

Einfluss von Änderungen des stratosphärischen Transports auf die Vertikalverteilung chemisch aktiver Tracer

Masterarbeit

Eingereicht von:

Marius Hauck

Oktober 2016

1. Gutachter: Prof. Dr. Andreas Engel (IAU)
2. Gutachter: Dr. Harald Bönisch (KIT)

Eingereicht am: 20.10.2016

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung & Motivation	7
2	Theoretische Grundlagen	10
2.1	Vertikalstruktur der Atmosphäre	10
2.2	Chemische Prozesse	12
2.2.1	Chemische Lebenszeit	12
2.2.2	Ozonzerstörende Substanzen	13
2.3	Kenngößen stratosphärischer Luft	16
2.3.1	Potentielle Temperatur	16
2.3.2	Potentielle Vorticity	17
2.3.3	Äquivalente Breite	20
2.3.4	Mittleres Alter der Luft	22
2.4	Dynamische Vorgänge	24
2.4.1	Mittlere Meridionale Zirkulation	25
2.4.2	Bidirektionale Mischung	26
2.4.3	Veränderung der stratosphärischen Zirkulation	26
3	Methodik	31
3.1	Klima-Chemiemodell EMAC	31
3.2	Genutzte Datensätze	32
3.2.1	Hindcast-Daten	32
3.2.2	Prognose-Daten	33
3.2.3	Instantane Daten	33
3.3	Vorgehensweise der Analyse	34
3.3.1	Bestimmung von Tracer-Differenzen	35
3.3.2	Bestimmung der Cut-Off-Level	36
3.3.3	Bestimmung der Variabilitäten	37
3.3.4	Transformation auf normierte N ₂ O-Isoplethen	38
4	Ergebnisse	41
4.1	Vertikalprofile der Tracer-Differenzen	41
4.2	Variabilität der Tracer-Differenzen	53
4.3	Betrachtung auf normierten N ₂ O-Isoplethen	59
5	Resümee und Ausblick	66
6	Anhang	72
6.1	Cut-Off-Level der analysierten Prognose-Daten	72
6.2	Konsistenz der Datensätze	73
	Literaturverzeichnis	79

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schichtung der Atmosphäre	10
2.2	Verlauf des atmosphärischen Ozongehalts	13
2.3	Globales mittleres N ₂ O-Mischungsverhältnis	15
2.4	Einteilung der Stratosphäre durch Isentropen	17
2.5	PV-Feld auf der 350K-Isentrope	19
2.6	Prinzip der äquivalenten Breite	20
2.7	Isentrope Potentielle Vorticity als Funktion äquivalenter Breite	21
2.8	Mittleres Alter als Verzögerungszeit	22
2.9	Altersspektren in zwei Bereichen der Stratosphäre	23
2.10	Brewer-Dobson-Zirkulation	24
2.11	Mittleres Alter der Luft aus Beobachtung und Modell	27
2.12	Vertikalprofil zeitlicher Tracer-Differenzen	29
3.1	Tracerlebenszeit im Vertikalverlauf	36
4.1	Tracer-Differenzen 2007 - 1997 in den mittleren Breiten	42
4.2	Cut-Off-Level des Zeitraums 2007 - 1997	43
4.3	Tracer-Differenzen 2007 - 1997 in den Tropen	45
4.4	Tracer-Differenzen 2057 - 2047 in den mittleren Breiten	46
4.5	Tracer-Differenzen 2057 - 2047 in den Tropen	48
4.6	Tracer-Differenzen 2077 - 2027 in den mittleren Breiten	50
4.7	Tracer-Differenzen 2077 - 2027 in den Tropen	51
4.8	Temporale Variabilität auf geographischer Breite	54
4.9	Temporale Variabilität auf äquivalenter Breite	56
4.10	Normiertes H1211-Mischungsverhältnis auf N ₂ O-Isoplethen in den mittleren Breiten	60
4.11	Ausschnitt des normierten H1211-Mischungsverhältnisses auf N ₂ O-Isoplethen in den mittleren Breiten	61
4.12	Ausschnitt des normierten F11-Mischungsverhältnisses auf N ₂ O-Isoplethen in den mittleren Breiten	63
6.1	Cut-Off-Level des Zeitraums 2057 - 2047	72
6.2	Cut-Off-Level des Zeitraums 2077 - 2027	73
6.3	Absolute Tracer-Profile in den mittleren Breiten	74
6.4	Tracer-Differenzenprofile in den mittleren Breiten	76

Tabellenverzeichnis

2.1	Lebenszeit und ODP ausgewählter FCKW und H-FCKW	15
4.1	Anzahl hypothetischer Messungen in der Stratosphäre bis 1400K und 800K . . .	58
4.2	Anzahl hypothetischer Messungen in der Stratosphäre bis 600K	58
6.1	Korrelationskoeffizienten der Absolutprofile in den mittleren Breiten in der Periode 1997	75
6.2	Korrelationskoeffizienten der Absolutprofile in den Tropen in der Periode 1997 . .	75
6.3	Korrelationskoeffizienten der Tracer-Differenzenprofile in den mittleren Breiten in der Periode 2007-1997	77
6.4	Korrelationskoeffizienten der Tracer-Differenzenprofile in den Tropen in der Periode 2007-1997	77

Abstract

Das Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der stratosphärischen Meridionalzirkulation mit Hilfe von chemisch aktiven Spurengasen. Diese motiviert sich durch die Tatsache, dass der Klimawandel neben den viel erforschten Auswirkungen auf die Troposphäre, auch Reaktionen in der Stratosphäre zur Folge hat, welche bisher weit weniger tiefgehend untersucht wurden. Das macht die Stratosphäre zu einem aktuellen und frequentierten Forschungsgebiet der experimentellen und theoretischen Meteorologie. Neben vereinzelt hochaufgelösten in-situ Messungen und globalen Satellitendaten sind es hier vor allem globale numerische Klima-Chemiemodelle, die für Analysen genutzt werden. Für diese Arbeit wurden Daten des EMAC-Modells (engl.: **E**CHAM/**M**ESSy **A**tmospheric **C**hemistry) ausgewertet, welche im Rahmen der **ESCiMo** (engl.: **E**arth **S**ystem **C**hemistry **i**ntegrated **M**odelling) Initiative vom MESSy-Konsortium (engl.: **M**odular **E**arth **S**ubmodel **S**ystem) erstellt wurden. Die Zielsetzung dieser Arbeit war, ob sich etwaige Änderungen des stratosphärischen Transports anhand von modellierten, chemisch aktiven, idealisierten Spurengasen feststellen lassen. Idealisiert bedeutet hierbei, dass diese Gase ein konstantes Mischungsverhältnis am Erdboden aufweisen und den identischen chemischen Prozessen unterliegen wie die realistischen Tracer. Dies hat zur Folge, dass diese Spurengase somit nicht in das Strahlungsbudget des Modells rückkoppeln und ihre Verteilung nicht durch zeitliche troposphärische Trends beeinflusst wird. Zur Analyse des stratosphärischen Transports wurden die Differenzen der monatlich gemittelten Mischungsverhältnisse zweier Zeitpunkte der verschiedenen Substanzen im Vertikalprofil betrachtet und ausgewertet, wobei hier die photolytische Lebenszeit und die Zeitskala des Transports zu berücksichtigen war. Um die Saisonalität von Transport und Chemie zu berücksichtigen, wurden dazu die Monate März, Juni, September und Dezember analysiert.

Die Resultate zeigten, dass **chemisch aktive Substanzen** in der Tat geeignet sind **Änderungen** in der **Dynamik festzustellen**. So stellte sich heraus, dass mit einer allgemeinen Intensivierung der stratosphärischen Meridionalzirkulation im kommenden Jahrhundert gerechnet werden kann, wobei hiervon besonders die untere Stratosphäre betroffen ist. Eine Differenzierung welche Komponente der Zirkulation (Residualtransport oder bidirektionale quasi-horizontale Mischung) hierbei von übergeordneter Bedeutung ist, konnte nicht spezifiziert werden. Um abzuschätzen, ob sich die Änderung der Zirkulation durch Änderungen in den Mischungsverhältnissen von chemisch aktiven Substanzen mit Hilfe von direkten Messungen nachweisen lässt, wurde die **atmosphärische Variabilität des Modells** bestimmt und mit den Veränderungen dieser Mischungsverhältnisse verglichen. Es zeigte sich, dass diese modellierte atmosphärische Variabilität zum Teil deutlich größer war, als die Differenzen der Mischungsverhältnisse und so ohne eine Vielzahl von in-situ Messungen keine eindeutige Aussage zulassen. Um eine statistisch valide Aussage treffen zu können, müssen daher mehrere Messreihen innerhalb eines Monats durchgeführt werden. Zudem stellte sich heraus, dass der Monat Juni der bestmögliche Messzeitraum ist, da hier die natürliche Variabilität am geringsten ist. Zuletzt wurden die **Spurengase** mit vergleichsweise **kleiner chemischer Lebenszeit** auf **normierten N₂O-Isoplethen** untersucht und die Verschiebung dieser Kurve zwischen den zwei Zeitpunkten analysiert. Die so gewonnenen Resultate ließen den Schluss zu, dass sich auf diese Weise die atmosphärische Variabilität reduzieren lässt und bei Nutzung mit experimentellen Daten eine zu den Tracer-Differenzen konsistente Aussage zulässt. So bestärkte diese Methode die These, dass sich der stratosphärische Transport innerhalb des 21. Jahrhunderts wahrscheinlich verstärken wird.

1 Einführung & Motivation

Die experimentelle und theoretische Erforschung der Stratosphäre ist mit einem Alter von circa 100 Jahren eine noch recht junge Teildisziplin der Meteorologie. Dies liegt nicht zuletzt daran, dass die nötige Technologie selbst für vereinzelte in-situ Messungen ebenfalls kaum länger bekannt ist. Der breiten Öffentlichkeit dürfte die Stratosphäre vor allem durch die mediale Aufarbeitung zu den Themen Ozonschicht und Ozonloch geläufig sein, welche besonders Ende des 20. Jahrhunderts viel diskutiert und durch Messkampagnen studiert wurden. Im Alltag dagegen eher weniger bekannt ist, dass auch der Klimawandel große Auswirkungen auf die Stratosphäre hat. So prognostizieren globale Klimamodelle hier einerseits, dass sich die mittlere Temperatur innerhalb dieses Jahrhunderts in der Stratosphäre signifikant reduzieren wird (*Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2014) und andererseits, dass sich die dort vorherrschende meridionale Zirkulation durch den steigenden troposphärischen Treibhausgasgehalt in weiten Teilen der Nordhemisphäre intensivieren wird (*Garcia und Randel*, 2008). Dies kann dann wieder zu Rückkopplungen mit dem troposphärischen Klima führen, weil sich Stratosphäre und Troposphäre besonderer gegenseitiger Wechselwirkungen ausgesetzt sehen (*Gerber et al.*, 2012).

Allerdings hat eine Auswertung der verfügbaren Messdaten von **chemisch inerten** stratosphärischen Spurengasen (sogenannter Tracer) durch *Engel et al.*, 2009 ergeben, dass es im Rahmen der Ungenauigkeiten, wenn überhaupt, zu einer Abschwächung der Zirkulation innerhalb der letzten Dekaden innerhalb des betrachteten Bereichs (nördliche Mittelbreiten, 25-35km Höhe) gekommen ist, was in komplettem Gegensatz zu den numerischen Modellen steht. Ein stark limitierendes Problem hierbei ist die sehr geringe Menge von verfügbaren experimentellen Daten der letzten 30 Jahre, da in-situ Messungen von Tracern in der Stratosphäre sehr kostenintensiv und aufwendig sind und deshalb die Unsicherheiten entsprechend hoch sind. Überdies besitzen auch Satellitenmessungen der atmosphärischen Spurengase zwei entscheidende Nachteile, die eine Langzeitstudie der stratosphärischen Zirkulation erschweren. Einerseits ist die Vertikalauflösung dieser Daten nicht ausreichend um auch kleinskalige Veränderungen der Zirkulation zu erfassen. Die Untersuchung der Zirkulation und des atmosphärischen Trends des Spurengasgehalts wird zudem dadurch erschwert, dass die vorliegenden Datensätze der einzelnen Satelliten kein kontinuierliches und ausreichend großes Zeitintervall abdecken (*Moore et al.*, 2013). Abhilfe in dieser Problematik könnte hier die neue Messtechnik **AirCore** (*Karion et al.*, 2010) schaffen, mit deren Hilfe ähnlich zu einem Eisbohrkern ein Vertikalprofil bestimmter Spurengase in der Atmosphäre bestimmt werden kann. Diese Messtechnik hat den Vorteil, dass Messreihen mit vergleichbar geringem Aufwand durchgeführt werden können und mit deutlich geringeren Kosten als bei vergleichbaren Methoden verbunden sind, sodass ebenso der Aufbau eines regelmäßigen Netzwerks zur Messung stratosphärischer Spurengase möglich wäre.

