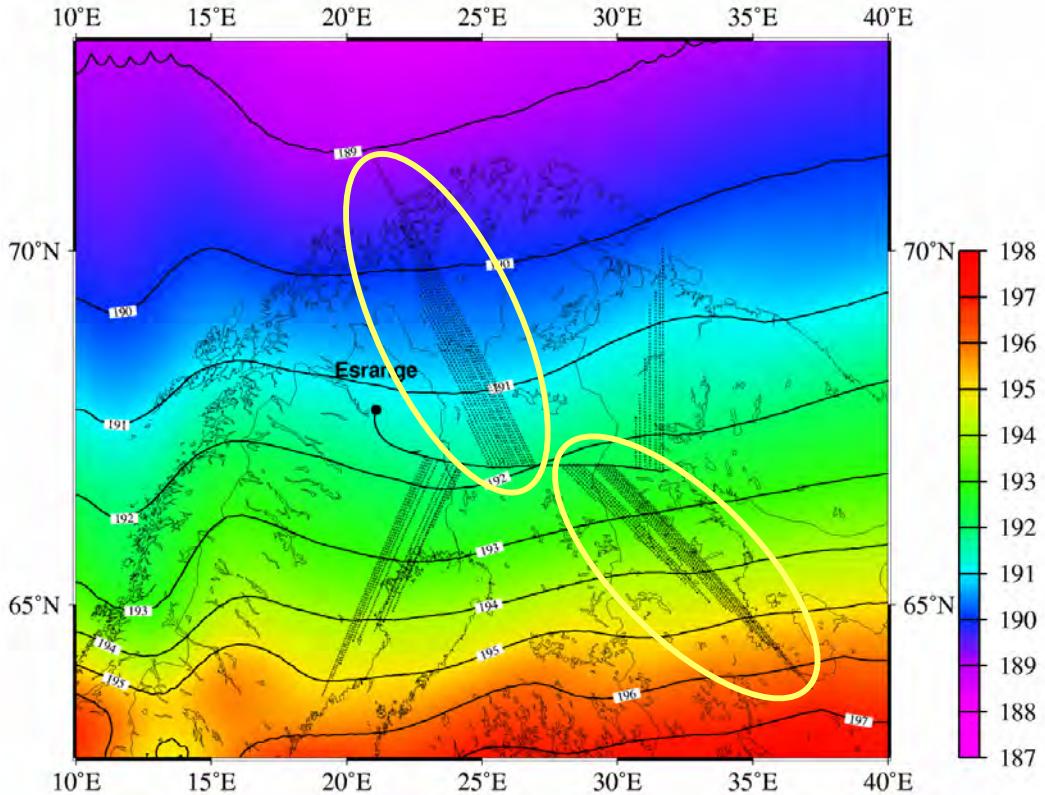


Abbildung 5.1: Flugtrajektorie und Verlauf der Sehstrahlen zu den Tangentenpunkten des MIPAS-B-Flugs am 11.1.2000. Unterlegt ist das Temperaturfeld auf 550 K potentieller Temperatur aus ECMWF-Analysen. Die umrandeten Sehstrahlen entsprechen Messungen mit (nördlich) und ohne PSCs (südlich) in der Sichtlinie.

3. In negative Richtung weisende Spektrallinien von Wasserdampf .
4. In negative Richtung weisende Flanken von CO<sub>2</sub>-Linien (siehe Ausschnittsvergrößerungen).

Da kein atmosphärisches Spurengas in diesen Höhen einen derartigen Strahlungsuntergrund verursachen kann, ist seine Existenz nur durch das Vorhandensein von Teilchen im Sehstrahl von MIPAS-B zu erklären. Dies wurde durch flugzeuggetragene Lidarmessungen bestätigt, die zeigten, dass in dem entsprechenden Gebiet großräumige, synoptische PSCs vorhanden waren (H. Flintje, pers. Mitteilung).

Während Punkt (1) in der obigen Aufzählung keine Unterscheidung zwischen emittierter und gestreuter Strahlung zulässt, belegen die Beobachtungen (3) und (4) einen Beitrag gestreuter Photonen mit Ursprung in der Troposphäre zum beobachteten Spektrum. Diese Beobachtung ist der erste experimentelle Beweis von Streustrahlung in IR-Horizontsondierungsspektren und bestätigt die entsprechenden Simulationen mit KOPRA (siehe Abschnitt 2.5 und Abb. 2.13).

Dass auch die Kante bei 820 cm<sup>-1</sup> eine spektrale Signatur der PSCs darstellt, wurde durch Strahlungstransportrechnungen gezeigt, bei denen in diesem Bereich emittierende Spurenga-

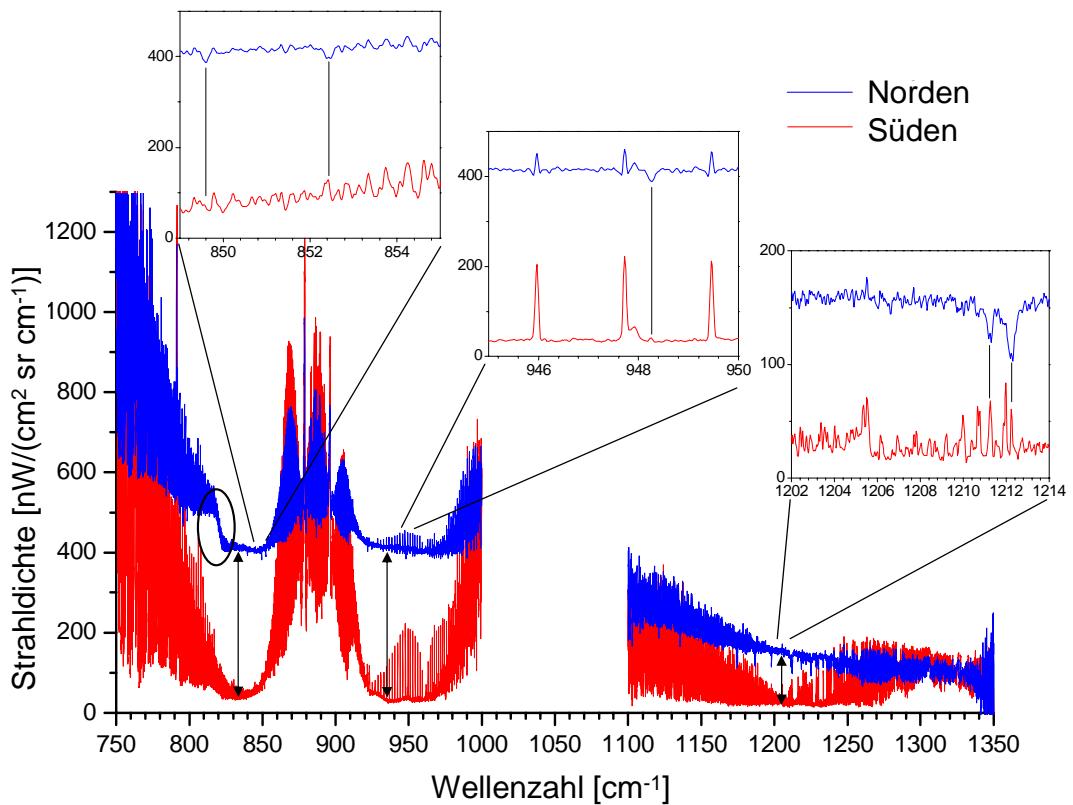


Abbildung 5.2: Vergleich von MIPAS-B Horizontsondierungsspektren (Kanal 1 und 2) für eine Tangentehöhe von 20.3 km in Richtung Norden (blau) und in Richtung Süden (rot). Die entsprechenden Limb-Scans sind in Abb. 5.1 umrandet. (Adapted from Höpfner et al. (2002), ©2002 American Geophysical Union, reproduced by permission of American Geophysical Union.)

se angepasst wurden. Hierbei war es nicht möglich die Stufe zu reproduzieren. Wie im folgenden Kapitel erläutert wird, handelt es sich mit hoher Wahrscheinlichkeit um die  $\nu_2$ -Bande von  $\text{NO}_3^-$  von  $\beta$ -NAT. Allerdings waren zum Zeitpunkt der Auswertung dieser MIPAS-B Messungen die Brechungsindizes von Biermann (1998) noch nicht verfügbar, so dass mit den verwendeten Indizes keine gute Anpassung der Kante erreicht werden konnte. Vielmehr wurde darauf Wert gelegt, die spektral hochaufgelösten Strukturen mit troposphärischem Ursprung zu simulieren und zu zeigen, dass eine sinnvolle Auswertung der Messung nur unter Einbeziehung von gestreuter Strahlung möglich ist.

## 5.2 Grundlagen der Datenauswertung

Das Prinzip der Auswertung der Spektren der nördlichen Limbsequenz bestand in der nicht-linearen Anpassung (Gleichung 3.1) von Höhenprofilen der Teilchenanzahldichte für unterschiedliche Szenarien von Größenverteilungen. Hierfür wurden die Spektralintervalle 827–829 cm<sup>-1</sup>, 947–950 cm<sup>-1</sup> und 1210–1214 cm<sup>-1</sup> benutzt, da diese relativ frei vom Einfluss des Kontinuums nicht angepasster Spurengase sind .

Als Grundlage für die Größenverteilungen wurden in-situ Messungen eines ballongetragenen Teilchenzählers verwendet, der am 12.1.2001 ebenfalls von Esrange aus flog (T. Deshler, pers. Mitteilung). Im Höhenbereich zwischen 19 und 26 km wurde hieraus eine höhenabhängige bimodale Log-Normalverteilung abgeleitet.

	SC1	SC2	SC3	SC4
$R_1$ [ $\mu\text{m}$ ]	0.15–0.21	0.15–0.21	0.15–0.21	0.15–0.21
$S_1$	0.38–0.57	0.38–0.57	0.38–0.57	0.38–0.57
$R_2$ [ $\mu\text{m}$ ]	-	0.8–1.2	2.0	2.0
$S_2$	-	0.11–0.15	0.3	0.3
$N_1/(N_1 + N_2)$	1	0.96–0.99	0.96–0.99	0.96–0.99
Troposphärische Wolke	nein	nein	nein	ja

Tabelle 5.1: Definition der Szenarien von Größenverteilungen für die Ableitung der Teilchenzahldichte. Die Intervalle geben jeweils Minimum–Maximum Werte im Höhenbereich von 19–26 km an.

Tab. 5.1 fasst die untersuchten vier Szenarien von Größenverteilungen zusammen. Szenario SC1 besteht lediglich aus einer Mode kleiner Teilchen, während SC2–SC4 zusätzlich eine zweite Mode größerer Teilchen enthalten. Die erste und die zweite Mode in SC2 entsprechen dabei den oben erwähnten Messungen von T. Deshler. Für SC3 und SC4 wurden der mittlere Radius und die Breite der zweiten Mode noch etwas erhöht. Dabei wurden die Verhältnisse der Anzahldichte der beiden Moden zueinander konstant auf dem von T. Deshler ermittelten Wert gehalten. Der Einfluss einer troposphärischen Wolkendecke auf die Simulationen wurde anhand von SC4 untersucht.

Als Zusammensetzung der PSCs wurde STS angenommen. Diese Annahme basierte auf Messungen ballongetragener Rückstreusonden, die von Esrange (N. Larsen, pers. Mitteilung) und Sodankylä (Kivi et al. 2001) am 12.1.2000 gestartet wurden. Auch flugzeuggestützte Lidarmessungen (H. Flentje, pers. Mitteilung) unterstützten die These von PSCs, die hauptsächlich aus STS bestanden. Die Zusammensetzung der STS-Partikel mit der Höhe wurde aus Gleichgewichtsrechnungen abgeleitet (Carslaw et al. 1995). Diesen Rechnungen wurden Höhenprofile von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$ , die aus der PSC-freien Limbsequenz in südlicher Richtung abgeleitet worden waren und Temperaturen aus der Nordsequenz zugrunde gelegt (G. Wetzel, pers. Mitteilung). Aus den so ermittelten Zusammensetzungen wurden die Brechungsindizes von STS auf Grundlage der Daten von Biermann et al. (2000) bestimmt (siehe hierzu auch die Abschnitte 2.2.2 und 2.3.3).

Zur Auswertung auf Grundlage der unterschiedlichen Szenarien wurden Temperatur- und Mischungsverhältnisprofile der Spurengase konstant gehalten und die Gesamt-Teilchenanzahl angepasst. Für die Temperatur und  $\text{HNO}_3$  wurden Profile verwendet, die im Nachhinein auf Basis der besten PSC-Parameter aus der nördlichen Limbsequenz berechnet worden waren. Als Wasserdampfprofil wurde in der unteren Stratosphäre dasjenige aus der südlichen Limbsequenz verwendet. Da die spektralen Signaturen der troposphärischen Streustrahlung stark vom dort herrschenden Wasserdampf abhängen, wurde versucht, diesen aus Sondiemessungen möglichst realistisch zu beschreiben. Um die Sensitivität auf das verwendete Temperaturprofil und den Ansatz einer in jeder Höhe horizontal homogenen Atmosphäre

zu prüfen, wurden 3-dimensionale Strahlungsübertragungsrechnungen auf Grundlage von ECMWF-Feldern durchgeführt. Die Differenzen der so erhaltenen Anzahldichten zu den ein-dimensionalen Rechnungen waren vernachlässigbar.

### 5.3 Ergebnisse

In Abb. 5.3 sind die Ergebnisse der Auswertung als Höhenprofile der Volumendichte dargestellt. Diese wurde aus den direkten Ergebnissen des Retrievals, den Anzahldichten, mittels den vorgegebenen Profilen von Größenparametern berechnet. Weiterhin sind Ergebnisse der Messungen des Teilchenzählers vom 12.1.2000 und der STS Gleichgewichtsrechnungen für die nördliche Limbsequenz von MIPAS-B eingezeichnet.

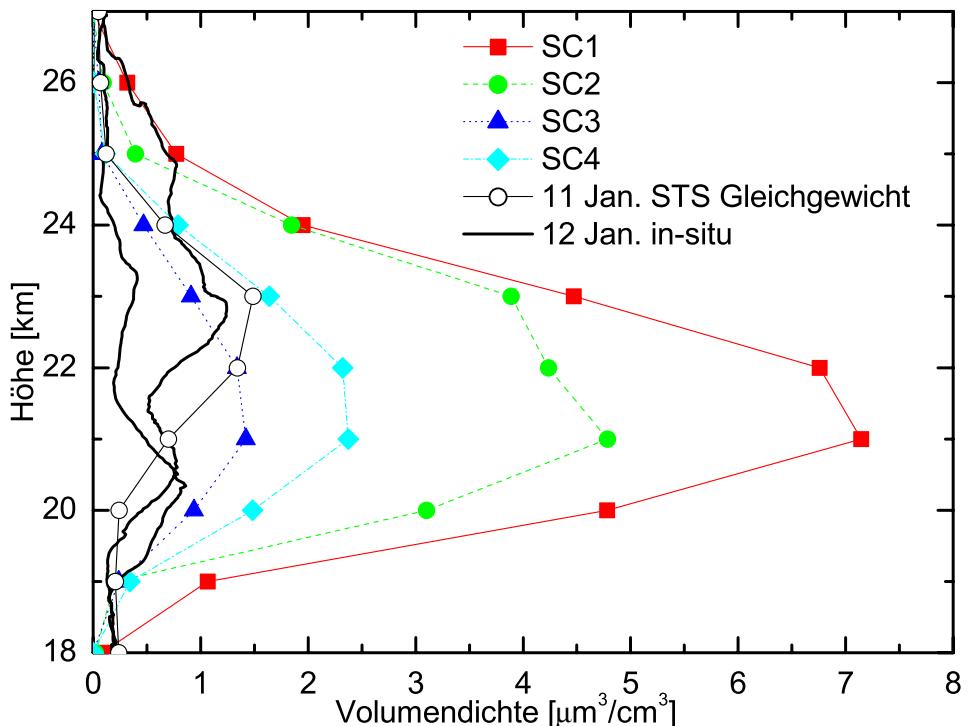


Abbildung 5.3: Profile der PSC-Volumendichte. Ausgefüllten Symbole: Ergebnisse der Auswertung der Szenarien SC1–SC4. Offene Symbole: Gleichgewichtsrechnung unter Annahme von STS-Teilchen auf Grundlage der für die nördliche Limbsequenz abgeleiteten Temperatur. Linien ohne Symbole: geglättete Daten des Partikelzählers vom 12.1.2001 wobei die größeren Werte beim Aufstieg und die kleineren beim Abstieg des Ballons gemessen wurden. (Adapted from Höpfner et al. (2002), ©2002 American Geophysical Union, reproduced by permission of American Geophysical Union.)

Das „kleine Teilchen“-Szenario SC1 liefert die bei weitem größten Volumendichten von bis zu  $7 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  und weicht damit auch am weitesten von den in-situ Messungen ab. Maximale

Werte der Volumendichte von STS oder NAT in der Stratosphäre, die aus Gleichgewichtsrechnungen abgeleitet werden und im wesentlichen durch das verfügbare  $\text{HNO}_3$  begrenzt sind, liegen bei  $2\text{--}3 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ , d.h. deutlich unter den im Fall von SC1 abgeleiteten Werten. Ein Vorhandensein von Eisteilchen könnte zwar eine noch wesentlich größere Volumendichte erklären, ist aber höchst unwahrscheinlich, da erstens die stratosphärischen Temperaturen für Eis zu hoch waren und zweitens weder von den in-situ-Geräten noch von den Lidarmessungen vom Flugzeug aus Eis beobachtet wurde. Ein weiterer Hinweis darauf, dass kleine Teilchen allein die Beobachtungen nicht erklären können, folgt aus dem Vergleich der simulierten Spektren mit den gemessenen. Um die Qualität der Anpassung über einen großen Spektralbereich beurteilen zu können, wurden auf Basis der abgeleiteten Höhenprofile der Teilchenzahldichte breitbandige Strahlungsübertragungsrechnungen durchgeführt. Diese sind in Abb. 5.4 für die Tangentenhöhe 20.3 km (in rot) der Messung (schwarz) gegenübergestellt. Weiterhin sind in blau Rechnungen ohne Berücksichtigung von Einstreuung in den Sehstrahl eingezeichnet. Die Simulation unter SC1 zeigt die folgenden Defizite im Vergleich zum gemessenen Spektrum:

1. Der berechnete breitbandige Strahldichteuntergrund bei  $950 \text{ cm}^{-1}$  ist zu klein verglichen mit den Resultaten bei  $830$  und  $1200 \text{ cm}^{-1}$ .
2. Die simulierte spektrale Signatur zwischen  $800$  und  $840 \text{ cm}^{-1}$ , die der  $\nu_2$ -Bande von  $\text{NO}_3^-$  in der STS-Lösung zugeordnet ist, ist wesentlich breiter als die beobachtete Stufe bei  $820 \text{ cm}^{-1}$ .
3. Es werden keine invertierten Wasserdampflinien simuliert und auch
4. keine in negative Richtung weisenden Flanken von  $\text{CO}_2$ -Linien (siehe Ausschnittsvergrößerung in Abb. 5.4).

Die Ergebnisse (3) und (4) sind einsichtig, wenn man den Beitrag der eingestreuten Strahlung zum Gesamtspektrum betrachtet, der sich als die Differenz zwischen der roten und blauen Kurve ergibt: bei längeren Wellenlängen gibt es praktisch keinen Unterschied und auch bei  $1200 \text{ cm}^{-1}$  sind lediglich 14% der simulierten Strahldichte auf Streuung zurückzuführen.

Für den Fall, dass neben der Mode kleiner Partikel auch diejenige der größeren Teilchen berücksichtigt wird (SC2), erhält man deutlich geringere Volumendichten als bei SC1. Mit maximal  $5 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  liegen sie jedoch immer noch weit über dem Gleichgewichtswert, bzw. den in-situ Messungen (Abb. 5.3). Diese geringeren Volumendichten sind die Folge eines, im Vergleich zum Szenario kleiner Teilchen, stark erhöhten Streuanteils, der nun bei  $800 \text{ cm}^{-1}$  16% und bei  $1200 \text{ cm}^{-1}$  sogar 40% der gesamten Strahldichte beträgt (vgl. rote und blaue Kurve in Abb. 5.4). Betrachtet man sich das berechnete Spektrum im Vergleich zur Messung in Abb. 5.4, so erkennt man eine Verbesserung der Anpassung des breitbandigen Strahlungsuntergrunds, der im wesentlichen auf ein Anheben des Offsets im Bereich von  $950 \text{ cm}^{-1}$  zurückzuführen ist. Weiterhin erkennt man in der Ausschnittsvergrößerung, dass im berechneten Spektrum mit Streuung die typischen negativen Flanken der  $\text{CO}_2$ -Linien und invertierte Wasserdampflinien erscheinen, die in der Simulation ohne Streuung nicht auftreten. Da bei den Simulationen von SC1 keine solchen Strukturen auftraten, müssen größere Teilchen in der Atmosphäre vorhanden gewesen sein. Allerdings reichten die Teilchengrößen der

zweiten Mode von SC2 noch nicht aus, um die CO<sub>2</sub>-Flanken in ihrer gemessenen Intensität zu beschreiben.

Aus diesem Grund wurden der Radius auf 2 μm und die Modenbreite auf 0.3 erhöht (SC3). Für diese Parametereinstellungen liegt die abgeleitete Volumendichte mit maximal 1.5 μm<sup>3</sup>cm<sup>-3</sup> im Profil nahe bei den Gleichgewichts- und den gemessenen Werten. Die breitbandigen Rechnungen zeigen jetzt eine gute Übereinstimmung der CO<sub>2</sub>-Flanken, wohingegen die invertierten Wasserdampflinien deutlich zu stark geworden sind. Das Verhältnis der Strahldichten bei 830 cm<sup>-1</sup> und 950 cm<sup>-1</sup> passt bei diesen Simulationen am besten zur Messung: zwischen diesen Fensterbereichen weist die Messung und die Rechnung praktisch keine Steigung auf.

Beobachtungen während des Flugs vom Boden aus deuteten darauf hin, dass keine oder nur wenig troposphärische Bewölkung vorhanden war. Aus diesem Grund sind alle bisher gezeigten Simulationen ohne Berücksichtigung solcher Wolken durchgeführt worden. Um ihren möglichen Einfluss zu untersuchen, wurde für SC4 das Szenario SC3 derart abgewandelt, dass ein grauer Körper mit einer optischen Dicke von 0.3 in 8 km Höhe simuliert wurde. Durch die partielle Absorption der Strahlung aus den darunterliegenden Atmosphärenschichten und der Erdoberfläche wird die Intensität der aus der Troposphäre kommenden und an den PSCs gestreuten Strahlung verringert, was in der Anpassungsrechnung durch zusätzliche streuende und emittierende Teilchen ausgeglichen wird. Dies spiegelt sich in den im Vergleich zu SC3 erhöhten Volumendichten wider (Abb. 5.3), die allerdings mit maximal ca. 2 μm<sup>3</sup>cm<sup>-3</sup> bei weitem nicht die Werte von SC2 oder SC1 erreichen und zumindest im theoretisch möglichen Bereich bleiben. In Abb. 5.4 erkennt man dass die negativ zeigenden Wasserdampflinien besser zur Messung passen, als in SC3, die CO<sub>2</sub>-Flanken jedoch leicht unterschätzt werden. Der breitbandige Untergrund passt besser als in den vorigen Szenarien, wobei die Steigung zwischen 830 und 950 cm<sup>-1</sup> im Vergleich zu den Simulationen von SC3 leicht abnimmt und sich somit in diesem Aspekt von der Messung entfernt.

## 5.4 Zusammenfassung

Die betrachtete MIPAS-Ballonmessung erlaubte erstmals den experimentellen Nachweis gestreuter troposphärischer Strahlung bei der Horizontsondierung von PSCs. Voraussetzung für diesen Nachweis war die hohe spektrale Auflösung der Messung wie sie zuvor noch nicht bei der Beobachtung von PSCs in Emission im mittleren infraroten Spektralbereich angewandt wurde. Auch bestätigt sich damit die Notwendigkeit, bei der Inversion von Wolkenparametern einen Ansatz zu verwenden, der korrekte Strahlungsübertragungsrechnungen einschließlich Streuung in ein Inversionsprogramm integriert, wie es in Kapitel 3 beschrieben wurde.

Ungeklärte Punkte bei der Auswertung der Ballondaten sind die nicht optimale Anpassung im breitbandigen Spektralbereich und die nicht beschriebene Stufe bei 820 cm<sup>-1</sup>. Dies könnte mit unzureichenden spektroskopischen Daten zusammenhängen. Bei der vorliegenden Untersuchung wurden Brechungsindizes von STS (Biermann et al. 2000) und NAT (Toon et al. 1994, Richwine et al. 1995) getestet. Die neuen Daten von β-NAT (Biermann 1998, Höpfner et al. 2006b) standen noch nicht zur Verfügung und es ist möglich, dass diese die spektrale

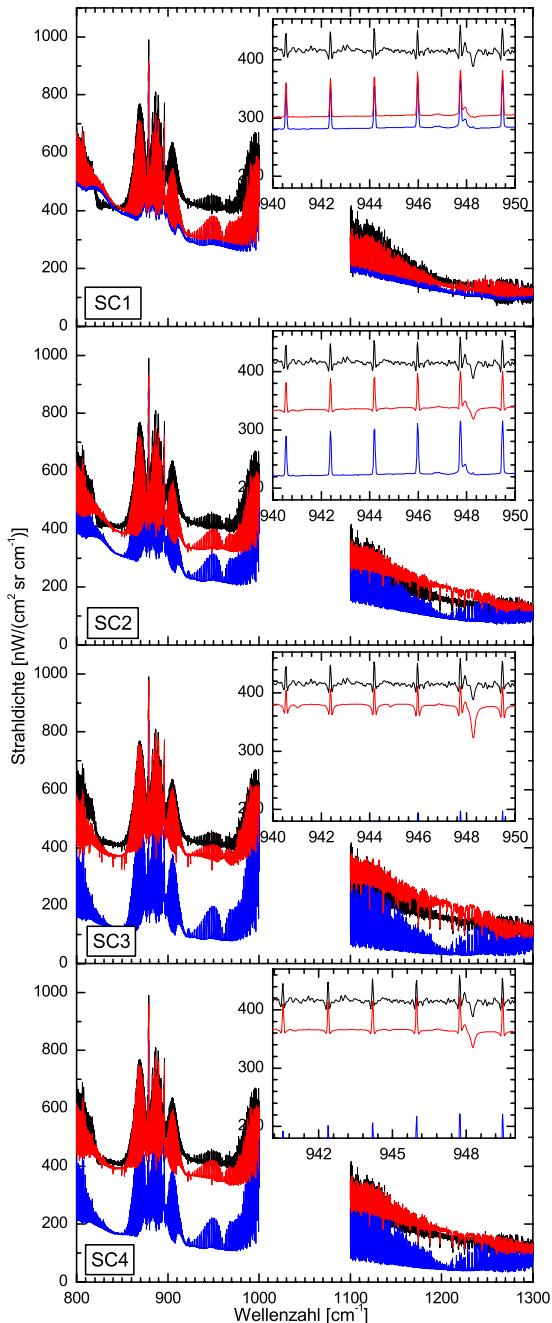


Abbildung 5.4: Simulation des ersten und zweiten Kanals von MIPAS-B (Tangentenhöhe 20.3 km) auf Grundlage der Ergebnisse aus den Anpassungsrechnungen der Szenarien SC1–SC4. Schwarz: Messung, rot: Simulation mit Einfachstreuung, blau: Simulation ohne Streuung in den Sehstrahl. (Adapted from Höpfner et al. (2002), ©2002 American Geophysical Union, reproduced by permission of American Geophysical Union.)

Signatur bei  $820 \text{ cm}^{-1}$  besser beschreiben können - evtl. auch in einer Mischung aus STS und NAT. Dass die beobachteten PSCs nicht alleine aus STS bestanden, legt die Tatsache nahe, dass Teilchen mit Radien von  $1\text{-}2 \mu\text{m}$  sehr wahrscheinlich nicht bei der Bildung von STS-PSCs auftreten können (B. Luo, pers. Mitteilung), da hierbei die vorhandenen Par-

tikel des stratosphärischen Aerosolhintergrunds gemeinsam anwachsen und kein selektiver Nukleationsprozess zum tragen kommt.

Eine prinzipielle Schwierigkeit der Auswertung bestand in der Unsicherheit über die Wolkenbedeckung in der Troposphäre. Dass keine hochreichende, optisch dichte Wolkendecke vorhanden sein konnte, zeigt die Existenz der troposphärischen Signaturen in den Spektren. Jedoch kann eine tiefere Wolkendecke oder eine durchbrochene Bewölkung nicht vollkommen ausgeschlossen werden. Im folgenden Kapitel, das eine beispielhafte Auswertung von MIPAS-Satellitenbeobachtungen von PSCs vorstellt, bestand aufgrund von Lidarmessungen die Möglichkeit mit hoher Wahrscheinlichkeit von troposphärischen Wolken unbeeinflusste Situationen auszuwählen.



# 6. Ableitung von PSC-Eigenschaften aus MIPAS-Satellitenmessungen

Verglichen mit singulären Beobachtungen vom Boden oder von Ballons aus bieten Satellitenmessungen eine wesentlich bessere räumliche und zeitliche Abdeckung. Als erstes Fourier-transformspektrometer, das spektral hochauflöste Emissionsmessungen in Horizontsondierungsgeometrie durchführte, lieferte MIPAS auf Envisat praktisch kontinuierlich von Juli 2002 bis März 2004 Beobachtungen mit globaler Abdeckung<sup>1</sup>. Erstmal konnte damit die Entwicklung von PSCs über polare Winter hinweg verfolgt werden. Im Folgenden wird nach einer kurzen Beschreibung des Instruments und des ausgewählten Datensatzes gezeigt, wie die Zusammensetzung von PSCs spektroskopisch aus MIPAS-Envisat Messungen abgeleitet und in Zusammenhang mit PSC-Typen aus Lidarbeobachtungen gebracht werden kann. Es wird über den erstmaligen spektroskopischen Nachweis von  $\beta$ -NAT, der Entdeckung eines NAT-Gürtels über der Antarktis, dessen Erklärung und über die erfolglose Suche nach NAD berichtet. Diese Ergebnisse wurden in Höpfner et al. (2004b; 2006a;b) publiziert.

## 6.1 Das Instrument und der Datensatz

MIPAS wurde am 1. März 2002 zusammen mit weiteren Instrumenten zur Atmosphären- und Erdbeobachtung an Bord des europäischen Umweltsatelliten Envisat in eine polare Umlaufbahn gebracht. Das Interferometer deckt nahezu vollständig den Spektralbereich  $685\text{--}2410\text{ cm}^{-1}$  ( $14.6\text{--}4.15\text{ }\mu\text{m}$ ) mit einer maximalen optischen Wegdifferenz von  $20\text{ cm}$  ab. Das Gesichtsfeld des horizontsondierenden Geräts beträgt am Tangentenpunkt ca.  $3\text{ km}$  vertikal und  $30\text{ km}$  horizontal. Eine Beobachtungssequenz besteht im Standardmodus aus 17 Tangentenhöhen im Bereich von ca.  $6\text{--}68\text{ km}$  mit einem Abstand von  $3\text{ km}$  von  $6\text{--}42\text{ km}$  gefolgt von Messungen auf  $47\text{ km}$ ,  $52\text{ km}$ ,  $60\text{ km}$  und  $68\text{ km}$  Höhe. Die geographische Abdeckung erstreckt sich dabei von Pol zu Pol mit 14.3 Orbits am Tag und ungefähr 73 Horizontsondierungssequenzen entlang eines Orbit (Fischer und Oelhaf 1996, ESA 2000, Fischer et al. 2007).

---

<sup>1</sup>Aufgrund von instrumentellen Problemen konnten die Messungen erst wieder Anfang 2005 mit reduzierter spektraler Auflösung und reduzierter Abdeckung aufgenommen werden. Inzwischen (Stand Mitte 2007) ist mit einem duty cycle von 80% eine fast vollständige zeitliche und räumliche Abdeckung wieder erreicht.

Eine Validierung der von der ESA abgeleiteten MIPAS Level-2 Produkte fand auf drei Workshops statt (ESA 2003; 2004; 2007). Weiterhin wurden die bei der ESA und am IMK abgeleiteten Datenprodukte durch Vergleich mit unabhängigen Messungen validiert (Wang et al. 2004; 2005b;a; 2007b, Höpfner et al. 2007b, Steck et al. 2007, Wetzel et al. 2007, Wang et al. 2007a, Ridolfi et al. 2007, Cortesi et al. 2007). Dabei gab es keinen Hinweis auf schwerwiegende Probleme, woraus geschlossen werden kann, dass auch die kalibrierten Spektren (level-1b Daten), die den PSC-Analysen dieser Arbeit zugrunde liegen, von hoher Qualität sind. Die verwendeten Level-1b Daten entsprechen den Versionen 4.57 und 4.59 und sind quasi-operationelle Produkte.<sup>2</sup>

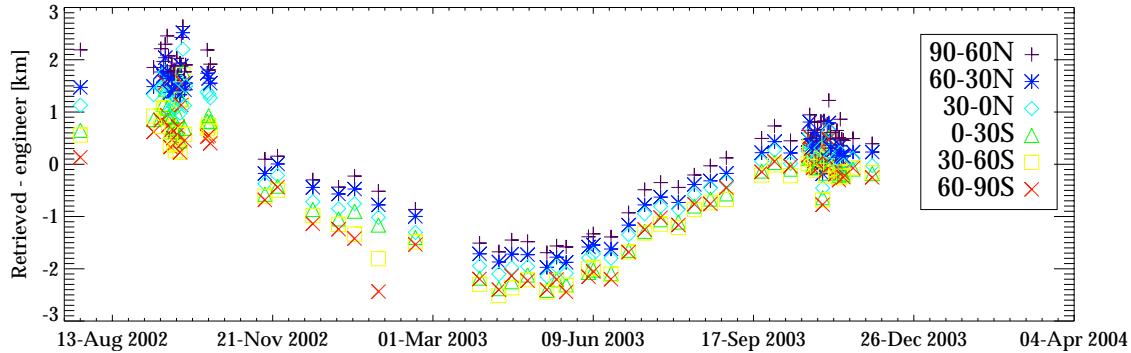


Abbildung 6.1: Breiten- und zeitabhängige Korrektur der von der ESA zu den operationellen Level-1b Daten angegebenen Tangentenhöhen. Negative Werte bedeuten, dass die wahren Tangentenhöhen niedriger lagen als angegeben.

Große Unsicherheiten des „Level-1“ Datensatzes betreffen die Höhenangaben der Tangentenpunkte. Zur wissenschaftliche Auswertung der MIPAS-Daten am IMK wird daher in einem ersten Schritt vor der Ableitung von Spurengasprofilen die Sichtlinieninformation zusammen mit der Temperatur hergeleitet (von Clarmann et al. 2003a, Kiefer et al. 2007). Abb. 6.1 zeigt breitenabhängige Tagesmittelwerte der Tangentenhöhenkorrektur der zum Zeitpunkt der Untersuchung vorliegenden Auswertungen des IMK. Es zeigt sich deutlich ein Jahresgang mit kleinsten Fehlern Ende November 2002 und im Oktober/November 2003. Wie Kiefer et al. (2007) zeigten, ist zusätzlich eine systematische Breitenabhängigkeit mit ca. 1 km Unterschied in den Korrekturwerten zwischen hohen nördlichen und südlichen Breiten vorhanden. Für den Winter 2003 steigt die Korrektur von ca. -2.3 km Ende Mai bis 0 km Ende September an. Für die folgenden Betrachtungen wurde eine entsprechende Korrektur der Tangentenhöhen vorgenommen.<sup>3</sup>

Die MIPAS-Daten mit hoher spektraler Auflösung decken drei polare Winter vollständig ab: die arktischen Winter 2002/2003 und 2003/2004 und den antarktischen Winter 2003. Eine kontinuierliche Messreihe liegt für den antarktischen Winter 2002 erst ab Mitte Juli vor. Für

<sup>2</sup>Die inzwischen verfügbaren reprozessierten Level-1b-Daten der Version 4.61 waren zum Zeitpunkt dieser Auswertung noch nicht vollständig vorhanden. Stichproben zeigen aber, dass es bezüglich der PSC-Auswertung keine relevanten Unterschiede gibt und daher die Ergebnisse dieser Untersuchungen nicht betroffen sind.