Das Ziel dieser Arbeit lässt sich ausgehend von dieser Problematik in zwei Bereiche gliedern. Anhand von Daten des globalen **Klima-Chemiemodells EMAC** (Akronym aus: **E**CHAM/**M**ESSy **A**tmospheric **C**hemistry, siehe Kapitel 3.1) sollen zunächst Vertikalprofile chemisch aktiver stratosphärischer Spurengase verschiedener Zeitpunkte miteinander verglichen werden, um zu bestimmen, ob sich zwischen diesen Zeitpunkten Veränderungen im Mischungsverhältnis dieser Tracer zeigen und ob etwaig auftretende Differenzen der Profile von Änderungen in der stratosphärischen Zirkulation (Kapitel 2.4) verursacht werden. Da hierzu, wie bereits erwähnt, **chemisch aktive Spurenstoffe** betrachtet werden, muss berücksichtigt werden, dass diese Senken in der Stratosphäre besitzen, wodurch eine Unterscheidung von dynamisch und chemisch bedingten Veränderungen der Tracer-Profile notwendig ist. Zeigen sich schließlich Änderungen, die auf eine **modifizierte stratosphärische Dynamik** hindeuten, ist das Ziel des zweiten Teils der Arbeit die Feststellung, ob diese Differenzen mit experimentellen Methoden (zum Beispiel AirCore) detektierbar sind. Hierzu wird die **interne Variabilität** (Standardabweichung) der Spurengasprofile bestimmt und mit der Größenordnung der Tracer-Differenzen verglichen.

Damit kann zudem festgestellt werden, wie oft in einem gegebenen Zeitraum an einem Ort Messungen durchgeführt werden müssen, sodass sich die Statistik vergrößert und so die Variabilität besser abgedeckt wird. Sollte sich hier herausstellen, dass für eine statistisch repräsentative Aussage diese Anzahl von in-situ Messungen zu groß und folglich **nicht realisierbar** ist, um damit Änderungen der stratosphärischen Zirkulation festzustellen, so werden Spurengaskonzentrationen auf normierten N_2O -Isoplethen (Flächen gleichen Mischungsverhältnisses) untersucht. Dies bedeutet, dass die Mischungsverhältnisse verschiedener kürzerlebiger Tracer mit dem eines langlebigen Referenztracers verglichen werden und dann die zeitliche Veränderung dieser Kurven qualitativ beobachtet wird. Auf diese Weise reduziert sich die Variabilität und somit die benötigte Messanzahl für eine signifikante Schlussfolgerung deutlich, weil alle betrachteten Tracer durch den identischen Transport an die Stelle der Messung gelangt sind.

Die Betrachtungsweise in dieser Arbeit orientiert sich insgesamt an den Resultaten von *Moore et al.*, 2013. Dort wurde mit Hilfe eines **idealisierten Modells** untersucht, wie sich eine fünfprozentige **Verstärkung** des **stratosphärischen Transports** auf die Mischungsverhältnisse von **chemisch aktiven Spurengasen** in der Stratosphäre auswirkt. Dazu wurden die Differenzen dieser Mischungsverhältnisse zwischen zwei Zeitpunkten ausgewertet. Die Untersuchung dieser Arbeit soll darauf aufbauen und mit Hilfe des deutlich komplexeren EMAC-Modells im Umkehrschluss analysieren, ob sich Veränderungen des stratosphärischen Meridionaltransports anhand solcher Tracer-Differenzen feststellen lassen. Die größere Komplexität von EMAC ermöglicht es, die **atmosphärische Variabilität** abzuschätzen und zu untersuchen, ob diese Tracer-Differenzen mit einer realisierbaren Anzahl von in-situ Messungen signifikant detektiert werden können.

2 Theoretische Grundlagen

In diesem Teil der Arbeit werden die Prinzipien und Vorgänge erläutert, die zum Verständnis der durchgeführten Modellstudien notwendig sind. Zunächst wird ein Überblick über das System Atmosphäre gegeben. Darauf folgen grundlegende chemische Prozesse und einige Kenngrößen stratosphärischer Luft, welche mit einer Einführung in die Dynamik der Stratosphäre abgeschlossen werden.

2.1 Vertikalstruktur der Atmosphäre

Die Atmosphäre der Erde ist kein uniformes Gebilde, sondern setzt sich aus mehreren Subsystemen zusammen, die sich in ihren physikalischen Eigenschaften, den ablaufenden dynamischen Prozessen und ihren chemischen Zusammensetzungen stark unterscheiden. Hierbei ist das vertikale Temperaturprofil maßgeblich für die Gliederung in die verschiedenen Schichten. Abbildung 2.1 verdeutlicht diesen Zusammenhang:

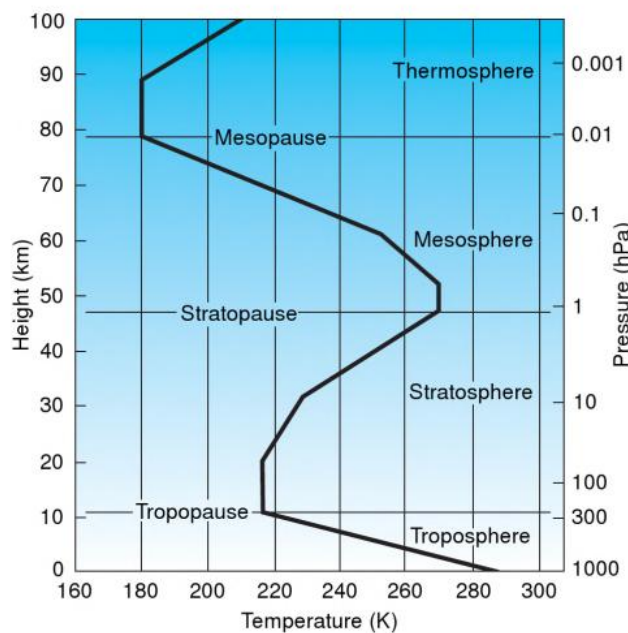


Abbildung 2.1: Schichtung der Atmosphäre

Gezeigt ist der vertikale Aufbau der Atmosphäre. Die Einteilung der Schichten ergibt sich durch das vertikale Temperaturprofil (aus Wallace und Hobbs, 2006).

Die unterste dieser Schichten ist die sogenannte **Troposphäre**, welche einen direkten Einfluss auf die an der Erdoberfläche lebenden Lebewesen hat. In ihr läuft ein Großteil des Wettergeschehens auf der Erde ab, was unter anderem durch die Abnahme der Temperatur und des Luftdrucks mit zunehmender Höhe und die dadurch ausgelösten Konvektions- und Kondensationsprozesse erklärt werden kann (Kraus, 2004). Dies wird auch durch den im Vergleich zu den restlichen Schichten hohen Wasserdampfgehalt der Luft begünstigt. Eine typische Zeitskala für die in der Troposphäre ablaufenden turbulenten Prozesse wird oft mit einigen Tagen angegeben.

Abhängig von der geographischen Breite, schließt sich ihr in einer Höhe von circa 8 km (Pol) beziehungsweise 18 km (Äquator) die sogenannte **Tropopause** an, die vor allem durch einen konstanten, mittleren vertikalen Temperaturgradienten gekennzeichnet ist. Dies führt dazu, dass die Luft aus der Troposphäre am weiteren adiabatischen Aufsteigen (rasche Vertikalbewegung ohne Wärmeaustausch mit der Umgebung) gehindert wird und die Tropopause so als eine Art „Sperrschicht“ fungiert (Fueglistaler et al.,

2009). Eine besondere Rolle nimmt hierbei die **tropische Tropopausenregion** ein, die im Folgenden mit **TTL** (engl.: **Tropical Tropopause Layer**) abgekürzt wird. Bedingt durch den negativen vertikalen Temperaturgradienten in der Troposphäre und deren sehr große vertikale Ausdehnung in den Tropen, fällt die Temperatur in der TTL nicht selten auf Werte um etwa -85°C (vergleiche *Fueglistaler et al.*, 2009). Dies führt dazu, dass die Luftmassen oberhalb der Tropopause sehr trocken sind, da die Luft zu einem Großteil nur in der TTL durch diese Grenzschicht hindurch in die darüber liegenden Bereiche transportiert werden kann (siehe Kapitel 2.4).

Oberhalb der Tropopause liegt die **Stratosphäre**, welche im Vergleich zur recht turbulenten Troposphäre eher stabil geschichtet ist, da der vertikale Temperaturgradient positiv ist. Die dort ablaufenden dynamischen und chemischen Prozesse werden stark von der eintreffenden solaren Strahlung beeinflusst und unterscheiden sich in ihrer Ursache von den Prozessen in den unteren Luftschichten. Die Intensität der Strahlung ist durch das geringere Luftvolumen oberhalb der Stratosphäre um ein Vielfaches stärker als in der Troposphäre. So können in der mittleren bis oberen Stratosphäre beispielsweise stabile chemische Verbindungen, wie das Sauerstoff-Molekül (O_2), durch Photolyse gespalten werden und in neue chemische Verbindungen eintreten (Kapitel 2.2). Weiterhin sorgt die intensivere Solarstrahlung dafür, dass dynamische Vorgänge oftmals nicht adiabatisch, sondern diabatisch ablaufen, also relativ langsam und mit einem Wärmeaustausch mit der Umgebung (siehe Kapitel 2.4.1 und 2.4.2). Dies bedingt, dass die Zeitskala für stratosphärische Prozesse um ein Vielfaches größer ist, als in der Troposphäre. Ein typischer Wert hierfür ist eine Skala von etwa einem Jahr. Trotz ihrer markanten Unterschiede, stehen Stratosphäre und Troposphäre in einer engen Wechselwirkung miteinander und beeinflussen die in der jeweils anderen Sphäre ablaufenden Vorgänge in großem Maße. So treiben beispielsweise planetare troposphärische Wellen Zirkulationsprozesse in der Stratosphäre an, worauf in Kapitel 2.4 genauer eingegangen wird.

Neben diesen beschriebenen Vorgängen, sind auch die Art und Konzentration der Spurengase in der jeweiligen Luftschicht unterschiedlich. So kennzeichnet sich die Stratosphäre besonders durch ihren vergleichsweise niedrigen Wasserdampfgehalt und hohen Ozonanteil (O_3). Denn circa 90% des gesamten atmosphärischen Ozons befinden sich in der **Ozonschicht** der Stratosphäre mit einem Maximum in etwa 25 km Höhe (*Labitzke*, 1999). Diese Ozonschicht ist essentiell für das Leben auf der Erde, da sie als Filter für energiereiche UV-Strahlung wirkt und so Lebewesen am Erdboden, darunter auch den Menschen, vor jener schützt. Bei diesen photochemischen Reaktionen, die auch als Chapman-Zyklus bezeichnet werden, wird Ozon durch die UV-Strahlung gespalten und danach durch weitere Reaktionen wieder neu gebildet. Hierbei werden große Mengen Wärmeenergie freigesetzt, die stark zum positiven stratosphärischen Temperaturgradienten beitragen. Allerdings wurde in der Vergangenheit durch die anthropogene Emission von **ozonerstörenden Substanzen**, kurz **ODS** (engl.: **Ozone Depleting Substances**), dazu beigetragen, dass die Ozonschicht stark abgenommen hat. Hierbei sind es vor allem halogenierte Kohlenwasserstoffe, oft **FCKW** (**Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe**), die in die Stratosphäre eintreten und dort zum Ozonabbau in großem Maße beitragen. Dies wird in Kapitel 2.2.2 genauer erläutert.

Auf die Stratosphäre folgt zunächst die Stratopause, an der die Temperatur wieder auf circa 0°C angestiegen ist. Darauf dann die **Meso-** und schließlich die **Thermosphäre**, wobei beide ebenfalls entsprechende Grenzschichten besitzen. Diese Schichten besitzen ebenfalls ganz spezielle Eigenschaften, die sie von den unteren Schichten unterscheiden. So liegt beispielsweise der kälteste Punkt in der Atmosphäre an der sommerlichen Mesopause, welche sich durch diesen definiert (siehe *Wallace und Hobbs*, 2006). In diesen beiden Schichten sind, im Gegensatz zu Tropo- und Stratosphäre, auch Ionen in der Luft vorhanden, die durch die große Strahlungsintensität in dieser Höhe gebildet werden und ihrerseits Reaktionen eingehen können. Da sich das Themenfeld dieser Arbeit allerdings hauptsächlich auf die Stratosphäre und Troposphäre bezieht, soll hier nicht genauer auf Meso- und Thermosphäre eingegangen werden. Das Ende der Atmosphäre bildet dann die **Exosphäre**, die den unscharfen Übergang zum Weltraum darstellt.

2.2 Chemische Prozesse

2.2.1 Chemische Lebenszeit

In der Stratosphäre lassen sich viele der ablaufenden chemische Reaktionen in eine von drei Kategorien einordnen (nach *Seinfeld und Pandis, 2006*):

- Erste Ordnung (unimolekular): $A \rightarrow B + C$
- Zweite Ordnung (bimolekular): $A + B \rightarrow C + D$
- Dritte Ordnung (trimolekular): $A + B + M \rightarrow AB + M$

Betrachtet man nun aus der Sicht der Reaktionskinetik eine beliebige unimolekulare Reaktion wie sie oben gegeben ist, so hängt die Geschwindigkeit, mit der die Reaktion abläuft, nur von der Konzentration des Stoffes A (im Folgenden durch $[A]$ dargestellt) und der Reaktionsratenkonstante k ab, wobei $[A]$ beziehungsweise k die Dimension $\frac{1}{\text{cm}^3}$ und $\frac{1}{\text{s}}$ besitzen. In differentieller Schreibweise ergibt sich die zeitliche Änderung von $[A]$ als:

$$\frac{d[A]}{dt} = -k \cdot [A].$$

Diese gewöhnliche Differentialgleichung kann durch Separation der Variablen gelöst werden, sodass sich die Konzentration von A in Abhängigkeit von der Zeit ergibt:

$$[A](t) = [A](t_0) \cdot e^{-k \cdot t}.$$

Ähnlich zur Halbwertszeit, die diejenige Zeit angibt, die die Konzentration braucht um auf die Hälfte des anfänglichen Werts abzufallen, kann man hier nun eine ähnliche Größe definieren. Setzt man in obiger Gleichung $t = \frac{1}{k}$, so ergibt sich:

$$[A](t) = [A](t_0) \cdot e^{-1} = \frac{[A](t_0)}{e}.$$

Bei $t = \frac{1}{k}$ ist also die Konzentration des Stoffes A auf den e-ten Teil der Ausgangskonzentration abgefallen. Diese Zeit wird in der atmosphärischen Chemie als **Lebenszeit** des Stoffes A gegenüber der gegebenen Reaktion bezeichnet und meist mit τ abgekürzt. Sie ergibt sich, wie oben gezeigt, für eine unimolekulare Reaktion zu:

$$\tau = \frac{1}{k}. \quad (1)$$

Dieses Konzept kann aber auch beliebig für bi- und trimolekulare Reaktionen angewandt werden. In der Stratosphäre sind es hauptsächlich photolytische Reaktionen, also Reaktionen bei denen ein Edukt A durch die Absorption eines Photons einer bestimmten Wellenlänge in verschiedene Produkte gespalten wird, die als unimolekular angesehen werden können (*Seinfeld und Pandis, 2006*). Die Reaktionsratenkonstante wird dann auch Photolyserate genannt. Spezifiziert man diese Vorgänge auf die Belange von Ozon, so werden hauptsächlich O_3 , O_2 , NO_x und auch FCKW durch die erhöhte Strahlungsintensität in der mittleren und oberen Atmosphäre photolytisch gespalten. Viele FCKW eignen sich dabei sehr gut als **Spurenstoff** (engl. **Tracer**) für dynamische Abläufe in der Stratosphäre, da sie in der Troposphäre beinahe keine Senken besitzen, sondern nur in höherliegenden Gebieten der Atmosphäre gespalten werden können. Daher lassen sich Transport- und Zirkulationsprozesse in der Stratosphäre mit bestimmten FCKW sehr gut nachvollziehen, was für diese Arbeit von grundlegender Bedeutung ist (Kapitel 2.4).

2.2.2 Ozonzerstörende Substanzen

Die Ozonschicht in der Stratosphäre hat sich seit den 1960er Jahren bedeutend gewandelt, was vor allem auf anthropogene Einflüsse zurückzuführen ist. So wurden unter anderem die oben bereits eingeführten Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe (FCKW) seit Beginn der 1950er vermehrt als Treibgas in Sprühdosen und als Kühlmittel eingesetzt, was zu einem rapiden Anstieg des atmosphärischen Gehalts dieser Gase führte. Aber auch andere Gase mit natürlichen Quellen, wie Distickstoffmonoxid N_2O (umgangssprachlich auch Lachgas genannt), wurden durch vermehrte Nutzung durch den Menschen (zum Beispiel in Nitrat-basierten Düngemitteln) verstärkt in die Atmosphäre emittiert. Durch diese vergleichsweise kurze Zeit der Emission der ODS hat die Ozonschicht in der Stratosphäre deutlich abgenommen und befindet sich nun am Beginn der Regenerationsphase. Klima-Chemiemodelle prognostizieren, dass sich die Schicht in den mittleren Breiten erst um das Jahr 2030 bis 2040 wieder auf das Niveau von 1980 erholt haben wird (*World Meteorological Organization*, 2014). Dies ist in Abbildung 2.2 dargestellt:

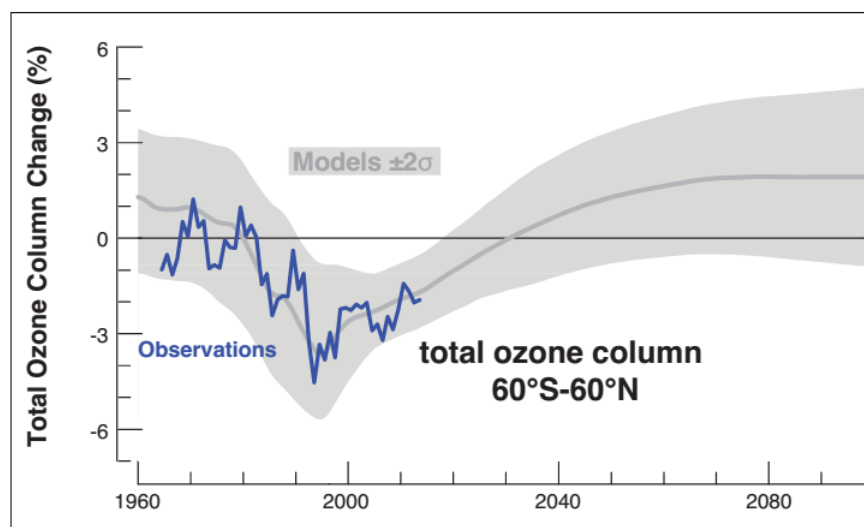
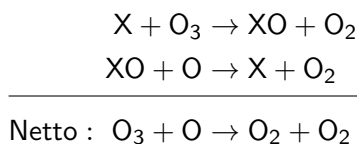


Abbildung 2.2: Verlauf des atmosphärischen Ozongehalts

Gezeigt ist der zeitliche Verlauf der gesamten atmosphärischen Ozonsäule einmal aus Beobachtungen (blau) und aus Modelldaten mit entsprechender Unsicherheit (grau) gemittelt von 60°S bis 60°N und verglichen mit den Werten aus 1980 (verändert aus *World Meteorological Organization*, 2014).

Zu Beginn der 1970er zeigte *Crutzen* (1970), dass Stickstoffmonoxid NO katalytisch zum Ozonabbau beiträgt. Es wird dabei durch Photodissoziation zusammen mit Stickstoffdioxid NO_2 aus Lachgas gebildet. Ausgehend von dieser Theorie, konnten schließlich *Molina und Rowland*, 1974 und *Rowland und Molina*, 1975 nachweisen, dass auch Chlor diese Eigenschaft zum katalytischen Ozonabbau besitzt. Der Abbauprozess läuft außerhalb der Polargebiete hauptsächlich in zwei Schritten ab:



Worin X für ein Radikal steht, zumeist NO , Cl oder Br . Man erkennt anhand der Netto-Reaktion, dass durch den Stoff X ein Ozon-Molekül abgebaut wird, dieser aber durch die nachfolgende Reaktion wieder generiert wird. Es erfolgt netto also kein Umsatz des Stoffes X, was diesen als **Katalysator** des Prozesses kennzeichnet. Die nötigen Chlor- beziehungsweise Bromradikale für diese Reaktionen werden

durch Photolyse unter sehr kurzweiliger Strahlung in der Stratosphäre aus den am Erdboden anthropogen emittierten FCKW gebildet. Bis Ende der 1980er Jahre stieg die Konzentration dieser Stoffe immer weiter an, sodass 1987 im Rahmen des **Montreal Protokolls** die weitere Emission von chlor- und bromhaltigen Substanzen, die zur Zerstörung der stratosphärischen Ozonschicht beitragen, untersagt wurde. Als Ersatz wurden teilhalogenierte Fluorchlorkohlenwasserstoffe (sogenannte H-FCKW) eingeführt, die einen deutlich kleineren Einfluss auf das Ozon haben (*Stahelin et al.*, 2001). Im Rahmen der Verordnung 2037/2000 der Europäischen Union (EU) wurde diese Reglementierung erweitert, sodass ab dem 01.01.2026 auch die H-FCKW einem vollständigen Verbot unterliegen (siehe *Europäische Union*, 2000). Die Produktion und Verwendung dieser Substanzen ist damit ab diesem Zeitpunkt innerhalb der EU-Länder komplett untersagt.

Halogenierte Kohlenwasserstoffe

Halogenierte Kohlenwasserstoffe gehören zu den bedeutendsten und potentesten ozonzerstörenden Substanzen. Man unterscheidet hierbei zwischen vollständig halogenierten Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen (FCKW) und teilhalogenierten Kohlenwasserstoffen (H-FCKW). Erstere sind Kohlenwasserstoffe, also zum Beispiel Substanzen wie Methan (CH_4), bei denen alle Wasserstoffatome durch Halogene substituiert wurden. Viele von ihnen besitzen beinahe ausschließlich anthropogene Quellen in der Atmosphäre und zeichnen sich durch eine große chemische Inaktivität, also lange Lebenszeit, in der Troposphäre aus. Dadurch können sie durch die Tropopause hindurch in die Stratosphäre eingetragen und erst dort durch Photodissoziation oder $\text{O}(^1\text{D})$ gespalten werden. Hierbei werden die oben angeführten Halogenradikale freigesetzt, die nach dem genannten Schema zum Ozonabbau beitragen. Im Gegensatz dazu sind die H-FCKW Kohlenwasserstoffe, die noch mindestens ein Wasserstoffatom besitzen. Diese können bereits im troposphärischen Bereich durch das Hydroxyl-Radikal abgebaut werden und besitzen daher eine im Vergleich zu den FCKW deutlich geringere Lebenszeit, weshalb ein Eindringen in die Stratosphäre erschwert wird (*Seinfeld und Pandis*, 2006). Allerdings sind viele der FCKW und H-FCKW starke atmosphärische Treibhausgase und tragen sehr zum anthropogenen Treibhauseffekt bei. Somit ist eine sorgfältige Abwägung bei der Wahl entsprechender H-FCKW als Ersatz für die FCKW notwendig.

Die für diese Arbeit wichtigsten ODS sind:

- Difluordichlormethan (**F-12**) CF_2Cl_2
- Trichlorfluormethan (**F-11**) CFCl_3
- Bromchlordifluormethan (**H1211**) CF_2ClBr

In Klammern ist jeweils eine gebräuchliche Abkürzung gegeben, die im Folgenden entsprechend genutzt wird. Wichtig zu erwähnen ist, dass es sich bei H1211 um ein sogenanntes **Halon** und nicht um einen FCKW handelt, da in dieser Substanz neben einem Fluor- und Chlor-Atom auch ein Brom-Atom vorhanden ist. Um abzuschätzen, wie stark der jeweilige FCKW zum Ozonabbau beiträgt, hat man das sogenannte **Ozonzerstörungspotential ODP** (engl.: **O**zone **D**epletion **P**otential) für halogenierte Kohlenwasserstoffe definiert, welches die Effizienz angibt, mit der die entsprechende Substanz pro Gewichtseinheit, im Vergleich zum Referenzstoff F-11, Ozon abbaut (*Labitzke*, 1999). In Tabelle 2.1 sind die Lebenszeit und das ODP für die oben genannten Substanzen und ihre Ersatzstoffe gegeben:

Tabelle 2.1: Lebenszeit und ODP ausgewählter FCKW und H-FCKW

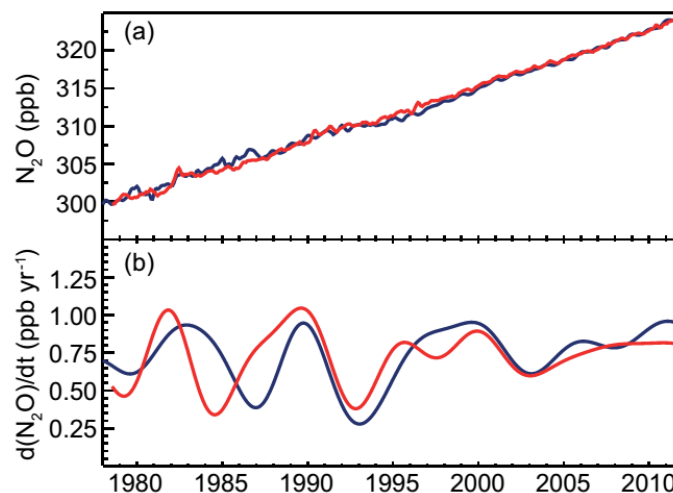
Substanz	Lebenszeit	ODP
F-11	52a	1.0
F-12	102a	1.0
H1211	21a	3
CF ₃ CHCl ₂ (HCFC-123)	1.7a	0.02
CHClF ₂ (HCFC-22)	12a	0.055
CF ₃ CH ₂ F (HFC-134a)	14a	0.00

(Werte aus SPARC, 2013 und Brimblecombe, 1996)

Man erkennt, dass die atmosphärischen Lebenszeiten und die ODP der H-FCKW deutlich geringer sind, als die der FCKW. Hierbei soll HCFC-123 als Ersatz für H1211, HCFC-22 für F-11 und HFC-134a für F-12 dienen.

Distickstoffmonoxid

Distickstoffmonoxid (N₂O) ist ein relevantes Quellgas für stickstoffhaltige Radikale in der Stratosphäre. Darüber hinaus ist es ein starkes Treibhausgas, welches etwa um das Dreihundertfache stärker ist, als die entsprechende Menge von Kohlenstoffdioxid (CO₂). Es besitzt große atmosphärische Quellen, die allen voran von landwirtschaftlich genutzten Bodenflächen dominiert werden, da dort sowohl künstliche nitrat-basierte, als auch natürliche Düngemittel zum Einsatz kommen (*Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2014). Bedingt durch die Tatsache, dass es in der Troposphäre als chemisch inert angesehen werden kann, ist ein Eintrag in die Stratosphäre durch die tropische Tropopause hindurch möglich. Erst dort wird es hauptsächlich (circa 90% der Senken) durch photochemische Prozesse gespalten oder bildet mit Hilfe eines angeregten Sauerstoffatoms O(¹D) das den **Ozonabbau** katalysierende NO-Radikal (*Seinfeld und Pandis*, 2006). Zudem hat die chemische Inaktivität in der Troposphäre und die photodissoziative Spaltung in der Stratosphäre den Vorteil, dass N₂O effektiv als stratosphärischer Tracer für die Dynamik genutzt werden kann.