<sup>3</sup>Hierdurch konnte der mittlere systematische Fehler in der Sichtlinie korrigiert werden. Die einzelnen Tangentenhöhen schwanken um diesen Mittelwert mit einer Standardabweichung von 0.4 km, wobei der durch das spektrale Rauschen des Einzelretrievals gegebene Fehler mit ca. 0.1 km eingeht.

die vorliegenden Untersuchungen wurde der Winter 2003 über der Antarktis ausgewählt. Grund hierfür war, dass aufgrund des im Vergleich zur Arktis stabileren Polarwirbels über der Antarktis räumlich und zeitlich gleichförmigere Verhältnisse bezüglich Temperaturverteilung und Abkühlung vorliegen. Dies ist wichtig, um möglichst große Gebiete mit homogener PSC-Verteilung untersuchen zu können und große Variationen entlang des Sehstrahls und innerhalb des Gesichtsfelds zu vermeiden. Weiterhin war die nordpolare winterliche Stratosphäre 2003/2004 zu warm für das Auftreten von PSCs. Im Winter 2002/2003 entstanden PSCs schon Anfang Dezember, also ungewöhnlich früh (Spang et al. 2005) - jedoch in einem, im Vergleich zur Antarktis, kleinen Gebiet, das nicht konzentrisch zum Pol lag.

## 6.2 Wolkenobergrenzen

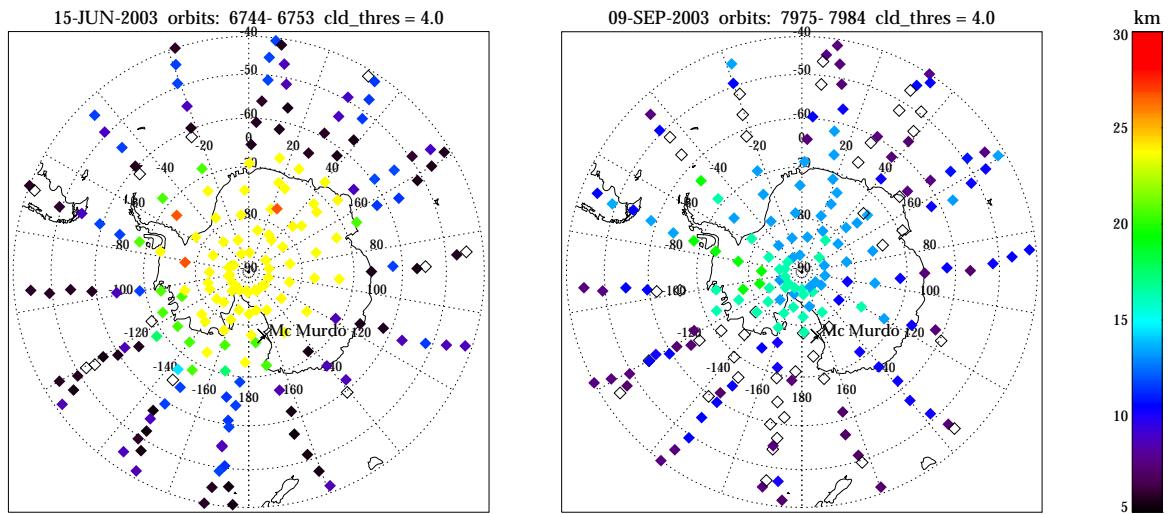


Abbildung 6.2: Vergleich der geographischen Verteilung der Wolkenobergrenzen zu Anfang und Ende der PSC-Periode im antarktischen Polarwirbel 2003. Die Lage der Station McMurdo, von der aus regelmäßige Lidar-Beobachtungen durchgeführt wurden, ist ebenfalls eingezeichnet.

Die Detektion von PSCs in MIPAS-Spektren erfolgt mittels des „Cloud-Indicator“ (CI) Verfahrens, das sich schon bei der Wolkenbestimmung aus CRISTA Messungen bewährt hat (Spang und Offermann 1999, Spang et al. 2001a;b; 2002) und zur Wolkenidentifizierung bei der MIPAS Datenauswertung Verwendung findet (Spang et al. 2004). Hierzu wird das Verhältnis zweier Wellenzahlintervalle, die einerseits kaum Spurengassignaturen ( $832.3\text{-}834.4\text{ cm}^{-1}$ ) und andererseits eine Signatur von  $\text{CO}_2$  enthält ( $788.2\text{-}796.25\text{ cm}^{-1}$ ), gebildet. Unterschreitet das Verhältnis einen bestimmten Wert, so zeigt dies die Anwesenheit von Aerosolen oder Wolkenteilchen während der Messung an. Die oberste Tangentenhöhe bei der Grenzwert unterschritten wird, stellt somit die Höhe der Wolkenobergrenze dar. Abb. 6.2 zeigt Karten von Höhen der PSC-Obergrenzen zu Beginn und am Ende der PSC-Periode im antarktischen Polarwirbel 2003. Man erkennt, dass am Ende des Winters die Wolken ungefähr 8 km tiefer liegen als zu dessen Beginn. Dieser Verlauf erklärt sich einerseits durch die Denitrifizierung der oberen Schichten, so dass hier nur noch wenig  $\text{HNO}_3$  zur Wolkenbildung

verfügbar ist. Zum anderen erfolgt die Erwärmung der polaren stratosphärischen Luftmassen von oben her ab Mitte bis Ende August.

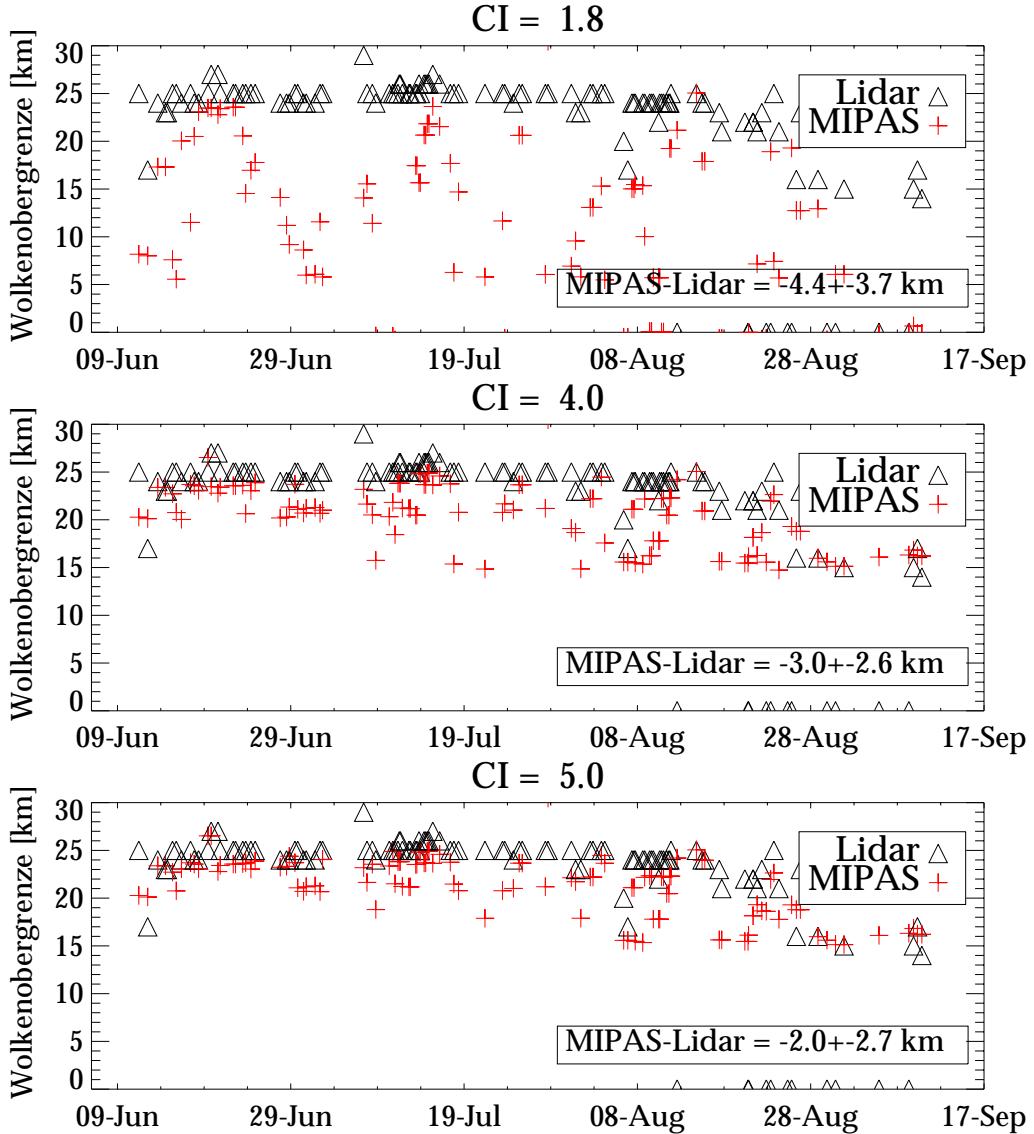


Abbildung 6.3: Vergleich zwischen Wolkenobergrenzen von MIPAS für unterschiedliche CI-Schwellwerte und denjenigen des Lidars in McMurdo.

Ein Vergleich der Höhenbestimmung von PSCs zwischen MIPAS- und Lidarmessungen über McMurdo ( $77.9^{\circ}\text{S}/166.7^{\circ}\text{O}$ ) ist in Abb. 6.3 für unterschiedliche Schwellwerte des CI dargestellt. Für  $\text{CI}=1.8$  erkennt man deutlich, dass die Wolkenhöhe des Lidars nur während weniger Perioden erreicht wird. Weiter unten wird gezeigt, dass es sich hier um Tage handelte, wo Eis-PSCs in der Stratosphäre auftraten, die so dicht waren, dass sie mit einem CI von 1.8 erfasst werden konnten. In der übrigen Zeit traten Wolken vom Typ I (NAT oder STS) auf, die mit einem CI von 4 oder 5 detektiert werden. Man erkennt für diese CIs, dass zu Beginn des Winters, bis ungefähr Mitte Juli, eine sehr gute Übereinstimmung besteht, während danach einige Fälle auftreten, bei denen das Lidar deutlich höhere Wolkenobergrenzen liefert. Bei diesen Lidarbeobachtungen handelt es sich um optisch bzw. geometrisch sehr

dünne Wolken, die erst in der zweiten Winterhälfte auftreten, da hier die oberen Schichten schon stark denitrifiziert sind.

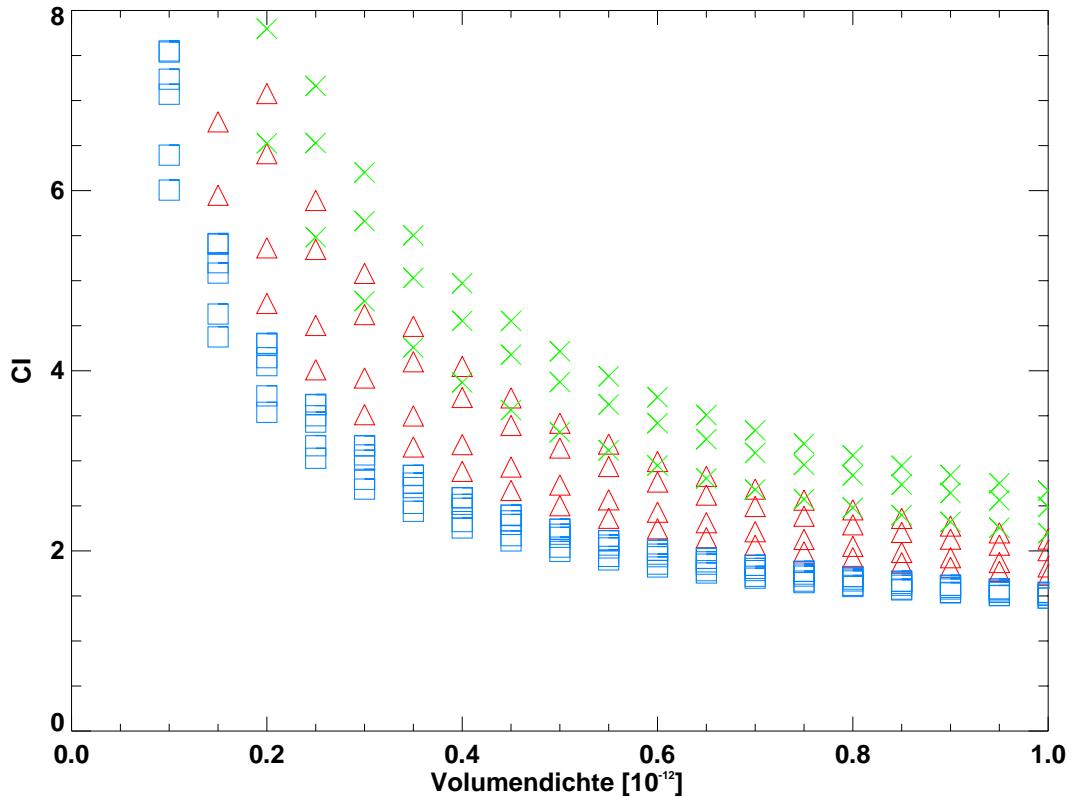


Abbildung 6.4: Abhängigkeit des Cloud-Indicators CI von der PSC-Volumendichte. Unterschiedliche Symbole und Farben kennzeichnen die unterschiedlichen PSC-Zusammensetzungen. Rot: NAT, grün: STS, blau: Eis.

Durch Simulationen mittels KOPRA konnte die Nachweisgenauigkeit der CI-Methode bestimmt werden. Hierzu wurde der CI von PSCs unterschiedlicher Zusammensetzung, Größe und Anzahl berechnet (siehe Abb. 6.4). Man erkennt, dass je nach Wahl von CI als Grenzwert unterschiedliche Volumendichten noch nachgewiesen werden. Die Nachweisgenauigkeit hängt dabei auch von der Zusammensetzung und der Teilchengröße ab. Im Folgenden wird zur PSC-Erkennung eine CI-Schwelle von 4.5, identisch mit derjenigen von Spang et al. (2001b), verwendet. Dies entspricht einer Nachweisgrenze von Wolken mit Volumendichten von  $0.2\text{--}0.4 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ .

## 6.3 Nachweis der PSC-Zusammensetzung in Einzelmessungen

### 6.3.1 Methode

Ziel dieses Abschnitts ist es, Messungen von PSCs unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung anhand ihrer Infrarotspektren zu unterscheiden, zu simulieren und die Verbindung zu den unterschiedlichen Lidar-Typenklassen herzustellen. Dazu war es notwendig möglichst homogene Fälle, d.h. Beispiele, die im wesentlichen aus einem PSC-Typ bestehen, zu untersuchen. Drei solcher Fälle wurden aus den Lidar/MIPAS-Koinzidenzen über McMurdo ausgewählt. Bei diesen handelt es sich um möglichst „reine“ PSCs der Typen 1a, 1b und 2. Ihre Geolokationen sind in Tab. 6.1 angegeben. Die zugehörigen Lidar-Ergebnisse von Rückstreuverhältnis und Depolarisation zeigt Abb. 6.5.

PSC Typ	Lidar	MIPAS	Entfernung [km]
1a	20030804/08:14	20030804/12:02/76.3°S/166.6°O	178
1b	20030615/00:54	20030614/22:01/78.5°S/169.4°O	91
2	20030621/02:20	20030620/22:13/77.5°S/167.6°O	49

Tabelle 6.1: Ausgewählte Koinzidenzen zwischen MIPAS- und Lidar-PSC-Beobachtungen über McMurdo.

Ähnlich dem Vorgehen bei der Auswertung der PSC-Beobachtungen mittels MIPAS-B (Kapitel 5) wurden zunächst Höhenprofile der Teilchenzahldichte aus den MIPAS Beobachtungen abgeleitet (siehe Abschnitt 3.2). Hierfür wurden die von Spurengasen wenig beeinflussten spektralen Fenster bei  $830\text{ cm}^{-1}$ ,  $950\text{ cm}^{-1}$  and  $1220\text{ cm}^{-1}$  verwendet. Es wurde ein Tikhonov-Regularisierung erster Ordnung (d.h. Glättung) benutzt (Tikhonov 1963). Der Regularisierungsparameter war dabei so eingestellt, dass eine Höhenauflösung von ca. 3.4 km im Höhenbereich der Wolke erzielt wurde.

Diese Rechnungen wurden für unterschiedliche Teilchenradien unter Annahme einer monomodalen Verteilung mit der Breite  $s=0.3$  (siehe Gleichung (2.12)) für unterschiedliche Teilchenradien und verschiedene wellenzahlabhängige Brechungsindizes (Kapitel 2.3) durchgeführt. Für die dabei erforderlichen Strahlungsübertragungsrechnungen mit Streuung wurde angenommen, dass die Troposphäre wolkenfrei war, da weder das Lidar noch die Aufzeichnungen des Lidar-Teams aus McMurdo Wolken anzeigen. Somit war ein wichtiger Unsicherheitsfaktor der Streurechnungen (Kapitel 2.5.5) ausgeräumt.

Unter Berücksichtigung der so abgeleiteten Teilchendichteprofile wurden Höhenverteilungen derjenigen Spurengase ( $\text{O}_3$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{HNO}_3$ , CFC-11) mit starken Signaturen in den MIPAS-Kanälen abgeleitet. Auf Grundlage dieser Ergebnisse (Spurengas- und Teilchendichteprofilen derjenigen Teilchengrößen, die die kleinsten Unterschiede zwischen Rechnung und Messung ergaben) konnten breitbandige Simulationen für alle Brechungsindex-Sätze durchgeführt werden. Diese werden im Folgenden mit den Messungen verglichen.

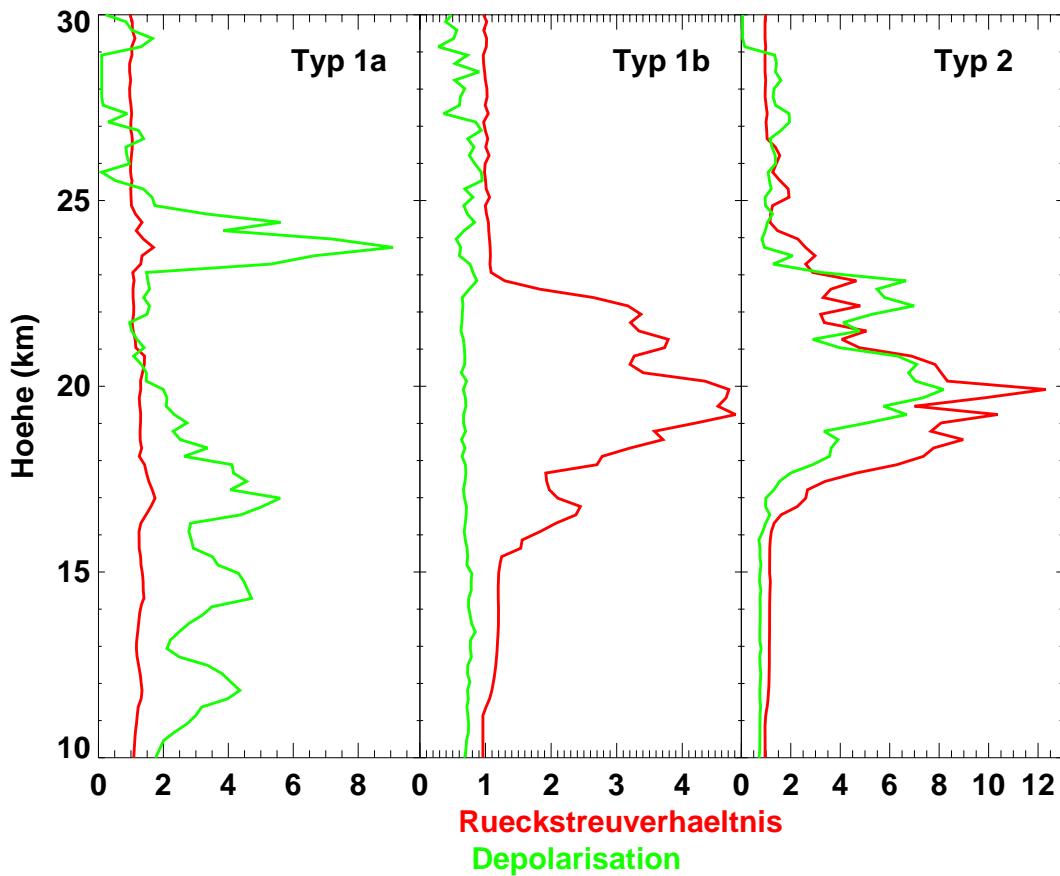


Abbildung 6.5: Lidar-Rückstreuverhältnis und -Depolarisation für die ausgewählten Koinzidenzen mit MIPAS aus Tab. 6.1.

### 6.3.2 NAT, STS und Eis in MIPAS Spektren

Abb. 6.6 zeigt einen Ausschnitt der MIPAS-Spektren, die in Koinzidenz mit der Lidar-PSC Typ 1a-Messung aufgenommen wurden (erster Eintrag in Tab. 6.1). Bei 12 und 15 km Tangentenhöhe erkennt man die starke Signatur einer Bande um  $820 \text{ cm}^{-1}$ , die eine größere Intensität aufweist als z.B. die spektrale Signatur von FCKW-11 bei  $850 \text{ cm}^{-1}$  in 12 km Höhe. Die Bande bei  $820 \text{ cm}^{-1}$  kann durch kein Spurengas erklärt werden und ist vergleichbar mit denjenigen, die in CRISTA-Messungen beschrieben wurde (Spang und Remedios 2003).

Breitbandige Spektren, die mittels des oben beschriebenen Verfahrens für die MIPAS-Messung berechnet wurden, zeigt Abb. 6.7. Die durchgezogene schwarze Kurve stellt die MIPAS-PSC-Messung auf 15.2 km aus Abb. 6.6 dar. Deren spektrale Auflösung wurde zur Unterdrückung der hochaufgelösten Emissionslinien der Spurengase und des spektralen Rauschens auf  $1 \text{ cm}^{-1}$  reduziert. Weiterhin ist das Spektrum einer etwas weiter nördlich gelegenen Messung eingezeichnet, bei der kein PSC-Signal vorhanden war. Ein Vergleich der beiden Beobachtungen verdeutlicht den Einfluss der Teilchen auf die spektralen Strahldichten gerade in den Bereichen, wo wenig Spurengassignaturen vorzufinden sind. Die starke Emissionsbande bei  $820 \text{ cm}^{-1}$  kann nur durch die Brechungsindizes von  $\beta$ -NAT aus Biermann (1998) (Kapitel 2.3.1 und Abb. 2.1) reproduziert werden. Dabei liefert der Datensatz  $\beta$ -NAT[coa] für Teil-

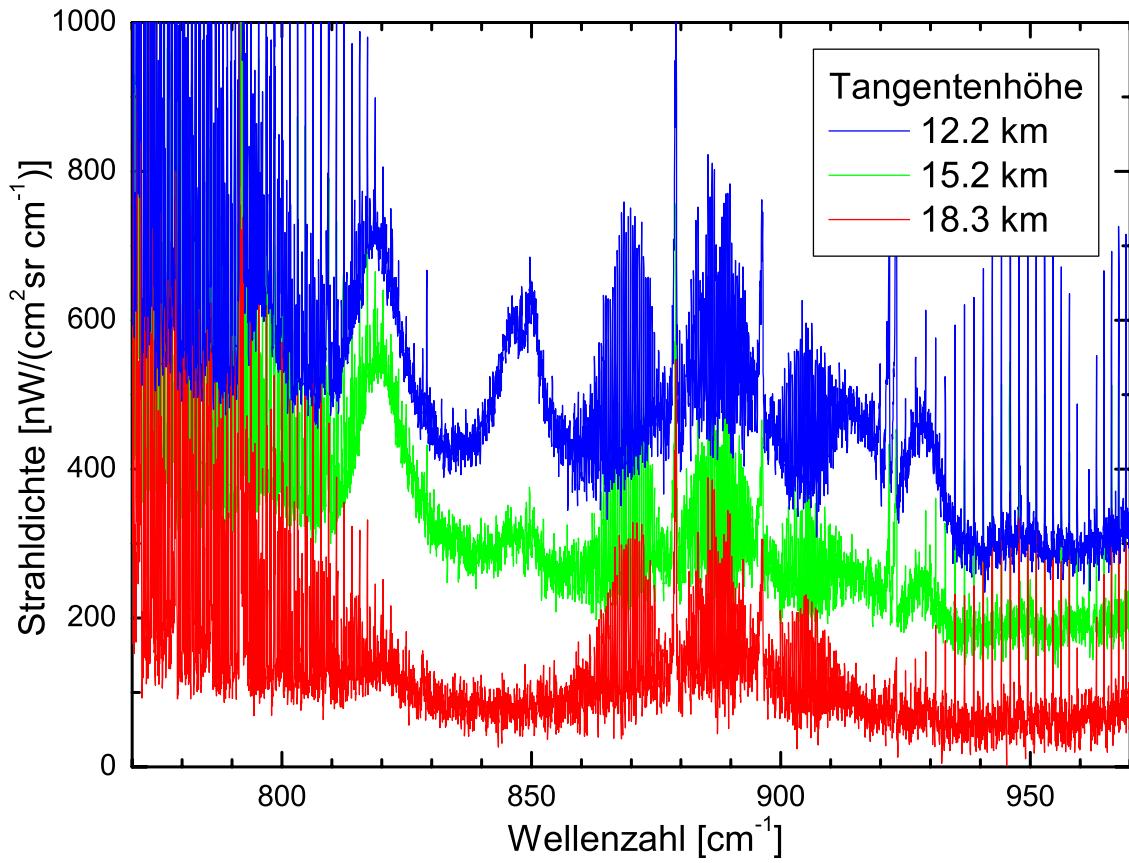


Abbildung 6.6: Ausschnitte aus Kanal A der MIPAS-Messungen auf drei Tangentenhöhen vom 4.8.2003 um 8:14 UTC in Koinzidenz mit der Lidar PSC Typ 1a-Beobachtung von McMurdo aus.

chenradien von  $0.8 \mu\text{m}$  die beste Übereinstimmung mit der Messung. Im Fall von  $\beta\text{-NAT[mol]}$  erhält man die beste Übereinstimmung bei einem mittleren Radius von  $1.5 \mu\text{m}$ . Dabei wird jedoch die  $820 \text{ cm}^{-1}$ -Bande und der Bereich oberhalb  $1300 \text{ cm}^{-1}$  schlechter modelliert. Das Ergebnis für  $\beta\text{-NAT[mol]}$  unter der Annahme von  $0.8 \mu\text{m}$  Räden ist in der zweiten Zeile von Abb. 6.7 gezeigt. Im Wellenzahlbereich  $900\text{--}960 \text{ cm}^{-1}$  erkennt man starke Unterschiede zur Beobachtung. Aus der ersten und dritten Zeile von Abb. 6.7 wird deutlich, dass  $\alpha\text{-NAT}$ -Brechungsindizes gemessen von Richwine et al. (1995) und  $\beta\text{-NAT}$  von Toon et al. (1994) zwar eine Signatur um  $820 \text{ cm}^{-1}$  besitzen, diese aber viel zu klein ist, um die Messungen zu beschreiben. Die Brechungsindizes anderer möglicher PSC-Zusammensetzungen besitzen diese Signatur nicht.

Der rechte Teil in Abb. 6.7 zeigt die Anpassung bei kürzeren Wellenlängen in Kanal B von MIPAS. Hier passen die Berechnungen mit Brechungsindizes von  $\beta\text{-NAT}$  am besten zur Beobachtung. Insbesondere treten deutliche Residuen zwischen Messung und Simulation mit  $\alpha\text{-NAT}$  auf, was an der starken  $\nu_3$ -Bande von  $\text{NO}_3^-$  bei  $1400 \text{ cm}^{-1}$  liegt.

Die MIPAS-Spektren, die in Koinzidenz mit Lidar-PSCs vom Typ 1b und 2 aufgenommen wurden, zeigen keine spektrale Signatur bei  $820 \text{ cm}^{-1}$  (Abb. 6.8 und 6.9). Im Fall des Typs 1b (Abb. 6.8) ergaben sich die besten Übereinstimmungen bei Verwendung der Brechungs-

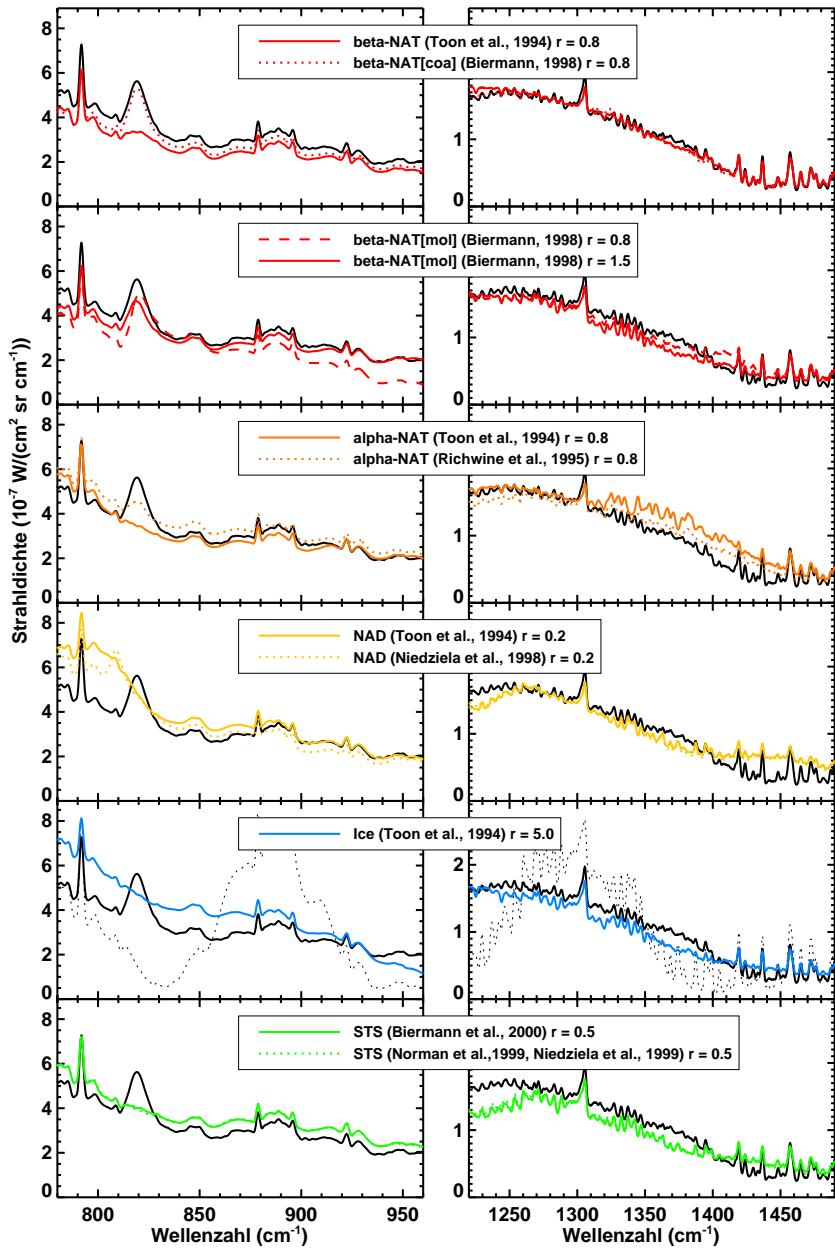


Abbildung 6.7: Schwarze durchgezogene Kurve: MIPAS-PSC-Spektrum aufgenommen am 4.8.2003 bei einer Tangenten Höhe von 15.2 km nahe einer Lidar Beobachtung von Typ 1a PSCs (siehe Tab. 6.1). Zum Vergleich dazu zeigt die schwarze gepunktete Kurve eine etwas weiter nördliche gelegene, PSC-freie Messung ähnlicher Tangenten Höhe. Farbige Kurven: Simulationen der MIPAS-PSC Beobachtung mit verschiedenen Brechungsindizes. Die MIPAS-Spektren und -Simulationen sind mit einer spektralen Auflösung von  $1 \text{ cm}^{-1}$  dargestellt.

indizes von STS. Dabei passen beide Datensätze, Biermann et al. (2000) und Norman et al. (1999)/Niedziela et al. (1999) zu den Beobachtungen. Deshalb können keine Schlüsse über die Qualität der jeweiligen spektroskopischen Datensätze abgeleitet werden.

Die zur Lidar-Beobachtung der PSCs von Typ 2 koinzidenten MIPAS-Spektren konnten am besten mit Brechungsindizes von Eis angepasst werden (Abb. 6.9).

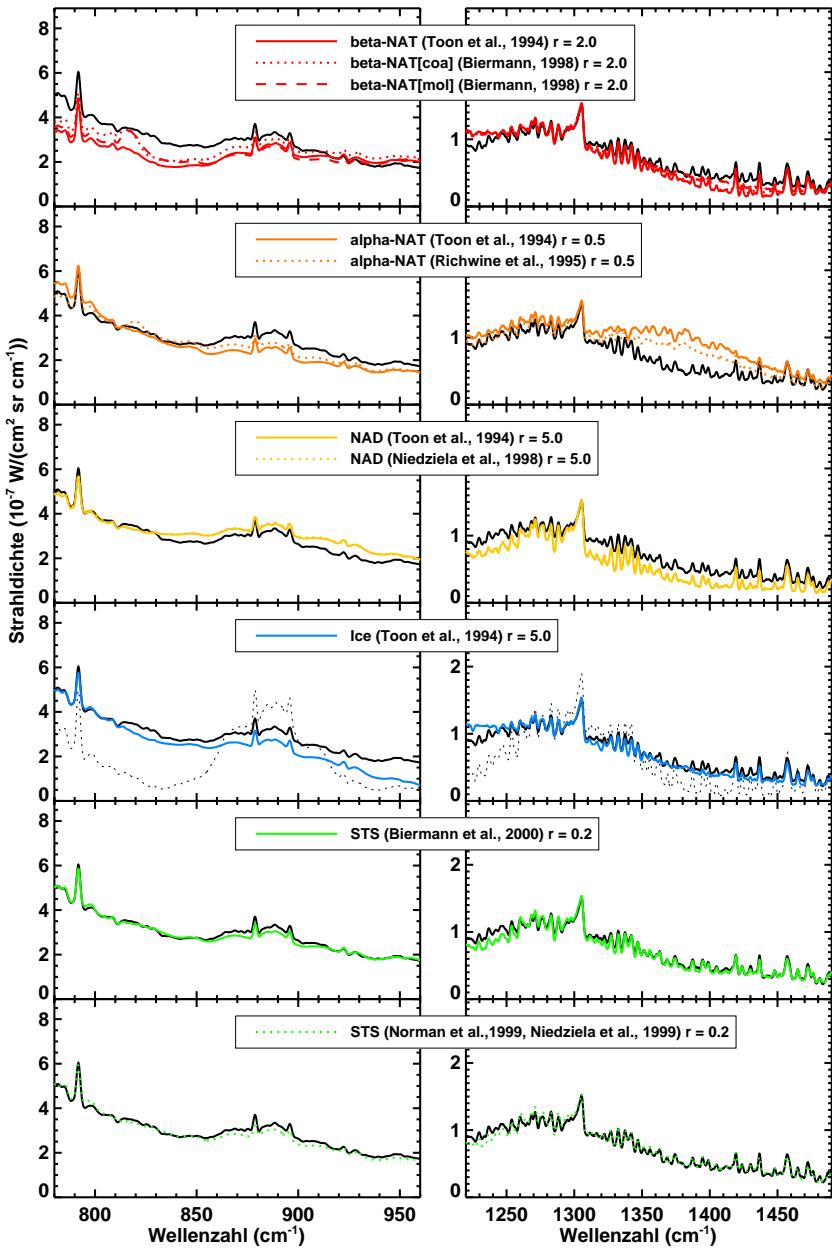


Abbildung 6.8: Gleiche Darstellung wie Abb. 6.7 für die MIPAS Messung am 14.6.2003 bei einer Tangenten Höhe von 17.3 km, die in Koinzidenz mit einer Lidar-PSC-Typ 1b-Sichtung registriert wurde.