Abbildung 2.3: Globales mittleres N₂O-Mischungsverhältnis

Im oberen Teil ist das globale Distickstoffmonoxid-Mischungsverhältnis dargestellt, gemessen im AGAGE-Netzwerk (rot) und NOAA/ESRL/GMD (blau). Deutlich ist hier die jährliche lineare Zunahme zu erkennen, die leichten saisonalen Schwankungen unterliegt. Dies ist im unteren Abschnitt zu erkennen. Der mittlere jährliche Anstieg kann hieraus mit circa 0,75 ppb (~ 0,2%) bestimmt werden (aus *Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2014).

Die starken Quellen und die sehr geringen troposphärischen Senken sorgen außerdem dafür, dass Distickstoffmonoxid eines der wenigen Spurengase in der Atmosphäre ist, bei welchem man im saisonalen Mittel seit Beginn kontinuierlicher Messungen in der zweiten Hälfte der 1970er einen **schwachen linearen Anstieg** des globalen durchschnittlichen Mischungsverhältnisses in der Troposphäre feststellen kann. So steigt der globale N_2O -Gehalt jährlich etwa um circa 0.75ppb ($\sim 0.2\%$) an, was in Abbildung 2.3 gezeigt ist. Diese vergleichsweise geringe lineare Zunahme ermöglicht es, dass das Mischungsverhältnis von N_2O an einem fixen Ort durch einen einfachen linearen Fit approximiert werden kann und so etwaige langfristige Schwankungen durch veränderte dynamische Prozesse von der trendbedingten Variabilität getrennt werden können.

2.3 Kenngrößen stratosphärischer Luft

2.3.1 Potentielle Temperatur

Die potentielle Temperatur θ ist für adiabatische Vorgänge in der Stratosphäre von grundlegender Bedeutung. Aus meteorologischer Sicht gibt die potentielle Temperatur diejenige Temperatur an, die ein trockenes Luftpaket hätte, wenn es adiabatisch von seinem aktuellen Druck p auf ein Referenzdruckniveau p_0 , meist 1000hPa, gebracht würde. Sie ist für $p \leq p_0$ immer größer gleich der aktuell vorherrschenden Temperatur T und lässt sich mathematisch wie folgt formulieren:

$$\theta = T \cdot \left(\frac{p_0}{p} \right)^{\frac{R_L}{c_p}}. \quad (2)$$

Hierbei sind R_L und c_p stoffspezifische Konstanten. Wie eingangs bereits erwähnt, bezeichnet man in der Thermodynamik Prozesse als **adiabatisch**, bei denen **kein Wärmeaustausch** zwischen dem entsprechenden Luftpaket und der Umgebung stattfindet. Dies bedeutet ebenfalls, dass sich die **Entropie** dieses Luftpakets bei Adiabasie nicht ändert, der Prozess also **isentrop** abläuft. Da sich potentielle Temperatur und Entropie nur durch einen konstanten Faktor unterscheiden (*Kraus, 2004*), laufen adiabatische Prozesse bei konstanter potentieller Temperatur ab, wodurch Flächen konstanter potentieller Temperatur auch **Isentropen** genannt werden. Mathematisch gilt auf den Isentropen somit für dynamische Vorgänge:

$$\frac{D\theta}{Dt} = 0.$$

Die materielle Ableitung der potentiellen Temperatur muss also für adiabatische Prozesse verschwinden, was für Austauschprozesse in der mittleren Atmosphäre in einem Zeitraum von bis zu zehn Tagen gegeben ist (*Brasseur und Solomon, 2005*). In der Stratosphärenforschung wird die potentielle Temperatur anstelle des Drucks oder der geometrischen Höhe als **Vertikalkoordinate** eingesetzt, um so unter anderem Transport- und Mischungsprozesse leichter nachvollziehen und erforschen zu können. Da gerade die vergleichsweise schnellen bidirektionalen Austauschprozesse (Kapitel 2.4.2) in der Brewer-Dowbson-Zirkulation (Kapitel 2.4.1) zu einem Großteil isentrop ablaufen, kann durch die Wahl eines isentropen Koordinatensystems so direkt die stattfindende Mischung analysiert werden. Zudem lässt sich durch die potentielle Temperatur auch eine anschauliche Einteilung der Stratosphäre und Abgrenzung von der Troposphäre vornehmen.

Einteilung der Stratosphäre

Abbildung 2.4 zeigt eine gängige Unterteilung der Stratosphäre. Dort ist neben dem Verlauf der Tropopause auch die potentielle Temperatur und die aktuell vorherrschende Temperatur mit ihrem deutlichen Minimum im Bereich der tropischen Tropopause zu sehen. Die schattierte Region wird auch **unterste**

Stratosphäre (engl.: **Lowermost Stratosphere, LMS**) genannt und befindet sich in den Extratropen typischerweise zwischen der 380K-Isentrope und der extratropischen Tropopause. Diese Isentrope wurde per Definition als Grenzfläche festgelegt, da sie die potentielle Temperatur an der tropischen Tropopause darstellt. Somit ist:

$$\theta_{\text{Grenz}} = 380 \text{ K.}$$

Alles oberhalb dieser Isentrope wird als **Oberwelt** (engl.: **Overworld**) bezeichnet und befindet sich auch in den Tropen in der Stratosphäre, weshalb dieser Wert oft als Untergrenze zur restlichen Stratosphäre genutzt wird. Interessant ist, dass die Isentropen in der mittleren bis oberen Stratosphäre einen nahezu konstanten Abstand besitzen und man so eine lineare Zunahme mit der Höhe feststellen kann. Dies ist gerade für graphische Darstellungen hilfreich, da man die potentielle Temperatur vergleichsweise einfach in eine geometrische Höhe umrechnen kann (*Knox, 1998*).

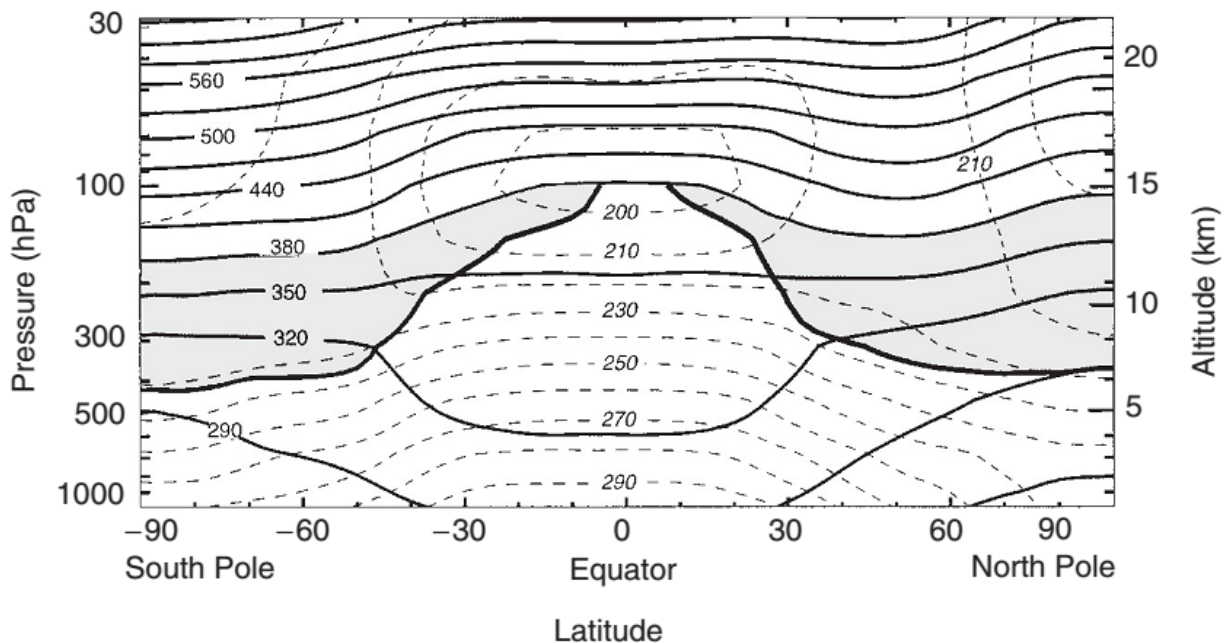


Abbildung 2.4: Einteilung der Stratosphäre durch Isentropen

Gezeigt ist ein zonal gemittelter Vertikalschnitt der Stratosphäre. Die schwarzen gestrichelten Linien geben die in-situ vorherrschende Temperatur an, während die durchgezogenen Linien die jeweilige potentielle Temperatur darstellen. Die grau schattierten Regionen gehören zum Bereich der untersten Stratosphäre. Die fettgedruckte schwarze Linie stellt die Tropopause dar (aus *Holton, 2015*).

2.3.2 Potentielle Vorticity

Die **potentielle Vorticity**, kurz **PV**, ist in der Stratosphäre ein äußerst wichtiger dynamischer Tracer. Mit ihr lassen sich adiabatische reibungsfreie Bewegungen verfolgen und so beispielsweise Mischungsprozesse in der surf zone sichtbar machen. Erste Überlegungen zur PV gehen zurück auf *Rossby, 1936*, wobei das Konzept von *Ertel, 1942* mathematisch weiter ausgearbeitet und verfeinert wurde, weshalb man heute auch von der Ertel'schen potentiellen Vorticity spricht.

Die Vorticity (im Deutschen auch vereinzelt Vortizität) $\vec{\omega}_a$ gibt im Allgemeinen ein Maß für die Stärke einer Rotationsbewegung in einem strömenden Fluid an. Mathematisch ergibt sie sich als die Rotation eines beliebigen Geschwindigkeitsvektors \vec{u}_a im nicht-rotierenden Bezugssystem:

$$\vec{\omega}_a = \vec{\nabla} \times \vec{u}_a.$$

Da sich diese Vorticity auf das stillstehende Koordinatensystem bezieht spricht man auch von der **absoluten Vorticity**. Bei der Betrachtung von Strömungen auf der Erde wählt man meist ein mitrotierendes Bezugssystem mit einem dazu relativen Geschwindigkeitsfeld \vec{u} . Analog lässt sich dann eine Vorticity bestimmen welche **relative Vorticity** $\vec{\omega}$ genannt wird und sich wie folgt ergibt:

$$\vec{\omega} = \vec{\nabla} \times \vec{u}.$$

Eine praktische Anwendung der relativen Vorticity liegt beispielsweise in der Bestimmung der Rotationsrichtung meteorologischer Druckgebilde. So haben zyklonale Bewegungen (entgegen dem Uhrzeigersinn) eine positive relative Vorticity, wohingegen antizyklonale Rotationen einen negativen Wert aufweisen. Diese Überlegungen sind unter anderem grundlegend zum Verständnis der Entstehung von Rossby-Wellen. Mit Hilfe einiger mathematischer und geometrischer Überlegungen lässt sich zeigen, dass sich absolute und relative Vorticity nur durch den Term $2\vec{\Omega}$ unterscheiden, wobei $\vec{\Omega}$ die Erdwinkelgeschwindigkeit darstellt. Dieser Term ist die **planetare Vorticity**. Somit ist:

$$\vec{\omega}_a = \vec{\omega} + 2\vec{\Omega}.$$

Im atmosphärischen großskaligen Kontext ist von diesen Größen nur die Vertikalkomponenten von Interesse (Holton, 2004). Dabei ergibt sich die Vertikalkomponente der planetare Vorticity f mit der geographischen Breite ϕ zu:

$$f = 2 \cdot \Omega \cdot \sin(\phi).$$

Wodurch sich wiederum die Vertikalkomponente der absoluten Vorticity η zur Summe der Vertikalkomponenten von relativer ζ und planetarer Vorticity f vereinfacht:

$$\eta = \zeta + f. \quad (3)$$

Die absolute Vorticity ist nur für barotrope Strömungen, also für den Fall von parallel verlaufenden Isobaren und Isothermen, eine Erhaltungsgröße. Da in der Atmosphäre zumeist das Gegenteil vorherrscht, also von Baroklinität ausgegangen werden kann, erweiterte Ertel dieses Konzept. Daraus ergibt sich die **potentielle Vorticity**, welche auf **Isentropen** bei **reibungslosen Bewegungen** für einen Zeitraum von etwa zehn Tagen eine Erhaltungsgröße ist. Diese Zeitskala wird in der Realität besonders im Winter durch den Einfluss von diabatischen Prozessen (zum Beispiel Wärmezufuhr durch Strahlung) leicht verringert, sodass es sich in der Stratosphäre um sogenannten **quasi-horizontalen** beziehungsweise **quasi-isentropen** Transport handelt. Daher spricht man auch von der **isentropen potentiellen Vorticity (IPV)** Π_θ , welche nach Ertel folgendermaßen definiert ist und üblicherweise in der Einheit **PVU** (engl.: **P**otential **V**orticity **U**nit, $1 \text{ PVU} = 1 \cdot 10^{-6} \frac{\text{K} \cdot \text{m}^2}{\text{kg} \cdot \text{s}}$) angegeben wird:

$$\Pi_\theta = -g \cdot (\zeta_\theta + f) \cdot \frac{\partial \theta}{\partial p} = \frac{\zeta_\theta + f}{\sigma}. \quad (4)$$

Hierin ist g die Erdbeschleunigung, p der Druck und σ die sogenannte Schichtdicke. Die IPV muss folgende Erhaltungseigenschaft erfüllen, wenn die genannten Bedingungen erfüllt sind:

$$\frac{D\Pi_\theta}{Dt} = 0.$$

Diese Tatsache ermöglicht zum einen eine anschauliche Erklärung der planetaren Wellen in der Troposphäre. Bei der Überströmung eines Hindernisses (zum Beispiel von einem großen meridionalen Gebirgszug) ändert sich die Schichtdicke. Da sich die IPV aber hierbei nicht verändern darf, müssen planetare und relative Vorticity sich antiproportional anpassen, was zu einem periodischen Wechsel von zyklonaler und antizyklonaler Rotation und damit zu einer Wellenbewegung führt. Zum anderen kann auf isentropen Flächen, also bei Adiabasie und Reibungsfreiheit, die IPV als **dynamischer Tracer** benutzt werden. Dazu sei in Abbildung 2.5 exemplarisch ein IPV-Feld auf der 350-K-Isentrope für den 28. Mai 1998 gezeigt.