### 6.3.3 Die abgeleiteten Höhenprofile

Im Folgenden werden die im vorigen Abschnitt abgeleiteten Höhenprofile von Teilchenanzahl- bzw. Volumendichte auf deren Plausibilität hin diskutiert. Außerdem wird versucht, einen quantitativen Vergleich mit den McMurdo Lidar-Messungen zu erzielen. Abb. 6.10 zeigt die Ergebnisse von Anzahl- und Volumendichte derjenigen mittleren Radien und Brechungsin- dizes für die die besten Übereinstimmung zwischen Simulation und Messung erzielt wurde.

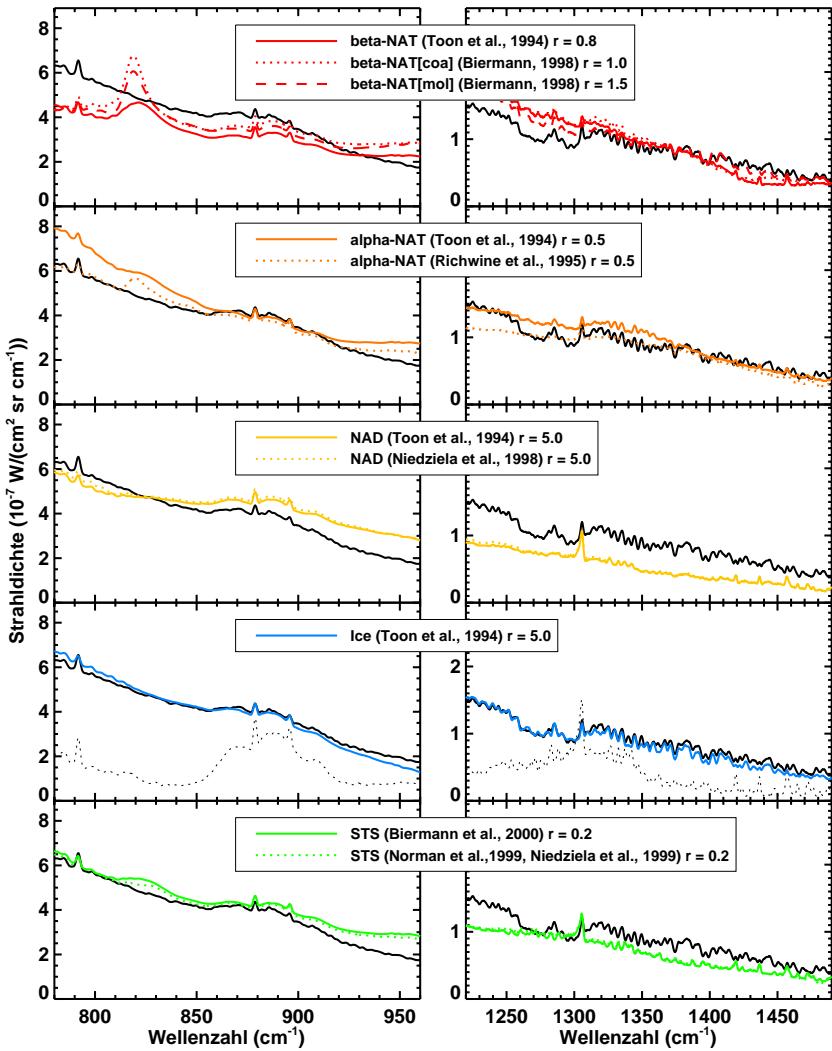


Abbildung 6.9: Wie Abb. 6.7 nur für die MIPAS-Messung am 20.6.2003 (Tangentenhöhe 23.4 km) nahe der Lidar-PSC-Typ 2-Sichtung.

In der gleichen Abbildung sind auch Höhenprofile der Volumendichte eingezeichnet, die für Fall thermodynamischen Gleichgewichts zwischen fester bzw. flüssiger PSC-Phase und der Gasphase von H<sub>2</sub>O und HNO<sub>3</sub> zu erwarten sind. Diese wurden nach Hanson und Mauersberger (1988) und Carslaw et al. (1995) auf der Basis von gemittelten HNO<sub>3</sub>- und H<sub>2</sub>O-Spurengasprofilen aus hohen südlichen Breiten aus MIPAS Messungen im Mai 2003 berechnet. Weiterhin gingen Temperaturanalysen von ECMWF und ein konstanter Wert von 0.3 ppbv für H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> in die Rechnungen ein.

Für den Fall der PSC vom Typ 1a ergaben sich daraus deutlich höhere Werte der Volumendichte von NAT oberhalb von ca. 16 km Höhe im Vergleich zu den aus MIPAS abgeleiteten Werten. Dies erklärt sich aus zu hohen angenommenen Konzentrationen von HNO<sub>3</sub> in der Gleichgewichtsrechnung. Da die Messung am 4. August stattfand, war in diesen Höhen HNO<sub>3</sub> schon derart durch Sedimentation von PSC-Teilchen ausgedünnt, dass das verwendete Profil von Mitte Mai dort viel zu hohe Werte an HNO<sub>3</sub> aufzeigt. Daher wurde das aktuelle HNO<sub>3</sub>-Profil von MIPAS verwendet, um eine weitere Gleichgewichtsrechnung durchzuführen.

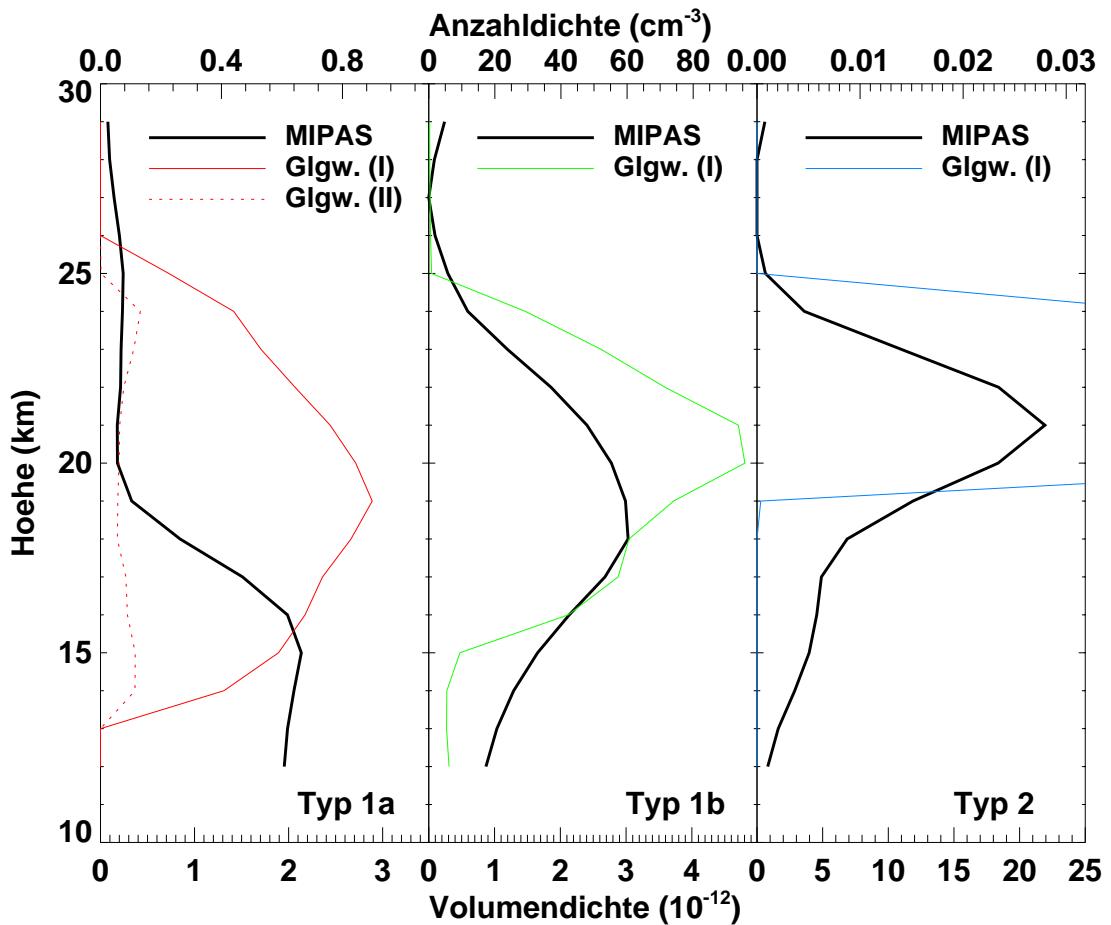


Abbildung 6.10: Abgeleitete MIPAS-Höhenprofile der Teichlenanzahldichte (schwarz, obere Achse) und der Volumendichte (schwarz, untere Achse). Die gezeigten Ergebnisse stammen von den besten Anpassungen zwischen Rechnung und Messung. Typ 1a:  $R=0.8 \mu\text{m}$ ,  $\beta$ -NAT[coa] Brechungsindizes von Biermann (1998). Typ 1b:  $R=0.2 \mu\text{m}$ , Brechungsindizes von Biermann et al. (2000). Type 2:  $R=5.0 \mu\text{m}$ , Brechungsindizes von Toon et al. (1994). Die Volumendichte wurde aus  $N, R$ , and  $S = 0.3$  bestimmt. Die farbigen Kurven zeigen Volumendichten von NAT, STS und Eis im thermodynamischen Gleichgewicht.

Dieses Ergebnis (punktierte rote Kurve in Abb. 6.10) passt wesentlich besser zu den niedrigen Werten der Volumendichte oberhalb 19–20 km. Unterhalb 15 km zeigt das Retrieval höhere Volumendichten von NAT als die Rechnung. Dies ist möglicherweise die Folge einer vorangegangenen Umverteilung von  $\text{HNO}_3$  durch Sedimentation, die zu einer Erhöhung der Salpetersäurewerte in diesen Schichten geführt haben könnte. Das aktuelle MIPAS-Profil von  $\text{HNO}_3$  kann hier nicht verwendet werden, da in den Höhen, in denen PSCs vorkommen, nicht das gesamte  $\text{HNO}_3$ , sondern nur der Anteil in der Gasphase erfasst wird.

Berechnete und abgeleitete Volumendichten passen im Fall der Typ 1b-PSC gut zusammen. Oberhalb von ca. 19 km überschätzen die Rechnungen die Messung, was möglicherweise eine Folge der verwendeten ECMWF-Temperaturanalysen ist. Diese beinhalten oft zu niedrige Temperaturen in diesen Höhen, wie es Vergleiche mit Radiosonden zeigten (siehe unten).

Die abgeleiteten Volumendichten aus der Beobachtung der Typ 2-PSC sind kleiner als die Ergebnisse der Gleichgewichtsrechnungen. Der wahrscheinliche Grund dafür ist, dass PSCs aus Eisteilchen in Horizontrichtung optisch dicht werden können, so dass es schwierig ist, absolute Volumendichten herzuleiten. Trotzdem scheinen die Ergebnisse im oberen Teil der Wolke sinnvoll zu sein, wie es der Vergleich mit den Lidarmessungen im Folgenden zeigt.

Um die abgeleiteten PSC-Höhenprofile mit den koinzidenten Lidarmessungen vergleichen zu können, wurden aus ersteren Aerosol-Rückstreuoeffizienten bei der Lidarwellenlänge von 532 nm durch Mie-Rechnungen auf der Basis der log-normalen Größenverteilungen bestimmt. Ein Problem dabei ist, dass Literaturangaben der benötigten Brechungsindizes im sichtbaren Spektralbereich stark variieren (Tab. 6.2). Zur Berücksichtigung dieser Unsicherheiten, wurden die Berechnungen der Rückstreuoeffizienten mit unterschiedlichen Brechungsindizes im Bereich 1.37–1.54 für NAT, 1.43–1.55 für STS und 1.30–1.33 für Eis durchgeführt.

Quelle	NAT	STS	Eis
Middlebrook et al. (1994)	$\alpha: 1.51$ $\beta: 1.46$ (@632 nm)		1.30
Deshler et al. (2000)	1.46–1.54	1.43–1.49	
Luo et al. (1996)		1.43	
Scarchilli et al. (2005)	1.37–1.45	1.51–1.55	
Larsen et al. (2000)		1.5 (@940 nm)	1.31–1.33

Tabelle 6.2: Literaturangaben von Brechungsindizes bei 532 nm für unterschiedliche PSC-Zusammensetzungen.

Die Mie-Rechnungen werden in Abb. 6.11 mit den Lidarmessungen verglichen. Im Fall der Typ 1a-Wolke wurden die unterschiedlichen Ergebnisse von  $N(h)$  und  $R$ , die aufgrund der Brechungsindizes Biermann (1998)[coa] und Biermann (1998)[mol] erzielt wurden, zugrunde gelegt. Hierbei übertreffen die gerechneten Rückstreuoeffizienten bei  $R = 0.8 \mu\text{m}$  die Messungen ungefähr um einen Faktor 5. Nimmt man jedoch die größeren Teilchen mit  $R = 1.5 \mu\text{m}$  an, so passen die Ergebnisse gut zu den Werten des Lidar.

Da für absorbierende Teilchen, die klein gegenüber der Wellenlänge sind, keine unabhängige Information über die Teilchengröße in den Messungen vorhanden ist, geben im Fall von Typ 1b-PSCs Modenradien von 0.1, 0.2 oder 0.5  $\mu\text{m}$  ähnliche gute Resultate der Anpassung im Spektralbereich von MIPAS. Wie aus Abb. 6.11 ersichtlich ist, kann das Lidarprofil am besten mit  $R = 0.1 \mu\text{m}$  reproduziert werden. Aber auch  $R = 0.2 \mu\text{m}$  liefert im Fall der kleineren Brechungsindizes von STS (1.43) noch eine gute Übereinstimmung.

Oben wurde gezeigt, dass für die Eis-PSCs die aus MIPAS abgeleitete Volumendichte den wahrscheinlichen Wert aufgrund der großen optischen Dicke unterschätzt. Dies wird durch den Vergleich mit den Lidarmessungen bestätigt (Abb. 6.11). Hierbei sind im Zentrum der Wolke die aufgrund der MIPAS-Ergebnisse berechneten Rückstreuoeffizienten kleiner als die gemessenen. Sieht man sich jedoch die Wolkenobergrenze oberhalb von 21 km an, so stimmen die Berechnungen hier recht gut überein. Dies legt die Vermutung nahe, dass dort die Wolke optisch noch nicht dicht ist, so dass sinnvolle Ergebnisse aus MIPAS abgeleitet werden können. Daher ist es auch möglich, auf dieser Höhe die PSC-Zusammensetzung abzuleiten, wie es oben beschrieben wurde (Abb. 6.9 ).

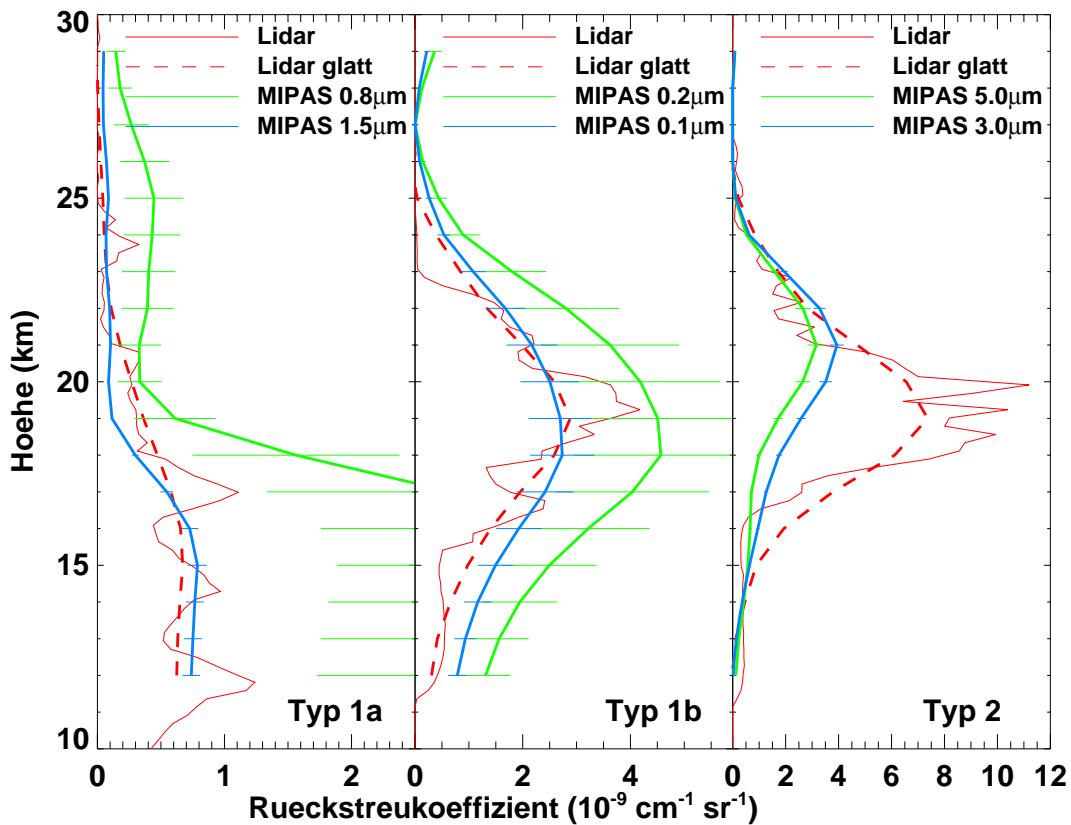


Abbildung 6.11: Vergleich von Aerosol-Rückstreu koef fizienten bei 532 nm zwischen Lidar (rot) und Rechnungen, die auf MIPAS-Ergebnissen basieren (grün und blau). Durchgezogene rote Kurven zeigen die ursprünglichen Lidarmessungen. Diese wurden mit dem Averaging-kernel von MIPAS gefaltet, um die MIPAS-Auflösung darzustellen (rot, gestrichelt). Die Fehlerbalken geben den Wertebereich an, der durch unterschiedliche Literaturangaben der Brechungsindizes bei 532 nm zustande kommt.

## 6.4 Validierung der PSC-Typenklassifikation auf Basis der Farbverhältnis-Methode

In diesem Abschnitt soll eine Methode validiert werden, die es erlaubt, direkt aus den IR-Spektren, d.h. ohne aufwändige Strahlungstransportrechnungen, PSCs zu klassifizieren. Diese Methode wurde von Spang und Remedios (2003) vorgeschlagen. Sie basiert auf Verhältnissen von Strahldichten aus verschiedenen Spektralbereichen (color-ratios, Farbverhältnisse), die auch die Signatur um  $820 \text{ cm}^{-1}$  enthalten.

Abb. 6.12 zeigt Ergebnisse von Strahlungsübertragungsrechnungen, bei denen der Quotient der Strahldichten bei  $820 \text{ cm}^{-1}$  und  $792 \text{ cm}^{-1}$  gegen den CI ( $792 \text{ cm}^{-1} / 832 \text{ cm}^{-1}$ ) aufgetragen ist. Grundlage hierfür waren PSC-Teilchenzahldichteprofile aus Gleichgewichtsrechnungen und bei verschiedenen Übersättigungen für unterschiedliche Temperaturprofile und Teilchenradien. Der Bereich R1 enthält dabei nur Punkte, denen die neuen Brechungsindizes von  $\beta$ -NAT zugrunde lagen. Dabei fallen ausschließlich NAT-Teilchen mit einem mittleren Radius bis  $2 \mu\text{m}$  in dieses Gebiet. Bei größeren Teilchen flacht sich die spektrale Signa-

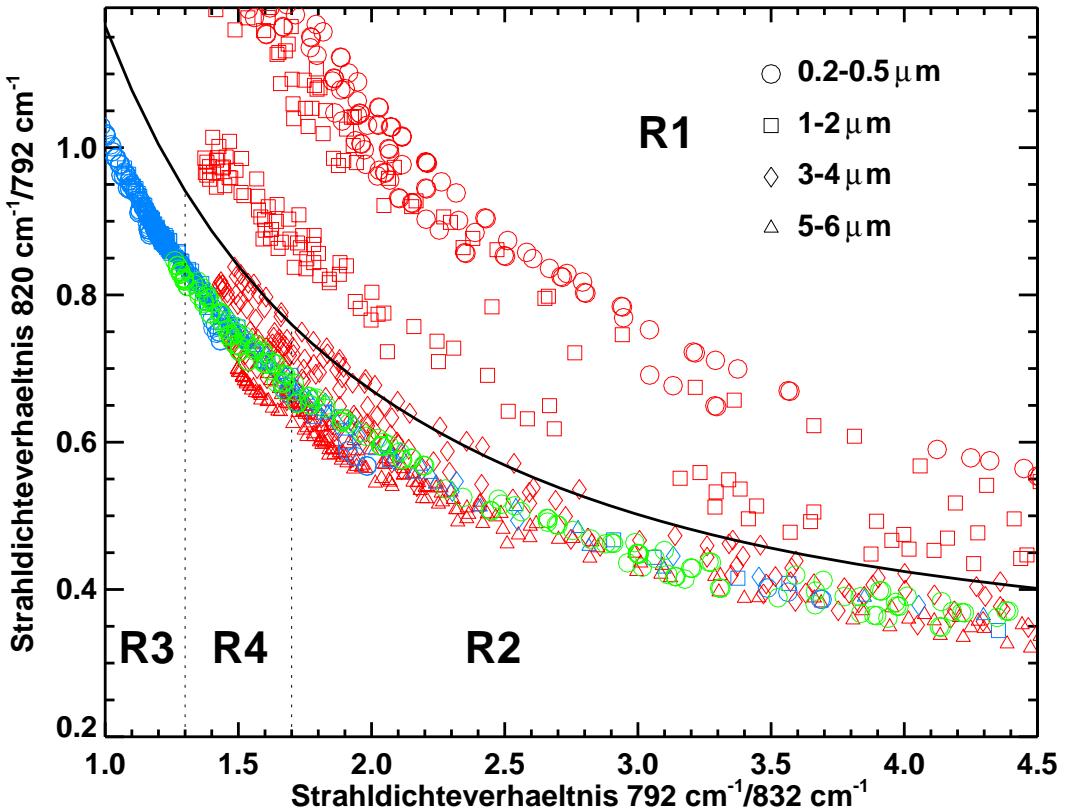


Abbildung 6.12: Mittlere Strahldichte im Bereich  $819\text{--}821\text{ cm}^{-1}$  im Verhältnis zu  $788.2\text{--}796.25\text{ cm}^{-1}$  gegen das Farbverhältnis  $(788.2\text{--}796.25\text{ cm}^{-1})/(832.3\text{--}834.4\text{ cm}^{-1})$  aus Simulationen von PSC-Spektren. Es wurden folgende Brechungsindizes verwendet:  $\beta$ -NAT (rot) Biermann (1998)[coa]; STS (grün) Biermann et al. (2000); ice (blau) Toon et al. (1994). Die unterschiedlichen Symbole zeigen die mittleren Radien der angenommenen Log-Normalverteilungen an.

tur bei  $820\text{ cm}^{-1}$  aufgrund des höheren Streuanteils ab, so dass sie schwer von STS oder Eis unterschieden werden können. Die Region R3, also Punkte mit einem  $\text{CI} < 1.3$  unterhalb der NAT-Kurve, enthält fast ausschließlich Signale von Eisteilchen. Im Bereich R4 erscheinen STS-, Eis- und große NAT-Teilchen, während in R2 hauptsächlich STS und große NAT-Teilchen auftreten. So kann die Anwesenheit von NAT in R1 und Eis in R3 eindeutig nachgewiesen werden. Bei einem Punkt in R2 handelt es sich wahrscheinlich um STS. Am schwierigsten ist eine Zuordnung in R4. Die PSC-Nachweisgrenze wurde hier auf  $\text{CI}=4.5$  gesetzt, was Volumendichten von  $0.2\text{--}0.4\text{ }\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  entspricht (siehe Abb. 6.4).

Zur Auswahl der Lidar/MIPAS-Koinzidenzen im antarktischen Winters 2003 wurde zuerst das Kriterium einer maximalen Entfernung  $\Delta d$  von 800 km und eines maximalen zeitlichen Abstands  $\Delta t$  von 8 h angewandt. Da dies häufig zur Auswahl mehrerer Koinzidenzen führte, wurden diese nach zunehmenden Werten von  $\Delta_{\text{tot}} [\text{km}] = \Delta d [\text{km}] + 100\text{ km/h} \times \Delta t [\text{h}]$  sortiert. Abb. 6.13 zeigt den Vergleich von MIPAS- und Lidar-Höhenprofilen der PSC-Typen von Mitte Juni bis Mitte September 2003 für die besten und zweitbesten Koinzidenzen im Sinne von  $\Delta_{\text{tot}}$ . Für MIPAS wurde die oben beschriebene Farbenverhältnis-Methode angewandt und je nach Region in Abb. 6.12 farblich kodiert. Lidar-PSC-Typen wurden

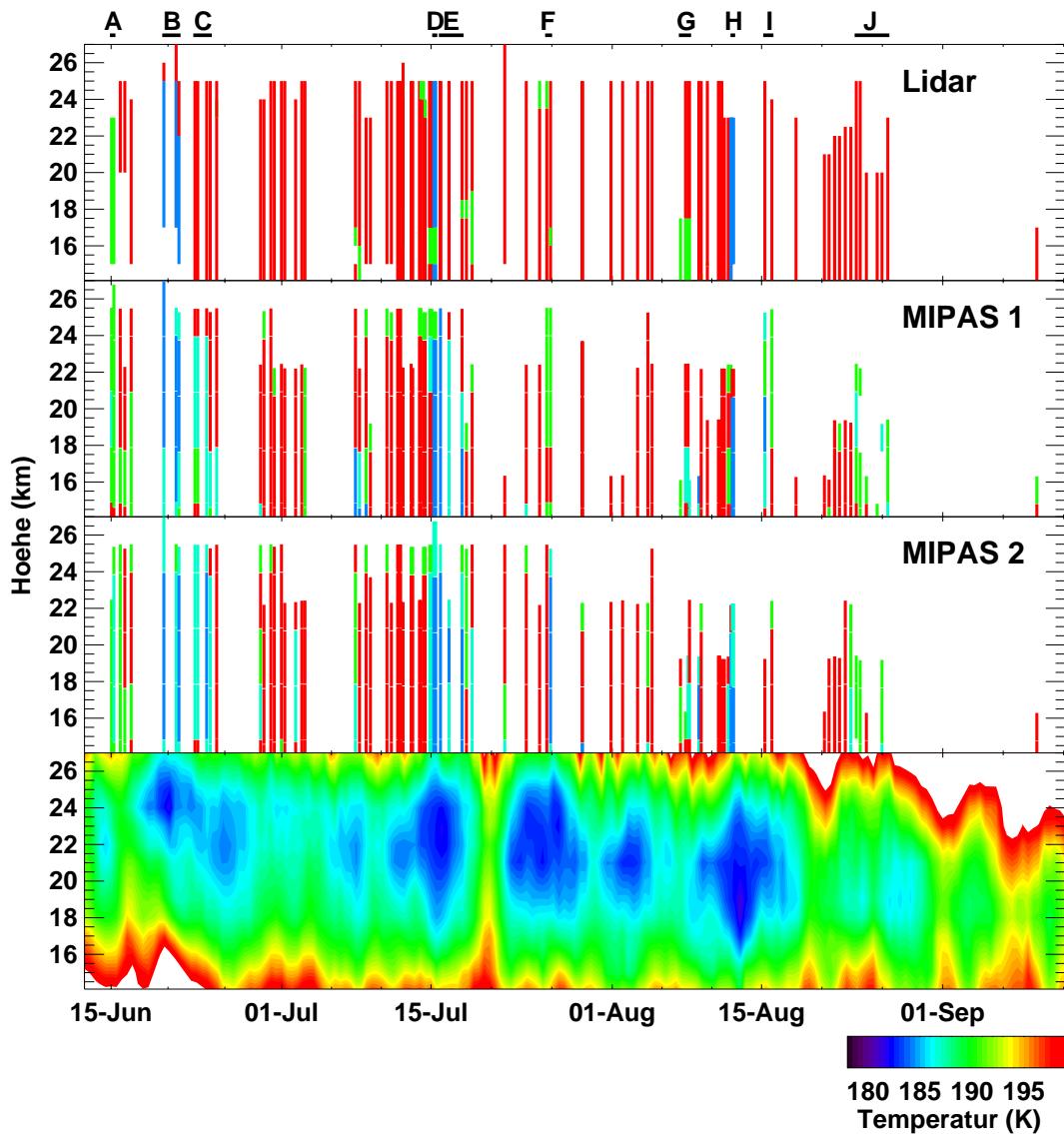


Abbildung 6.13: Vergleich zwischen MIPAS- und Lidar-Analysen der PSC-Typen über McMurdo 2003. Bei den Lidar-Daten kennzeichnet rot den Typ 1a, grün 1b und blau den Typ 2. Bei MIPAS deutet rot Messungen an, die in Region R1 von Abb. 6.12 fallen. Blau sind solche in R3, grün in R2 und blau-grün in R4. „MIPAS 1“ und „MIPAS 2“ gibt, geordnet nach  $\Delta_{tot}$ , die nächste und zweitnächste Koinzidenz zu den Lidar-Messungen an. A–J sind die Perioden, die im Text diskutiert werden. Der untere Teil der Abbildung zeigt den Temperaturverlauf über McMurdo. Hierfür wurden ECMWF-Analysen verwendet, die mittels Sondenmessungen korrigiert wurden.

anhand der Stärke der Rückstreuung und der Depolarisation identifiziert (P. Massoli, F. Cairo, pers. Mitteilung).

Wie die Lidar-Daten zeigen, kamen PSCs vom Typ 1a am häufigsten über McMurdo vor. Reine Typ 1b-PSCs über den gesamten Höhenbereich wurden lediglich am 15. Juni beobachtet (A in Abb. 6.13). An einigen anderen Tagen gab es Typ 1b-Signale nur aus einzelnen Höhen. Wolken vom Typ 2 wurden im wesentlichen während drei Perioden gemessen: am 19–21. Ju-

ni, am 15. Juli und am 12. August. Diese Beobachtungen sind mit niedrigen Temperaturen über McMurdo korreliert (unterer Teil der Abb. 6.13).

Die MIPAS-Beobachtungen passen gut in dieses allgemeine Bild: am häufigsten waren NAT-PSCs, am 15. Juni STS, und Eis wurde an allen Tagen festgestellt an denen auch das Lidar PSCs vom Typ 2 detektierte. Im Folgenden werden einzelne Fälle näher diskutiert, bei denen keine gute Übereinstimmung zwischen MIPAS- und Lidar-Typen besteht. Diese Bereiche sind mit Großbuchstaben in Abb. 6.13 gekennzeichnet.

C 23.–24.6.: Hier beobachtete das Lidar Typ 1a-PSCs während drei Messungen. MIPAS hingegen stellte NAT nur oberhalb von 24 km fest. Für die darunterliegenden Tangentenhöhen gibt es Anzeichen für Eis oder STS und reines Eis bei MIPAS. Die MIPAS-Spektren weisen hohe Strahldichtewerte auf. Diese sind typisch für dichte Eiswolken. Betrachtet man die Umgebung von McMurdo an diesen Tagen, so zeigt sich, dass das Lidar nahe einer ausgedehnten Eiswolke im Süden lag. Außerdem waren die Temperaturen oberhalb der Station noch recht niedrig. Daher ist es wahrscheinlich, dass die MIPAS Messungen stark durch Eis-PSCs entlang des Sehstrahls der Messung beeinflusst waren.

E 16.–18.7.: Wie in (C) ergeben sich auch hier Unterschiede zwischen MIPAS und Lidar kurz nach einer Periode bei der beide Instrumente Eis-PSCs gesichtet hatten.

F 25.–26.7.: Bei der besten MIPAS-Lidar Koinzidenz, die 1.5 h und 100 km von McMurdo entfernt lag, zeigt MIPAS STS oberhalb von 18 km und Lidar den Typ 1b auch an der Oberkante der PSC. „MIPAS 2“ hingegen zeigt NAT. In einem weiteren Profil von „MIPAS 2“ wird Eis detektiert. Es scheint, dass in diesem Fall McMurdo unterhalb einer Zone von heterogenen PSCs lag, was einen Vergleich mit der punktuellen Lidarmessung erschwert.

G 8.8.: Dies ist ein interessanter Fall, da das Lidar eine PSC vom Typ 1b im Höhenbereich von 12 bis 17.5 km detektiert und eine vom Typ 1a darüber. Auch MIPAS zeigt NAT über einer Schicht, die aufgrund ihrer relativ starken Strahldichten in Region R4 fällt und daher auch mit einer Eis-PSC verwechselt werden könnte.

I 15.–16.8.: Das Lidar sieht Typ 1a-PSCs während „MIPAS 1“ verschiedene Zusammensetzungen vermuten lässt, sogar Eis. „MIPAS 2“ passt hingegen besser zu den Lidardaten. Die Erklärung hierfür ist wahrscheinlich eine stark inhomogene Wolkenverteilung durch Leewellen-PSCs, die vom Lidar-Team nahe McMurdo beobachtet wurden.

J 24.–26.8.: Solche orographisch bedingten PSCs scheinen auch der Grund für stark erhöhte Strahldichten in den MIPAS-Daten zu sein. In dieser Periode waren die PSCs, die das Lidar beobachtet hatte allerdings auch nahe an der Nachweisgrenze von MIPAS, so dass es hierdurch zu Problemen bei der Zusammensetzung kommen kann.

## 6.5 Die Entdeckung eines Leewellen-induzierten NAT-Gürtels über der Antarktis

Die Klassifikation nach der Farbverhältnis-Methode bietet die Möglichkeit, die großräumige Entwicklung der PSCs unterschiedlicher Zusammensetzung über der Antarktis zu untersuchen. Im Folgenden gilt das Interesse der ersten Phase der PSC Entstehung von Mitte Mai bis Mitte Juni 2003, da hier aktuelle Fragestellungen, wie die erstmalige Nukleation von NAT Teilchen, untersucht werden kann. Solche Untersuchungen über der Antarktis haben den Vorteil, dass man hier im Gegensatz zu den Verhältnissen über der Arktis von einer homogenen und stetigen Abkühlung des Luftmassen des Polarwirbels und damit auch des Auftretens von PSCs ausgehen kann. MIPAS/Envisat-Messungen sind dabei die ersten großräumigen und zeitlich kontinuierlichen Beobachtungen der PSC-Entwicklung überhaupt.