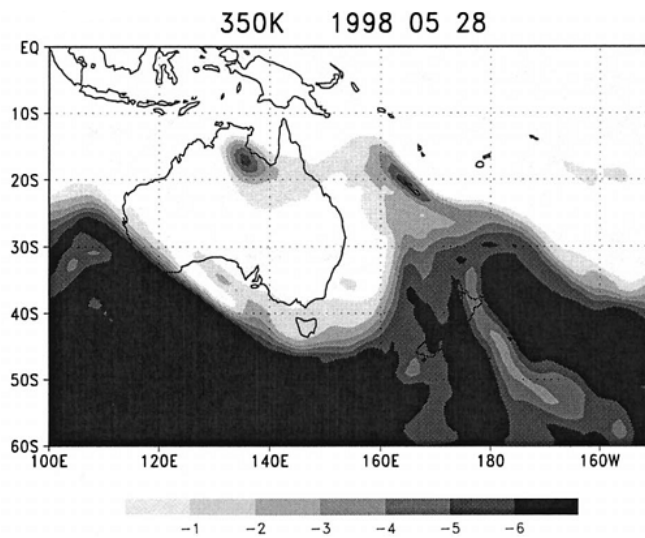


Abbildung 2.5: PV-Feld auf der 350K-Isentrope

Dargestellt ist die potentielle Vorticity auf einem 350K-Niveau in den mittleren Breiten der Südhemisphäre am 28.05.1998. Abstufungen des PV-Feldes sind in PVU gegeben, wobei die dunkelste Kontur stratosphärische Luft mit dementsprechend großen PV-Beträgen symbolisiert (verändert aus *Scott und Cammas, 2002*).

Es lässt sich gut das oszillierende Muster der troposphärischen Wellen erkennen, wobei sich Luft gemäß dem Erhaltungssatz der potentiellen Vorticity in guter Näherung nur entlang einer farblichen Kontur, also eines nahezu festen IPV-Wertes, bewegen kann. Die Luft im dunkelsten Bereich der Abbildung stammt höchstwahrscheinlich aus der höheren Stratosphäre, da dort die Isentropen nahe beieinander liegen, was zu einem großen Vertikalgradienten der potentiellen Temperatur und damit nach Gleichung (4) zu betragsmäßig großen PV-Werten führt. Der Eintrag von stratosphärischer Luft ist auch realistisch, da die 350K-Isentrope in diesem Bereich der südlichen Hemisphäre nahe an der Tropopause liegt und dies einen wechselseitigen Austausch zulässt. Weiterhin lässt sich anhand von Abbildung 2.5 bei etwa 20°S und 150°E das Wellenbrechen und die damit verbundene quasi-horizontale Mischung erkennen. Dort wird das wellenförmige Muster des Feldes unterbrochen und die Welle überschlägt sich, was zur Anpassung der IPV im Brechungsbereich (hellgrauer Bereich bei 20°S und 140°E bis 150°E) und folglich zu einer vermischenden Luftmassenbewegung führt. Auch lässt sich gut das Abschnüren eines Bereichs mit großer potentieller Vorticity (20°S, 140°E) im vorderen Bereich der brechenden Welle erkennen (*Scott und Cammas, 2002*). Mit Hilfe solcher Analysekarten der potentiellen Vorticity und der Tatsache, dass jene unter den genannten Bedingungen eine Erhaltungsgröße ist, lassen sich die Bewegungen eines Luftpaketes aufgrund von brechenden atmosphärischen Wellen gut nachvollziehen, was die isentrope potentielle Vorticity zu einem wichtigen dynamischen Tracer macht.

2.3.3 Äquivalente Breite

Neben ihrer direkten Verwendung als dynamischer Tracer ermöglicht das Konzept der potentiellen Vorticity noch die Einführung einer weiteren Größe, die sich ebenfalls die Erhaltungseigenschaft bei adiabatischen reibungsfreien Bewegungen zu Nutze macht. Die sogenannte **äquivalente Breite** basiert auf der Überlegung, dass man das Feld der potentiellen Vorticity auf einer fixen Isentrope **konzentrisch** und **flächentreu** um den Pol der jeweiligen Hemisphäre anordnet und diese Werte dabei der Größe nach absteigend sortiert. Dies hat einerseits den Vorteil, dass man Variabilität durch den polaren Vortex oder sonstige PV-Anomalien besser abdecken kann und andererseits die Dimension des Feldes um eine Größe reduziert, da auf einer beliebigen gewählten äquivalenten Breite die Werte der potentiellen Vorticity konstant sind. Das grundlegende Prinzip ist in Abbildung 2.6 zu sehen und wurde erstmals 1984 zur Untersuchung des Polarwirbels genutzt (*McIntyre und Palmer, 1984*).

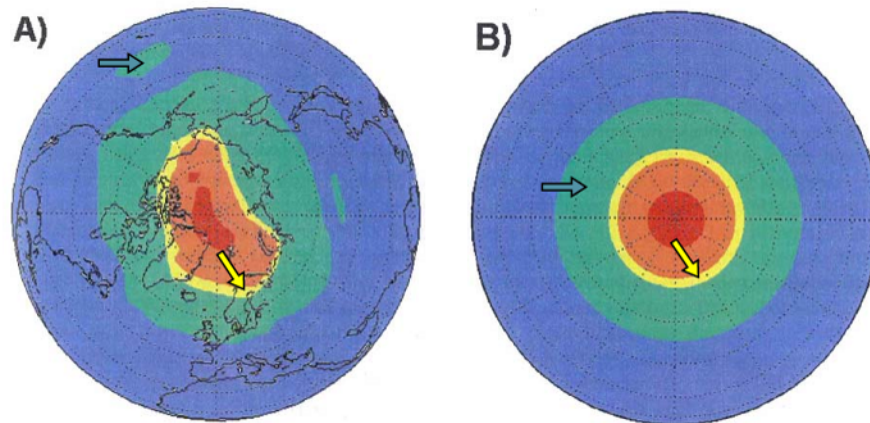


Abbildung 2.6: Prinzip der äquivalenten Breite

Teil A) zeigt ein beliebiges isentropes PV-Feld als Funktion der geographischen Breite auf der Nordhalbkugel. Rote Flächen symbolisieren die höchsten PV-Werte, blaue die niedrigsten. Gut zu erkennen ist die ungleichmäßige Form der Flächen gleicher potentieller Vorticity, die grob den Verlauf des Polarwirbels widerspiegeln. Teil B) zeigt dann das selbe Feld, aber als Funktion der äquivalenten Breite. Es ist zu sehen, dass Bereiche mit gleicher PV, die in A) noch ungleichmäßig verteilt sind, in B) flächentreu um den Nordpol angeordnet wurden. Der gelbe Pfeil gibt die Messstation Kiruna in Nordschweden an, die für die Erforschung der polaren Stratosphäre eine fundamentale Rolle spielt (aus *Klein, 2004*).

Betrachtet man beispielsweise in einem Klima-Chemiemodell ein simuliertes Feld der potentiellen Vorticity auf einer Isentrope für eine Hemisphäre, so kann jedem dieser PV-Werte ein **Flächeninhalt** der entsprechenden Gitterbox des Modells zugeordnet werden, der dieser Wert entnommen wurde. Sortiert man nun das PV-Feld der Größe nach absteigend, so ist darauf zu achten, dass die Zuordnung zu diesem Flächeninhalt nicht verloren geht, da sich aus dieser Fläche die entsprechende äquivalente Breite berechnet und sie somit **flächentreu** angeordnet werden. Bezogen auf Abbildung 2.6 bedeutet das, dass alle Flächen, die in A) und B) gleichfarbig markiert sind, auch die gleiche Fläche auf der Halbkugel einschließen. Kennt man diese Fläche, so ergibt sich die äquivalente Breite ϕ_e nach folgender Formel:

$$\phi_e = \arcsin\left(\frac{A}{2\pi r^2} - 1\right). \quad (5)$$

Wobei A die Fläche des PV-Wertes auf dem Gitter und r den mittleren Erdradius (6371 km) darstellt. Dieses Konzept lässt sich auch auf Intervallbereiche der potentiellen Vorticity anwenden, sodass beispielsweise alle PV-Werte im Bereich von 100 bis 110 PVU zusammengefasst werden. Dadurch addieren sich die Flächen der einzelnen Gitterboxen und die resultierende Verteilung der äquivalenten Breite ist größer

aufgelöst. Dies ist für die Erstellung von Abbildung 2.6 durchgeführt worden, was die Größe der entsprechenden Flächen erklärt. Für die Belange dieser Arbeit wird aber aus Genauigkeitsgründen und zur Wahrung der Konsistenz jedem PV-Wert auf einer Isentrope eine äquivalente Breite zugeordnet.

Die Vorteile der äquivalenten Breite als **zonal-symmetrische Koordinate** sind zahlreich. Wie bereits erwähnt lässt sich die Variabilität des Klimasystems so besser beschreiben und einschränken. Zum Beispiel lässt sich auf diese Weise sicherstellen, dass man bei der Analyse eines Tracers **außerhalb des polaren Vortex** bleibt, da sich dieser durch seine Abschottung und die dadurch stark unterschiedlichen Mischungsverhältnisse charakterisiert. Dazu wählt man eine äquivalente Breite, bei der man sicherstellen kann, dass die entsprechenden IPV-Werte nicht mehr innerhalb des Wirbels liegen. Denn der Rand dessen wird durch einen starken horizontalen IPV-Gradienten gekennzeichnet. Trägt man dazu die IPV gegen die äquivalente Breite auf (Abbildung 2.7), kann man einerseits gut den Gradienten der IPV auf der Nordhalbkugel im Bereich des Polarwirbels sehen, die die nördliche Transportbarriere (Kapitel 2.4.1) darstellt. Zum anderen sind auch die subtropischen Barrieren (Kapitel 2.4.1) als Gradient sichtbar, wenngleich diese schwächer ausgeprägt sind. Zwischen den Transportbarrieren der nördlichen Hemisphäre existiert ein schmaler Bereich mit nahezu konstanter IPV. Dies ist die surf zone (Kapitel 2.4.1), in welcher sich das quasi-horizontale Mischen abspielt. Die Wahl von 50°N äquivalenter Breite würde hier sicherstellen, dass man den Tracer getrennt von der chemischen Variabilität des Vortex untersuchen kann.

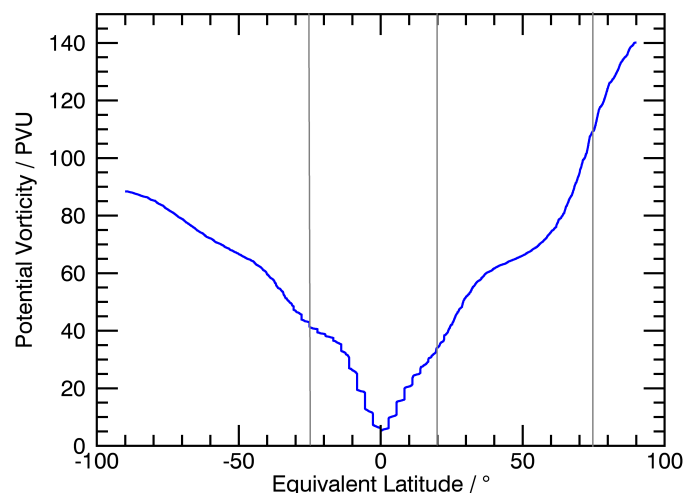


Abbildung 2.7: Isentrope Potentielle Vorticity als Funktion äquivalenter Breite

Dargestellt ist die Verteilung der potentiellen Vorticity in Abhängigkeit von der äquivalenten Breite auf der 600-K-Isentrope im März 1992. Die grauen vertikalen Linien stellen die Transportbarrieren dar, welche manuell abgeschätzt wurden. Die Daten stammen aus dem EMAC-Modell (Kapitel 3.1).

Zudem lässt sich die **Variabilität** durch atmosphärische Wellen mit der äquivalenten Breite reduzieren. Denn diese zeichnen sich, wie in Abbildung 2.5 gezeigt, ebenfalls durch einen großen meridionalen IPV-Gradienten aus und sorgen für einen stetigen Luftmassenaustausch zwischen den verschiedenen geographischen Breiten der Erde, sodass auch hierdurch die Konzentration eines Tracers auf einem geographischen Breitengrad starken Schwankungen unterliegen kann. Auf einer bestimmten äquivalenten Breite ist dies weniger stark ausgeprägt, da man so ausschließen kann, dass sich durch Wellenbrechen unterschiedliche Luftmassen miteinander vermischen und so die Traceranalyse verfälschen. Dies macht die äquivalente Breite zu einem idealen Werkzeug zur Bestimmung der Variabilität eines Tracers in der Stratosphäre, allerdings nur sofern die Zeitskalen der Mischung nicht deutlich größer sind als die Lebenszeit der IPV.

2.3.4 Mittleres Alter der Luft

Neben dem Mischungsverhältnis verschiedener Tracer wurde bereits das mittlere Alter der Luft (**AOA**, engl.: **Age Of Air**) als ein wichtiges Charakteristikum stratosphärischer Luft erwähnt. Diese Größe beschreibt die über alle **Transportpfade** durch die Stratosphäre gemittelte Transportzeit der Luft an einem Punkt. Dementsprechend weist Luft oberhalb der TTL das kleinste mittlere Alter auf, während Luftpakete über den Polen mit das größte AOA besitzen. Es zeigt sich, dass das mittlere Alter ein äußerst hilfreiches Konzept ist, wenn es um die Nachverfolgung und Untersuchung von Transportprozessen durch die Stratosphäre geht. Denn anhand der Größe des AOA ergibt sich die mittlere Zeit, die ein Luftpaket in der stratosphärischen Zirkulation verbracht hat. Aufgrund einer Vielzahl an Prozessen die hierfür eine Rolle spielen, gestaltet sich dies in der Praxis allerdings als nicht trivial. Und ebenso ist die exakte Bestimmung des mittleren Alters eines Luftpakets keineswegs als trivial zu erachten, da das AOA keine direkt messbare Größe ist.

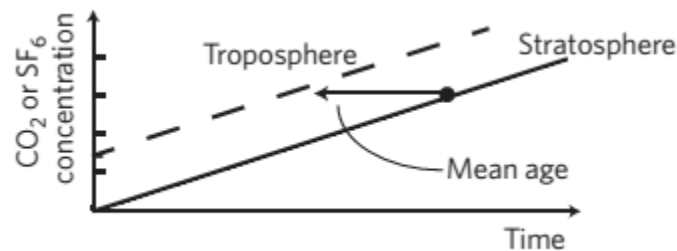


Abbildung 2.8: Mittleres Alter als Verzögerungszeit

Die gestrichelte Linie gibt den zeitlichen Verlauf der Konzentration eines inerten Tracers in der Troposphäre, die durchgezogene den Verlauf der Konzentration in der Stratosphäre an (aus *Waugh*, 2009).

Waugh, 2009 gibt hierzu ein anschauliches Bild (Abbildung 2.8), welches das AOA als **Verzögerungszeit** (engl.: **delay time**) beschreibt. Zur Bestimmung nutzt man einen Tracer, welcher in der Troposphäre einen **linearen Trend** in seinem Mischungsverhältnis zeigt und in der Stratosphäre **keine Senken** besitzt. Hier haben sich vor allem die beiden Stoffe Kohlenstoffdioxid (CO_2) und Schwefelhexafluorid (SF_6) als Favoriten etabliert, da beide äußerst inerte Spurengase sind, welche erst in der Mesosphäre photolysiert werden können. Allerdings weist SF_6 nur näherungsweise einen linearen Anstieg auf, sodass das daraus errechnete Alter mit einem Fehler durch die Ungenauigkeit bei der Trendbestimmung behaftet ist. Da das stratosphärische Mischungsverhältnis gegenüber dem troposphärischen verzögert ist, kann man aus dieser Verzögerungszeit (schwarzer Pfeil in Abbildung 2.8) eine gute Näherung für das mittlere Alter erhalten, sofern die jährliche troposphärische Zunahme der Tracer-Konzentration bekannt und quantifizierbar ist. Mathematisch lässt sich dieses recht einfache Konzept nach *Schmidt et al.*, 2002 folgendermaßen fassen:

$$\Gamma = \frac{(\chi_T - \chi_S)}{m_T} \quad (6)$$

Worin Γ das mittlere Alter, χ das tropo- beziehungsweise stratosphärische Mischungsverhältnis eines Spurengases und m_T die Zunahme des Mischungsverhältnisses in der Troposphäre pro Jahr ist. In der Realität besitzen nur wenige Tracer tatsächlich einen nahezu linearen Trend und keine stratosphärischen Senken, sodass obiges Konzept auf diese Einzelfälle beschränkt bleibt und in der Praxis kaum Verwendung findet. Mit Hilfe eines **statistischen Ansatzes** lässt sich aber eine weitere Methode zur mathematischen Bestimmung des mittleren Alters der Luft schaffen. Man nutzt dazu eine Verteilungsfunktion, die die Transitzeiten aller Luftpakete im Mischungsbereich wiedergibt (*Schmidt et al.*, 2002). Diese Funktion, die auch **Altersspektrum** genannt wird, ist vom jeweiligen Ort und der Transitzeit seit Eintritt in die Stratosphäre abhängig (Abbildung 2.9).

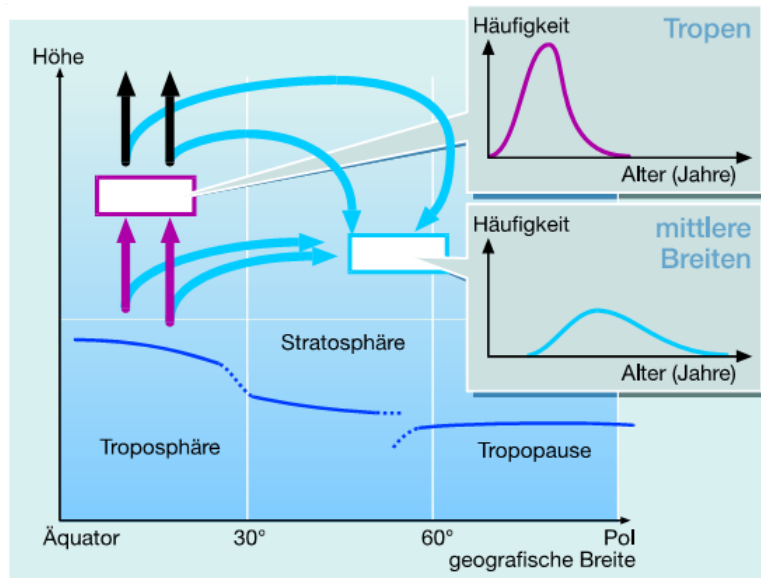


Abbildung 2.9: Altersspektren in zwei Bereichen der Stratosphäre

Die gezeigten Spektren in den Tropen und mittleren Breiten ergeben sich durch die unterschiedlichen Transportpfade durch die Stratosphäre in die entsprechende Region (aus Schmidt et al., 2002).

Betrachtet man beispielhaft die violette Box in Abbildung 2.9, so kann die Luft innerhalb dieser Box nur auf dem durch die violetten Pfeile angedeuteten Transportpfad zu diesem Ort transportiert worden sein. Da sich dieser Ort oberhalb der tropischen Tropopause befindet, ist das Altersspektrum einerseits recht schmal und zum anderen in Richtung kleinerer Alters-Werte verschoben. Dies ist nachvollziehbar, da die Luftpakete in der violetten Box nur eine vergleichsweise kurze Zeit in der Stratosphäre verbracht haben. Im Gegensatz dazu ist das Spektrum in der hellblauen Box deutlich breiter und zu größeren Alters-Werten verschoben. Dies ist ein Resultat der verschiedenen Transportwege der stratosphärischen Zirkulation. So können die Luftpakete in der blauen Box einerseits über den flachen Ast (untere blaue Pfeile) transportiert worden sein und weisen so eine relativ kleine Transitzeit auf (linker Bereich des Spektrums). Andererseits kann die Luft aber auch über den tiefen Ast (obere blaue Pfeile) transportiert worden sein. Dadurch besitzt sie eine vergleichsweise lange Transitzeit bis zur Box in den mittleren Breiten, weshalb ihr Alter dementsprechend höher ist (rechter Teil des Spektrums). Neben der Residualzirkulation spielt auch die **Mischung** besonders für das rechte Ende des hellblauen Spektrums eine große Rolle. Denn ein Teil der Luft in den mittleren Breiten wird durch die TLP zurück in die Tropen gemischt und durchläuft so den Transportprozess mehrmals, was wiederum das Alter dieser Luft vergrößert. Dieser Prozess wird auch **Rezirkulation** genannt und der durch sie hervorgerufene Alterungsprozess auch als **Alterung durch Mischung** (engl.: **Aging by mixing**, Garry et al., 2014) bezeichnet. In höheren Breiten können zudem Luftpakete im dortigen Altersspektrum auftauchen, die durch die Mesosphäre transportiert wurden und folglich bei Nutzung von SF₆ als Alters-Tracer das AOA zu groß bestimmt wird. Dies wird in der experimentellen Forschung als Charakteristikum mesosphärischer Luft genutzt. Mit Hilfe dieser Überlegung lässt sich nun das mittlere Alter als **erstes Moment** des **Alterspektrums** berechnen, also als die Faltung der Transitzeit t' mit dem Altersspektrum $G(\vec{x}, t')$ selbst. Damit folgt:

$$\Gamma(\vec{x}) = \int_0^{\infty} t' \cdot G(\vec{x}, t') dt'. \quad (7)$$

Diese Gleichung ist aufgrund der unbekanntenen Transitzeiten in der Stratosphäre nicht analytisch lösbar. Daher wird in der Praxis das mittlere Alter mit Hilfe des gemessenen stratosphärischen Mischungsverhältnisses und des troposphärischen Mischungsverhältnisses an einer Grenzfläche bestimmt. Zumeist wird

für diese Grenzfläche die tropische Tropopause gewählt, da Luft in diesem Bereich in die Stratosphäre eintritt (siehe Kapitel 2.4.1). Dieses Konzept wurde erstmals von *Hall und Plumb*, 1994 eingeführt und nutzt die Annahme, dass das Verhältnis von der quadrierten Breite des Altersspektrums Δ^2 zum mittleren Alter der Luft konstant ist. Mathematisch ergibt sich dies zu:

$$\frac{\Delta^2}{\Gamma} = C. \quad (8)$$

Hierbei ist C eine Konstante. Im Falle eines chemisch inerten Tracers wie CO_2 oder SF_6 kann der atmosphärische Trend an der tropischen Tropopause durch ein quadratisches Polynom angenähert werden. Mit Hilfe der Definition der Breite des Altersspektrums (siehe *Hall und Plumb*, 1994) lässt sich in Kombination mit Gleichung (8) schließlich eine Näherungsgleichung für das mittlere Alter der Luft aus den gemessenen Mischungsverhältnissen für einen der beiden obigen Tracer bestimmen. Für ein idealisiertes Spurengas mit linearem Anstieg an der tropischen Tropopause vereinfacht sich diese Gleichung dann auf ein lineares Polynom. Das mittlere Alter aus dem EMAC-Modell wird aus solch einem idealisierten linear ansteigenden Alterstracer berechnet (siehe Kapitel 3.1).

2.4 Dynamische Vorgänge

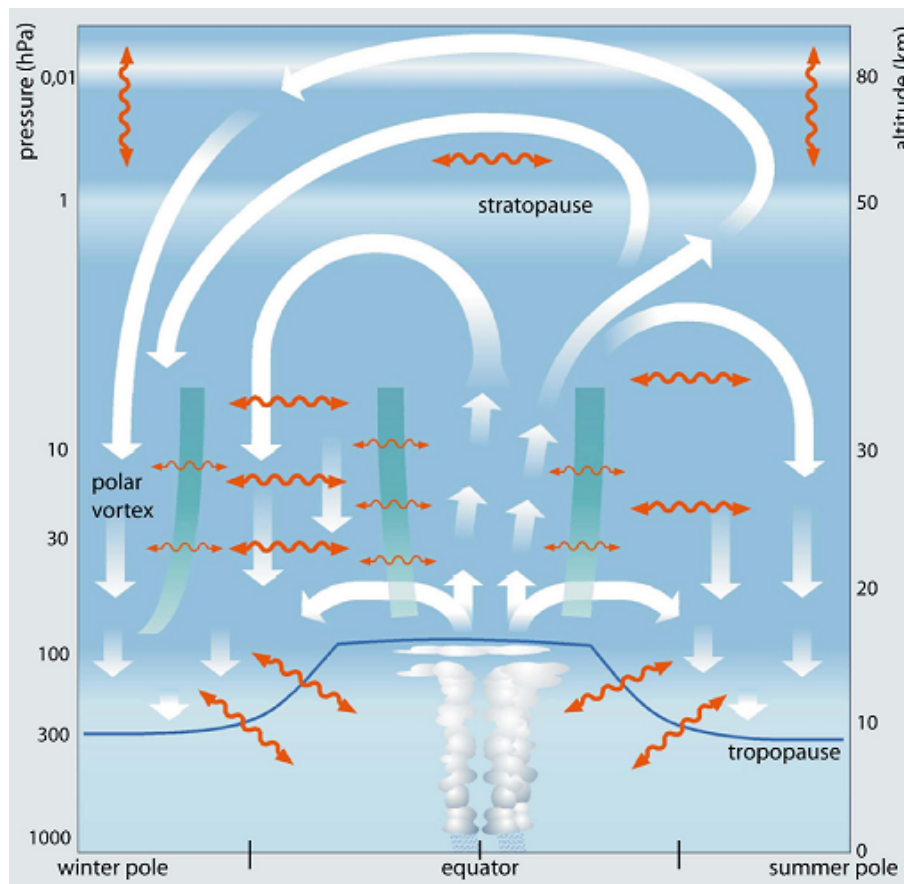


Abbildung 2.10: Brewer-Dobson-Zirkulation

Zirkulationsmuster in der Stratosphäre, bestehend aus der mittleren meridionalen Zirkulation (weiß) und der bidirektionalen Mischung (rot). Zusätzlich sind die Mischungsbarrieren in den Subtropen und die des Polarwirbels gezeigt (grün). Die blaue Linie gibt den Verlauf der Tropopause an (aus *Bönisch et al.*, 2011).