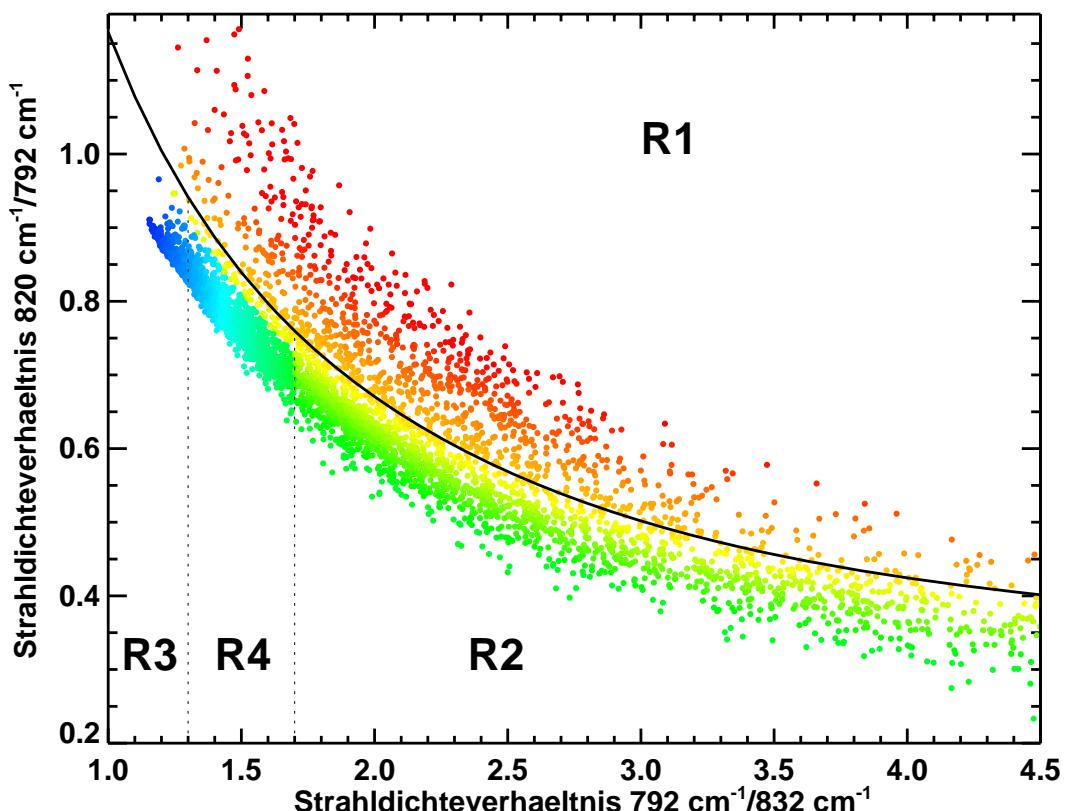


Abbildung 6.14: Scatterplot der Farbverhältnisse von MIPAS-PSC-Beobachtungen im Mai und Juni 2003 für Tangentenhöhen zwischen 16 und 25 km. Die Farbe der einzelnen Punkte zeigt deren Position relativ zu den Regionen in Abb. 6.12. Sie wird im Folgenden dazu benutzt PSC-Typen in MIPAS Messungen und Simulationen darzustellen.

In Abb. 6.14 sind die Farbenverhältnisse aller PSC-Beobachtungen im Mai und Juni 2003 dargestellt. Die Farbkodierung der einzelnen Punkte entspricht ihrer Lage relativ zu den Regionen in Abb. 6.12. Diese Farbskala wurde benutzt, um in Abb. 6.15 die Entwicklung der PSC-Typen in der antarktischen Stratosphäre zeitlich und räumlich aufgelöst zu illustrieren. Erste PSCs wurden am 21. Mai detektiert. Mit sinkenden Temperaturen im Polarwirbel nimmt die Größe des PSC-Felds zu. Seine äußere Grenze folgt dabei den Konturlinien der

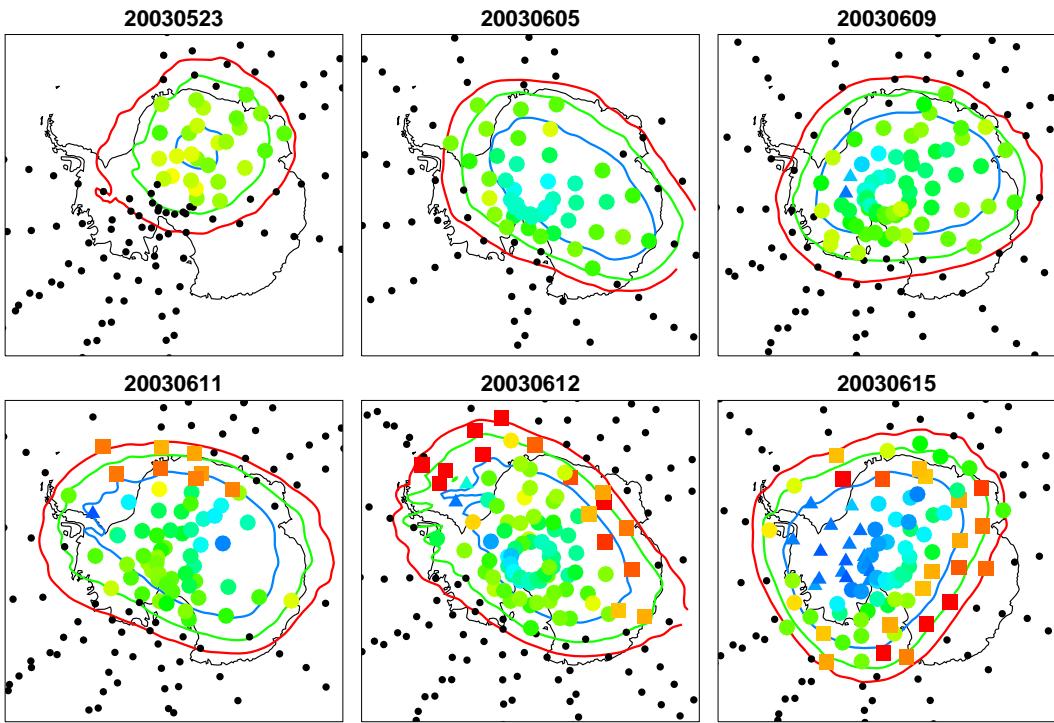


Abbildung 6.15: Großräumige Verteilung der PSC-Zusammensetzung auf einer Höhe von ca. 21 km (460–525 K potentieller Temperatur) aus MIPAS Messungen. Die Farbskala ist in Abb. 6.14 definiert. Rote/orange Quadrate sind NAT Teilchen mit Radien  $< 3 \mu\text{m}$ , blaue Dreiecke sind Eis-PSCs und blau-grüne Kreise sind wahrscheinlich STS (siehe Text). Die Konturlinien basieren auf ECMWF-Analysen und zeigen die Eis- (blau), STS- (grün) bzw. NAT-(rot) Existenztemperatur an. Schwarze Punkte bezeichnen PSC-freie Messungen.

STS-Temperatur. Auch finden sich bis zum 10. Juni nur wenige Punkte in der Temperaturregion zwischen STS und NAT. Dies passt zu der aus der Farbverhältnismethode abgeleiteten Zusammensetzung. Die Punkte liegen dabei hauptsächlich in Region R2, was am wahrscheinlichsten STS als Zusammensetzung bedeutet. Es wurden bis zum 10. Juni auch keine eindeutigen Punkte in R1, d.h. in der NAT-Region, gefunden.<sup>4</sup>

<sup>4</sup>Vom 25.5. bis zum 4.6. gibt es keine Messungen von MIPAS. Daher kann hier ein Auftreten von NAT nicht ausgeschlossen werden. Ein Hinweis darauf, dass auch hier keine größeren NAT-Felder aufgetreten sind, sind Lidar-Beobachtungen von McMurdo am 2.6., die keine festen Teilchen beobachteten.

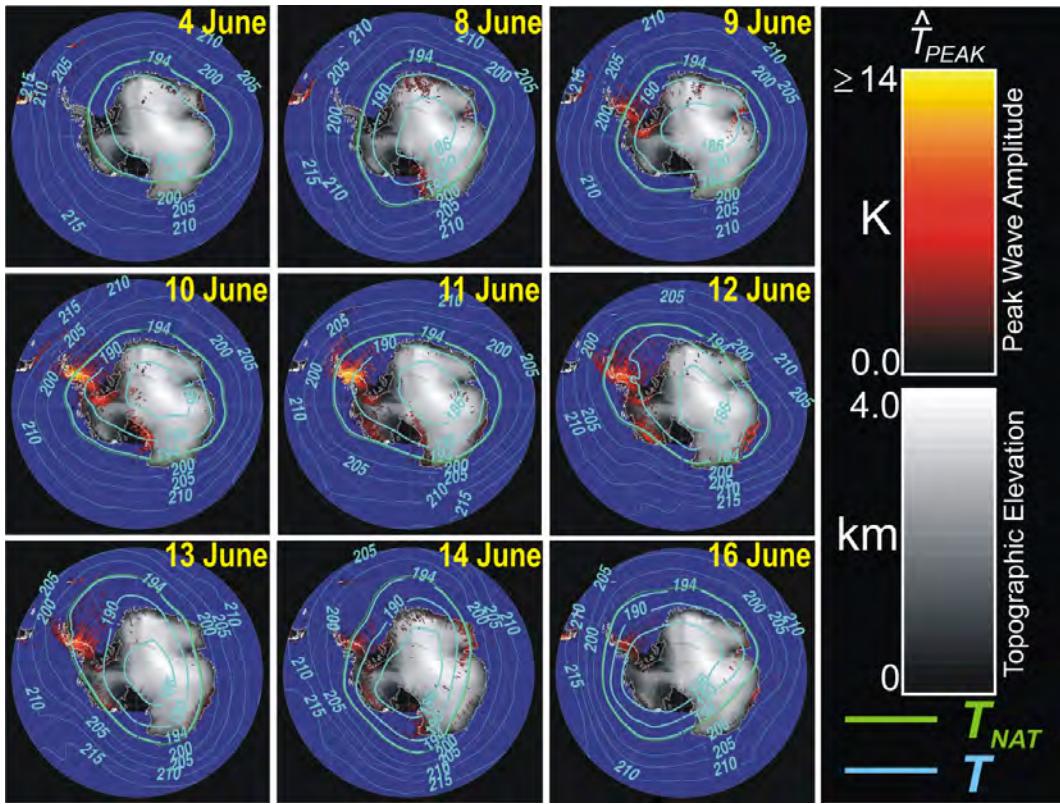


Abbildung 6.16: MWFM-2-Analysen der Temperaturamplituden von Leewellen auf 40 hPa im Juni 2003.

Östlich der antarktischen Halbinsel beobachtet MIPAS am 10. Juni zum ersten mal NAT. Schon einen Tag später hat sich ein größeres NAT-Gebiet bei einer geographischen Breite von ungefähr  $70^{\circ}\text{S}$  zwischen  $45^{\circ}$  westlicher und  $45^{\circ}$  östlicher Länge entwickelt (Abb. 6.15). Schon am 12. Juni zieht sich die NAT-Wolke um die halbe Antarktis und hat eine Länge von ca. 7000 km. Am 15. Juni ist der „NAT-Gürtel“ beinahe geschlossen. Nach diesem Ereignis sind NAT-PSCs bis zum Ende des Winters über der Antarktis weit verbreitet - wie es schon bei dem Vergleich mit dem McMurdo-Lidar der Fall war (Abb. 6.13).

Es stellt sich die Frage, was die Ursache dieser plötzlichen NAT-Bildung über der Antarktis war. In Abb. 6.13 fallen dazu folgenden Punkte auf:

- NAT entstand zuerst im Lee (östlich) der antarktischen Halbinsel, während luvseitig (westlich) bei gleichen Temperaturen keine PSCs vorhanden waren.
- Nahe der Halbinsel gab es vereinzelte MIPAS-Beobachtungen von Eis-PSCs. Diese gehörten zu den ersten, die in diesem Winter beobachtet wurden.
- Diese Eiswolken sind eng korreliert mit Oszillationen in den Temperatur-Konturlinien aus ECMWF-Analysen.

Der letzte Punkt deutet auf langwellige Leewellenstrukturen hin, die in den Analysen möglicherweise explizit aufgelöst sind. Da solche synoptischen Analysen mesoskalische Wellen-

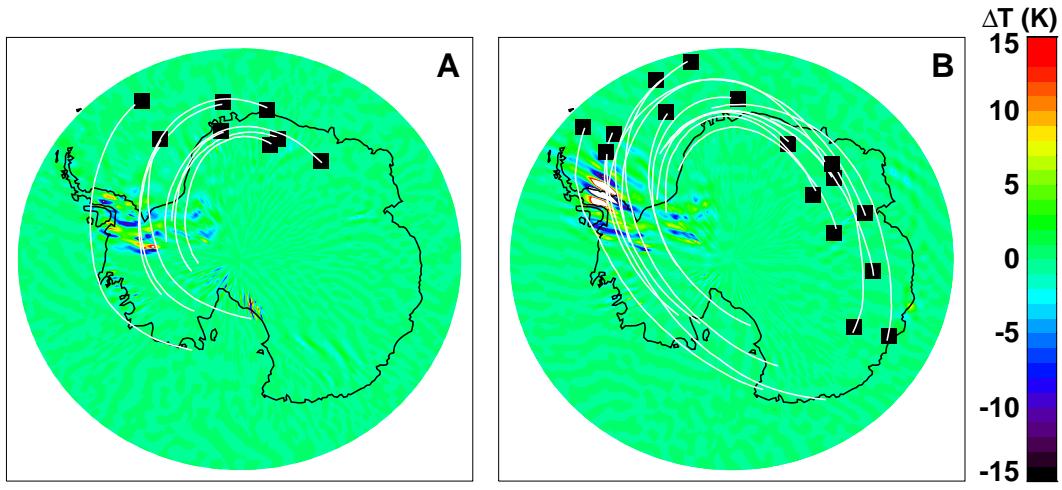


Abbildung 6.17: MWFM-3-Analysen der Leewellen-induzierten Temperaturschwankungen für 12 UT am 10. Juni (A) und am 11. Juni (B). Die weißen Kurven sind Rückwärtstrajektorien vom Zeitpunkt der MIPAS-NAT-Beobachtungen (Quadrate) am 11. Juni (A) und am 12. Juni (B). Diese enden um 0 UT am 10. Juni in (A) und am 11. Juni in (B).

strukturen jedoch eher schlecht auflösen (Hertzog et al. 2002, Fueglistaler et al. 2003, Eckermann et al. 2006), wurden explizite Leewellenberechnungen mittels des Mountain Wave Forecast Models (MWFM) des amerikanischen Naval Research Laboratory (NRL) zu Hilfe gezogen (Eckermann und Preusse 1999, Eckermann et al. 2006, Broutman et al. 2003, Jiang et al. 2004). Abb. 6.16 zeigt den Betrag der Temperaturamplituden von Leewellen in der Modellanalyse auf 40 hPa für verschiedene Tage im Juni 2003. Man erkennt den Anfang eines starken Leewellenereignisses am 9. Juni mit maximalen Amplituden von  $\sim 15$  K am 10. und 11. Juni. Das Ereignis endete am 13. Juni. Rückwärtstrajektorien (B. Knudsen, pers. Mitteilung) zeigen, dass die Luft, die bei den MIPAS-NAT-Beobachtungen am 11. und 12. Juni ankommt, vorher diesen Leewellenbereich über der antarktischen Halbinsel und den Ellsworth Mountains durchströmt hatte (Abb. 6.17), und starken Temperaturfluktuationen ausgesetzt war (Abb. 6.17).

Zur weiteren Analyse wurde versucht, die MIPAS-Beobachtungen mit Hilfe eines mikrophysikalischen Modells des Dänischen Meteorologischen Instituts (DMI) (Larsen et al. 2002b) zu simulieren. Das Modell läuft auf Trajektorien, die den Polarwirbel ausfüllen. Die Grundlage für die Trajektorienrechnungen waren Analysen des ECMWF (Larsen et al. 2002a, Knudsen und Groß 2000, Morcrette 1991). Das Modell wurde vor der PSC-Periode Mitte Mai mittels Breitenmitteln von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3$  aus MIPAS Ergebnissen initialisiert. Ausgabedaten sind Größenverteilungen von NAT, STS und Eis bei jedem Zeitschritt an der aktuellen Position jeder Trajektorie. Um diese Ergebnisse mit den MIPAS-Beobachtungen vergleichen zu können, wurden mit KOPRA aufgrund der Modelldaten MIPAS-Spektren simuliert. Aus diesen spektralen Strahldichten wurden anschließend die Farbverhältnisse auf die gleiche Weise wie aus den Messungen bestimmt. Dabei kamen für NAT Brechungsindizes von Biermann et al. (2000)[coa], für STS diejenigen von Biermann (1998)<sup>5</sup> und für Eis die Indizes von (Toon

<sup>5</sup>Die benötigte Zusammensetzung wurde auf Grundlage thermodynamischen Gleichgewichts (Carslaw et al. 1994) mittels ECMWF Temperaturanalysen,  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3$  Anfangsprofilen von MIPAS und 0.3

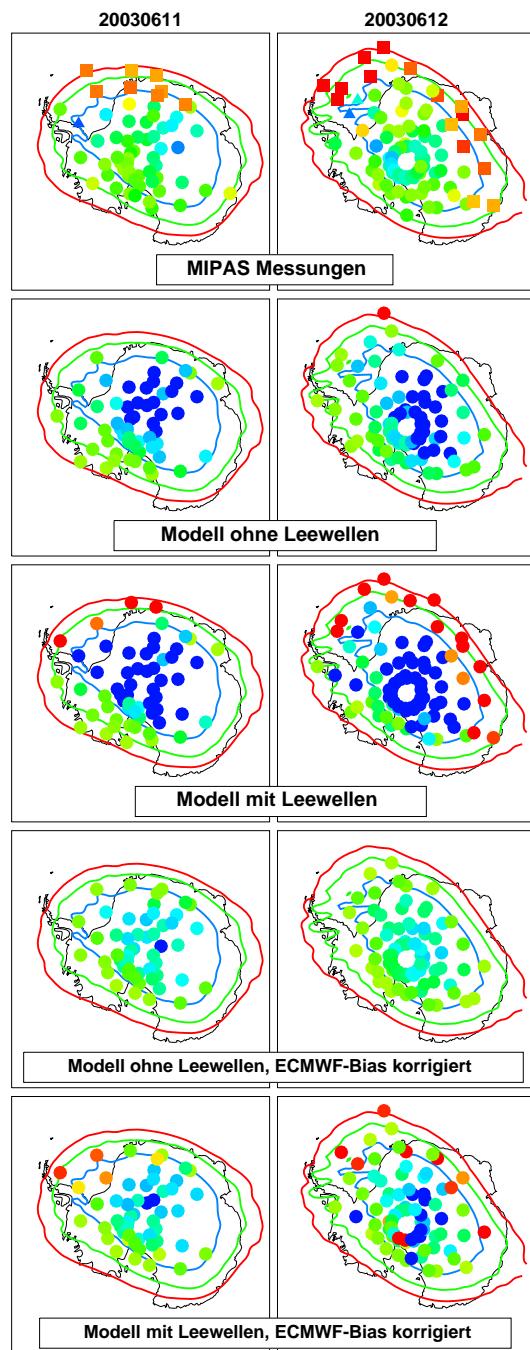


Abbildung 6.18: Vergleich von mikrophysikalischen box-Modellsimulationen des DMI mit MIPAS-Messungen. Die Farbskala indiziert die PSC-Typen wie in Abb. 6.15. Während für die Simulationen in der zweiten Zeile ECMWF-Temperaturanalysen benutzt wurden, sind in der dritten Zeile die Leewellenkorrekturen eingearbeitet. In der vierten und fünften Zeile wurde ein Bias der zugrunde liegenden ECMWF-Analysen korrigiert.

et al. 1994) zur Anwendung. Diese Farbverhältnisse wurden gleichermaßen wie die Messung farbkodiert. In Abb. 6.18 sind die Läufe ohne und mit Leewellenkorrektur dargestellt. In dem

---

ppbv H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> berechnet.

Modell war NAT-Bildung nur über die Eisphase möglich. Die NAT-Beobachtung konnte erst reproduziert werden, als Leewellen im Modell berücksichtigt wurden. In diesem Fall wurden derart tiefe Temperaturen erreicht, dass NAT-Nukleation über die Eisphase möglich war. Die Simulation mit rein synoptischen Temperaturfeldern ergab keine Bildung eines NAT-Gürtels.

Ein Unterschied zwischen den Simulationen und den Beobachtungen besteht darin, dass das Modell über der zentralen antarktischen Region am 11. und 12. Juni PSCs bildet, die einen deutlich niedrigere CI-Werte besitzen und daher in einem dunkleren Blau als die Messwerte in Abb. 6.18 erscheinen. Dies röhrt von stark erhöhten Strahldichten in Folge großräumiger Eis-PSC-Bildung im Modellauf. Die Messungen hingegen detektieren Eiswolken lediglich über der Halbinsel. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich an zu niedrigen synoptischen Temperaturwerten im Modell. Dies zeigt auch ein Vergleich mit Radiosonden, der einen Bias von -1 – -3 K auf 490–570 K potentieller Temperatur in den ECMWF-Daten nahe legt (B. Knudsen und P. von der Gathen, pers. Mitteilung). Berücksichtigt man dies als Korrektur im Modell, so entstehen weniger Eis-PSCs und die zentrale Vortexregion passt besser zur Beobachtung (Abb. 6.18). Auch entstehen bei Anwesenheit von Leewellen NAT-Wolken, die allerdings nicht so gut zu den Messungen passen wie der Lauf mit unkorrigierten Temperaturen. Dies könnte damit in Zusammenhang stehen, dass eine ortsunabhängige Temperatur-Korrektur durchgeführt wurde. Aus den Radiosondenvergleichen und einem Vergleich von ECMWF-Temperaturen mit Radiookkultations-Messungen (Gobiet et al. 2005) geht hervor, dass der Fehler in den ECMWF-Analysen am Südpol größer war als weiter nördlich.

Zwar beweisen die MIPAS-Beobachtungen, dass ab dem 10. Juni NAT im antarktischen Wirbel gebildet wurde. Jedoch kann man nicht eindeutig ausschließen, dass auch vorher schon NAT vorhanden war - beispielsweise als kleiner Volumenanteil zwischen dichten STS-Wolken oder als sehr große Teilchen, die nicht mittels der Farbverhältnis-Methode nachgewiesen werden können. Um die Frage zu untersuchen, inwieweit eine homogene Nukleation von NAT oberhalb des Eis-Frostpunkts mit den Messungen verträglich sein könnte, wurden Modellläufe mit dem mikrophysikalischen Modell des DMI durchgeführt in denen homogenes Gefrieren von NAT aus STS (über NAD als kurzlebige Zwischenphase) nach Tabazadeh et al. (2002) möglich war. Es wurden verschiedene Raten für die homogene Nukleation getestet: die Raten von Tabazadeh et al. (2002) multipliziert mit 0.05 (entsprechend einem Ergebnis von Larsen et al. (2004)), mit 0.005 und mit 0.0005. In dem Modellauf der Multiplikation mit 0.05 erschienen NAT-PSCs mit Teilchenradien von  $> 3 \mu\text{m}$  schon am 23. Mai. Am 5. Juni war der gesamte Polarwirbel mit NAT-PSC ausgefüllt. Aufgrund der großen Teilchen können Sie nicht durch die Farbverhältnismethode in MIPAS-Beobachtungen identifiziert werden. Wie die Modellergebnisse zeigen, würde sie jedoch sehr schnell zu einer Denitrifizierung aufgrund von Sedimentation führen und damit das Vorhandensein von PSCs schon Mitte Juni stark unterdrücken - im Gegensatz zu unseren Beobachtungen (Abb. 6.19). Erst die Multiplikation der Nukleationsrate mit dem Faktor 0.0005 führte zu einer Verträglichkeit mit den Messungen.

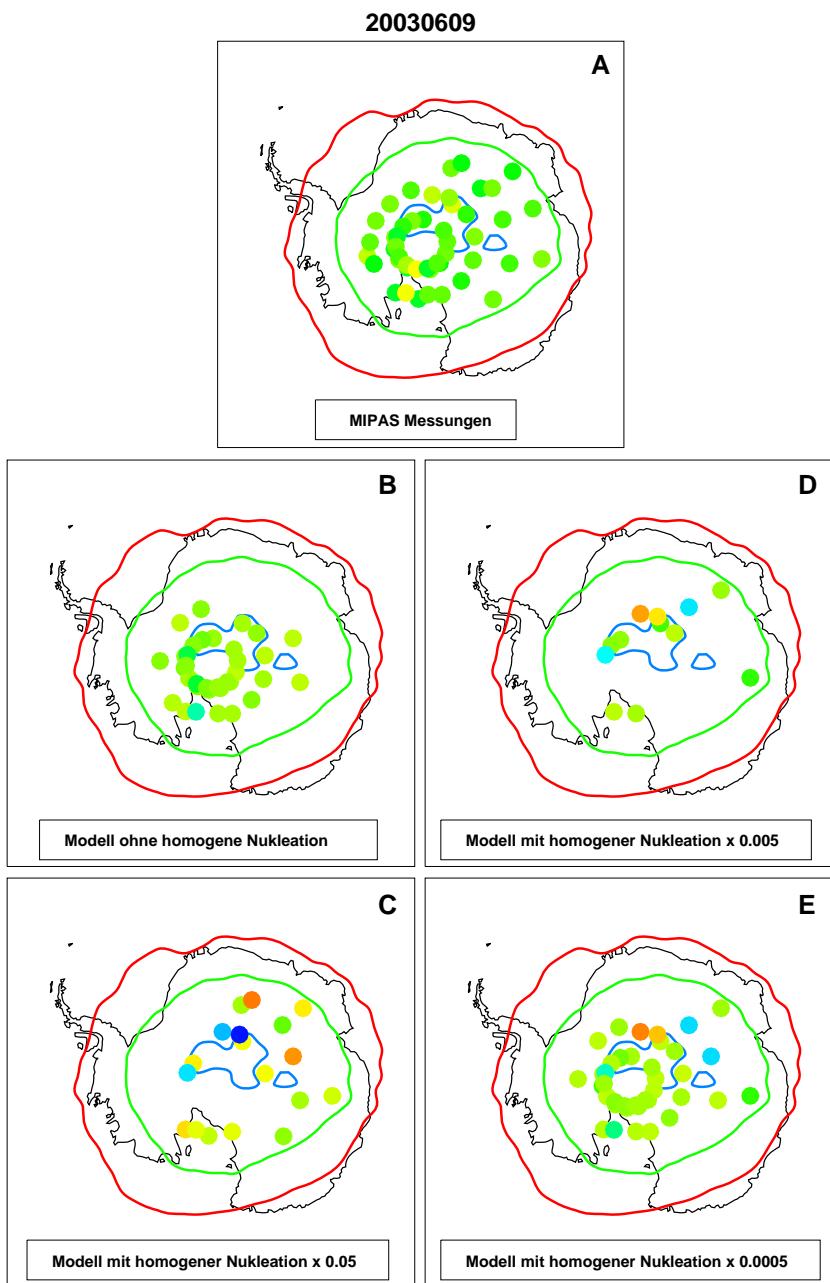


Abbildung 6.19: Vergleich von MIPAS-Beobachtungen auf 24 km Höhe (570 K potentieller Temperatur) am 9.6.2003 und Ergebnissen des mikrophysikalischen Modells, das Sedimentation einschließt. B: NAT-Bildung nur über Eisphase. C–E: homogene Nukleation von NAD (Tabazadeh et al. 2002) und sofortige Konversion zu NAT möglich. C: Nukleationsraten von Tabazadeh et al. (2002)  $\times 0.05$ . D:  $\times 0.005$ . E:  $\times 0.0005$ . Die Farbskala entspricht derjenigen in Abb. 6.14.

## 6.6 Die Suche nach NAD

Aufgrund seiner niedrigeren Energiebarriere für die homogene Nukleation im Vergleich zu NAT wurde auch NAD als mögliche Zusammensetzung von Typ 1a-PSCs vorgeschlagen

(Worsnop et al. 1993, Tabazadeh et al. 2001, Carslaw et al. 2002). Eine spektrale Signatur in den Brechungsindex-Daten bei  $810 \text{ cm}^{-1}$  (siehe Abb. 2.3 in Abschnitt 2.3.2) ermöglicht eine Suche nach Anzeichen für NAD in MIPAS-Messungen mittels einer Farbverhältnismethode äquivalent zu derjenigen, die im Fall von NAT verwendet wurde. Zur Charakterisierung der Methode wurden NAD-Spektren für unterschiedliche Teilchengrößen simuliert und die Farbverhältnisse in Abb. 6.20A dargestellt. Für die Simulationen wurden NAD-Brechungsindizes von Niedziela et al. (1998a) verwendet, da diese mit einer höheren spektralen Auflösung ( $2 \text{ cm}^{-1}$ ) als diejenigen von Toon et al. (1994) ( $8 \text{ cm}^{-1}$ ) gemessen wurden. Die Ergebnisse zeigen, dass es möglich sein sollte, NAD Teilchen mit Radien bis zu  $1 \mu\text{m}$  in MIPAS-Beobachtungen nachzuweisen. Bei größeren Teilchen verschwindet aufgrund des stärker werdenden Streuanteils die NAD-Signatur. Wendet man die Methode auf die PSC-Messungen während des antarktischen Winters 2003 an, so ergeben sich keine eindeutigen Anzeichen für NAD (Abb. 6.20B). Nur 1.8% der 7641 Messpunkte liegen leicht oberhalb der eingezeichneten Teilungskurve. Diese ergeben, wie auch eine visuelle Begutachtung der Messspektren zeigt, keine eindeutigen Hinweise auf eine NAD-Signatur.

Wir schließen hieraus, dass wahrscheinlich keine PSCs mit mittleren Teilchenradien von bis zu  $1 \mu\text{m}$  und Volumendichten  $> 0.3 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  (MIPAS Nachweisgrenze, s.o.) in den beobachteten Luftmassen vorhanden waren.

## 6.7 Zusammenfassung

Mittels Strahlungstransportrechnungen auf der Basis neu abgeleiteter Brechungsindizes aus Biermann et al. (2000) konnte nachgewiesen werden, dass die spektrale Signatur um  $820 \text{ cm}^{-1}$  in MIPAS-PSC-Spektren, die koinzident zu Lidar-Messungen des PSC-Typs 1a aufgenommen wurden, durch  $\beta$ -NAT hervorgerufen wurde. Abgesehen von dieser Signatur passen auch ältere, weniger hoch spektral aufgelöste  $\beta$ -NAT-Labormessungen (Toon et al. 1994) zu den MIPAS-Beobachtungen. NAD, Eis oder STS kann als Zusammensetzung ausgeschlossen werden.

Es konnte jedoch nicht eindeutig geklärt werden, welcher der beiden neuen Datensätze von  $\beta$ -NAT, die unter unterschiedlichen Laborbedingungen gewonnen wurden, besser zur Simulation von NAT-Beobachtungen im IR geeignet ist. Einerseits passt der Datensatz  $\beta$ -NAT[coa] gut zu den gemessenen Spektren und zu vorhergehenden Labormessungen von Toon et al. (1994). Andererseits führen die Datensätze zu unterschiedlichen Ergebnissen der Teilchengröße:  $0.8 \mu\text{m}$  [coa] und  $1.5 \mu\text{m}$  [mol]. Mie-Rechnungen auf Basis des größeren Radius ergeben eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den Rückstreu koefizienten bei  $532 \text{ nm}$  der nahe gelegenen Messung des Lidars in McMurdo.

MIPAS-Spektren von Koinzidenzen mit Lidar-Beobachtungen der PSC-Typen 1b und 2 zeigen keine Signatur bei  $820 \text{ cm}^{-1}$ . Sie konnten am besten mit den Brechungsindizes von STS und Eis angepasst werden.

Simulationen auf Basis der neuen Brechungsindizes wurden benutzt, um eine Farbverhältnismethode, die empirisch aus Messungen mit dem CRISTA-Gerät abgeleitet wurde (Spang und Remedios 2003), zu charakterisieren. Es zeigt sich, dass NAT-Teilchen mit Radien klei-

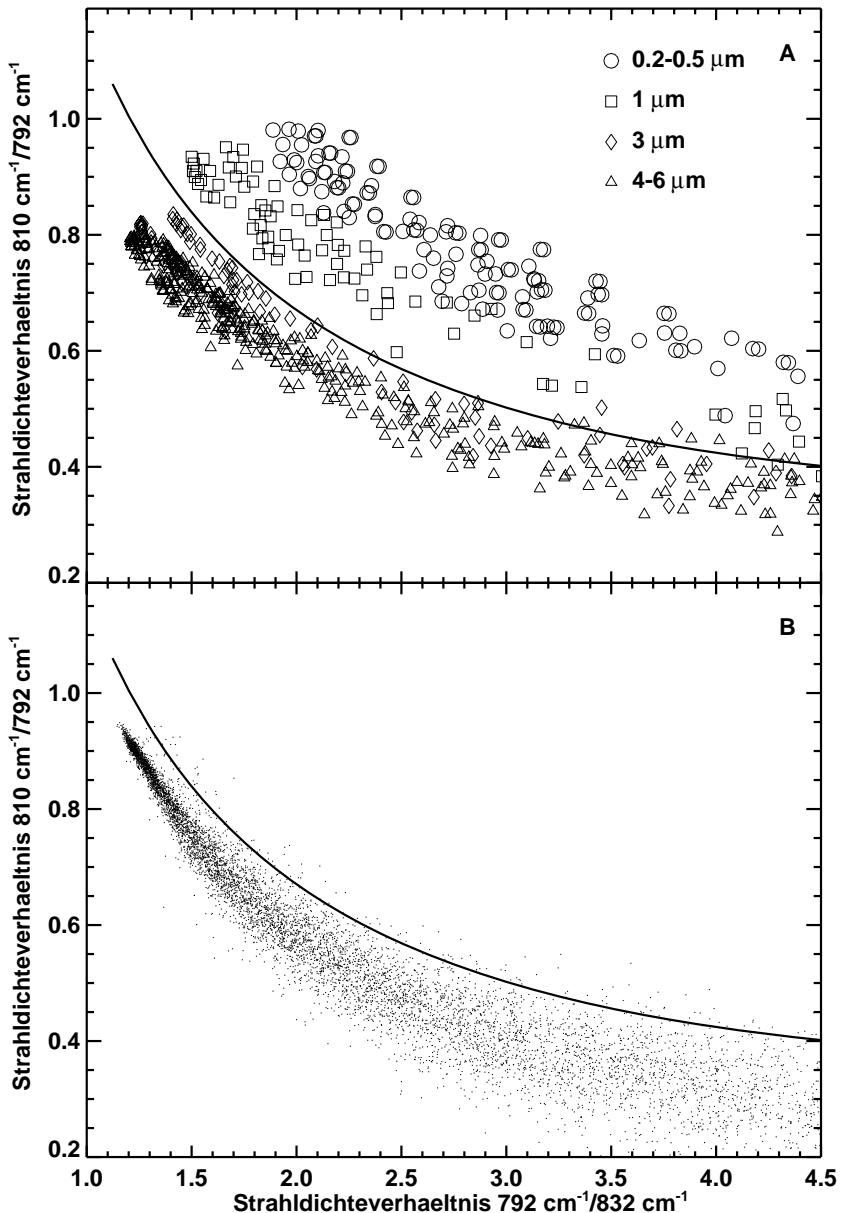


Abbildung 6.20: Suche nach NAD: mittlere Strahldichten im Bereich  $(810.05 - 810.35 \text{ cm}^{-1}) / (788.2 - 796.25 \text{ cm}^{-1})$  gegen das Farbverhältnis  $(788.2 - 796.25 \text{ cm}^{-1}) / (832.3 - 834.4 \text{ cm}^{-1})$  aus Simulationen von PSC-Spektren (A) und aus MIPAS-Messungen (B). Für (A) wurden die Brechungsindizes von Niedziela et al. (1998a) verwendet. Die unterschiedlichen Symbole zeigen die mittleren Radien der angenommenen Log-Normalverteilungen an. (B) enthält alle Datenpunkte von MIPAS-PSC-Sichtungen zwischen Mai und Oktober 2003 im Höhenbereich 16–25 km.

ner als  $3 \mu\text{m}$  und Volumendichten größer als ca.  $0.3 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$  nachgewiesen werden können. Auch Eis-PSCs können aufgrund ihrer großen optischen Dicke gut separiert werden. Schwerer ist es, STS von dünnen Eiswolken oder NAT-PSC mit sehr großen Partikeln zu separieren. Die Methode konnte anhand von koinzidenten Lidar-Beobachtungen über den gesamten antarktischen Winter 2003 hinweg validiert werden. Auftretende Unterschiede sind meist auf

zeitliche/räumliche Inhomogenitäten der PSC-Typen bzw. der Nachweisgrenze von MIPAS zurückzuführen.