Trotz der vergleichsweise stabilen Schichtung der Stratosphäre, existieren auch dort, ähnlich zur Troposphäre, groß- und kleinskalige Zirkulationsprozesse. Hier spielt vor allem der zeitlich gemittelte meridionale Luftmassentransport, also die Residualzirkulation (**RC**, engl.: **Residual Circulation**) vom Äquator zu den Polen, eine übergeordnete Rolle. Zusammen mit bidirektionalen Mischungsprozessen bildet sie die nach ihren Entdeckern benannte **Brewer-Dobson-Zirkulation (BDC)**. Abbildung 2.10 gibt einen guten Überblick über die Struktur der Dynamik.

Für beide Prozesse spielt die Kopplung von Stratosphäre und Troposphäre eine große Rolle, da es vor allem troposphärische Wellen sind, die die Zirkulationen antreiben. All diese Phänomene beeinflussen außerdem die räumliche und zeitliche Verteilung von Spurengasen in der Stratosphäre. So eignen sich besonders, wie bereits beschrieben, chemische inerte Stoffe (z.B. Schwefelhexafluorid SF_6) mit einer sehr langen Lebenszeit und einem globalen troposphärischen Trend in der unteren/mittleren Atmosphäre dazu, die aufgezeigten Prozesse nachzuvollziehen. Da sich ihre Konzentration durch die fehlenden Senken entlang der Trajektorien des Transports nicht ändert, hängt das lokale Mischungsverhältnis und die Propagation des troposphärischen Trends in die Stratosphäre nur vom stratosphärischen Transport ab. Aber auch chemische aktive Substanzen, wie die oben angeführten FCKW, können als Tracer für die Zirkulation genutzt werden. Dazu muss die Lebenszeit des jeweiligen Stoffes größer sein als die mittlere Zeitskala des horizontalen Transports in der Stratosphäre (ein bis zwei Monate, *Moore et al.*, 2013), da dann davon ausgegangen werden kann, dass die Dynamik gegenüber dem chemischen Abbau dominiert (siehe Kapitel 3.1.2). Diese Betrachtungsweise macht es umgekehrt auch möglich, Zirkulationsänderungen anhand von Änderungen des jeweiligen Tracer-Mischungsverhältnisses zu sehen, was zentraler Gegenstand dieser Arbeit sein wird.

2.4.1 Mittlere Meridionale Zirkulation

Die Entdeckung der stratosphärischen Meridionalzirkulation geht zurück auf *Brewer*, 1949 und *Dobson*, *G. M. B.*, 1956. Brewer fiel dabei auf, dass die gemessene Frostpunktemperatur oberhalb der extratropischen Tropopause deutlich niedriger war als die vorherrschende Lufttemperatur. Dies bedeutet, dass der tatsächliche Wasserdampfgehalt der Luft deutlich geringer ist als erwartet, da die Umgebungstemperatur an der vermessenen Stelle nicht niedrig genug war, um solche Mengen an Wasserdampf aus der Luft auszufrieren und das Wasserdampfmischungsverhältnis dementsprechend drastisch zu senken. Brewer folgerte, dass die gemessene Luftmasse nicht durch die extratropische Tropopause in die Stratosphäre eingedrungen sein konnte, sondern nur an der **tropischen Tropopause**. Diese liegt höher und weist somit auch weitaus geringere Temperaturen auf, die die Trockenheit der Luftmasse erklären können. Nach dem Passieren der TTL, muss ein **polwärts gerichteter Spurengastransport** erfolgen, sodass tropische Luftmassen in die Extratropen transportiert werden und dort absinken. Eine ähnliche Theorie stellte Dobson auf, welcher anhand von Ozonmessungen bemerkte, dass die Ozonkonzentration in hohen Breiten weitaus größer war, als in tropischen Breiten, obwohl die maximale Ozonbildung durch die intensivere Sonneneinstrahlung in den Tropen stattfindet. Auch er folgerte, dass es eine langsame meridionale Bewegung der Luft von den Tropen zu den Polen geben muss, die mit einem Absinken der Luft an den Polen verbunden ist.

Die Theorien von Brewer und Dobson liefern zentrale Merkmale der Residualzirkulation, obwohl sie in der Realität deutlich komplexer ist. So steigt Luft aus der Troposphäre tatsächlich durch die TTL in die Stratosphäre auf, was durch diabatische Prozesse angetrieben wird und dementsprechend langsam abläuft. Man unterscheidet nun zwischen zwei Transportwegen. Ein Teil der Luft wird entlang des **flachen Astes** (engl.: **shallow branch**) der RC direkt oberhalb der Tropopause in die mittleren und höheren Breiten transportiert und sinkt dort durch die Tropopause zurück in die Troposphäre. Der andere Teil steigt in die obere Stratosphäre auf, in den **tiefen Ast** (engl.: **deep branch**), und sinkt dann nach Bewegung in die mittleren Breiten und zu den Polen ebenfalls in die Troposphäre. Ein Teil des tiefen Astes

bewegt sich hierbei sogar in die Mesosphäre bis an die Mesopause, durchquert die Sommerhemisphäre und sinkt über dem Winterpol ab (siehe Abbildung 2.10). Wichtig zu erwähnen ist, dass es sich nicht um eine geschlossene Zirkulationszelle handelt, sondern dass sich nur im residualen Mittel (daher der Name) ein abgeschlossenes meridionales Zirkulationsmuster ergibt, das mit einer Zeitskala von einigen Monaten (flacher Ast) bis mehreren Jahren (tiefer Ast) vergleichsweise langsam abläuft.

Angetrieben wird die RC einerseits von diabatischen Heizprozessen sowie von brechenden planetaren Wellen (Rossby-Wellen), welche aus der Erhaltungseigenschaft der potentiellen Vorticity (Kapitel 2.3.2) resultieren, und Schwerewellen, entstanden durch Schwerkraft und die dazu entgegengesetzt gerichtete Auftriebskraft. Diese werden in der Troposphäre angeregt, propagieren aufwärts in die Stratosphäre wo sie brechen und ihren Impuls in der sogenannten '**surf zone**' (*McIntyre und Palmer, 1984*) freisetzen. Dieser Impulsfluss geht einher mit einer westwärts gerichteten Kraft, die von der Corioliskraft abgelenkt einen Massenfluss in Richtung der Pole bewirkt und dort die Luft durch diabatische Kühlung zum Absinken bringt. Der Massenerhaltung folgend, strömt Luft durch die tropische Tropopause in diese Regionen der Stratosphäre nach, was auch als **extratropische Pumpe** (engl.: **extratropical pump**, *Holton et al., 1995*) bezeichnet wird. Bemerkenswert ist, dass der vertikale Massenfluss nur von der Intensität dieser Pumpe abhängt und somit weiter unten ablaufende Prozesse von den Vorgängen darüber gesteuert werden. Dies wird auch Prinzip der **Abwärtskontrolle** (engl.: **downward control**, *Haynes et al., 1991*) genannt und ist elementar zur Erklärung der mittleren meridionalen Zirkulation.

2.4.2 Bidirektionale Mischung

Neben der mittleren meridionalen Zirkulation, bei der netto ein Massentransport stattfindet, existieren auch Prozesse in der BDC, bei denen das effektiv nicht so ist. Diese werden als bidirektionale Mischung bezeichnet und laufen mit einer typischen Zeitskala von einigen Wochen bis Monaten deutlich schneller ab als die RC (*Boering et al., 1996*). Hierbei spielen für diese Mischungsprozesse beinahe ausschließlich adiabatische Vorgänge und das Wellenbrechen in der surf zone eine Rolle, während für die RC zu einem großen Teil auch diabatische Prozesse relevant sind. Ein wichtiges Merkmal hierbei ist, dass die Mischung auf **Quasi-Isentropen**, also Flächen nahezu gleicher Entropie (siehe 2.3.1), stattfindet.

Propagieren nun wie oben beschrieben troposphärische Wellen in die Stratosphäre und brechen dort, so sorgt der freigesetzte Impuls auch dafür, dass Luftmassen in der entsprechenden Region irreversibel miteinander vermischt werden (*Plumb, 2002*) und sich so etwaige Gradienten im Mischungsverhältnis verschiedener Substanzen abbauen. Außerdem werden Luftmassen in gleichem Maße von höheren in niedrigere Breiten transportiert und umgekehrt, sodass sich durch diese Kompensation in einer netto-Betrachtung **kein meridionaler Massentransport** ergibt. Der Großteil der stratosphärischen bidirektionalen Mischung findet dabei in der surf zone, also den mittleren Breiten, statt und wird jeweils durch die **subtropische Transportbarriere** zu den Tropen hin stark eingeschränkt (grüne Bereiche in Abbildung 2.10). Zusätzlich erzeugt der polare Wirbel auf der jeweiligen Winterhemisphäre ebenfalls eine **dynamische Transportbarriere**, die die Mischung zum Winterpol unterbindet. In den Tropen und innerhalb des polaren Vortex findet bis in eine Höhe von circa 40 km sehr wenig bidirektionaler Austausch statt, da sich erst ab dieser Höhe die Transportbarrieren aufzulösen beginnen. Nur in der unteren tropischen Stratosphäre ist bis in eine Höhe von etwa 25 km (*Neu und Plumb, 1999*) ein schwaches, langsames Mischen durch die subtropischen Barrieren möglich (*Volk et al., 1996*). Dies wird auch **Tropical Leaky Pipe** (TLP, *Neu und Plumb, 1999*) genannt.

2.4.3 Veränderung der stratosphärischen Zirkulation

Ähnlich zur Troposphäre ist auch die Stratosphäre und damit die Brewer-Dobson-Zirkulation den Einflüssen des globalen Klimawandels ausgesetzt. Da für diese Arbeit vor allem die mittleren Breiten der

nordhemisphärischen Stratosphäre relevant sind, wird hier verstärkt der Fokus auf diesen Bereich gelegt. Ausgehend von Simulationen verschiedener Klima-Chemiemodelle ist es wahrscheinlich, dass sich die Temperaturen in der Stratosphäre durch den erhöhten Treibhausgasgehalt der Troposphäre beziehungsweise einen geringeren stratosphärischen Ozongehalt (*Li et al.*, 2008) in den nächsten Dekaden verringern werden (*Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2014). Ursache hierfür ist, dass die von der Erde ausgehende Infrarotstrahlung stärker in den unteren Luftschichten absorbiert wird und so deren Intensität in größeren Höhen geringer ist, was äquivalent zu einer Temperaturverringerung ist. Weiterhin sorgt höchstwahrscheinlich der erhöhte troposphärische Wärmegehalt in der Theorie dafür, dass besonders die tropischen Meeresoberflächentemperaturen steigen und so die **Wellenaktivität** in der **Troposphäre** verstärkt wird. Dies hat zur Folge, dass auch die Brewer-Dobson-Zirkulation, welche durch diese troposphärischen Wellen angetrieben wird, besonders in den mittleren Breiten der nördlichen Hemisphäre einen positiven Effekt erfährt und sich die **Intensität der Zirkulation verstärkt** (*Garcia und Randel*, 2008). Feststellen lässt sich dies sowohl anhand von TTL-normierten Spurengaskonzentrationen sowie dem mittleren Alter der Luft seit Eintritt in die Stratosphäre (Kapitel 2.3.3). Intensiviert sich die BDC, dann sollte einerseits eine vergleichsweise höhere Konzentration von normierten Tracern in der Stratosphäre messbar sein, da durch das Prinzip der extratropischen Pumpe eine größere Menge dieser Gase in die Stratosphäre eingetragen wird. Auf der anderen Seite sollte das mittlere Alter der Luft abnehmen, da die Luft schneller durch die Stratosphäre prozessiert wird und so im zeitlichen Mittel kürzer in ihr verweilt. In der Tat zeigen Modellstudien, die das mittlere Alter in mittleren Breiten sowie den Tropen der nordhemisphärischen Stratosphäre zum Thema haben, dass ein negativer Trend des Alters auftritt (zum Beispiel *Austin und Li*, 2006).