Die Farbverhältnis-Methode wurde dazu benutzt die zeitliche und räumliche Entwicklung der PSC-Typen zu Beginn der PSC-Entwicklung über der Antarktis im Mai und Juni 2003 zu untersuchen. Es zeigte sich, dass die erste NAT-Bildung plötzlich am 10./11. Juni einsetzte, obwohl schon seit dem 21. Mai PSCs im Polarwirbel existierten. Es konnte nachgewiesen werden, dass starke Temperaturschwankungen aufgrund von orographisch induzierten Schwerewellen über der antarktischen Halbinsel und den Ellsworth Mountains diese plötzliche NAT-Bildung verursacht haben. NAT nukleiert dabei auf Eisteilchen, die sich aufgrund der stark erniedrigten Temperaturen bilden können. Dies ist der Prozess, der von Carslaw et al. (1999) zum ersten Mal für die arktische Stratosphäre im Winter vorhergesagt wurde. Die Bedeutung von Schwerewellen für die PSC-Bildung im antarktischen Polarwirbel wurde bisher jedoch wegen der allgemein niedrigeren synoptischen Temperaturen und der homogeneren Orographie unterschätzt. Verschiedene Beobachtungen seit den späten 1980er Jahren deuteten auf PSC Entstehung im Gebiet der antarktischen Halbinsel hin (Cariolle et al. 1989, Ricaud et al. 1995). Ein häufiges Auftreten von Leewellen über der Halbinsel im antarktischen Winter wird von Wu und Jiang (2002) und von Bacmeister et al. (1990) berichtet. Dies lässt die Vermutung zu, dass die hier beobachtete Entstehung von NAT-PSCs kein Einzelfall war und eher ein regelmäßig auftretendes Ereignis ist.

Die vorliegenden Ergebnisse zeigen weiterhin, dass die Beobachtung von Denitrifizierung vor einer Dehydrierung der antarktischen winterlichen Stratosphäre (Tabazadeh et al. 2000) nicht notwendigerweise durch die Nukleation von NAT oberhalb des Frostpunktes von Eis zu erklären ist. Es kann vielmehr durch die Bildung großer „mother clouds“ von kleinen NAT-Teilchen in Leewellen früh im Winter verursacht werden. Diese können über die Bildung von großen NAT-„rocks“ zur Denitrifizierung der Luftmassen führen, wie es unabhängig voneinander Dhaniyala et al. (2002) und Fueglistaler et al. (2002b) vorgeschlagen haben.

Die Tatsache, dass MIPAS vor dem Ereignis am 10./11. Juni kein NAT sieht, schließt nicht aus, dass es NAT-PSCs mit Volumendichten unterhalb der Nachweisgrenze oder mit Radien größer als  $3 \mu\text{m}$  gegeben haben könnte. Aufgrund von Simulationen konnte jedoch eine obere Grenze der Nukleationsraten abgeschätzt werden. Diese liegt ca. drei Größenordnungen unterhalb derjenigen von Tabazadeh et al. (2002). Diese Werte sind auch deutlich kleiner, als diejenigen, die Larsen et al. (2004) aus dem Auftreten von festen Teilchen im Dezember 2002 über Schweden abgeleitet hat, ohne dass die Luftmassen vorher unter Leewelleneinfluss gestanden hätten. Wie Spang et al. (2005) zeigte, konnte auch MIPAS im gleichen Zeitraum NAT nachweisen. Eine Erklärung dieser Unterschiede in der NAT-Nukleation zwischen Arktis und Antarktis bleibt weitern Untersuchungen der frühen PSC-Bildung im Polarwirbel vorbehalten.

Eine systematische Suche nach der Signatur von NAD in MIPAS-PSC-Spektren, das z.B. auch als Zwischenprodukt bei der von Tabazadeh et al. (2001) vorgeschlagenen homogenen Nukleation auftritt, war erfolglos.



## 7. Schlussbetrachtung

Der methodische Teil der vorliegenden Arbeit beruht auf der Entdeckung, dass die gestreute Strahlung bei der Horizontsondierung von polaren stratosphärischen Wolken im mittleren infraroten Spektralbereich, zusätzlich zur Eigenemission der Teilchen, einen großen Anteil der gesamten detektierten Strahldichte ausmacht. Grund dafür ist die nicht verschwindende Einfachstreualbedo von PSC-Teilchen und der große Raumwinkel, unter dem die Troposphäre und die Erdoberfläche von der Wolke aus erscheint.

Es konnte gezeigt werden, dass bisherige Methoden zur Ableitung mikrophysikalischer Eigenschaften von PSCs aus Satellitenbeobachtungen, die in einem ersten Schritt aus der Berechnung von Extinktionsprofilen bestehen, bei Teilchenradien von  $\gtrsim 1 \mu\text{m}$  zu fehlerhaften Ergebnissen führen. Daher wurde eine direkte Methode entwickelt, die aus der Ankopplung eines Mie-Modells an das Strahlungsübertragungsprogramm in einem Schritt die Analyse der Wolkenbeobachtungen erlaubt.

Natürlich beschränken sich diese Erkenntnisse nicht allein auf polare stratosphärische Wolken, sondern auf alle Teilchenarten, die in der Atmosphäre in das Gesichtsfeld eines horizontsondierenden IR-Spektrometers gelangen. Die wichtigsten Einflussgrößen, die den Anteil der gestreuten Strahlung bestimmen, sind (a) die effektive Temperatur der strahlenden Oberfläche unterhalb der sondierten Wolken und (b) die mikrophysikalischen Eigenschaften der Teilchen selbst. Punkt (a) impliziert die Abhängigkeit der gestreuten Strahlung von der Erdoberflächentemperatur bei klarem Himmel bzw. der Höhe von Wolken unterhalb des Tangentialpunkts. Unter Punkt (b) ist zu berücksichtigen, dass ihre Größe und Zusammensetzung im wesentlichen die Einfachstreualbedo der Teilchen bestimmt. Lässt sich die Absorption nicht vernachlässigen, wie es im IR aufgrund der dort befindlichen Rotationsschwingungsbanden der Fall ist, so nimmt der Anteil der Streuung mit kleineren Teilchen immer weiter ab bis die Extinktion im wesentlichen von der Absorption bestimmt wird. Aufgrund der kleinen Teilchengröße kann somit das stratosphärische Hintergrundaerosol im IR als nicht streuend angesehen werden und bisherige Analysemethoden bleiben anwendbar. Frisches Vulkanaerosol hingegen kann aufgrund der größeren Partikel zu Streueffekten führen, die bei der Datenauswertung zu berücksichtigen sind.<sup>1</sup>

Auf der anderen Seite der Teilchengrößenskala stehen die unterschiedlichen Arten troposphärischer Wolken. Während Wasserwolken aufgrund ihrer großen optischen Dicke nicht

---

<sup>1</sup>Leider gab es seit Beginn der Messungen von MIPAS keinen Vulkanausbruch, der in einem vergleichbaren Maß wie der Ausbruch des Pinatubo im Jahr 1991 oder des El Chichon 1982 zur Bildung von Aerosolen in der Stratosphäre geführt hat.

als Untersuchungsobjekt für Horizontsondierer in Frage kommen, verhält sich dies bei optisch dünnen Zirren anders. Bei Teilchengrößen von wenigen bis zu einigen zehn Mikrometern ist es unabdingbar, bei der Analyse ihrer Infrarotspektren die gestreute Strahlung zu berücksichtigen. Im Anschluss an unsere Veröffentlichung über den Einfluss der gestreuten Strahlung wurden erste Anzeichen davon in MIPAS-Messungen von Zirren berichtet (Spang et al. 2004). Monte-Carlo-Strahlungstransportmodelle wurden entwickelt, um unsere Arbeiten zu verifizieren und auf Zirrenbeobachtungen anzuwenden (Ewen et al. 2005). Weitere Arbeiten befassten sich mit dem Einbau von Vielfachstreuung in einen Strahlungsübertragungscode (Mendrok 2006) und dessen Anwendung zur Analyse von MIPAS-Messungen von Zirren (Mendrok et al. 2007). Eine Modellstudie der europäischen Weltraumbehörde ESA, bei der unter anderen Modellen auch KOPRA zur Anwendung kam, widmete sich der möglichst realistischen Simulation von Horizontsondierungsmessungen mit einer höheren horizontalen und vertikalen Auflösung im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (Kerridge et al. 2004). Eine weitere ESA-Studie wird sich mit der Entwicklung eines rechenzeitoptimierten Prozessors zur Herleitung von Wolkenparametern aus MIPAS-Messungen beschäftigen (Spang et al. 2007).

Zukünftige Experimente zur Horizontsondierung der Atmosphäre im infraroten Spektralbereich wie beispielsweise PREMIER (PRocess Exploration through Measurements of Infrared and millimetre-wave Emitted Radiation),<sup>2</sup> dessen Zielrichtung die räumlich hochauflöste Beobachtung von Spurengasen und Wolken in oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre ist, müssen schon in der Planungsphase der Datenauswertung die beschriebenen Effekte berücksichtigen.

Neben den methodischen bilden die atmosphärenwissenschaftlichen Erkenntnisse aus der Beobachtung von PSCs mittels Infrarotspektroskopie das zweite Standbein dieser Arbeit. Hierbei handelt es sich zum einen um den ersten eindeutigen spektroskopischen Nachweis von NAT in der Atmosphäre. Dieser wurde durch die Analyse von MIPAS-Messungen mit neuen spektroskopischen Daten und unter Anwendung des im methodischen Teil entwickelten Modells ermöglicht. Die eindeutige Detektion von NAT ist somit mittels Fernerkundung auf globaler Skala möglich. Weiterhin konnten auch STS und Eis als Bestandteile von PSCs nachgewiesen werden.

Ausgehend von diesem Nachweis wurde eine offene Frage der Erforschung von PSCs, nämlich die Nukleation von NAT (Tolbert und Toon 2001) anhand von MIPAS-Messungen studiert. Hierzu wurde der Beginn der PSC-Periode in der südlichen Hemisphäre im Mai/Juni 2003 herangezogen. Der antarktische Polarwirbel ist besonders für diese Untersuchungen geeignet, da sich die zirkumpolare stratosphärische Luftmasse kontinuierlich und im Vergleich zur Arktis ohne besondere Störungen stark abkühlt und sich darin regelmäßig Mitte/Ende Mai die ersten PSCs bilden. Die Auswertung der MIPAS-Daten bezüglich der Zusammensetzung dieser PSCs führte zu der Entdeckung eines NAT-Gürtels, der sich im Juni 2003 um den antarktischen Kontinent in der Stratosphäre ausbildete. In den drei Wochen zuvor konnten keine NAT-, sondern lediglich STS-Teilchen nachgewiesen werden, während danach bis zum Ende des Winters überall im Polarwirbel NAT-PSCs existierten. Durch Anwendung eines mikrophysikalischen PSC-Modells in Verbindung mit Leewellenanalysen konnte gezeigt

---

<sup>2</sup>PREMIER wurde im Mai 2006 zusammen mit fünf weiteren Fernerkundungsexperimenten von der ESA in die engere Auswahl von Kandidaten für die „Earth Explorer Core mission“ gezogen.

werden, dass es sich bei dem Auslöser der vortexweiten NAT-Bildung um ein starkes Leewellenereignis über der antarktischen Halbinsel gehandelt hat. Durch die tiefen Temperaturen entstand Eis als Vorläufer der NAT-Nukleation. Homogene Nukleationsraten mussten im Modell stark herabgesetzt werden, damit die Rechnungen mit den Beobachtungen vor dem Leewellenereignis in Einklang zu bringen waren.

Offen blieb, ob es sich bei diesem Verlauf der PSC-Entwicklung um einen Einzelfall handelte, oder ob ähnliches auch in anderen antarktischen Wintern auftritt. Leider hat MIPAS im Mai/Juni 2002 noch nicht gemessen und 2004 gab es aufgrund von Problemen mit der Vorschubgeschwindigkeit des Interferometers keine Beobachtungen. Ab Anfang 2005 nahm das Gerät in einem Modus mit reduzierter spektraler Auflösung, die jedoch die Bestimmung der PSC-Zusammensetzung nicht beeinträchtigt, die Messungen wieder auf. Die Abdeckung des antarktischen Winters 2005 war zu Beginn leider zu spärlich, um die PSC-Entwicklung mit derjenigen des Jahres 2003 vergleichen zu können. Wie Abb. 7.1 zeigt, sind für den Winter 2006 und 2007 jedoch genügend Messungen vorhanden und eine erste Sichtung ergab ein ähnliches Bild wie 2003<sup>3</sup> (Höpfner et al. 2007a).

Eine weitere Frage resultiert aus dem Vergleich mit der PSC-Bildung in der Arktis. Hier konnte nämlich schon wesentlich früher als über der Antarktis NAT nachgewiesen werden (Spang et al. 2005). Zur Klärung dieser Frage wird angestrebt, mit weiteren Leewellenanalysen nachzuprüfen, ob diese für die frühen arktischen NAT-Beobachtungen verantwortlich sein könnten.

Bezüglich der angewandten Methode zur Identifizierung der PSC-Zusammensetzung ist noch nicht eindeutig geklärt, ob in der Phase vor dem Leewellenereignis im Juni 2003 wirklich nur STS-Partikel vorhanden waren. Kleine Volumendichten an NAT-Teilchen, die in wesentlich größere Mengen von STS-PSCs eingebettet sind, oder sehr große NAT-Partikel lassen sich bisher nicht vom reinen STS-Signal trennen. Ein Fortschritt zur Lösung dieses Problems kündigt sich mit der Inbetriebnahme des CALIOP-Lidars auf dem CALIPSO-Satelliten an (Pitts et al. 2007). Dieses Gerät ermöglicht die Messung der Depolarisation - und damit die Bestimmung des PSC-Typs - vom Satelliten aus. Wurde im Jahr des Starts 2006 leider die Anfangsphase der PSC-Entwicklung verpasst<sup>4</sup>, erfassen 2007 MIPAS und CALIPSO erstmals parallel diesen Zeitraum. Damit besteht die bisher einmalige Möglichkeiten der Kombination von satellitengetragenen Lidar-Rückstreumessungen mit Spektroskopie im Infraroten. Erste Vergleiche zwischen CALIPSO und MIPAS von PSC-Wolkenhöhen und PSC-Typen für das Jahr 2006 sind in dieser Hinsicht sehr vielversprechend.

Der gesicherte Betrieb von MIPAS/Envisat bis zum Jahr 2010 sowie die aktuelle Prüfung einer Verlängerung der Operation bis 2014, wird es erlauben eine Klimatologie des Auftretens und der Zusammensetzung von PSCs über mehr als 10 Jahre hinweg zu erstellen.

---

<sup>3</sup>Das vergleichsweise frühe erste Auftreten von NAT Ende Mai 2007 scheint mit einem schwachen Leewellenereignis nahe McMurdo zusammen zu hängen.

<sup>4</sup>Erste PSC-Messungen gibt es am 13. Juni 2006, an dem MIPAS und LIDAR bereits NAT- bzw. Mischphasen-PSCs detektieren.

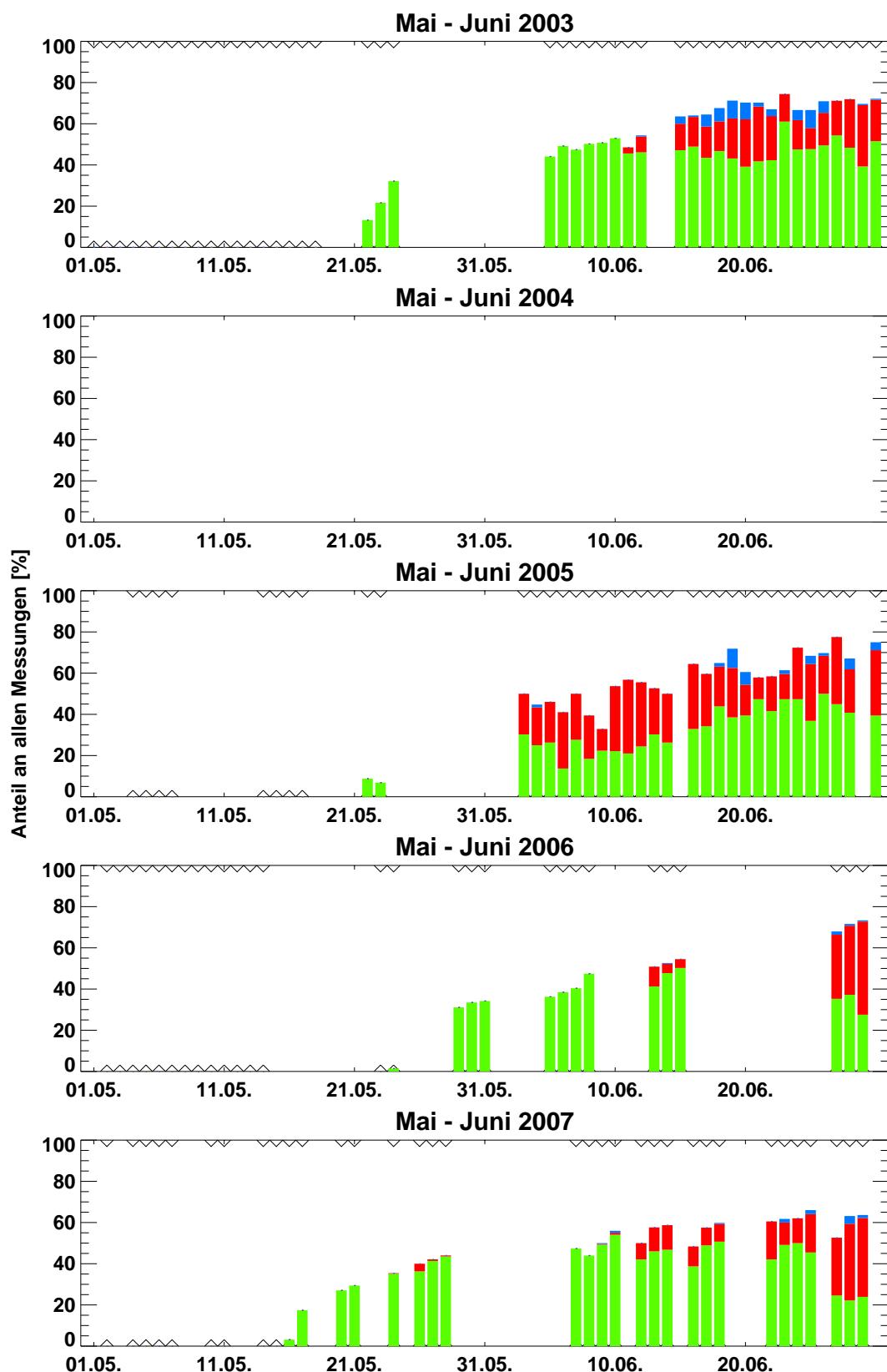


Abbildung 7.1: Relative Anzahl von STS- (grün), NAT- (rot), und Eis- (blau) PSCs im Vergleich zu allen MIPAS/Envisat-Beobachtungen südlich von  $55^{\circ}\text{S}$  auf einer Höhe von ca. 20 km für die Monate Mai und Juni der Jahre 2003 bis 2007. Die Dreiecke an der Abszisse kennzeichnen Tage an denen MIPAS-Beobachtungen im relevanten Höhenbereich vorliegen.

# Danksagung

Ohne jeden Einzelnen namentlich zu nennen, möchte ich mich ganz herzlich bei all den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums und der Universität Karlsruhe bedanken, die, sei es durch Messungen, Ideen, und Diskussionen aber auch durch Bereitstellung von Rechnerleistung und Infrastruktur zu den beschriebenen Arbeiten beigetragen haben. Besonders danke ich meinem ehemaligen Kollegen G. Echle, auf dessen Vorarbeiten viele der vorliegenden Untersuchungen beruhen und Prof. Dr. H. Fischer, der den Anstoß zur Analyse von MIPAS-PSC-Spektren gab.

Folgenden auswärtigen Wissenschaftlern bin ich für die gute und erfolgreiche Kooperation zu Dank verpflichtet: H. Flentje (Institut für Physik der Atmosphäre, DLR Oberpfaffenhofen) und S. Fueglistaler (Laboratorium für Atmosphärenphysik, ETH Zürich, jetzt: Department of Applied Mathematics and Theoretical Physics, University of Cambridge) für die Bereitstellung und Bearbeitung von OLEX-Lidar Messungen; C. Kröger und T. Deshler (Department of Atmospheric Science, University of Wyoming, Laramie) für in-situ Ballonmessungen von Größenverteilungen im Januar 2000; B. P. Luo (Institut für Atmosphäre und Klima, ETH-Zürich) und U. Biermann (ehem. Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz) für die Bereitstellung von Brechungsindizes von  $\beta$ -NAT; P. Massoli, M. Snels und F. Cairo (Consiglio Nazionale delle Ricerche, Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima, Rom) für die Bereitstellung und Analyse der McMurdo-Lidarmessungen; J. Ma und S. D. Eckermann (E. O. Hulbert Center for Space Research, Naval Research Laboratory, Washington) für die Leewellenberechnungen; S. H. Svendsen und N. Larsen (Danish Meteorological Institute, Kopenhagen) für die Modellrechnung zur PSC-Mikrophysik; C. Emde (Institut für Umweltphysik, Universität Bremen, jetzt: Institut für Physik der Atmosphäre, DLR Oberpfaffenhofen) für die Vielfachstreuerechnungen mit ARTS und R. Spang (Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre, Forschungszentrum Jülich) für ausführliche Diskussionen zur CI-Methode und den PSC-Beobachtungen mit MIPAS.

Und nicht zuletzt danke ich meiner Familie: Andrea, Elisa, Felix und Jannis.



# Literaturverzeichnis

- R. W. Adams und H. D. Downing. Infrared optical constants of a ternary system of 75%  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , 10%  $\text{HNO}_3$ , and 15%  $\text{H}_2\text{O}$ . *J. Opt. Soc. Am.*, 3(1):22–28, 1986.
- A. Adriani, T. Deshler, G. P. Gobbi, B. J. Johnson, und G. Di Donfrancesco. Polar stratospheric clouds over McMurdo, Antarctica, during the 1991 spring: Lidar and particle counter measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 19:1755–1758, 1992. doi: 10.1029/92GL01941.
- A. Adriani, T. Deshler, G. Di Donfrancesco, und G. P. Gobbi. Polar stratospheric clouds and volcanic aerosol during spring 1992 over McMurdo Station, Antarctica: Lidar and particle counter comparisons. *J. Geophys. Res.*, 100:25877–25898, 1995. doi: 10.1029/95JD02029.
- A. Adriani, P. Massoli, G. Di Donfrancesco, F. Cairo, M. L. Moriconi, und M. Snels. Climatology of polar stratospheric clouds based on lidar observations from 1993 to 2001 over McMurdo Station, Antarctica. *J. Geophys. Res.*, 109(D18):24211, 2004. doi: 10.1029/2004JD004800.
- H. Akiyoshi, M. Fujiwara, und M. Uryu. Radiative aspects of the Antarctic ozone hole in 1985. *Geophys. Res. Lett.*, 15:919–922, 1988. doi: 10.1029/88GL00410.
- S. E. Anthony, T. B. Onasch, R. T. Tisdale, R. S. Disselkamp, M. A. Tolbert, und J. C. Wilson. Laboratory studies of ternary  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  particles: Implications for polar stratospheric cloud formation. *J. Geophys. Res.*, 102:10777–10784, 1997. doi: 10.1029/96JD03129.
- H. Arctowski. Nuages lumineux et nuages irises. *Ciel et Terre*, pages 17–21, 1 Mars 1902.
- F. Arnold, K. Petzoldt, und E. Reimer. On the formation and sedimentation of stratospheric nitric acid aerosols - Implications for polar ozone destruction. *Geophys. Res. Lett.*, 19:677–680, 1992. doi: 10.1029/92GL00652.
- T. W. Backhouse. Iridescent clouds. *Nature*, 31:192–193, 1885.
- J. T. Bacmeister, M. R. Schoeberl, L. R. Lait, P. A. Newman, und B. Gary. ER-2 mountain wave encounter over Antarctica - Evidence for blocking. *Geophys. Res. Lett.*, 17:81–84, 1990. doi: 10.1029/89GL03653.
- C. M. Benson, K. Drdla, G. E. Nedoluha, E. P. Shettle, J. Alfred, und K. W. Hoppel. Polar stratospheric clouds in the 1998-2003 Antarctic vortex: Microphysical modeling and Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) III observations. *J. Geophys. Res.*, 111:18206, 2006a. doi: 10.1029/2005JD006948.
- C. M. Benson, K. Drdla, G. E. Nedoluha, E. P. Shettle, K. W. Hoppel, und R. M. Bevilacqua. Microphysical modeling of southern polar dehydration during the 1998 winter and comparison with POAM III observations. *J. Geophys. Res.*, 111:7201, 2006b. doi: 10.1029/2005JD006506.

- A. K. Bertram und J. J. Sloan. The nucleation rate constants and freezing mechanism of nitric acid trihydrate aerosol under stratospheric conditions. *J. Geophys. Res.*, 103: 13261–13266, 1998. doi: 10.1029/98JD00921.
- R. M. Bevilacqua, M. D. Fromm, J. M. Alfred, J. S. Hornstein, G. E. Nedoluha, K. W. Hoppel, J. D. Lumpe, C. E. Randall, E. P. Shettle, E. V. Browell, C. Butler, A. Dörnbrack, und A. W. Strawa. Observations and analysis of polar stratospheric clouds detected by POAM III during the 1999/2000 Northern Hemisphere winter. *J. Geophys. Res.*, 107:24–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD000477.
- G. Beyerle, R. Neuber, O. Schrems, F. Wittrock, und B. Knudsen. Multiwavelength lidar measurements of stratospheric aerosols above Spitsbergen during winter 1992/93. *Geophys. Res. Lett.*, 21:57–60, 1994. doi: 10.1029/93GL02846.
- G. Beyerle, B. Luo, R. Neuber, T. Peter, und I. S. McDermid. Temperature dependence of ternary solution particle volumes as observed by lidar in the Arctic stratosphere during winter 1992/1993. *J. Geophys. Res.*, 102:3603–3610, 1997. doi: 10.1029/96JD03385.
- G. Beyerle, H. Deckelmann, R. Neuber, J. M. Rosen, E. Reimer, und M. R. Schoeberl. Occurrence of solid particles in the winter polar stratosphere above the nitric acid trihydrate coexistence temperature inferred from ground-based polarization lidar observations at Ny-Ålesund, Spitsbergen. *J. Geophys. Res.*, 106:2979–2992, 2001. doi: 10.1029/2000JD900569.
- J. Biele, A. Tsias, B. P. Luo, K. S. Carslaw, R. Neuber, G. Beyerle, und T. Peter. Nonequilibrium coexistence of solid and liquid particles in Arctic stratospheric clouds. *J. Geophys. Res.*, 106:22991–23008, 2001. doi: 10.1029/2001JD900188.
- U. M. Biermann. *Gefrier- und FTIR-Experimente zur Nukleation und Lebensdauer stratosphärischer Wolken*. PhD thesis, Universität Bielefeld, 1998. Cuvillier Verlag, ISBN 3-89712-212-X.
- U. M. Biermann, T. Presper, T. Koop, J. Mößinger, P. J. Crutzen, und T. Peter. The unsuitability of meteoritic and other nuclei for polar stratospheric cloud freezing. *Geophys. Res. Lett.*, 23:1693–1696, 1996. doi: 10.1029/96GL01577.
- U. M. Biermann, B. P. Luo, und Th. Peter. Absorption spectra and optical constants of binary and ternary solutions of  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{HNO}_3$ , and  $\text{H}_2\text{O}$  in the mid infrared at atmospheric temperatures. *J. Phys. Chem. (A)*, 104:783–793, 2000.
- J.-P. Blanchet. On radiative heating due to polar stratospheric clouds. *Tellus B*, 37:197–209, 1985.
- A. Bogdan und M. Kulmala. Aerosol silica as a possible candidate for the heterogeneous formation of nitric acid hydrates in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 26:1433–1436, 1999. doi: 10.1029/1999GL900254.
- A. Bogdan, M. J. Molina, M. Kulmala, A. R. MacKenzie, und A. Laaksonen. Study of finely divided aqueous systems as an aid to understanding the formation mechanism of polar stratospheric clouds: Case of  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  systems. *J. Geophys. Res.*, 108: 1–1, 2003. doi: 10.1029/2002JD002605.
- M. Born und E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon, New York, 1965.
- C. Brogniez, N. Huret, S. Eckermann, E. D. Rivière, M. Pirre, M. Herman, J.-Y. Balois, C. Verwaerde, N. Larsen, und B. Knudsen. Polar stratospheric cloud microphysical properties measured by the microRADIBAL instrument on 25 January 2000 above Esrange and modeling interpretation. *J. Geophys. Res.*, 108:75–1, 2003. doi: 10.1029/2001JD001017.

- S. D. Brooks, O. B. Toon, M. A. Tolbert, D. Baumgardner, B. W. Gandrud, E. V. Browell, H. Flentje, und J. C. Wilson. Polar stratospheric clouds during SOLVE/THESEO: Comparison of lidar observations with in situ measurements. *J. Geophys. Res.*, 109:2212, 2004. doi: 10.1029/2003JD003463.
- D. Broutman, J. W. Rottman, und S. D. Eckermann. A Simplified Fourier Method for Nonhydrostatic Mountain Waves. *J. Atmos. Sci.*, 60:2686–2696, 2003.
- E. Browell, C. Butler, W. Grant, S. Kooi, A. Notari, V. Brackett, L. Lait, und P. Newman. Comparison of polar stratospheric cloud properties observed during SOLVE-I and SOLVE-II campaigns. *Poster EAE03-A-9570, EGS-AGU-EGU Joint Assembly*, page 9570, 2003.
- E. V. Browell, C. F. Butler, S. Ismail, P. A. Robinette, A. F. Carter, N. S. Higdon, O. B. Toon, M. R. Schoeberl, und A. F. Tuck. Airborne lidar observations in the wintertime Arctic stratosphere: polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 17(4):385–388, 1990. doi: 10.1029/90GL00333.
- S. A. Buehler, P. Eriksson, T. Kuhn, A. von Engeln, und C. Verdes. ARTS, the Atmospheric Radiative Transfer Simulator. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 91(1):65–93, 2005.
- M. Cacciani, P. Colagrande, A. di Sarra, D. Fuà, P. Di Girolamo, und G. Fiocco. Lidar observations of polar stratospheric clouds at the South Pole 2. Stratospheric perturbed conditions, 1992 and 1993. *J. Geophys. Res.*, 102:12945–12956, 1997a. doi: 10.1029/97JD00361.
- M. Cacciani, G. Fiocco, P. Colagrande, P. Di Girolamo, A. di Sarra, und D. Fuà. Lidar observations of polar stratospheric clouds at the South Pole. 1. Stratospheric unperturbed conditions, 1990. *J. Geophys. Res.*, 102:12937–12944, 1997b. doi: 10.1029/97JD00360.
- D. Cariolle, S. Muller, F. Cayla, und M. P. McCormick. Mountain waves, polar stratospheric clouds, and the ozone depletion over Antarctica. *J. Geophys. Res.*, 94(D9):11233–11240, 1989. doi: 10.1029/88JD04154.
- B. Carli, M. Carlotti, M. Höpfner, P. Raspollini, und M. Ridolfi. Development of an optimised algorithm for routine p, t and vmr retrieval from MIPAS limb emission spectra: High level algorithm definition and physical and mathematical optimisations. Technical report, European Space Agency, ESTEC, 1997. Technical Note, ESA Contract Number 11711/95/NL/CN, CCN2.
- K. S. Carslaw, B. P. Luo, S. L. Clegg, T. Peter, P. Pringlecombe, und P. J. Crutzen. Stratospheric aerosol growth and  $\text{HNO}_3$  gas phase depletion from coupled  $\text{HNO}_3$  and water uptake by liquid particles. *Geophys. Res. Lett.*, 21(23):2479–2482, 1994. doi: 10.1029/94GL02799.
- K. S. Carslaw, B. Luo, und T. Peter. An analytic expression for the composition of aqueous  $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{SO}_4$  stratospheric aerosols including gas phase removal of  $\text{HNO}_3$ . *Geophys. Res. Lett.*, 22(14):1877–1880, 1995. doi: 10.1029/95GL01668.
- K. S. Carslaw, T. Peter, und S. L. Clegg. Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols. *Rev. Geophys.*, 35:125–154, 1997. doi: 10.1029/97RG00078.
- K. S. Carslaw, M. Wirth, A. Tsias, B. P. Luo, A. Dörnbrack, M. Leutbecher, H. Volkert, W. Renger, J. T. Bachmeister, und T. Peter. Particle microphysics and chemistry in remotely observed mountain polar stratospheric clouds. *J. Geophys. Res.*, 103(D5):5785–5796, 1998a. doi: 10.1029/97JD03626.
- K. S. Carslaw, M. Wirth, A. Tsias, B. P. Luo, A. Dörnbrack, M. Leutbecher, H. Volkert, W. Renger, J. T. Bachmeister, E. Reimer, und T. Peter. Increased stratospheric ozone depletion due to mountain-induced atmospheric waves. *Nature*, 391:675–678, 1998b.

- K. S. Carslaw, T. Peter, J. T. Bacmeister, und S. D. Eckermann. Widespread solid particle formation by mountain waves in the Arctic stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 104(13):1827–1836, 1999. doi: 10.1029/1998JD100033.
- K. S. Carslaw, J. A. Kettleborough, M. J. Northway, S. Davies, R. Gao, D. W. Fahey, D. G. Baumgardner, M. P. Chipperfield, und A. Kleinböhl. A vortex-scale simulation of the growth and sedimentation of large nitric acid hydrate particles. *J. Geophys. Res.*, (D20): 43–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD000467.
- A. H. Y. Chan, D. R. Jackson, und J. E. Harries. HALOE observations of polar stratospheric clouds in the antarctic in October 1993. *Adv. Space Res.*, 22:1529–1532, 1998.
- S. Chapman. Clouds high in the stratosphere. *Nature*, 129:497–499, 1932.
- F. Cheruy, N. A. Scott, R. Armante, B. Tournier, , und A. Chedin. Contribution to the development of radiative transfer models for high spectral resolution observations in the infrared. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 53:597–611, 1995.
- S. Chubachi. A special ozone observation at Syowa Station, Antarctica from February 1982 to January 1983. In C. S. Zerefos und A. Ghazi, editors, *Atmospheric Ozone, Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium, Halkidiki, Greek, 3–7 September 1984*, pages 285–289, 1984.
- M. L. Clapp, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. Frequency-dependent optical constants of water ice obtained from aerosol extinction spectra. *J. Phys. Chem. (A)*, 99:6317–6326, 1995.
- M. L. Clapp, R. F. Niedziela, L. J. Richwine, T. Dransfield, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. Infrared spectroscopy of sulfuric acid/water aerosols: Freezing characteristics. *J. Geophys. Res.*, 102:8899–8908, 1997. doi: 10.1029/97JD00012.
- S. A. Clough, F. X. Kneizys, E. P. Shettle, und G. P. Anderson. Atmospheric radiance and transmittance: FASCOD2. In *Proceedings of the Sixth Conference on Atmospheric Radiation*, pages 141–146. Am. Meteorol. Soc., Williamsburg, Va., May 1986.
- S. A. Clough, F. X. Kneizys, und R. W. Davies. Line shape and the water vapor continuum. *Atmospheric Research*, 23:229–241, 1989.
- J. Cocheme. The geographpy of soaring. *Geogr. Mag.*, 21:233, 1948.
- U. Cortesi, J. C. Lambert, C. De Clercq, G. Bianchini, T. Blumenstock, A. Bracher, E. Castelli, V. Catoire, K. V. Chance, M. De Mazière, P. Demoulin, S. Godin-Beekmann, N. Jones, K. Jucks, C. Keim, T. Kerzenmacher, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, M. Iarlori, G. Y. Liu, Y. Liu, I. S. McDermid, Y. J. Meijer, F. Mencaraglia, S. Mikuteit, H. Oelhaf, C. Piccolo, M. Pirre, P. Raspollini, F. Ravagnani, W. J. Reburn, G. Redaelli, J. J. Remedios, H. Sembhi, D. Smale, T. Steck, A. Taddei, C. Varotsos, C. Vigouroux, A. Waterfall, G. Wetzel, und S. Wood. Geophysical validation of MIPAS-ENVISAT operational ozone data. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:4807–4867, 2007.
- P. J. Crutzen und F. Arnold. Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for springtime "ozone hole". *Nature*, 324:651–655, 1986.
- C. David, S. Bekki, S. Godin, G. Mégie, und M. P. Chipperfield. Polar stratospheric clouds climatology over Dumont d'Urville between 1989 and 1993 and the influence of volcanic aerosols on their formation. *J. Geophys. Res.*, 103:22163–22180, 1998. doi: 10.1029/98JD01692.
- T. Deshler, A. Adriani, D. J. Hofmann, und G. P. Gobbi. Evidence for denitrification in the

- 1990 Antarctic spring stratosphere: II. Lidar and Aerosol measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 18:1999–2002, 1991. doi: 10.1029/91GL02310.
- T. Deshler, B. Nardi, A. Adriani, F. Cairo, G. Hansen, F. Fierli, A. Hauchecorne, und L. Pulvirenti. Determining the index of refraction of polar stratospheric clouds above Andoya (69°N) by combining size-resolved concentration and optical scattering measurements. *J. Geophys. Res.*, 105(D3):3943–3954, 2000. doi: 10.1029/1999JD900469.
- S. Dhaniyala, K. A. Mckinney, und P. O. Wennberg. Lee-wave clouds and denitrification of the polar stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 29:36–1, 2002. doi: 10.1029/2001GL013900.
- G. Di Donfrancesco1, A. Adriani, G. P. Gobbi, und F. Cairo. Lidar observations of the stratospheric aerosol during 1993 above McMurdo Station, Antarctica. *J. Atm. Sol. Terr. Phys.*, 62:713–723, 2000.
- H. Dieterichs. Über die entstehung der perlmutterwolken. *Meteorol. Rundschau*, 9/10:208–213, 1950.
- A. Dörnbrack, M. Leutbecher, J. Reichardt, A. Behrendt, K.-P. Müller, und G. Baumgarten. Relevance of mountain wave cooling for the formation of polar stratospheric clouds over Scandinavia: Mesoscale dynamics and observations for January 1997. *J. Geophys. Res.*, 106(D2):1569–1582, 2001. doi: 10.1029/2000JD900194.
- A. Dörnbrack, T. Birner, A. Fix, H. Flentje, A. Meister, H. Schmid, E. V. Browell, und M. J. Mahoney. Evidence for inertia gravity waves forming polar stratospheric clouds over Scandinavia. *J. Geophys. Res.*, (D20):8287, 2002. doi: 10.1029/2001JD000452.
- H. D. Downing und D. Williams. Optical constants of water in the infrared. *J. Geophys. Res.*, 21(13):1327–1330, 1994.
- K. Drdla und E. V. Browell. Microphysical modeling of the 1999–2000 Arctic winter: 3. Impact of homogeneous freezing on polar stratospheric clouds. *J. Geophys. Res.*, 109 (D18):10201, 2004. doi: 10.1029/2003JD004352.
- K. Drdla, A. Tabazadeh, R. P. Turco, M. Z. Jacobson, J. E. Dye, C. Twohy, und D. Baumgardner. Analysis of the physical state of one Arctic polar stratospheric cloud based on observations. *Geophys. Res. Lett.*, 21:2475–2478, 1994. doi: 10.1029/94GL02405.
- K. Drdla, M. R. Schoeberl, und E. V. Browell. Microphysical modeling of the 1999–2000 Arctic winter: 1. Polar stratospheric clouds, denitrification, and dehydration. *J. Geophys. Res.*, 108:55–1, 2003. doi: 10.1029/2001JD000782.
- A. Dudhia und P. Raspollini. Results of intercomparisons of the OFM and the RFM code PO-TN-OXF-GS-0007. Technical report, Oxford University and IROE, December, 9, 1996. Combination of Task Reports on Task 2.1 (PO-SW-ESA-GS-0315) and Task 3.3 (PO-SW-ESA-GS-00323) of ESA Contract 12055/96/NL/CN.
- J. E. Dye, B. W. Gandrud, D. Baumgardner, K. R. Chan, G. V. Ferry, und M. Loewenstein. Observed particle evolution in the polar stratospheric cloud of January 24, 1989. *Geophys. Res. Lett.*, 17:413–416, 1990. doi: 10.1029/90GL00334.
- J. E. Dye, D. Baumgardner, B. W. Gandrud, S. R. Kawa, K. K. Kelly, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan, und B. L. Gary. Particle size distributions in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation. *J. Geophys. Res.*, 97:8015–8034, 1992. doi: 10.1029/91JD02740.
- G. Echle. Ableitung von optischen und mikrophysikalischen Parametern stratosphärischer Aerosole aus Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich. Wissenschaftliche Berichte

- FZKA 5811, Forschungszentrum Karlsruhe, 1996.
- G. Echle, T. von Clarmann, und H. Oelhaf. Optical and microphysical parameters of the Mt. Pinatubo aerosol as determined from MIPAS–B mid–IR limb emission spectra. *J. Geophys. Res.*, 103(D15):19193–19211, 1998. doi: 10.1029/98JD01363.
- S. D. Eckermann und P. Preusse. Global measurements of stratospheric mountain waves from space. *Science*, 286:1534–1537, 1999.
- S. D. Eckermann, A. Dörnbrack, S. B. Vosper, H. Flentje, M. J. Mahoney, T. P. Bui, und K. S. Carslaw. Mountain wave induced polar stratospheric cloud forecasts for aircraft science flights during SOLVE/THESEO 2000. *Wea. Forecasting*, 21:42–68, 2006.
- D. P. Edwards. Atmospheric transmittance and radiance calculations using line–by–line computer models. In L. S. Rothman, editor, *Modelling of the Atmosphere*, volume 928, pages 94–116, 1988.
- Ehlers, Janowsky, und Gähler. Zur Taxonomie von Fernerkundungssystemen. In *New Remote Sensing Concepts for Environmental Monitoring*, 2001.
- A. Eldering, F. W. Irion, A. Y. Chang, M. R. Gunson, F. P. Mills, und H. M. Steele. Vertical profiles of aerosol volume from high–spectral–resolution infrared transmission measurements. I. Methodology. *Appl. Opt.*, 40(18):3082–3091, 2001.
- C. Emde. A polarized discrete ordinate scattering model for radiative transfer simulations in spherical atmospheres with thermal source. PhD thesis, Berichte aus dem Institut für Umweltphysik, 25, Universität Bremen, 2005.
- P. Eriksson, S. A. Buehler, C. Emde, Sreerekha T. R., C. Melsheimer, und O. Lemke. ARTS user guide. Technical report, University of Bremen, 2003. Regularly updated versions available at [www.sat.uni-bremen.de/arts/](http://www.sat.uni-bremen.de/arts/).
- ESA. Envisat MIPAS: An instrument for atmospheric chemistry and climate research. Technical Report SP-1229, European Space Agency, SA Publications Division, ESTEC, P. O. Box 299, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, March 2000.
- ESA. *Proc. Envisat Validation Workshop, 9–13 December, 2002, ESRIN, Frascati, Italy, SP-531*. ESA Publications Division, ESTEC, Postbus 299, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2003.
- ESA. *Proc. Second Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of Envisat (ACVE-2), 3–7 May, 2004, ESRIN, Frascati, Italy, SP-562*. ESA Publications Division, ESTEC, Postbus 299, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2004.
- ESA. *Proc. Third Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of Envisat (ACVE-3), 4–7 December, 2006, ESRIN, Frascati, Italy, SP-642*. ESA Publications Division, ESTEC, Postbus 299, 2200 AG Noordwijk, The Netherlands, 2007.
- G. B. L. Ewen, R. G. Grainger, A. Lambert, und A. J. Baran. Infrared radiative transfer modelling in a 3D scattering cloudy atmosphere: Application to limb sounding measurements of cirrus. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 96:45–74, 2005.
- D. W. Fahey, D. M. Murphy, K. K. Kelly, M. K. W. Ko, M. H. Proffitt, C. S. Eubank, G. V. Ferry, M. Loewenstein, und K. R. Chan. Measurements of nitric oxide and total reactive nitrogen in the Antarctic stratosphere: Observations and chemical implications. *J. Geophys. Res.*, 94(D14):16,665–16,681, 1989. doi: 10.1029/89JD01184.
- D. W. Fahey, R. S. Gao, K. S. Carslaw, J. Kettleborough, P. J. Popp, M. J. Northway, J. C. Holecek, S. C. Ciciora, R. J. McLaughlin, T. L. Thompson, R. H. Winkler, D. G.

- Baumgardner, B. Gandrud, P. O. Wennberg, S. Dhaniyala, K. McKinney, T. Peter, R. J. Salawitch, T. P. Bui, J. W. Elkins, C. R. Webster, E. L. Atlas, H. Jost, J. C. Wilson, R. L. Herman, A. Kleinböhl, und M. von König. The detection of large  $\text{HNO}_3$ -containing particles in the winter Arctic stratosphere. *Science*, 291:1026–1031, 2001.
- J. C. Farman, B. G. Gardiner, und J. D. Shanklin. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal  $\text{ClO}_x/\text{NO}_x$  interaction. *Nature*, 315:207–210, 1985.
- G. Fiocco, M. Cacciani, P. Di Girolamo, D. Fuà, und J. DeLuisi. Stratospheric Clouds at South Pole During 1988 1. Results of Lidar Observations and Their Relationship to Temperature. *J. Geophys. Res.*, 97:5939–5946, 1992. doi: 10.1029/91JD03124.
- H. Fischer und H. Oelhaf. Remote sensing of vertical profiles of atmospheric trace constituents with MIPAS limb-emission spectrometers. *Appl. Opt.*, 35(16):2787–2796, 1996.
- H. Fischer, M. Birk, C. Blom, B. Carli, M. Carlotti, T. von Clarmann, L. Delbouille, A. Dudhia, D. Ehhalt, M. Endemann, J. M. Flaud, R. Gessner, A. Kleinert, R. Koopmann, J. Langen, M. López-Puertas, P. Mosner, H. Nett, H. Oelhaf, G. Perron, J. Remedios, M. Ridolfi, G. Stiller, und R. Zander. MIPAS: an instrument for atmospheric and climate research. *Atm. Chem. Phys. Discuss.*, (7):8795–8893, 2007.
- H. Flentje, A. Dörnbrack, A. Fix, A. Meister, H. Schmid, S. Füglistaler, B. Luo, und T. Peter. Denitrification inside the stratospheric vortex in the winter of 1999-2000 by sedimentation of large nitric acid trihydrate particles. *J. Geophys. Res.*, 107:11, 2002. doi: 10.1029/2001JD001015.
- P. G. Foschi und K. L. Pagan. Toward a polar stratospheric cloud climatology using advanced very high resolution radiometer thermal infrared data. *Can. J. Remote Sens.*, 28(2):187–195, 2002.
- M. Fromm, J. Alfred, und M. Pitts. A unified, long-term, high-latitude stratospheric aerosol and cloud database using SAM II, SAGE II, and POAM II/III data: Algorithm description, database definition, and climatology. *J. Geophys. Res.*, 108:8–1, 2003. doi: 10.1029/2002JD002772.
- M. D. Fromm, J. D. Lumpe, R. M. Bevilacqua, E. P. Shettle, J. Hornstein, S. T. Massie, und K. H. Fricke. Observations of Antarctic polar stratospheric clouds by POAM II: 1994-1996. *J. Geophys. Res.*, 102:23659–23673, 1997. doi: 10.1029/97JD00794.
- M. D. Fromm, R. M. Bevilacqua, J. Hornstein, E. Shettle, K. Hoppel, und J. D. Lumpe. An analysis of Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) II Arctic polar stratospheric cloud observations, 1993-1996. *J. Geophys. Res.*, 104:24341–24358, 1999. doi: 10.1029/1999JD900273.
- D. Fuà, M. Cacciani, P. Di Girolamo, G. Fiocco, und A. Di Sarra. Stratospheric Clouds at South Pole During 1988 2. Their Evolution in Relation to Atmospheric Structure and Composition. *J. Geophys. Res.*, 97:5947–5952, 1992. doi: 10.1029/91JD03125.
- S. Fueglistaler, B. P. Luo, S. Buss, H. Wernli, C. Voigt, M. Müller, R. Neuber, C. A. Hostetler, L. R. Poole, H. Flentje, D. W. Fahey, M. J. Northway, und T. Peter. Large NAT particle formation by mother clouds: Analysis of SOLVE/THESEO-2000 observations. *Geophys. Res. Lett.*, 29:52–1, 2002a. doi: 10.1029/98JD01363.
- S. Fueglistaler, B. P. Luo, C. Voigt, K. S. Carslaw, und T. Peter. NAT-rock formation by mother clouds: a microphysical model study. *Atmos. Chem. Phys.*, 2:93–98, 2002b.
- S. Fueglistaler, S. Buss, B. P. Luo, H. Flentje, C. A. Hostetler, L. R. Poole, K. S.

- Carslaw, und T. Peter. Detailed modeling of mountain wave PSCs. *Atmos. Chem. Phys.*, 3:697–712, 2003.
- O. Garcia, K. L. Pagan, P. G. Foschi, S. Gaines, und R. S. Hipskind. Detection of polar stratospheric clouds over antarctica using avhrr images obtained at palmer station during august 1992. *Polar Rec.*, 31:211–226, 1995.
- H. Geelmuyden. Iridescent clouds. *Nature*, 31:264, 1885.
- N. Glatthor, M. Höpfner, G. P. Stiller, T. von Clarmann, A. DUDHIA, G. Echle, B. Funke, und F. Hase. Intercomparison of the KOPRA and the RFM radiative transfer codes. In *Proc. European Symposium on Atmospheric Measurements from Space, ESAMS'99, 18–22 Jan 1999, Noordwijk*, pages 757–764. European Space Agency, ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 1999.
- N. Glatthor, M. Höpfner, G. P. Stiller, T. von Clarmann, A. DUDHIA, G. Echle, B. Funke, und F. Hase. Intercomparison of the KOPRA and the RFM radiative transfer codes. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6487, pages 483–520. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- G. P. Gobbi und A. Adriani. Mechanisms of formation of stratospheric clouds observed during the antarctic late winter of 1992. *Geophys. Res. Lett.*, 20:1427–1430, 1993. doi: 10.1029/93GL01385.
- G. P. Gobbi, T. Deshler, A. Adriani, und D. J. Hofmann. Evidence for denitrification in the 1990 Antarctic spring stratosphere: I, lidar and temperature measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 18:1995–1998, 1991. doi: 10.1029/91GL02310.
- G. P. Gobbi, G. Di Donfrancesco, und A. Adriani. Physical properties of stratospheric clouds during the Antarctic winter of 1995. *J. Geophys. Res.*, 103:10859–10874, 1998. doi: 10.1029/98JD00280.
- A. Gobiet, U. Foelsche, A. K. Steiner, M. Borsche, G. Kirchengast, und J. Wickert. Climatological validation of stratospheric temperatures in ecmwf operational analyses with champ radio occultation data. *Geophys. Res. Lett.*, 32(L12806), 2005. doi: 10.1029/2005GL022617.
- L. L. Gordley, B. T. Marshall, und D. Y. Chu. Linepak: Algorithms for modeling spectral transmittance and radiance. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 52:563–580, 1994.
- R. G. Grainger, A. Lambert, C. D. Rodgers, und F. W. Tayler. Stratospheric aerosol effective radius, surface area and volume estimated from infrared measurements. *J. Geophys. Res.*, 100:16507–16518, 1995. doi: 10.1029/95JD00988.
- K. U. Grossmann, D. Offermann, O. Gusev, J. Oberheide, M. Riese, und R. Spang. The CRISTA-2 mission. *J. Geophys. Res.*, 107:1–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD000667.
- H. Grothe, C. E. Lund Myhre, und H. Tizek. Vibrational spectra of nitric acid dihydrate (nad). *Vibr. Spectrosc.*, 34:55–62, 2004.
- P. Hamill und L. R. McMaster. Proceedings of a Workshop on Polar Stratospheric Clouds: Their Role in Atmospheric Processes. In *Proc. held in Virginia Beach, Va., 20–22 Jun. 1983*, pages 20–22, 1984.
- P. Hamill, O. B. Toon, und R. P. Turco. Characteristics of polar stratospheric clouds during the formation of the Antarctic ozone hole. *Geophys. Res. Lett.*, 13:1288–1291, 1986.
- P. Hamill und O. B. Toon. Denitrification of the polar winter stratosphere - Implications

- of SAM II cloud formation temperatures. *Geophys. Res. Lett.*, 17:441–444, 1990. doi: 10.1029/90GL00336.
- G. Hansen und U.-P. Hoppe. Lidar observations of polar stratospheric clouds and stratospheric temperature in winter 1995/96 over Northern Norway. *Geophys. Res. Lett.*, 24: 131–134, 1997. doi: 10.1029/96GL03796.
- D. Hanson und K. Mauersberger. Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 15(8):855–858, 1988. doi: 10.1029/88GL00209.
- F. Hase und M. Höpfner. Atmospheric ray path modeling for radiative transfer algorithms. *Appl. Opt.*, 38(15):3129–3133, 1999.
- F. Hase, T. Blumenstock, und C. Paton-Walsh. Analysis of the instrumental line shape of high-resolution Fourier transform IR spectrometers with gas cell measurements and new retrieval software. *Appl. Opt.*, 38(15):3417–3422, 1999.
- F. Hase. Transformation of irradiated to measured spectral distribution due to finite spectral resolution and field of view extent of a Fourier transform spectrometer. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6487, pages 119–132. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000a.
- F. Hase. Inversion von Spurengasprofilen aus hochaufgelösten bodengebundenen FTIR-Messungen in Absorption. Wissenschaftliche Berichte FZKA 6512, Forschungszentrum Karlsruhe, 2000b.
- F. Hase und M. Höpfner. Atmospheric raypath modeling for radiative transfer algorithms. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*, pages 35–42. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- S. Hayashida, N. Saitoh, A. Kagawa, T. Yokota, M. Suzuki, H. Nakajima, und Y. Sano. Arctic polar stratospheric clouds observed with the Improved Limb Atmospheric Spectrometer during winter 1996/1997. *J. Geophys. Res.*, 105:24715–24730, 2000. doi: 10.1029/2000JD900228.
- A. Hertzog, F. Vial, A. Dörnbrack, S. D. Eckermann, B. M. Knudsen, und J.-P. Pommerieu. In situ observations of gravity waves and comparisons with numerical simulations during the SOLVE/THESEO 2000 campaign. *J. Geophys. Res.*, (D20):35–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD001025.
- M. E. Herwig, J. M. Russell III, L. L. Gordley, J. Daniels, S. R. Drayson, und T. Deshler. Aerosol effects and corrections in the halogen occultation experiment. *J. Geophys. Res.*, 100:1067–1079, 1995. doi: 10.1029/94JD02143.
- M. E. Herwig, J. M. Russell III, L. L. Gordley, J. H. Park, S. R. Drayson, und T. Deshler. Validation of aerosol measurements from the halogen occultation experiment. *J. Geophys. Res.*, 101:10267–10275, 1996. doi: 10.1029/95JD02464.
- M. E. Hervig, K. S. Carslaw, Th. Peter, T. Deshler, L. L. Gordley, G. Redaelli, U. Biermann, und J. M. Russell III. Polar stratospheric clouds due to vapor enhancement: HALOE observations of the Antarctic vortex in 1993. *J. Geophys. Res.*, 102:28185–28194, 1997. doi: 10.1029/97JD02464.
- M. E. Herwig, T. Deshler, und J. M. Russell III. Aerosol size distributions obtained from

- haloe spectral extinction measurements. *J. Geophys. Res.*, 103(D1):1573–1583, 1998. doi: 10.1029/97JD03081.
- M. E. Herwig und T. Deshler. Stratospheric aerosol surface area and volume inferred from HALOE, CLAES, and ILAS measurements. *J. Geophys. Res.*, 103(D19):25,345–25,352, 1998. doi: 10.1029/98JD01962.
- M. E. Hervig, K. L. Pagan, und P. G. Foschi. Analysis of polar stratospheric cloud measurements from AVHRR. *J. Geophys. Res.*, 106:10363–10374, 2001. doi: 10.1029/2000JD900736.
- E. Hesstvedt. Mother of pearl clouds in norway. *Geofysiske publikasjoner*, 20(10):1–29, 1960.
- E. Hesstvedt. A two-dimensional model of mother-of-pearl clouds. *Tellus*, 14(3):297–300, 1962.
- J. Hicke und A. Tuck. Polar stratospheric cloud impacts on antarctic stratospheric heating rates. *Quart. J. Royal Met. Soc.*, 127(575):1645–1658, 2001.
- M. H. Hitchman, M. L. Baker, G. J. Tripoli, E. V. Browell, W. B. Grant, T. J. McGee, und J. F. Burris. Nonorographic generation of Arctic polar stratospheric clouds during December 1999. *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 108:68–1, 2003. doi: 10.1029/2001JD001034.
- D. J. Hofmann und T. Deshler. Stratospheric cloud observations during formation of the Antarctic ozone hole in 1989. *J. Geophys. Res.*, 96:2897–2912, 1991. doi: 10.1029/90JD02494.
- M. Höpfner, C. E. Blom, T. Blumenstock, H. Fischer, und T. Gulde. Evidence for the removal of gaseous  $\text{HNO}_3$  inside the Arctic polar vortex in January 1992. *Geophys. Res. Lett.*, 23:149–152, 1996. doi: 10.1029/95GL03779.
- M. Höpfner, C. E. Blom, H. Fischer, N. Glatthor, T. Gulde, C. Piesch, W. Renger, und M. Wirth.  $\text{HNO}_3$  and PSC measurements from the TRANSALL: Sequestering of  $\text{HNO}_3$  in the winter of 1994/95. *J. Atmos. Chem.*, 30(1):61–79, 1998a.
- M. Höpfner, G. P. Stiller, M. Kuntz, T. von Clarmann, G. Echle, B. Funke, N. Glatthor, F. Hase, H. Kemnitzer, und S. Zorn. The Karlsruhe optimized and precise radiative transfer algorithm. Part II: Interface to retrieval applications. In J. Wang, B. Wu, T. Ogawa, und Z. Guan, editors, *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds, Beijing, China, 15–17 September 1998*, volume 3501, pages 186–195, 1998b.
- M. Höpfner. Derivatives and interface to the retrieval. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6487, pages 133–144. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000a.
- M. Höpfner. Geophysical model and atmospheric layering. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*, pages 29–34. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000b.
- M. Höpfner und G. Echle. The broadband continuum implementation. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*, pages 95–99. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- M. Höpfner und S. Kellmann. Optimization of model accuracy parameters. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6487, pages 145–482. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.

- M. Höpfner, T. Blumenstock, F. Hase, A. Zimmermann, H. Flentje, und S. Fueglistaler. Mountain polar stratospheric cloud measurements by ground based FTIR solar absorption spectroscopy. *Geophys. Res. Lett.*, 28(11):2189–2192, 2001. doi: 10.1029/2000GL012841.
- M. Höpfner, H. Oelhaf, G. Wetzel, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, N. Glatthor, G. Stiller, T. v. Clarmann, H. Fischer, C. Kröger, und T. Deshler. Evidence of scattering of tropospheric radiation by PSCs in mid-IR limb emission spectra: MIPAS-B observations and KOPRA simulations. *Geophys. Res. Lett.*, 29(8):119–1, 2002. doi: 10.1029/2001GL014443.
- M. Höpfner, H. Oelhaf, F. Friedl-Vallon, F. Hase, A. Kleinert, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, G. Wetzel, und F. Fischer. MIPAS-Balloon observations of PSCs in the Arctic polar vortex on 7-dec-2002. *Poster EAE03-A-13203, EGS-AGU-EGU Joint Assembly*, 2003.
- M. Höpfner. Study on the impact of polar stratospheric clouds on high resolution mid-IR limb emission spectra. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 83(1):93–107, 2004.
- M. Höpfner und C. Emde. Comparison of single and multiple scattering approaches for the simulation of limb-emission observations in the mid-IR. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 91(3):275–285, 2004.
- M. Höpfner, T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, D.-Y. Wang, und B. Funke. First spaceborne observations of Antarctic stratospheric ClONO<sub>2</sub> recovery: Austral spring 2002. *J. Geophys. Res.*, 109(D11308), 2004a. doi: 10.1029/2004JD004609.
- M. Höpfner, T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, und D.-Y. Wang. Determination of PSC properties from MIPAS/ENVISAT limb emission measurements during the Antarctic winter 2003. In C. S. Zerefos, editor, *OZONE, Proceedings of the XX Quadrennial Ozone Symposium*, pages 974–975, Athens, Greece, 2004b. International Ozone Commission.
- M. Höpfner. Atmospheric parameter retrievals from high resolution infrared spectra in a cloudy atmosphere. In H. Fischer und B.-J. Sohn, editors, *IRS 2004: Current Problems in Atmospheric Radiation*, pages 9–12. A. Deepak Publishing, Hampton, Virginia, 2006.
- M. Höpfner, N. Larsen, R. Spang, B. Luo, J. Ma, S. Svendsen, S. D. Eckerman, B. Knudsen, P. Massoli, F. Cairo, G. P. Stiller, T. von Clarmann, und H. Fischer. MIPAS detects Antarctic stratospheric belt of NAT PSC's caused by mountain waves. *Atmos. Chem. Phys.*, 6:1221–1230, 2006a.
- M. Höpfner, B. P. Luo, P. Massoli, F. Cairo, R. Spang, M. Snels, G. Di Donfrancesco, G. P. Stiller, T. von Clarmann, H. Fischer, und U. Biermann. Spectroscopic evidence for NAT, STS, and ice in MIPAS infrared limb emission measurements of polar stratospheric clouds. *Atmos. Chem. Phys.*, 6:1201–1219, 2006b.
- M. Höpfner, U. Grabowski, G. P. Stiller, und T. von Clarmann. Climatology of Arctic and Antarctic polar stratospheric clouds (PSCs) from 2002-2007 as observed by MIPAS. *Poster EGU2007-A-08879, EGU General Assembly*, 2007a.
- M. Höpfner, T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, P. Bernath, C. E. Blom, T. Blumenstock, C. Boone, K. Chance, M. T. Coffey, F. Friedl-Vallon, D. Griffith, J. W. Hannigan, F. Hase, N. Jones, K. W. Jucks, C. Keim, A. Kleinert, W. Kouker, G. Y. Liu,

- E. Mahieu, J. Mellqvist, S. Mikuteit, J. Notholt, H. Oelhaf, C. Piesch, T. Reddmann, R. Ruhnke, M. Schneider, A. Strandberg, G. Toon, K. A. Walker, T. Warneke, H. Wetzel, S. Wood, und R. Zander. Validation of MIPAS ClONO<sub>2</sub> measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:257–281, 2007b.
- R. Hu, K. S. Carslaw, C. Hostetler, L. R. Poole, B. Luo, T. Peter, S. Fueglistaler, T. J. McGee, und J. F. Burris. Microphysical properties of wave polar stratospheric clouds retrieved from lidar measurements during SOLVE/THESEO 2000. *J. Geophys. Res.*, (D20):37–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD001125.
- J. Humlcek. Optimized computation of the Voigt and complex probability functions. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 27(4):437–444, 1982.
- H. Irie, K. L. Pagan, A. Tabazadeh, M. J. Legg, und T. Sugita. Investigation of polar stratospheric cloud solid particle formation mechanisms using ILAS and AVHRR observations in the Arctic. *Geophys. Res. Lett.*, 31:15107, 2004. doi: 10.1029/2004GL020246.
- Y. Iwasaka. Lidar measurement on the Antarctic stratospheric aerosol layer. II - The changes of layer height and thickness in winter. *Journal of Geomagnetism and Geoelectricity*, 38: 99–109, 1986a.
- Y. Iwasaka. Nonspherical particles in the Antarctic polar stratosphere-Increase in particular content and stratospheric water vapor budget. *Tellus B*, 38:364–371, 1986b.
- Y. Iwasaka, T. Hirasawa, und H. Fukunishi. Lidar measurement on the Antarctic stratospheric aerosol layer. I - Winter enhancement. *Journal of Geomagnetism and Geoelectricity*, 37:1087–1095, 1985.
- J. Jaumotte. Transformations thermodynamiques de la stratosphère et nuages nacres. *Mémoires de l'Institut Royal Meteorologique de Belgique*, 5, 1936.
- J. H. Jiang, S. D. Eckermann, D. L. Wu, und J. Ma. A search for mountain waves in MLS stratospheric limb radiances from the winter Northern Hemisphere: Data analysis and global mountain wave modeling. *J. Geophys. Res.*, 109(D18):3107, 2004. doi: 10.1029/2003JD003974.
- C. Kassner. Irisierende Wolken. *Nature*, 12:379–382, 1895.
- S. R. Kawa, D. W. Fahey, L. C. Anderson, M. Loewenstein, und K. R. Chan. Measurements of total reactive nitrogen during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition. *Geophys. Res. Lett.*, 17:485–488, 1990. doi: 10.1029/89GL03711.
- S. R. Kawa, D. W. Fahey, K. K. Kelly, J. E. Dye, D. Baumgardner, B. W. Gandrud, M. Loewenstein, G. V. Ferry, und K. R. Chan. The Arctic polar stratospheric cloud aerosol - Aircraft measurements of reactive nitrogen, total water, and particles. *J. Geophys. Res.*, 97:7925–7938, 1992. doi: 10.1029/91JD02016.
- P. Keckhut, C. David, M. Marchand, S. Bekki, J. Jumelet, A. Hauchecorne, und M. Höpfner. Observation of polar stratospheric clouds down to the mediterranean coast. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:5275–5281, 2007.
- G. S. Kent, L. R. Poole, und M. P. McCormick. Characteristics of Arctic polar stratospheric clouds and as measured by airborne lidar. *J. Atmos. Sci.*, 43:2149–2161, 1986.
- G. S. Kent, S. K. Schaffner, L. R. Poole, M. P. McCormick, und W. H. Hunt. Optical backscatter characteristics of Arctic polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 17: 377–380, 1990. doi: 10.1029/89GL03709.
- B. Kerridge, T. von Clarman, S. Bühler, A. Dudhia, C. Emde, M. Höpfner, J. Re-

- burn, R. Siddans, und T. Steck. Condideration of mission studying chemistry of the ults. Technical report, European Space Agency, 2004. Final Report of ESA Contract 15457/01/NL/MM.
- M. Kiefer, T. von Clarmann, U. Grabowski, M. De Laurentis, R. Mantovani, M. Milz, und M. Ridolfi. Characterization of MIPAS elevation pointing. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:1615–1628, 2007.
- Y. Kim, W. Choi, K.-M. Lee, J. H. Park, S. T. Massie, Y. Sasano, H. Nakajima, und T. Yokota. Polar stratospheric clouds observed by the ILAS-II in the Antarctic region: Dual compositions and variation of compositions during June to August of 2003. *J. Geophys. Res.*, 111:13, 2006. doi: 10.1029/2005JD006445.
- S. Kinne, O. B. Toon, G. C. Toon, C. B. Farmer, E. V. Browell, und M. P. McCormick. Measurements of size and composition of particles in polar stratospheric clouds from infrared solar absorption spectra. *J. Geophys. Res.*, 94:16481–16491, 1989. doi: 10.1029/89JD00603.
- S. Kinne und O. B. Toon. Radiative effects of polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 17:373–376, 1990. doi: 10.1029/90GL00119.
- R. Kivi, E. Kyrö, A. Dörnbrack, und T. Birner. Observations of vertically thick polar stratospheric clouds and record low temperature in the Arctic vortex. *Geophys. Res. Lett.*, 28(19):3661–3664, 2001. doi: 10.1029/2001GL013187.
- D. A. Knopf, T. Koop, B. P. Luo, U. G. Weers, und T. Peter. Homogeneous nucleation of nad and nat in liquid stratospheric aerosols: insufficient to explain denitrification. *Atmos. Chem. Phys.*, 2:207–214, 2002.
- B. M. Knudsen und J. Grooß. Northern midlatitude stratospheric ozone dilution in spring modeled with simulated mixing. *J. Geophys. Res.*, 105(D5):6885–6890, 2000. doi: 10.1029/1999JD901076.
- B. G. Koehler, A. M. Middlebrook, und M. A. Tolbert. Characterization of model polar stratospheric cloud films using Fourier transform infrared spectroscopy and temperature programmed desorption. *J. Geophys. Res.*, 97:8065–8074, 1992. doi: 10.1029/91JD01844.
- T. Koop, U. M. Biermann, W. Raber, B. P. Luo, P. J. Crutzen, und T. Peter. Do stratospheric aerosol droplets freeze above the ice frost point? *Geophys. Res. Lett.*, 22:917–920, 1995. doi: 10.1029/95GL00814.
- T. Koop, K. S. Carslaw, und T. Peter. Thermodynamic stability and phase transitions of PSC particles. *Geophys. Res. Lett.*, 24:2199–2202, 1997. doi: 10.1029/97GL02148.
- M. Kuntz. Absorption coefficients, line collection and frequency grid. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*, pages 43–68. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- M. Kuntz. A new implementation of the Humlincek algorithm for the calculation of the Voigt profile function. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 57(6):819–824, 1997.
- M. Kuntz und M. Höpfner. The Voigt profile and the Planck function. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*, pages 107–118. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- M. Kuntz und M. Höpfner. Efficient line-by-line calculation of absorption coefficients. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 63(1):97–114, 1999.

- J. Küttner. Borawellen. *Wetter und Klima*, 1:277, 1948.
- T. Lachlan-Cope, W. Connolley, J. Turner, H. Roscoe, G. Marshall, S. Colwell, M. Höpfner, und W. Ingram. Antarctic winter tropospheric warming - problem solved? *Paper in preparation*, 2007a.
- T. Lachlan-Cope, W. Connolley, J. Turner, H. Roscoe, G. Marshall, S. Colwell, M. Höpfner, und W. Ingram. Winter warming of Antarctic troposphere. *Poster EGU2007-A-04246, EGU General Assembly*, 2007b.
- W. J. Lafferty, A. M. Solodov, A. Weber, W. B. Olson, und J.-M. Hartmann. Infrared collision-induced absorption by N<sub>2</sub> near 4.3 μm for atmospheric applications: measurements and empirical modeling. *Appl. Opt.*, 35(30):5911–5917, 1996.
- A. Lambert, R. G. Grainger, J. J. Remedios, W. J. Reburn, C. D. Rodgers, F. W. Taylor, A. E. Roche, J. B. Kumer, S. T. Massie, und T. Deshler. Validation of aerosol measurements from the improved stratospheric and mesospheric sounder. *J. Geophys. Res.*, 101 (D6):9811–9830, 1996. doi: 10.1029/95JD01702.
- N. Larsen. Polar stratospheric clouds microphysical and optical models. Scientific Report 00-06, Danish Meteorological Institute, Lyngbyvej 100, DK-2100 Copenhagen, Denmark, June 2000.
- N. Larsen, I. Mikkelsen, B. M. Knudsen, J. Schreiner, C. Voigt, K. Mauersberger, J. M. Rosen, und N. T. Kjome. Comparison of chemical and optical in situ measurements of polar stratospheric cloud particles. *J. Geophys. Res.*, 105(D1):1491–1502, 2000. doi: 10.1029/1999JD900910.
- N. Larsen, B. M. Knudsen, M. Gauss, und G. Pitari. Aircraft induced effects on Arctic polar stratospheric cloud formation. *Meteorol. Z.*, (11):207–214, 2002a.
- N. Larsen, S. H. Svendsen, B. M. Knudsen, C. Voigt, C. Weisser, A. Kohlmann, J. Schreiner, K. Mauersberger, T. Deshler, C. Kröger, J. M. Rosen, N. T. Kjome, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfrancesco, J. Ovarlez, H. Ovarlez, A. Dörnbrack, und T. Birner. Microphysical mesoscale simulations of polar stratospheric cloud formation constrained by in situ measurements of chemical and optical cloud properties. *J. Geophys. Res.*, (D20):44–1, 2002b. doi: 10.1029/2001JD000999.
- N. Larsen, B. M. Knudsen, S. H. Svendsen, T. Deshler, J. M. Rosen, R. Kivi, C. Weisser, J. Schreiner, K. Mauerberger, F. Cairo, J. Ovarlez, H. Oelhaf, und R. Spang. Formation of solid particles in synoptic-scale Arctic PSCs in early winter 2002/2003. *Atmos. Chem. Phys.*, 4:2001–2013, 2004.
- N. Lebrun, F. Mahe, J. Lamiot, M. Foulon, und J. C. Petit. A new crystalline phase of nitric acid dihydrate. *Acta Cryst.*, pages 1129–1131, 2001.
- K.-M. Lee, J. H. Park, Y. Kim, W. Choi, H.-K. Cho, S. T. Massie, Y. Sasano, und T. Yokota. Properties of polar stratospheric clouds observed by ILAS in early 1997. *J. Geophys. Res.*, 108:11, 2003. doi: 10.1029/2002JD002854.
- B. Luo, U. K. Krieger, und T. Peter. Densities and refractive indices of H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/HNO<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O solutions to stratospheric temperatures. *Geophys. Res. Lett.*, 23:3707–3710, 1996.
- B. P. Luo, C. Voigt, S. Fueglistaler, und T. Peter. Extreme NAT supersaturations in mountain wave ice PSCs: A clue to NAT formation. *J. Geophys. Res.*, (D15):4–1, 2003. doi: 10.1029/2002JD003104.
- J. D. Mahlman und S. B. Fels. Antarctic ozone decreases - A dynamical cause? *Geophys.*

*Res. Lett.*, 13:1316–1319, 1986.

- G. W. Mann, K. S. Carslaw, M. P. Chipperfield, S. Davies, und S. D. Eckermann. Large nitric acid trihydrate particles and denitrification caused by mountain waves in the Arctic stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 110(D9):8202, 2005. doi: 10.1029/2004JD005271.
- S. T. Massie, P. L. Bailey, J. C. Gille, E. C. Lee, J. L. Mergenthaler, A. E. Roche, J. B. Kumer, E. F. Fishbein, J. W. Waters, und W. A. Lahoz. Spectral Signatures of Polar Stratospheric Clouds and Sulfate Aerosol. *J. Atmos. Sci.*, 51:3027–3044, 1994.
- S. T. Massie, T. Deshler, G. E. Thomas, J. L. Mergenthaler, und J. M. Russell III. Evolution of the infrared properties of the Mount Pinatubo aerosol cloud over Laramie, Wyoming. *J. Geophys. Res.*, 101(D17):23007–23019, 1996a. doi: 10.1029/96JD01991.
- S. T. Massie, J. C. Gille, D. P. Edwards, P. L. Bailey, L. V. Lyjak, C. A. Craig, C. C. Cavanaugh, J. L. Mergenthaler, A. E. Roche, J. B. Kumer, A. Lambert, R. G. Grainger, C. D. Rodgers, F. W. Taylor, J. M. Russell III, J. H. Park, T. Deshler, M. E. Hervig, E. F. Fishbein, J. W. Waters, und W. A. Lahoz. Validation studies using multiwavelength cryogenic limb array etalon spectrometer (CLAES) observations of stratospheric aerosol. *J. Geophys. Res.*, 101(D6):9757–9773, 1996b. doi: 10.1029/95JD03225.
- S. T. Massie, J. E. Dye, D. Baumgardner, W. J. Randel, F. Wu, X. Tie, L. Pan, F. Figarol, G. P. Brasseur, M. L. Santee, W. G. Read, R. G. Grainger, A. Lambert, J. L. Mergenthaler, und A. Tabazadeh. Simultaneous observations of Polar Stratospheric Clouds and  $\text{HNO}_3$  over Scandinavia in January, 1992. *Geophys. Res. Lett.*, 24:595–598, 1997. doi: 10.1029/97GL00315.
- S. T. Massie, D. Baumgardner, und J. E. Dye. Estimation of polar stratospheric cloud volume and area densities from UARS, stratospheric aerosol measurement II, and polar ozone and aerosol measurement II extinction data. *J. Geophys. Res.*, 103(D5):5773–5783, 1998. doi: 10.1029/97JD03456.
- M. P. McCormick. High-latitude stratospheric aerosol measured by the sam ii satellite system in 1978 and 1979. *Science*, 214:328–331, 1981.
- M. P. McCormick, H. M. Steele, P. Hamill, W. P. Chu, und T. J. Swissler. Polar Stratospheric Cloud Sightings by SAM II. *J. Atmos. Sci.*, 39:1387–1397, 1982.
- M. P. McCormick und C. R. Trepte. SAM II measurements of Antarctic PSC's and aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, 13:1276–1279, 1986.
- M. P. McCormick und C. R. Trepte. Polar stratospheric optical depth observed between 1978 and 1985. *J. Geophys. Res.*, 92:4297–4306, 1987.
- M. P. McCormick, C. R. Trepte, und M. C. Pitts. Persistence of polar stratospheric clouds in the southern polar region. *J. Geophys. Res.*, 94:11241–11251, 1989. doi: 10.1029/89JD00902.
- M. P. McCormick, L. R. Poole, G. S. Kent, W. H. Hunt, und M. T. Osborn. Arctic polar stratospheric cloud observations by airborne lidar. *Geophys. Res. Lett.*, 17:381–383, 1990. doi: 10.1029/90GL00052.
- L. M. McMillin und H. E. Fleming. *Appl. Opt.*, 15:358–363, 1976.
- H. Mehrtens, U. von Zahn, F. Fierli, B. Nardi, und T. Deshler. Type I PSC-particle properties: Measurements at ALOMAR 1995 to 1997. *Geophys. Res. Lett.*, 26:603–606, 1999. doi: 10.1029/1999GL900027.
- J. Mendrok. The SARTre model for radiative transfer in spherical atmospheres and its

- application to the derivation of cirrus cloud properties. PhD thesis, Forschungsbericht 2006-15, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR), 2006.
- J. Mendrok, F. Schreier, und M. Höpfner. Estimating cirrus cloud properties from MIPAS data. *Geophys. Res. Lett.*, 34:L8807, 2007. doi: 10.1029/2006GL028246.
- V. Menoux, R. Le Doucen, und C. Boulet. Line shape in the low-frequency wing of self-broadened CO<sub>2</sub> lines. *Appl. Opt.*, 26(3):554–562, 1987.
- V. Menoux, R. Le Doucen, J. Boissoles, und C. Boulet. Line shape in the low frequency wing of self- and N<sub>2</sub>-broadened  $\nu_3$  CO<sub>2</sub> lines: temperature dependence of the asymmetry. *Appl. Opt.*, 30(3):281–286, 1991.
- J. L. Mergenthaler, J. B. Kumer, A. E. Roche, und S. T. Massie. Distribution of Antarctic polar stratospheric clouds as seen by the CLAES experiment. *J. Geophys. Res.*, 102: 19161–19170, 1997. doi: 10.1029/97JD01077.
- A. M. Middlebrook, B. S. Berland, S. M. George, M. A. Tolbert, und O. B. Toon. Real refractive indices of infrared-characterized nitric-acid/ice films: Implications for optical measurements of polar stratospheric clouds. *J. Geophys. Res.*, 99(D12):25655–25666, 1994. doi: 10.1029/94JD02391.
- G. Mie. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Ann. Physik*, 25(3):377–445, 1908.
- M. I. Mishchenko. Light scattering by randomly oriented axially symmetric particles. *J. Opt. Soc. Am. A*, 8:871–882, 1991.
- M. I. Mishchenko, L. D. Travis, und D. W. Mackowski. T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 55: 535–575, 1996.
- H. Mohn. Irisierende wolken. *Meteorologische Zeitschrift*, pages 80–97, 1893.
- L. T. Molina und M. J. Molina. Production of Cl<sub>2</sub>O<sub>2</sub> from the self-reaction of the ClO radical. *J. Phys. Chem. (A)*, 91(2):433–436, 1987.
- J. Morcrette. Radiation and cloud radiative properties in the European Centre for Medium Range Weather Forecasts forecasting system. *J. Geophys. Res.*, 96(D5):9121–9132, 1991. doi: 10.1029/89JD01597.
- M. Müller, R. Neuber, G. Beyerle, E. Kyrö, R. Kivi, und L. Wöste. Non-uniform PSC occurrence within the Arctic polar vortex. *Geophys. Res. Lett.*, 28:4175–4178, 2001. doi: 10.1029/2001GL013799.
- C. E. L. Myhre, D. H. Christensen, F. M. Nicolaisen, und C. J. Nielsen. Study of aqueous H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> at different temperatures and compositions: variations in dissociation and optical properties. *J. Phys. Chem.*, 107(12):1979–1991, 2003.
- T. Nagai, O. Uchino, T. Itabe, T. Shibata, K. Mizutani, und T. Fujimoto. Polar stratospheric clouds observed at Eureka (80°N, 86°W) in the Canadian Arctic during the 1994/1995 winter. *Geophys. Res. Lett.*, 24:2243–2246, 1997. doi: 10.1029/97GL02094.
- G. E. Nedoluha, R. M. Bevilacqua, und K. W. Hoppel. POAM III measurements of dehydration in the Antarctic and comparisons with the Arctic. *J. Geophys. Res.*, 107:33–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD001184.
- G. E. Nedoluha, R. M. Bevilacqua, M. D. Fromm, K. W. Hoppel, und D. R. Allen. POAM measurements of PSCs and water vapor in the 2002 Antarctic vortex. *Geophys. Res. Lett.*, 30:5–1, 2003. doi: 10.1029/2003GL017577.

- R. F. Niedziela, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. Temperature– and frequency–dependent optical constants for nitric acid dihydrate from aerosol spectroscopy. *J. Phys. Chem. (A)*, 102:6477–6484, 1998a.
- R. F. Niedziela, M. L. Norman, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. Temperature– and composition–dependent infrared optical constants for sulfuric acid. *Geophys. Res. Lett.*, 25(24):4477–4480, 1998b. doi: 10.1029/1998GL900202.
- R. F. Niedziela, M. L. Norman, C. L. DeForest, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. A temperature– and composition–dependent study of  $\text{H}_2\text{SO}_4$  aerosol optical constants using fourier transform and tunable diode laser infrared spectroscopy. *J. Phys. Chem. (A)*, 103 (40):8030–8040, 1999.
- M. L. Norman, J. Qian, R. E. Miller, und D.R. Worsnop. Infrared complex refractive indices of supercooled liquid  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  aerosols. *J. Geophys. Res.*, 104:30571–30584, 1999. doi: 10.1029/1999JD900902.
- M. L. Norman, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. Ternary  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$  optical constants: New measurements from aerosol spectroscopy under stratospheric conditions. *J. Phys. Chem. (A)*, 106(25):6075–6083, 2002.
- H. Norton und R. Beer. New apodizing functions for Fourier spectrometry. *J. Opt. Soc. Am.*, 66(3):259–264, 1976. (Errata J. Opt. Soc. Am., 67, 419, 1977).
- I. K. Ortega, B. Maté, M. A. Moreno, V. J. Herrero, und R. Escribano. Infrared spectra of nitric acid trihydrate ( $\beta$ -NAT): A comparison of available optical constants and implication for the detection of polar stratospheric clouds (PSCs). *Geophys. Res. Lett.*, 33:19816, 2006. doi: 10.1029/2006GL026988.
- M. T. Osborn, M. C. Pitts, K. A. Powell, und M. P. McCormick. SAM II aerosol measurements during the 1989 AASE. *Geophys. Res. Lett.*, 17:397–400, 1990a. doi: 10.1029/89GL03708.
- M. T. Osborn, L. R. Poole, und P.-H. Wang. SAM II and lidar aerosol profile comparisons during AASE. *Geophys. Res. Lett.*, 17:401–404, 1990b. doi: 10.1029/89GL03707.
- K. L. Pagan, A. Tabazadeh, K. Drdla, M. E. Hervig, S. D. Eckermann, E. V. Browell, M. J. Legg, und P. G. Foschi. Observational evidence against mountain-wave generation of ice nuclei as a prerequisite for the formation of three solid nitric acid polar stratospheric clouds observed in the Arctic in early December 1999. *J. Geophys. Res.*, 109(D18):4312, 2004. doi: 10.1029/2003JD003846.
- S. P. Palm, M. Fromm, und J. Spinhirne. Observations of antarctic polar stratospheric clouds by the Geoscience Laser Altimeter System (GLAS). *Geophys. Res. Lett.*, 32:22, 2005. doi: 10.1029/2005GL023524.
- K. F. Palmer und D. Williams. Optical constants of sulfuric acid; application to the clouds of venus. *Appl. Optics*, 14(1):208–219, 1975.
- T. Peter. Microphysics and heterogeneous chemistry of polar stratospheric clouds. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 48:785–822, 1997.
- M. C. Pitts, L. R. Poole, und M. P. McCormick. SAGE II observations of polar stratospheric clouds near 50 deg N January 31 - February 2, 1989. *Geophys. Res. Lett.*, 17:405–408, 1990. doi: 10.1029/90GL00053.
- M. C. Pitts, L. W. Thomason, L. R. Poole, und D. M. Winker. Characterization of Polar Stratospheric Clouds with space-borne Lidar: CALIPSO and the 2006 Antarctic season.

- Atmos. Chem. Phys.*, 7:5207–5228, 2007.
- J. B. Pollack und C. P. McKay. The impact of polar stratospheric clouds on the heating rates of the winter polar stratosphere. *J. Atmos. Sci.*, 42:245–262, 1985.
- L. R. Poole und M. P. McCormick. Airborne lidar observations of Arctic polar stratospheric clouds: Indications of two distinct growth stages. *Geophys. Res. Lett.*, 15:21–23, 1988a. doi: 10.1029/88GL01987.
- L. R. Poole und M. P. McCormick. Polar stratospheric clouds and the Antarctic ozone hole. *J. Geophys. Res.*, 93:8423–8430, 1988b. doi: 10.1029/88JD00106.
- L. R. Poole, M. T. Osborn, und W. H. Hunt. Lidar observations of Arctic polar stratospheric clouds, 1988 - Signature of small, solid particles above the frost point. *Geophys. Res. Lett.*, 15:867–870, 1988. doi: 10.1029/88GL01987.
- L. R. Poole, M. P. McCormick, G. S. Kent, W. H. Hunt, und M. T. Osborn. Dual-polarization airborne lidar observations of polar stratospheric cloud evolution. *Geophys. Res. Lett.*, 17: 389–392, 1990.
- L. R. Poole und M. C. Pitts. Polar stratospheric cloud climatology based on Stratospheric Aerosol Measurement II observations from 1978 to 1989. *J. Geophys. Res.*, 99:13083–13090, 1994. doi: 10.1029/94JD00411.
- L. R. Poole, C. R. Trepte, V. L. Harvey, G. C. Toon, und R. L. VanValkenburg. SAGE III observations of Arctic polar stratospheric clouds - December 2002. *Geophys. Res. Lett.*, 30(23):2216, 2003. doi: 10.1029/2003GL018496.
- C. Prabhakara, J.-M. Yoo, G. Dalu, und R. S. Fraser. Deep Optically Thin Cirrus Clouds in the Polar Regions. Part I: Infrared Extinction Characteristics. *J. Appl. Meteor.*, 29: 1313–1329, 1990.
- W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, und B. P. Flannery. *Numerical Recipes in Fortran*. Cambridge University Press, 2 edition, 1992.
- H. Quenzel und H. Müller. Optical properties of single mie particles: Diagrams of intensity-extinction scattering- and absorption efficiencies. Wissenschaftliche Mitteilungen 34, Universität München - Meteorologisches Institut, 1978.
- M. R. Querry und I. L. Tyler. Reflectance and complex refractive indices in the infrared for aqueous solutions of nitric acid. *J. Chem. Phys.*, 72(4):2495–2499, 1980.
- J. Reichardt, A. Dörnbrack, S. Reichardt, P. Yang, und T. J. McGee. Mountain wave PSC dynamics and microphysics from ground-based lidar measurements and meteorological modeling. *Atmos. Chem. Phys.*, 4:1149–1165, 2004.
- E. E. Remsberg, D. Lavery, und B. Crawford jr. Optical constants for sulfuric and nitric acid. *J. Chem. and Engin. Data*, 19(3):263–265, 1974.
- P. D. Ricaud, E. S. Carr, R. S. Harwood, W. A. Lahoz, L. Froidevaux, W. G. Read, J. W. Waters, J. L. Mergenthaler, J. B. Kumer, A. E. Roche, und G. E. Peckham. Polar stratospheric clouds as deduced from MLS and CLAES measurements. *Geophys. Res. Lett.*, 22: 2033–2036, 1995. doi: 10.1029/95GL00479.
- L. J. Richwine, M. L. Clapp, R. E. Miller, und D. R. Worsnop. Complex refractive indices in the infrared of nitric acid trihydrate aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, 22(19):2625–2628, 1995. doi: 10.1029/95GL02650.
- M. Ridolfi, B. Carli, M. Carlotti, T. von Clarmann, B. Dinelli, A. Dudhia, J.-M. Flaud, M. Höpfner, P. E. Morris, P. Raspollini, G. Stiller, und R. J. Wells. Optimized forward

and retrieval scheme for MIPAS near-real-time data processing. *Appl. Opt.*, 39(8):1323–1340, 2000.

- M. Ridolfi, U. Blum, B. Carli, V. Catoire, S. Ceccherini, H. Claude, C. De Clercq, K. H. Fricke, F. Friedl-Vallon, M. Iarlori, P. Keckhut, B. Kerridge, J.-C. Lambert, Y. J. Meijer, L. Mona, H. Oelhaf, G. Pappalardo M. Pirre, V. Rizi, C. Robert, D. Swart, T. von Clarmann, A. Waterfall, und G. Wetzel. Geophysical validation of temperature retrieved by the ESA processor from MIPAS/ENVISAT atmospheric limb-emission measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:4459–4487, 2007.
- C. P. Rinsland, G. K. Yue, M. R. Gunson, R. Zander, und M. C. Abrams. Mid-infrared extinction by sulfate aerosols from the mt pinatubo eruption. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 52(3/4):241–252, 1994.
- G. Ritzhaupt und J. P. Devlin. Infrared spectra of nitric and hydrochloric acid hydrate thin films. *J. Phys. Chem.*, 95:90–95, 1991.
- E. D. Rivière, N. Huret, F. G. Taupin, J.-B. Renard, M. Pirre, S. D. Eckermann, N. Larsen, T. Deshler, F. Lefèvre, S. Payan, und C. Camy-Peyret. Role of lee waves in the formation of solid polar stratospheric clouds: Case studies from February 1997. *J. Geophys. Res.*, 105(D5):6845–6854, 2000. doi: 10.1029/1999JD900908.
- C. D. Rodgers. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, volume 2 of *Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics*, F. W. Taylor, ed. World Scientific, 2000.
- J. M. Rosen, S. J. Oltmans, und W. F. Evans. Balloon borne observations of PSCs, frost point, ozone and nitric acid in the North Polar vortex. *Geophys. Res. Lett.*, 16:791–794, 1989. doi: 10.1029/89GL01280.
- J. E. Rosenfield. Radiative effects of polar stratospheric clouds during the airborne Antarctic ozone experiment and the airborne Arctic stratospheric expedition. *J. Geophys. Res.*, 97: 7841–7858, 1992. doi: 10.1029/91JD02019.
- J. E. Rosenfield. Radiative feedback of polar stratospheric clouds on Antarctic temperatures. *Geophys. Res. Lett.*, 20:1195–1198, 1993. doi: 10.1029/93GL01350.
- N. Saitoh, S. Hayashida, Y. Sasano, und L. L. Pan. Characteristics of Arctic polar stratospheric clouds in the winter of 1996/1997 inferred from ILAS measurements. *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 107:2–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD000595.
- V. Santacesaria, A. R. MacKenzie, und L. Stefanutti. A climatological study of polar stratospheric clouds (1989–1997) from LIDAR measurements over Dumont d’Urville (Antarctica). *Tellus*, 53:306–321, 2001. doi: 10.1034/j.1600-0889.2001.01155.x.
- M. L. Santee, A. Tabazadeh, G. L. Manney, R. J. Salawitch, L. Froidevaux, W. G. Read, und J. W. Waters. UARS Microwave Limb Sounder HNO<sub>3</sub> observations: Implications for Antarctic polar stratospheric clouds. *J. Geophys. Res.*, 103:13285–13314, 1998. doi: 10.1029/98JD00365.
- M. L. Santee, A. Tabazadeh, G. L. Manney, M. D. Fromm, R. M. Bevilacqua, J. W. Waters, und E. J. Jensen. A Lagrangian approach to studying Arctic polar stratospheric clouds using UARS MLS HNO<sub>3</sub> and POAM II aerosol extinction measurements. *J. Geophys. Res.*, 107:4–1, 2002. doi: 10.1029/2000JD000227.
- M. L. Santee, G. L. Manney, N. J. Livesey, und W. G. Read. Three-dimensional structure and evolution of stratospheric HNO<sub>3</sub> based on UARS Microwave Limb Sounder measurements.

- J. Geophys. Res.*, 109:15306, 2004. doi: 10.1029/2004JD004578.
- C. Scarchilli, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfrancesco, C. Buontempo, M. Snels, M. L. Moriconi, T. Deshler, N. Larsen, B. Luo, K. Mauersberger, J. Ovarlez, J. Rosen, und J. Schreiner. Determination of polar stratospheric cloud particle refractive indices by use of in situ optical measurements and t-matrix calculations. *Appl. Opt.*, 44(16):3302–3311, 2005.
- J. W. Schaaf und D. Williams. Optical constants of ice in the infrared. *J. Opt. Soc. Am.*, 63:726–732, 1973.
- H. J. Schäfer, P. Scheuch, M. Langer, K. H. Fricke, U. von Zahn, und B. M. Knudsen. Lidar observations of polar stratospheric clouds at Andoya, Norway, in January 1992. *Geophys. Res. Lett.*, 21:1307, 1994. doi: 10.1029/93GL03047.
- R. S. Scorer. Theory of waves in the lee of mountains. *Quart. J. R. Meteor. Soc.*, 75:41, 1949.
- N. A. Scott und A. Chedin. A fast line-by-line method for atmospheric absorption computations: The automatized atmospheric absorption atlas. *J. Appl. Met.*, 20:802–812, 1981.
- G.-Y. Shi, W.-C. Wang, M. K. W. Ko, und M. Tanaka. Radiative heating due to stratospheric aerosols over Antarctica. *Geophys. Res. Lett.*, 13:1335–1338, 1986.
- T. Shibata, Y. Iwasaka, M. Fujiwara, M. Hayashi, M. Nagatani, K.-i. Shiraishi, H. Adachi, T. Sakai, K. Susumu, und Y. Nakura. Polar stratospheric clouds observed by lidar over Spitsbergen in the winter of 1994/1995: Liquid particles and vertical “sandwich” structure. *J. Geophys. Res.*, 102:10829–10840, 1997. doi: 10.1029/97JD00418.
- T. Shibata, K. Shiraishi, H. Adachi, Y. Iwasaka, und M. Fujiwara. On the lidar-observed sandwich structure of polar stratospheric clouds (PSCs) 1. Implications for the mixing state of the PSC particles. *J. Geophys. Res.*, 104:21603–21612, 1999. doi: 10.1029/1999JD900333.
- L. C. Sloan und D. Pollard. Polar stratospheric clouds: A high latitude warming mechanism in an ancient greenhouse world. *Geophys. Res. Lett.*, 25:3517–3520, 1998. doi: 10.1029/98GL02492.
- S. Solomon, R. R. Garcia, F. S. Rowland, und D. J. Wuebbles. On the depletion of antarctic ozone. *Nature*, 321:755–758, 1986.
- S. Solomon. Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history. *Rev. Geophys.*, 37(23):275–315, 1999.
- R. Spang und D. Offermann. Aerosol and stratospheric clouds seen by CRISTA. In *Proceedings of the CRISTA/MAHRSI Workshop, 17./18. Feb. 1999, Wuppertal University, Germany*, 1999.
- R. Spang, M. Riese, G. Eidmann, D. Offermann, und P. H. Wang. A detection method for cirrus clouds using CRISTA 1 and 2 measurements. *Adv. Space Res.*, 27(10):1629–1634, 2001a.
- R. Spang, M. Riese, und D. Offermann. CRISTA-2 observations of the south polar vortex in winter 1997: A new dataset for polar process studies. *Geophys. Res. Lett.*, 28(16): 3159–3162, 2001b. doi: 10.1029/2000GL012374.
- R. Spang, G. Eidmann, M. Riese, D. Offermann, P. Preusse, L. Pfister, und P.-H. Wang. CRISTA observations of cirrus clouds around the tropopause. *J. Geophys. Res.*, 107(D23): 8174, 2002. doi: 10.1029/2001JD000698.

- R. Spang und J. J. Remedios. Observations of a distinctive infra-red spectral feature in the atmospheric spectra of polar stratospheric clouds measured by the CRISTA instrument. *Geophys. Res. Lett.*, 30(16):1875, 2003. doi: 10.1029/2003GL017231.
- R. Spang, J. J. Remedios, und M. P. Barkley. Colour indices for the detection and differentiation of cloud types in infra-red limb emission spectra. *Adv. Space Res.*, 33(7):1041–1047, 2004.
- R. Spang, J. J. Remedios, L. J. Kramer, L. R. Poole, M. D. Fromm, M. Müller, G. Baumgarten, und P. Konopka. Polar stratospheric cloud observations by MIPAS on ENVISAT: detection method, validation and analysis of the northern hemisphere winter 2002/2003. *Atmos. Chem. Phys.*, 5:679–692, 2005.
- R. Spang, M. Höpfner, J. Reburn, A. DUDHIA, und J. Remedios. Cloud information retrieval from MIPAS measurements. Technical report, European Space Agency, 2007. Proposal AO/1-5255/06/I-OL.
- J. D. Spinhirne, S. P. Palm, und W. D. Hart. Antarctica cloud cover for October 2003 from GLAS satellite lidar profiling. *Geophys. Res. Lett.*, 32:22, 2005. doi: 10.1029/2005GL023782.
- T. R. Sreerekha, S. A. Buehler, und C. Emde. A simple new radiative transfer model for simulating the effect of cirrus clouds in the microwave spectral region. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 75:611–624, 2002.
- J. L. Stanford. On the nature of persistent stratospheric clouds in the Antarctic. *Tellus*, 29: 530–534, 1977.
- J. L. Stanford und J. S. Davis. A century of stratospheric cloud reports: 1870-1972. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 55:213–219, 1972.
- T. Steck. Methods for determining regularization for atmospheric retrieval problems. *Appl. Opt.*, 41(9):1788–1797, 2002.
- T. Steck und T. von Clarmann. Constrained profile retrieval applied to the observation mode of the Michelson interferometer for passive atmospheric sounding. *Appl. Opt.*, 40 (21):3559–3571, 2001.
- T. Steck, T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, M. Milz, G. P. Stiller, D. Wang, M. Allaart, T. Blumenstock, P. von der Gathen, G. Hansen, F. Hase, G. Hochschild, G. Kopp, E. Kyrö, H. Oelhaf, U. Raffalski, A. Redondas Marrero, E. Remsberg, J. Russell III, K. Stebel, W. Steinbrecht, G. Wetzel, M. Yela, und G. Zhang. Bias determination and precision validation of ozone profiles from MIPAS-ENVISAT retrieved with the IMK-IAA processor. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:3639–3662, 2007.
- H. M. Steele, P. Hamill, M. P. McCormick, und T. J. Swissler. The Formation of Polar Stratospheric Clouds. *J. Atm. Sci.*, 40:2055–2068, 1983.
- H. M. Steele, J. D. Lumpe, R. M. Bevilacqua, K. W. Hoppel, und R. P. Turco. Role of temperature history in polar stratospheric cloud sightings. *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 107:2–1, 2002. doi: 10.1029/2001JD001261.
- L. Stefanutti, M. Morandi, M. Del Guasta, S. Godin, G. Megie, J. Brechet, und J. Piquard. Polar stratospheric cloud observations over the Antarctic continent at Dumont D’Urville. *J. Geophys. Res.*, 96:12975–12987, 1991.
- L. Stefanutti, M. Morandi, M. Del Guasta, S. Godin, und C. David. Unusual PSCs

- observed by LIDAR in Antarctica. *Geophys. Res. Lett.*, 22:2377–2380, 1995. doi: 10.1029/95GL02085.
- B. Stein, M. del Guasta, J. Kolenda, M. Morandi, P. Rairoux, L. Stefanutti, J. P. Wolf, und L. Woste. Stratospheric aerosol size distributions from multispectral lidar measurements at Sodankyla during EASOE. *Geophys. Res. Lett.*, 21:1311–1314, 1994. doi: 10.1029/93GL02891.
- B. Stein, C. Wedekind, H. Wille, F. Immel, M. Müller, L. Wöste, M. del Guasta, M. Morandi, L. Stefanutti, A. Antonelli, P. Agostini, V. Rizi, G. Readelli, V. Mitev, R. Matthey, R. Kivi, und E. Kyrö. Optical classification, existence temperatures, and coexistence of different polar stratospheric cloud types. *J. Geophys. Res.*, 104:23983–23994, 1999. doi: 10.1029/1999JD900064.
- G. P. Stiller, editor. *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- G. P. Stiller, T. von Clarmann, B. Funke, N. Glatthor, F. Hase, M. Höpfner, und A. Linden. Sensitivity of trace gas abundances retrievals from infrared limb emission spectra to simplifying approximations in radiative transfer modeling. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 72:249–280, 2002.
- R. S. Stolarski, A. J. Krueger, M. R. Schoeberl, R. D. McPeters, P. A. Newman, und J. C. Alpert. Nimbus 7 satellite measurements of the springtime Antarctic ozone decrease. *Nature*, 322:808–811, 1986.
- C. Störmer. Photogrammetrische Bestimmung der Höhe von irisierenden Wolken (Perlmuttwolken). *Geofysiske Publikasjoner*, 5(3):3–8, 1926.
- C. Störmer. Remarkable clouds at high altitudes. *Nature*, 123:260–261, 1929.
- C. Störmer. Höhe und Farbenverteilung der Perlmuttwolken. *Geofysiske Publikasjoner*, 9 (4):3–27, 1931.
- C. Störmer. Höhenmessungen von Stratosphärenwolken. *Beiträge zur Physik der freien Atmosphäre*, 21:1–6, 1933.
- C. Störmer. Observations and photographic measurements of mother of pearl clouds over scandinavia 1930–38. *Geofysiske Publikasjoner*, 12(11):3–33, 1939.
- C. Störmer. Perlemorskyer. *Fra Fysikkens Verden*, 3, 1941. Oslo.
- C. Störmer. Mother-of-pearl clouds. *Weather*, 3:13–18, 1948.
- A. W. Strawa, K. Drdla, M. Fromm, R. F. Pueschel, K. W. Hoppel, E. V. Browell, P. Hamill, und D. P. Dempsey. Discriminating Types Ia and Ib polar stratospheric clouds in POAM satellite data. *J. Geophys. Res.*, 107(D20):8291, 2002. doi: 10.1029/2001JD000458.
- S. H. Svendsen, N. Larsen, B. Knudsen, S. D. Eckermann, und E. V. Browell. Influence of mountain waves and NAT nucleation mechanisms on polar stratospheric cloud formation at local and synoptic scales during the 1999–2000 Arctic winter. *Atmos. Chem. Phys.*, 5: 739–753, 2005.
- A. Tabazadeh, R. P. Turco, K. Dradla, M. Z. Jacobson, und O. B. Toon. A study of type i polar stratospheric cloud formation. *Geophys. Res. Lett.*, 21(15):1619–1622, 1994. doi: 10.1029/94GL01368.
- A. Tabazadeh, M. L. Santee, M. Y. Danilin, H. C. Pumphrey, P. A. Newman, P. J. Hamill, und J. L. Mergenthaler. Quantifying Denitrification and Its Effect on Ozone Recovery.

- Science*, 288:1407–1411, 2000.
- A. Tabazadeh, E. J. Jensen, O. B. Toon, K. Drdla, und M. R. Schoeberl. Role of the stratospheric polar freezing belt in denitrification. *Science*, 291:2591–2594, 2001.
- A. Tabazadeh, Y. S. Djikaev, P. Hamill, und H. Reiss. Laboratory evidence for surface nucleation of solid solar stratospheric cloud particles. *J. Phys. Chem. A*, 106:10238–10246, 2002.
- A. Tabazadeh. Commentary on ‘‘Homogeneous nucleation of NAD and NAT in liquid stratospheric aerosols: insufficient to explain denitrification’’ by Knopf et al. *Atmos. Chem. Phys.*, 3:863–865, 2003.
- F. W. Taylor, A. Lambert, R. G. Grainger, C. D. Rodgers, und J. J. Remedios. Properties of Northern Hemisphere Polar Stratospheric Clouds and Volcanic Aerosol in 1991/92 from UARS/ISAMS Satellite Measurements. *J. Atmos. Sci.*, 51:3019–3026, 1994.
- F. Thibault, V. Menoux, R. Le Doucen, L. Rosenmann, J.-M. Hartmann, und C. Boulet. Infrared collision-induced absorption by  $O_2$  near  $6.4\text{ }\mu\text{m}$  for atmospheric applications: measurements and empirical modeling. *Appl. Opt.*, 36(3):563–567, 1997.
- L. Thomason und Th. Peter. Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP). Technical Report 4, Stratospheric Processes and their Role in Climate, SPARC, 2006.
- D. A. Thompson, T. J. Pepin, und F. W. Simon. Ray tracing in a refracting spherically symmetric atmosphere. *J. Opt. Soc. Am.*, 72:1498–1501, 1982.
- A. Tikhonov. On the solution of incorrectly stated problems and method of regularization. *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, 151(3):501–504, 1963.
- R. T. Tisdale, D. L. Glandorf, M. A. Tolbert, und O. B. Toon. Infrared optical constants of low-temperature  $H_2SO_4$  solutions representative of stratospheric sulfate aerosols. *J. Geophys. Res.*, 103(D19):25353–25370, 1998. doi: 10.1029/98JD02457.
- R. T. Tisdale, A. J. Prenni, L. T. Iraci, M. A. Tolbert, und O. B. Toon. Variation of the infrared spectra of nitric acid hydrates with formation conditions: Impact on PSC identification. *Geophys. Res. Lett.*, 26(6):707–710, 1999. doi: 10.1029/1999GL900090.
- H. Tizek, E. Knözinger, , und H. Grothe. X-ray diffraction studies on nitric acid dihydrate. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 4:5128–5134, 2002.
- S. A. Tjemkes, T. Patterson, R. Rizzi, M. W. Shephard, S. A. Clough, M. Matricardi, J. Haigh, M. Höpfner, S. Payan, A. Trotsenko, N. Scott, P. Rayer, J. P. Taylor, C. Clerbaux, L. L. Strow, S. DeSouza-Machado, D. Tobin, und R. Knuteson. ISSWG line-by-line intercomparison experiment. Programme Development Department Technical Memorandum 8, EUMETSAT, European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites, 2001.
- S. A. Tjemkes, T. Patterson, R. Rizzi, M. W. Shephard, S. A. Clough, M. Matricardi, J. D. Haigh, M. Höpfner, S. Payan, A. Trotsenko, N. Scott, P. Rayer, J. P. Taylor, C. Clerbaux, L. L. Strow, S. DeSouza-Machado, D. Tobin, und R. Knuteson. The ISSWG line-by-line inter-comparison experiment. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 77(4):433–453, 2003.
- M. A. Tolbert und O. B. Toon. Solving the PSC mystery. *Science*, 292:61–63, 2001.
- O. B. Toon und N. H. Farlow. Particles above the tropopause - Measurements and models of stratospheric aerosols, meteoric debris, nacreous clouds, and noctilucent clouds. *Ann. Rev. Earth and Planet. Sci.*, 9:19–58, 1981. doi: 10.1146/annurev.ea.09.050181.000315.
- O. B. Toon, P. Hammill, R. P. Turco, und J. Pinto. Condensation of  $HNO_3$  and  $HCl$  in the

- winter polar stratospheres. *Geophys. Res. Lett.*, 13:1284–1287, 1986.
- O. B. Toon, E. V. Browell, S. Kinne, und J. Jordan. An analysis of lidar observations of polar stratospheric clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 17(4):393–396, 1990. doi: 10.1029/90GL00121.
- O. B. Toon, M. A. Tolbert, A. M. Middlebrook, und J. Jordan. Infrared optical constants of H<sub>2</sub>O, ice, amorphous nitric acid solutions, and nitric acid hydrates. *J. Geophys. Res.*, 99(D12):25631–25654, 1994. doi: 10.1029/94JD02388.
- O. B. Toon und M. A. Tolbert. Spectroscopic evidence against nitric acid trihydrate in polar stratospheric clouds. *Nature*, 375:218–221, 1995.
- O. B. Toon, A. Tabazadeh, E. V. Browell, und J. Jordan. Analysis of lidar observations of Arctic polar stratospheric clouds during January 1989. *J. Geophys. Res.*, 105:20589–20616, 2000. doi: 10.1029/2000JD900144.
- A. Tsias, M. Wirth, K. S. Carslaw, J. Biele, H. Mehrdens, J. Reichardt, C. Wedekind, V. Weiß, W. Renger, R. Neuber, U. von Zahn, B. Stein, V. Santacesaria, L. Stefanutti, F. Fierli, J. Bacmeister, und T. Peter. Aircraft lidar observations of an enhanced type Ia polar stratospheric clouds during APE-POLECAT. *J. Geophys. Res.*, 104(D19):23961–23970, 1999. doi: 10.1029/1998JD100055.
- K. K. Tung und H. Yang. Dynamical component of seasonal and year-to-year changes in Antarctic and global ozone. *J. Geophys. Res.*, 93:12537–12559, 1988. doi: 10.1029/88JD00349.
- R. P. Turco, O. B. Toon, und P. Hamill. Heterogeneous physicochemistry of the polar ozone hole. *J. Geophys. Res.*, 94:16493–16510, 1989. doi: 10.1029/89JD00998.
- D. S. Turner. Absorption coefficient estimation using a two-dimensional interpolation procedure. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 53(6):633–637, 1995.
- J. Turner, T. A. Lachlan-Cope, S. Colwell, G. J. Marshall, und W. M. Connolley. Significant Warming of the Antarctic Winter Troposphere. *Science*, 311:1914–1917, 2006. doi: 10.1126/science.1121652.
- F. Vanhellemont, D. Fussen, C. Bingen, E. Kyrölä, J. Tamminen, V. Sofieva, S. Hassinen, P. Verronen, A. Seppälä, J. L. Bertaux, A. Hauchecorne, F. Dalaudier, O. Fanton D'Andon, G. Barrot, A. Mangin, B. Theodore, M. Guirlet, J. B. Renard, R. Fraisse, P. Snoeij, R. Koopman, und L. Saavedra. A 2003 stratospheric aerosol extinction and PSC climatology from GOMOS measurements on Envisat. *Atmos. Chem. Phys.*, 5:2413–2417, 2005.
- G. Vaughan und D. P. Wareing. Stratospheric aerosol measurements by dual polarisation lidar. *Atmos. Chem. Phys.*, 4:2441–2447, 2004.
- C. Voigt, J. Schreiner, A. Kohlmann, P. Zink, K. Mauersberger, N. Larsen, T. Deshler, C. Kröger, J. Rosen, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfrancesco, M. Viterbini, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. David, und A. Dörnbrack. Nitric acid trihydrate (NAT) in polar stratospheric clouds. *Science*, 290(5497):1756–1758, 2000.
- C. Voigt, N. Larsen, T. Deshler, C. Kröger, J. Schreiner, K. Mauersberger, B. Luo, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfrancesco, J. Ovarlez, H. Ovarlez, A. Dörnbrack, B. Knudsen, und J. Rosen. In situ mountain-wave polar stratospheric cloud measurements: Implications for nitric acid trihydrate formation. *J. Geophys. Res.*, (D5):74–1, 2003. doi: 10.1029/2001JD001185.
- C. Voigt, H. Schlager, B. P. Luo, A. Dörnbrack, A. Roiger, P. Stock, J. Curtius, H. Vöüssing, S. Borrmann, S. Davies, P. Konopka, C. Schiller, G. Shur, und T. Peter. Nitric Acid Trihydrate (NAT) formation at low NAT supersaturation in Polar Stratospheric Clouds

- (PSCs). *Atmos. Chem. Phys.*, 5:1371–1380, 2005.
- T. von Clarmann, A. Dudhia, D. P. Edwards, B. Funke, M. Höpfner, B. Kerridge, V. Kostsov, A. Linden, M. López-Puertas, und Yu. M. Timofeyev. Intercomparison of radiative transfer codes under non-local thermodynamic equilibrium conditions. *J. Geophys. Res.*, 107(D22), 2002. doi: 10.1029/2001JD001551.
- T. von Clarmann. Zur Fernerkundung der Erdatmosphäre mittels Infrarotspektrometrie: Rekonstruktionstheorie und Anwendung. Wissenschaftliche Berichte FZKA 6928, Forschungszentrum Karlsruhe, 2003.
- T. von Clarmann, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, D. Y. Wang, H. Fischer, B. Funke, S. Gil-López, und M. López-Puertas. Retrieval of temperature and tangent altitude pointing from limb emission spectra recorded from space by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS). *J. Geophys. Res.*, 108(D23):4736, 2003a. doi: 10.1029/2003JD003602.
- T. von Clarmann, M. Höpfner, B. Funke, M. López-Puertas, A. Dudhia, V. Jay, F. Schreier, M. Ridolfi, S. Ceccherini, B. J. Kerridge, J. Reburn, und R. Siddans. Modelling of atmospheric mid-infrared radiative transfer: the AMIL2DA algorithm intercomparison experiment. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 78(3-4):381–407, 2003b.
- C. Von Savigny, E. P. Ulasi, K.-U. Eichmann, H. Bovensmann, und J. P. Burrows. Detection and mapping of polar stratospheric clouds using limb scattering observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 5:3071–3079, 2005.
- R. Wagner, A. Mangold, O. Möhler, H. Saathoff, M. Schnaiter, und U. Schurath. A quantitative test of infrared optical constants for supercooled sulphuric and nitric acid droplet aerosols. *Atmos. Chem. Phys.*, 3:1147–1164, 2003.
- R. Wagner, O. Möhler, H. Saathoff, und U. Schurath. Infrared spectrum of nitric acid dihydrate: influence of particle shape. *J. Phys. Chem.*, A109:2572, 2005a.
- R. Wagner, K.-H. Naumann, A. Mangold, O. Möhler, H. Saathoff, und U. Schurath. Aerosol chamber study of optical constants and  $n_{2O_5}$  uptake on supercooled  $H_2SO_4/H_2O/HNO_3$  solution droplets at polar stratospheric cloud temperatures. *J. Phys. Chem.*, A109:8140, 2005b.
- R. Wagner, S. Benz, O. Möhler, H. Saathoff, und U. Schurath. Probing ice clouds by mid-infrared extinction spectroscopy: case studies from ice nucleation experiments in the AIDA aerosol and cloud chamber. *Atmos. Chem. Phys.*, 6:4775–4800, 2006a.
- R. Wagner, H. Bunz, C. Linke, O. Möhler, K.-H. Naumann, H. Saathoff, M. Schnaiter, und U. Schurath. Chamber simulations of cloud chemistry: the AIDA chamber. In I. Barnes und K. J. Rudzinski, editors, *Proceedings of the NATO advances research workshop on environmental simulation chambers: application to atmospheric chemical processes, Zakopane, Poland, 1–4 October 2004*. Springer, 2006b.
- A. E. Waibel, T. Peter, K. S. Carslaw, H. Oelhaf, G. Wetzel, P. J. Crutzen, U. Poschl, A. Tsias, E. Reimer, und H. Fischer. Arctic Ozone Loss Due to Denitrification. *Science*, 283:2064–2069, 1999.
- D.-Y. Wang, G. P. Stiller, T. von Clarmann H. Fischer, M. López-Puertas, B. Funke, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, J. H. Jiang, C. O. Ao, G. Manney, K. Hocke, D. L.

- Wu, L. J. Romans, J. Wickert, und T. Schmidt. Cross-validation of MIPAS/ENVISAT and GPS-RO/CHAMP temperature profiles. *J. Geophys. Res.*, 109(D19311), 2004. doi: 10.1029/2004JD004963.
- D.-Y. Wang, G. P. Stiller, T. von Clarmann, H. Fischer, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, S. Wohnsiedler, M. López-Puertas, B. Funke, S. Gil-López, M. Kaufmann, M. E. Koukouli, D. Murtagh, N. Lautié, C. Jiménez, A. Jones, P. Eriksson, J. Urban, J. de La Noë, É. Le Flochmoën, É. Dupuy, P. Ricaud, M. Olberg, U. Frisk, J. Russell III, und E. Remsberg. Comparisons of MIPAS/ENVISAT ozone profiles with SMR/ODIN and HALOE/UARS observations. *Adv. Space Res.*, 36(5):927–931, 2005a. doi: 10.1016/j.asr.2005.03.015.
- D. Y. Wang, T. von Clarmann, H. Fischer, B. Funke, S. Gil-López, N. Glatthor, U. Grabowski, M. Höpfner, M. Kaufmann, S. Kellmann, M. Kiefer, M. E. Koukouli, A. Linden, M. López-Puertas, G. Mengistu Tsidu, M. Milz, T. Steck, G. P. Stiller, A. J. Simmons, A. Dethof, R. Swinbank, C. Marquardt, J. H. Jiang, L. J. Romans, J. Wickert, T. Schmidt, J. Russell III, und E. Remsberg. Validation of stratospheric temperatures measured by Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding MIPAS on Envisat. *J. Geophys. Res.*, 110(D8):D08301, 2005b. doi: 10.1029/2004JD005342.
- D. Y. Wang, M. Höpfner, C. E. Blom, W. E. Ward, H. Fischer, T. Blumenstock, F. Hase, C. Keim, G. Y. Liu, S. Mikuteit, H. Oelhaf, G. Wetzel, U. Cortesi, F. Mencaraglia, G. Bianchini, G. Redaelli, M. Pirre, V. Catoire, N. Huret, C. Vigouroux, M. De Mazière, E. Mahieu, P. Demoulin, S. Wood, D. Smale, N. Jones, H. Nakajima, T. Sugita, J. Urban, D. Murtagh, C. D. Boone, P. F. Bernath, K. A. Walker, J. Kuttippurath, A. Kleinböhl, G. Toon, und C. Piccolo. Validation of MIPAS HNO<sub>3</sub> operational data. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:4905–4934, 2007a.
- D.-Y. Wang, M. Höpfner, G. Mengistu Tsidu, G. P. Stiller, T. von Clarmann, H. Fischer, T. Blumenstock, N. Glatthor, U. Grabowski, F. Hase, S. Kellmann, A. Linden, M. Milz, H. Oelhaf, M. Schneider, T. Steck, G. Wetzel, M. López-Puertas, B. Funke, M. E. Koukouli, H. Nakajima, T. Sugita, H. Irie, J. Urban, D. Murtagh, M. L. Santee, G. Toon, M. R. Gunson, F. W. Irion, C. D. Boone, K. Walker, und P. F. Bernath. Validation of nitric acid retrieved by the IMK-IIA processor from MIPAS/ENVISAT measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:721–738, 2007b.
- X. Wang und D. V. Michelangeli. Comparison of microphysical modeling of polar stratospheric clouds against balloon-borne and Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) satellite observations. *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 111:10201, 2006. doi: 10.1029/2005JD006222.
- S. G. Warren. Optical constants of ice from the ultraviolet to the microwave. *Appl. Optics*, 23(8):1206–1225, 1984.
- H. Weickmann. Die Eisphase in der Atmosphäre. *Berichte des Deutschen Wetterdienstes in der US-Zone*, 6, 1949.
- G. Wetzel, A. Bracher, B. Funke, F. Goutail, F. Hendrick, J.-C. Lambert, S. Mikuteit, C. Piccolo, M. Pirre, A. Bazureau, C. Belotti, T. Blumenstock, M. De Mazière, H. Fischer, N. Huret, D. Ionov, M. López-Puertas, G. Maucher, H. Oelhaf, J.-P. Pommereau, R. Ruhnke, M. Sinnhuber, G. Stiller, M. Van Roozendael, und G. Zhang. Validation of MIPAS-ENVISAT NO<sub>2</sub> operational data. *Atmos. Chem. Phys.*, 7:3261–3284, 2007.
- D. M. Wieliczka, S. Weng, und M. R. Querry. Wedge shaped cell for highly absorbent liquids:

- infrared optical constants of water. *Appl. Opt.*, 28(9):1714–1719, 1989.
- M. Wirth, A. Tsias, A. Dörnbrack, V. Weiß, K. S. Carslaw, M. Leutbecher, W. Renger, H. Volkert, und T. Peter. Model-guided Lagrangian observation and simulation of mountain polar stratospheric clouds. *J. Geophys. Res.*, 104(D19):23971–23982, 1999. doi: 10.1029/1998JD900095.
- D. R. Worsnop, L. E. Fox, M. S. Zahniser, und S. C. Wofsy. Vapor pressure of solid hydrates of nitric acid: implications for polar stratospheric clouds. *Science*, 259:71–74, 1993.
- D. L. Wu und J. H. Jiang. MLS observations of atmospheric gravity waves over Antarctica. *J. Geophys. Res.*, (D24):14, 2002. doi: 10.1029/2002JD002390.
- F. Yu. Formation of large NAT particles and denitrification in polar stratosphere: possible role of cosmic rays and effect of solar activity. *Atm. Chem. Phys.*, 4:2273–2283, 2004.
- R. Zhang, P. J. Woodbridge, J. P. Abbatt, und M. J. Molina. Physical chemistry of the  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  binary system at low temperatures: Stratospheric implications. *J. Phys. Chem.*, 97:7351–7360, 1993.
- A. Zimmermann. Untersuchungen zur Ableitung mikrophysikalischer Parameter polarer stratosphärischer Wolken aus MIPAS–ENVISAT–Messungen. Master’s thesis, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe, Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.
- S. Zorn, T. von Clarman, M. Höpfner, G. P. Stiller, N. Glatthor, und A. Linden. Cross-sections of heavy molecules and pseudo-lines. In G. P. Stiller, editor, *The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative transfer Algorithm (KOPRA)*, volume FZKA 6487 of *Wissenschaftliche Berichte*, pages 77–87. Forschungszentrum Karlsruhe, 2000.



# Symbole

$A$	Linienintensität [ $\text{m}^2 \text{ cm}^{-1}$ ]
$B$	Planckfunktion [ $\text{W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ ]
$C$	Aerosol-Säulengehalte der atmosphärischen Schichten
$c$	Konzentration bei Mischaerosolen [gw%]
$D$	Schichtdicke [m]
$E_w$	Emissivität der Wolke
$f$	Linienform
$H$	Heizrate [ $\text{W m}^{-2}$ ]
$i$	Index über Spurengase
$J$	Quellfunktion [ $\text{W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ ]
$j$	Index über Aerosoltypen
<b>K</b>	Jakobimatrix
$k$	Index über atmosphärische Schichten
$k_a$	Absorptionskoeffizient [ $\text{m}^{-1}$ ]
$k_e$	Extinktionskoeffizient [ $\text{m}^{-1}$ ]
$k_s$	Streukoeffizient [ $\text{m}^{-1}$ ]
$L$	Spektrale Strahldichte [ $\text{W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ cm}$ ]
$l$	Index über Spektrallinien
$M$	Anzahl der Moden der Log-Normalverteilung
$m$	Index über die Moden der Log-Normalverteilung
$\tilde{m}$	Komplexer Brechungsindex
$\tilde{m}_1$	Realteil des komplexen Brechungsindexes
$\tilde{m}_2$	Imaginärteil des komplexen Brechungsindexes
$N$	Aerosol-Teilchenzahldichte [ $\text{cm}^{-3}$ ]
$n$	Teilchenzahldichteverteilung [ $\text{cm}^{-3} \mu\text{m}^{-1}$ ]
$N_{gas}$	Spurengas-Teilchenzahldichte [ $\text{m}^{-3}$ ]
$\vec{n}$	Ausbreitungsrichtung der Strahlung
$P$	Phasenfunktion
$p^e$	Effektive Phasenfunktion
$Q_a$	Absorptionseffizienz
$Q_e$	Extinktionseffizienz
$Q_s$	Streueffizienz
<b>R</b>	Regularisierungsmatrix
$R$	Modenradius der Log-Normalverteilung [m]
$r$	Teilchenradius [m]
$S$	Modenbreite der Log-Normalverteilung

$T$	Temperatur [K]
$T_{Eis}$	Gleichgewichtstemperatur von Eis [K]
$T_{NAT}$	Gleichgewichtstemperatur von NAT [K]
$t$	Transmission
$V$	Aerosol-Volumendichte [ $\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ ]
$\mathbf{x}$	Vektor abzuleitender Parameter
$x$	Ort entlang des Sehstrahls [m]
$x_B$	Ort des Beobachters [m]
$\mathbf{y}$	Simulierte Messwerte durch das Vorwärtsmodell
$\mathbf{y}_{meas}$	Vektor der Messwerte (Strahldichtewerte)
$\nu$	Wellenzahl [ $\text{cm}^{-1}$ ]
$\sigma$	Stefan-Boltzmann-Konstante ( $5.670400 \times 10^{-8} \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-4}$ )
$\sigma_{a,gas}$	Spurengas-Absorptionsquerschnitt [ $\text{m}^2$ ]
$\sigma_a^e$	Effektiver Aerosol-Absorptionsquerschnitt [ $\text{m}^2$ ]
$\sigma_s^e$	Effektiver Aerosol-Streuquerschnitt [ $\text{m}^2$ ]
$\omega_0$	Einfachstreualbedo

# Akronyme

AAOE	Airborne Antarctic Ozone Expedition
AASE	Airborne Arctic Stratospheric Expedition
ACE	Atmospheric Chemistry Experiment
ACE-FTS	Atmospheric Chemistry Experiment-Fourier Transform Spectrometer
ADEOS	Advanced Earth Observing Satellite
AIDA	Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere (Aerosolkammer des IMK)
AILS	Apodised Instrumental Line Shape
APE-POLECAT	Airborne Polar Experiment and Polar stratospheric clouds Leewaves, Chemistry Aerosol and Transport
ATMOS	Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy Experiment
AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
CALIOP	Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization
CALIPSO	Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation
CI	Cloud Identifier
CLAES	Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer
CRISTA	Cryogenic Infrared Spectrometers and Telescopes for the Atmosphere
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
DMI	Dänisches Meteorologisches Institut
DOIT	Discrete Ordinate Iterative
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
Envisat	Environmental Satellite
ERBS	Earth Radiation Satellite
ESA	European Space Agency
FASCODE	Fast Atmospheric Signature Code
FCKW	Fluorchlorkohlenwasserstoff
FOV	Field Of View (Gesichtsfeld)
FTIR	Fourier Transform Infrared (Fouriertransformspektroskopie im infraroten Spektralbereich)
FTS	Fouriertransformspektrometer
GLAS	Geoscience Laser Altimeter System
GOMOS	Global Ozone Monitoring by Occultation of Stars
HALOE	Halogen Occultation Experiment
ICESat	Ice, Cloud and land Elevation Satellite
ILAS	Improved Limb Atmospheric Spectrometer
ILS	Instrumental Line Shape

IMK	Institut für Meteorologie und Klimaforschung
IR	Infrarot
IRIS	Infrared Interferometer Spectrometer
ISAMS	Improved Stratospheric and Mesospheric Sounder
KOPRA	Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm
LaRC	NASA-Langley Research Center
LIMS	Limb Infrared Monitor of the Stratosphere
LOS	Line Of Sight (Sichtlinie)
Metop	Meteorological Operational Polar Satellite
microRADIBAL	micro Radiomètre Ballon
MIPAS	Michelson Interferometer für Passive Atmosphärische Sondierung
MIPAS-B	MIPAS-Ballongerät
MIPAS-FT	MIPAS-Flugzeuggerät auf der Transll
MLS	Microwave Limb Sounder
MWFM	Mountain Wave Forecast Model
NAD	Nitric Acid Dihydrate (Salpetersäuredihydrat)
NAT	Nitric Acid Trihydrate (Salpetersäuretrihydrat)
NIR	Near Infrared (nahes Infrarot)
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NRL	Naval Research Laboratory
OFM	Optimized Forward Model
OLEX	Ozone Lidar Experiment
POAM	Polar Ozone and Aerosol Measurement
PREMIER	PRocess Exploration through Measurements of Infrared and millimetre-wave Emitted Radiation
PSC	Polar Stratospheric Cloud (Polare Stratosphärische Wolke)
RFM	Reference Forward Model
RMS	Root Mean Square (Wurzel aus der mittleren quadratischen Abweichung)
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SAM II	Stratospheric Aerosol Measurement II
SAT	Sulfuric Acid Tetrahydrate (Schwefelsäuretetrahydrat)
SCIAMACHY	Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography
SOLVE	SAGE III and Ozone Loss Validation Experiment
SPOT	Système Probatoire d'Observation de la Terre
STS	Supercooled Ternary ( $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ ) Solution
THESEO	Third European Stratospheric Experiment on Ozone
TIROS	Television Infra-Red Observing Satellite
UARS	Upper Atmosphere Research Satellite
UV	Ultraviolett
VIS	Visible (sichtbarer Spektralbereich)

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Die „Belgica“ während der Überwinterung im Packeis der Antarktis . . . . .	16
1.2	Bestimmung der Höhe von PSCs durch Triangulation am 13.1.1929. . . . .	17
1.3	Schema zur Bildung von festen PSC-Teilchen. . . . .	22
2.1	Optische Konstanten von NAT. . . . .	50
2.2	Bereich der $\nu_2$ -Normalschwingungsbande von $\text{NO}_3^-$ . . . . .	51
2.3	Optische Konstanten von NAD. . . . .	53
2.4	Optische Konstanten von $\text{H}_2\text{SO}_4$ . . . . .	55
2.5	Optische Konstanten von $\text{HNO}_3$ . . . . .	56
2.6	Optische Konstanten von Eis. . . . .	57
2.7	Einfachstreualbedo $\omega_0$ kugelförmiger Eisteilchen als Funktion von Radius und Wellenzahl. . . . .	59
2.8	Modellvergleich zwischen ARTS und KOPRA für $\omega_0 = 0.24$ . . . . .	60
2.9	Modellvergleich zwischen ARTS und KOPRA für $\omega_0 = 0.84$ . . . . .	62
2.10	Breitbandige Simulation spektral hochauflöster Horizontsondierungsmessungen von PSCs: verschiedene Teilchengrößen. . . . .	66
2.11	Abhängigkeit der Absorptions-, Streueffizienz und Einfachstreualbedo vom Teilchenradius. . . . .	67
2.12	Simulation spektral hochauflöster Horizontsondierungsmessungen von PSCs (Ausschnitt): verschiedene Teilchengrößen. . . . .	68
2.13	Verdeutlichung des Effekts von eingestreuter troposphärischer Strahlung. . .	69
2.14	Breitbandige Simulation spektral hochauflöster Horizontsondierungsmessungen von PSCs: solare Einstreuung. . . . .	70
2.15	Vergleich der zur Simulation verwendeten komplexen Brechungsindizes. . .	71

2.16	Breitbandige Simulation spektral hochauflöster Horizontsondierungsmes- sungen von PSCs: NAT vs. NAD. . . . .	72
2.17	Breitbandige Simulation spektral hochauflöster Horizontsondierungsmes- sungen von PSCs: NAT vs. STS. . . . .	73
2.18	Breitbandige Simulation spektral hochauflöster Horizontsondierungsmes- sungen von PSCs: troposphärische Bedingungen. . . . .	74
3.1	Inversionsmethoden für Teilcheneigenschaften. . . . .	78
3.2	Anpassung von KOPRA-Rechnungen an Laborspektren. . . . .	84
4.1	Bodengebundene FTIR-Messungen von PSCs. . . . .	88
4.2	Vergleich der FTIR-PSC Beobachtung mit Anpassungsrechnungen. . . . .	89
4.3	Vergleich der FTIR-PSC-Beobachtungsgeometrie mit OLEX-Lidar Messungen.	92
5.1	Flugtrajektorie und Sehstrahlen des MIPAS-B-Flugs am 11.1.2000. . . . .	94
5.2	MIPAS-B Horizontsondierungsspektren mit und ohne PSCs am 11.1.2000. . .	95
5.3	Ergebnisse der MIPAS-B PSC-Auswertung. . . . .	97
5.4	Vergleich von simulierten und gemessenen MIPAS-B PSC-Spektren. . . . .	100
6.1	Tangentenhöhenkorrekturen von MIPAS/Envisat. . . . .	104
6.2	PSC-Obergrenzen am Anfang und am Ende des antarktischen Winters 2003.	105
6.3	PSC-Obergrenzen für unterschiedliche CI-Limits. . . . .	106
6.4	Abhängigkeit des Cloud-Indicators CI von der PSC-Volumendichte. . . . .	107
6.5	Lidar-Rückstreuverhältnis und -Depolarisation für die ausgewählten Koinzi- denzen mit MIPAS. . . . .	109
6.6	Ausschnitte aus Kanal A der MIPAS-PSC-Messungen dreier Tangentenhöhen am 4.8.2003. . . . .	110
6.7	Vergleich zwischen MIPAS-PSC-Typ 1a-Messung und Simulationen. . . . .	111
6.8	Vergleich zwischen MIPAS PSC Typ 1b-Messung und Simulationen. . . . .	112
6.9	Vergleich zwischen MIPAS PSC Typ 2-Messung und Simulationen. . . . .	113
6.10	Abgeleitete Höhenprofile der Teilchenanzahl- und Volumendichte. . . . .	114
6.11	Vergleich von Lidar-Aerosol-Rückstreucoeffizienten mit MIPAS-Simulationen.	116

6.12	Simulation von Farbverhältnissen zur PSC-Differenzierung. . . . .	117
6.13	Vergleich zwischen MIPAS- und McMurdo-Lidar- PSC-Typen. . . . .	118
6.14	Scatterplot der Farbverhältnisse von MIPAS-PSC-Beobachtungen im Mai und Juni 2003. . . . .	120
6.15	Großräumige Verteilung der PSC-Zusammensetzung auf einer Höhe von ca. 21 km. . . . .	121
6.16	MWFM-2-Analysen der Temperaturamplituden von Leewellen auf 40 hPa im Juni 2003. . . . .	122
6.17	MWFM-3-Analysen der Leewellen-induzierten Temperaturschwankungen und Trajektorien. . . . .	123
6.18	Vergleich von mikrophysikalischen box-Modellsimulationen mit MIPAS-Messungen. . . . .	124
6.19	Vergleich von MIPAS-PSC-Beobachtungen am 9.6.2003 und Ergebnissen des mikrophysikalischen Modells inklusive Sedimentation. . . . .	126
6.20	Suche nach NAD. . . . .	128
7.1	Relative Anzahl von STS-, NAT-, und Eis-PSCs von 2003–2007 aus MIPAS/Envisat. . . . .	134



# Tabellenverzeichnis

1.1	Satellitengetragene Experimente zur PSC-Forschung. . . . .	27
1.2	PSC-Beobachtungen bodengebundener Lidars. . . . .	36
2.1	Labormessungen optischer Konstanten. . . . .	49
2.2	Testszenarien für KOPRA-ARTS-Vergleich. . . . .	59
2.3	Größenparameter für die verschiedenen PSC-Szenarien. . . . .	65
3.1	KOPRA-Auswertung von AIDA-Laborspektren. . . . .	83
4.1	Ergebnisse der Auswertung von bodengebundenen FTIR-Messungen. . . . .	90
4.2	Fehlerabschätzung der Auswertung von bodengebundenen FTIR-Messungen. . . . .	90
5.1	Definition der Szenarien zur MIPAS-B PSC-Auswertung. . . . .	96
6.1	Ausgewählte Koinzidenzen zwischen MIPAS- und Lidar-PSC-Beobachtungen über McMurdo. . . . .	108
6.2	Literaturangaben von Brechungsindizes bei 532 nm für unterschiedliche PSC-Zusammensetzungen. . . . .	115



**Wissenschaftliche Berichte des  
Instituts für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe**

Bisher erschienen:

- Nr. 1: Fiedler,F., Prenosil, T.:  
Das MESOKLIP-Experiment.  
(Mesoskaliges Klimaprogramm im Oberrheintal).  
August 1980
- Nr. 2: Tangermann-Dlugi, G.:  
Numerische Simulationen atmosphärischer  
Grenzschichtströmungen über langgestreckten mesoskaligen Hügelketten bei  
neutraler thermischer Schichtung.  
August 1982
- Nr. 3: Witte, N.:  
Ein numerisches Modell des Wärmehaushalts fließender Gewässer unter  
Berücksichtigung thermischer Eingriffe.  
Dezember 1982
- Nr. 4: Fiedler, F. und Höschele, K. (Hrsg.):  
Prof. Dr. Max Diem zum 70. Geburtstag.  
Februar 1983 (vergriffen)
- Nr. 5: Adrian, G.:  
Ein Initialisierungsverfahren für numerische mesoskalige Strömungsmodelle.  
Juli 1985
- Nr. 6: Dorwarth, G.:  
Numerische Berechnung des Druckwiderstandes typischer Geländeformen.  
Januar 1986
- Nr. 7: Vogel, B., Adrian, G., Fiedler, F.:  
MESOKLIP-Analysen der meteorologischen Beobachtungen von mesoskaligen Phänomenen  
im Oberrheingraben.  
November 1987
- Nr. 8: Hugelmann, C.-P.:  
Differenzenverfahren zur Behandlung der Advektion.  
Februar 1988
- Nr. 9: Hafner, T.:  
Experimentelle Untersuchungen zum Druckwiderstand der Alpen.  
April 1988
- Nr. 10: Corsmeier, U.:  
Analyse turbulenter Bewegungsvorgänge in der maritimen atmosphärischen  
Grenzschicht.  
Mai 1988
- Nr. 11: Walk, O. and Wieringa, J.(eds):  
Tsumeb Studies of the Tropical Boundary-Layer Climate.  
Juli 1988

- Nr. 12: Degrazia, G. A.:  
Anwendung von Ähnlichkeitsverfahren auf die turbulente Diffusion in der konvektiven und stabilen Grenzschicht.  
Januar 1989
- Nr. 13: Schädler, G.:  
Numerische Simulationen zur Wechselwirkung zwischen Landoberflächen und atmosphärischer Grenzschicht.  
November 1990
- Nr. 14: Heldt, K.:  
Untersuchungen zur Überströmung eines mikroskaligen Hindernisses in der Atmosphäre.  
Juli 1991
- Nr. 15: Vogel, H.:  
Verteilungen reaktiver Luftbeimengungen im Lee einer Stadt -  
Numerische Untersuchungen der relevanten Prozesse.  
Juli 1991
- Nr. 16: Höschele, K.(ed.):  
Planning Applications of Urban and Building Climatology -  
Proceedings of the IFHP / CIB-Symposium Berlin, October 14 - 15, 1991.  
März 1992
- Nr. 17: Frank, H.P.:  
Grenzschichtstruktur in Fronten.  
März 1992
- Nr. 18: Müller, A.:  
Parallelisierung numerischer Verfahren zur Beschreibung von Ausbreitungs- und chemischen Umwandlungsprozessen in der atmosphärischen Grenzschicht. Februar 1996
- Nr. 19: Lenz, C.-J.:  
Energieumsetzungen an der Erdoberfläche in gegliedertem Gelände.  
Juni 1996
- Nr. 20: Schwartz, A.:  
Numerische Simulationen zur Massenbilanz chemisch reaktiver Substanzen im mesoskaligen Bereich.  
November 1996
- Nr. 21: Beheng, K.D.:  
Professor Dr. Franz Fiedler zum 60. Geburtstag.  
Januar 1998
- Nr. 22: Niemann, V.:  
Numerische Simulation turbulenter Scherströmungen mit einem Kaskadenmodell.  
April 1998
- Nr. 23: Koßmann, M.:  
Einfluß orographisch induzierter Transportprozesse auf die Struktur der atmosphärischen Grenzschicht und die Verteilung von Spurengasen.  
April 1998

- Nr. 24: Baldauf, M.:  
Die effektive Rauigkeit über komplexem Gelände - Ein Störungstheoretischer Ansatz.  
Juni 1998
- Nr. 25: Noppel, H.:  
Untersuchung des vertikalen Wärmetransports durch die Hangwindzirkulation auf regionaler Skala.  
Dezember 1999
- Nr. 26: Kuntze, K.:  
Vertikaler Austausch und chemische Umwandlung von Spurenstoffen über topographisch gegliedertem Gelände.  
Oktober 2001
- Nr. 27: Wilms-Grabe, W.:  
Vierdimensionale Datenassimilation als Methode zur Kopplung zweier verschiedenskaliger meteorologischer Modellsysteme.  
Oktober 2001
- Nr. 28: Grabe, F.:  
Simulation der Wechselwirkung zwischen Atmosphäre, Vegetation und Erdoberfläche bei Verwendung unterschiedlicher Parametrisierungsansätze. Januar 2002
- Nr. 29: Riemer, N.:  
Numerische Simulationen zur Wirkung des Aerosols auf die troposphärische Chemie und die Sichtweite.  
Mai 2002
- Nr. 30: Braun, F. J.:  
Mesoskalige Modellierung der Bodenhydrologie.  
Dezember 2002
- Nr. 31: Kunz, M.:  
Simulation von Starkniederschlägen mit langer Andauer über Mittelgebirgen. März 2003
- Nr. 32: Bäumer, D.:  
Transport und chemische Umwandlung von Luftschadstoffen im Nahbereich von Autobahnen - numerische Simulationen.  
Juni 2003
- Nr. 33: Barthlott, C.:  
Kohärente Wirbelstrukturen in der atmosphärischen Grenzschicht.  
Juni 2003
- Nr. 34: Wieser, A.:  
Messung turbulenter Spurengasflüsse vom Flugzeug aus.  
Januar 2005
- Nr. 35: Blahak, U.:  
Analyse des Extinktionseffektes bei Niederschlagsmessungen mit einem C-Band Radar anhand von Simulation und Messung.  
Februar 2005

- Nr. 36: Bertram, I.: Bestimmung der Wasser- und Eismasse hochreichender konvektiver Wolken anhand von Radardaten, Modellergebnissen und konzeptioneller Betrachtungen.  
Mai 2005
- Nr. 37: Schmoekel, J.: Orographischer Einfluss auf die Strömung abgeleitet aus Sturmschäden im Schwarzwald während des Orkans „Lothar“.  
Mai 2006
- Nr. 38: Schmitt, C.: Interannual Variability in Antarctic Sea Ice Motion.  
Interannuelle Variabilität antarktischer Meereis-Drift.  
Mai 2006
- Nr. 39: Hasel, M.: Strukturmerkmale und Modelldarstellung der Konvektion über Mittelgebirgen  
Juli 2006

**Ab Band 40 erscheinen die Wissenschaftlichen Berichte des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung im Karlsruher Universitätsverlag online unter der Internetadresse:**

<http://www.uvka.de/>

**Auf Wunsch sind beim Karlsruher Universitätsverlag auch gedruckte Exemplare erhältlich („print on demand“).**

- Nr. 40: Lux, R.: Modellsimulationen zur Strömungsverstärkung von orographischen Grundstrukturen bei Sturmsituationen.  
Mai 2007
- Nr. 41: Straub, W.: Der Einfluss von Gebirgswellen auf die Initiierung und Entwicklung konvektiver Wolken.  
März 2008
- Nr. 42: Meißen, C.: High-resolution sensitivity studies with the regional climate model COSMO-CLM.  
März 2008
- Nr. 43: Höpfner, M.: Charakterisierung polarer stratosphärischer Wolken mittels hochauflösender Infrarotspektroskopie.  
Oktober 2008



ISSN: 0179-5619  
ISBN: 978-3-86644-294-8

---

[www.uvka.de](http://www.uvka.de)