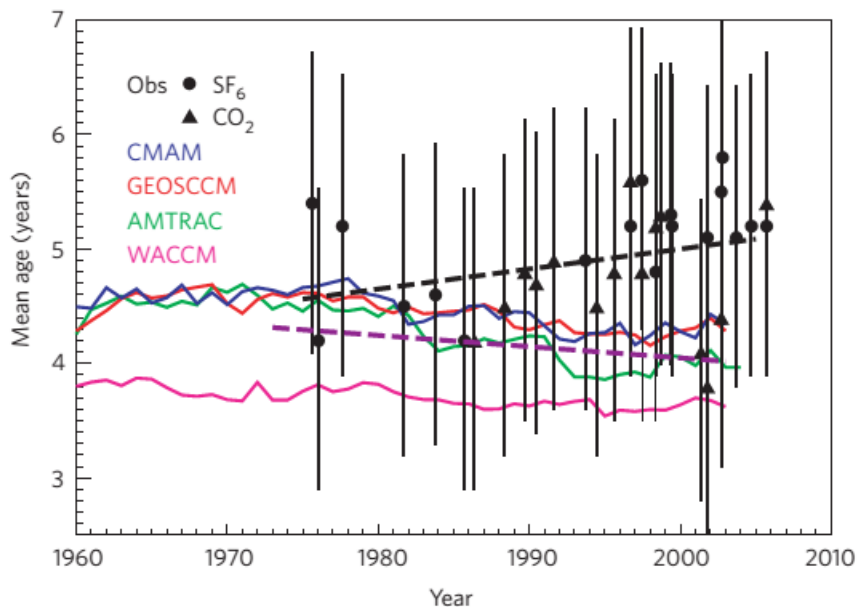


Abbildung 2.11: Mittleres Alter der Luft aus Beobachtung und Modell

Vergleich des zeitlichen Verlaufs des mittleren Alters stratosphärischer Luft aus Beobachtungen (schwarz, *Engel et al.*, 2009) und Daten aus mehreren Klima-Chemiemodellen (bunt). Gestrichelt ist jeweils der lineare Fit der Daten gezeigt. Es ist ersichtlich, dass hier eine Diskrepanz zwischen Modell und Messungen besteht. Die großen Unsicherheiten der Beobachtungen ergeben sich durch die relativ geringe Menge an verfügbaren Datenpunkten aus kostenintensiven Ballonmessungen (aus *Waugh*, 2009).

Allerdings konnte von *Engel et al.*, 2009 anhand von Messdaten gezeigt werden, dass es in den mittleren Breiten über den betrachteten Zeitraum von knapp 30 Jahren innerhalb der Unsicherheiten des Datensatzes **keine Abnahme des mittleren Alters** festgestellt werden konnte, sondern dass eher ein positiver

Trend ersichtlich ist, was auf eine Abschwächung der Zirkulation hindeutet. Dies steht im Gegensatz zu den Ergebnissen der Klima-Chemiemodelle, welche einen negativen Alterstrend der Luft in diesen Regionen der Stratosphäre prognostizieren, was in Abbildung 2.11 vergleichend dargestellt wird.

Diese Diskrepanz von Modell und Beobachtung, die nach der Veröffentlichung von *Engel et al.*, 2009 zeitweise recht kritisch gesehen wurde, führte dazu, dass die zeitliche Veränderung des stratosphärischen Transports weiterhin ein aktueller und viel diskutierter Forschungsschwerpunkt ist. In neueren Modellstudien (*Oberländer-Hayn et al.*, 2015 und *Gerber et al.*, 2012) ergibt sich zwar ein ähnliches Bild, wobei hier allerdings auch der **Einfluss** der **ODS** berücksichtigt wird, die gerade auf der Südhalbkugel einen nicht zu vernachlässigenden verstärkenden Effekt für die BDC haben, während auf der Nordhalbkugel eher der Treibhausgaseneinfluss dominiert. Zudem wird auch die Änderung des mittleren Alters nicht mehr nur in der Gesamtheit betrachtet, sondern feiner aufgelöst und auf die beiden **Äste der BDC** spezifiziert. Als Resultat kommen sowohl Modellanalysen (*Ray et al.*, 2010 oder *Oberländer-Hayn et al.*, 2015) als auch weitere Beobachtungsstudien (*Bönisch et al.*, 2011) zu dem Ergebnis, dass in den mittleren Breiten der Nordhalbkugel davon ausgegangen werden kann, dass sich der **flache Ast** der Zirkulation **beschleunigt** (äquivalent zu einem negativen Alterstrend) wohingegen sich der **tiefe Ast** kaum verändert (*Bönisch et al.*, 2011 oder *Garny et al.*, 2014).

Die veränderte Zirkulation der Stratosphäre kann durch Rückkopplungen auch wieder Einfluss auf die Troposphäre haben, da sich beide Sphären durch eine rege Wechselwirkung auszeichnen. So wird beispielsweise vermutet, dass stratosphärische Extremereignisse in Kombination mit dem Ozonabbau die troposphärische Zirkulation und damit in letzter Instanz das Wettergeschehen am Erdboden in großem Maße beeinflussen und steuern (siehe *Thompson, D. W. J. et al.*, 2005 oder *Scaife et al.*, 2008). Dies bedeutet auch, dass Änderungen in der Stratosphäre sich direkt auf die Troposphäre ausdehnen können. Dies macht das Verständnis der stratosphärischen Zirkulation zu einem nicht vernachlässigbaren Faktor bei der Modellierung des Klimawandels und bei Langzeitwetterprognosen in der Troposphäre und umgekehrt.

Untersuchung der Zirkulationsänderung

Für die Analyse der Meridionalzirkulation der Stratosphäre eignen sich Mischungsverhältnisse von Spurengasen besonders gut. Hierbei wird, wie bereits erläutert, zwischen **chemisch inerten** und **chemisch aktiven** Substanzen unterschieden. Erstere zeichnen sich vor allem dadurch aus, dass sie keine chemischen Senken in der Stratosphäre besitzen. Dies ermöglicht es, Transportprozesse ohne Berücksichtigung chemischer Vorgänge zu betrachten und nachzuvollziehen, da sich das Mischungsverhältnis der Substanz nur durch die lokale Dynamik verändert. Bei Kenntnis der eventuell vorhandenen stratosphärischen Quellen der Substanz, lassen sich auch Änderungen des Transports mit Hilfe der Veränderung von Tracer-Mischungsverhältnissen zwischen zwei Zeitpunkten qualitativ untersuchen. Zudem bilden chemisch inerte Tracer (zum Beispiel CO_2 oder SF_6) die Grundlage für die Bestimmung des mittleren Alters der Luft und dienen somit hierüber als zweites Charakteristikum dynamischer Vorgänge.

Darüber hinaus lässt sich eine Untersuchung der allerdings auch mit **chemisch aktiven Stoffen** durchführen, welche Senkenreaktionen in der Stratosphäre unterliegen. Daher müssen etwaig erhöhte oder verringerte Mischungsverhältnisse in einer betrachteten zeitlichen Periode nicht unbedingt mit einem modifizierten stratosphärischen Transport zusammenhängen, da für sie auch der chemische Abbau eine Rolle spielt. Daher muss bei der Nutzung von chemisch aktiven Tracern sichergestellt werden, dass innerhalb der betrachteten Region die Dynamik über die chemischen Vorgänge überwiegt. Dies wird erreicht, indem die Zeitskala der Photolyse, welche die Primärsenke vieler Spurengase in der Stratosphäre darstellt, mit der Zeitskala des quasi-horizontalen Transports verglichen wird. Ist hierbei die **photolytische Lebenszeit** der Substanz größer als diese Zeitskala der Dynamik, so ist Photodissoziation in

der betrachteten Region vernachlässigbar und es ist wahrscheinlich, dass die veränderten Spurengasmischungsverhältnisse direkt mit einer veränderten stratosphärischen Dynamik zusammenhängen. Dieser Ansatz ist unter anderem in der Veröffentlichung von *Moore et al.*, 2013 mit Hilfe eines stark vereinfachten TLP-Modells durchgeführt worden. Das zugehörige Vertikalprofil der Tracer-Differenzen innerhalb des analysierten Zeitintervalls ist beispielhaft in Abbildung 2.12 gezeigt.

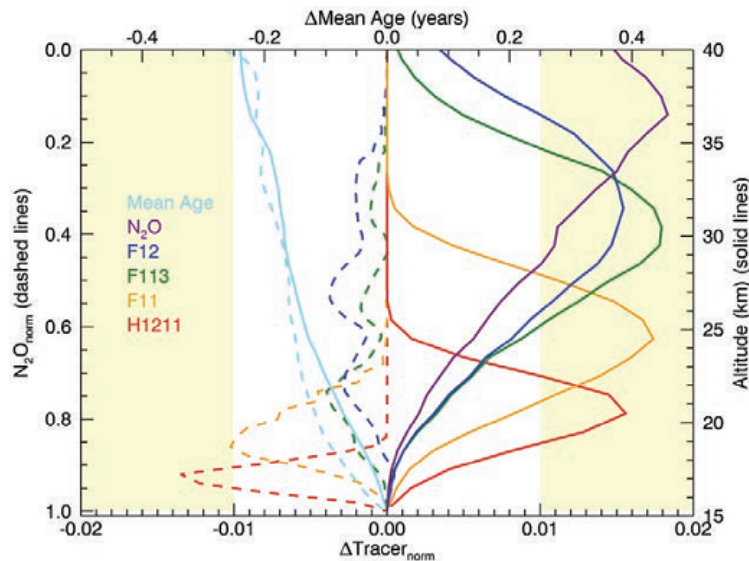


Abbildung 2.12: Vertikalprofil zeitlicher Tracer-Differenzen

Tracer-Differenzen zwischen zwei Zeitpunkten im Vertikalschnitt in den Tropen bei einer Verstärkung der meridionalen Zirkulation um 5%. Spurengase sind auf ihren Wert an der tropischen Tropopause normiert und nur die Änderung des mittleren Alters wird absolut dargestellt. Die gelben Bereiche markieren die Tracer-Differenzen, welche mit einer Messpräzision von 1% detektiert werden können, wobei hier keine Variabilität berücksichtigt wird. Zusätzlich geben sie die Unsicherheit des mittleren Alters der Luft von 0.25 Jahren an (aus *Moore et al.*, 2013).

Anhand der Resultate in Abbildung 2.12 wird ersichtlich, dass eine Verstärkung der stratosphärischen Zirkulation von 5%, wie sie in diesem Modell implementiert wurde, zu einer Erhöhung der Spurengaskonzentration in der Stratosphäre um etwa 1.5% des TTL-Mischungsverhältnisses und einer Verringerung des mittleren Alters von bis zu 0.25 Jahren führt. Dies ist nachvollziehbar, da bei einer Verstärkung durch das Prinzip der extratropischen Pumpe mehr Luft in die Stratosphäre eintritt und diese schneller durchläuft, was sich in einem kleineren AOA zeigt. Die Abbildungen, welche im Rahmen dieser Arbeit erstellt werden, orientieren sich für einen einheitlichen Vergleich an diesem Bild. Allerdings ist zu bemerken, dass das **EMAC-Modell** eine deutlich **größere Komplexität** aufweist als das TLP-Modell und somit komplexere physikalische und chemische Prozesse beinhaltet. Zudem ist aufgrund dieser Komplexität zu erwarten, dass es eine Abschätzung für die **atmosphärische Variabilität** liefern kann. Dies ist die Grundlage für die in Kapitel 1 erläuterten Untersuchung, ob die Tracer-Differenzen mit Hilfe von einer realisierbaren Anzahl von in-situ Messungen bestimmt werden können.

3 Methodik

In diesem Kapitel wird zunächst eine Einführung in das Klima-Chemiemodell EMAC und dessen ausgewertete Datensätze gegeben. Daran schließt sich eine Erläuterung der Methodik an, in der darauf eingegangen wird, wie die Vertikalprofile der Spurengase und deren Variabilität bestimmt wurden. Zudem wird erklärt, wie chemisch bedingte von dynamisch induzierten Veränderungen unterschieden werden, was für den kausalen Zusammenhang von großer Bedeutung ist. Zuletzt werden die kürzerlebigen Tracer auf normierten N_2O -Isoplethen analysiert, was eine weitere Möglichkeit zur Identifizierung dynamisch hervorgerufener Änderungen der Tracer-Profile mit verringerter atmosphärischer Variabilität bietet.

3.1 Klima-Chemiemodell EMAC

Die Entwicklung von globalen Klimamodellen ist eng verbunden mit der numerischen Wettervorhersage. Das Grundkonzept, nämlich das Lösen von prognostischen Differentialgleichungen für atmosphärische Zustandsvariablen, ist beiden gemein. Allerdings ist die Wettervorhersage hauptsächlich vom aktuellen Zustand der Atmosphäre abhängig (**Anfangswertproblem**), während die Klimamodellierung ein **Randwertproblem** darstellt. Dies bedeutet, dass es für eine präzise Klimaprojektion von grundlegender Bedeutung ist, dass unter anderem Stoffflüsse an den räumlichen Grenzen des Modells, also beispielsweise am Übergang Atmosphäre-Ozean, realitätsgetreu dargestellt werden. Globale Klimamodelle bieten ein mächtiges und aus der aktuellen Forschung nicht mehr wegzudenkendes Hilfsmittel bei der Untersuchung von zukünftigen Veränderungen des Systems Erde-Atmosphäre. In verschiedenen Szenarien können so auf diversen Skalen die Auswirkungen des **Klimawandels**, anthropogen wie natürlich, simuliert und untersucht werden, sodass geeignete Gegenmaßnahmen erwogen werden können. Diese Modelle sind äußerst rechenintensiv, was vor allem der Komplexität des zu modellierenden System geschuldet ist, da gerade in Bezug auf den Klimawandel die Abschätzung zukünftiger Emissionen eine große Unsicherheit birgt.

Eine eigene Sparte dieser Modelle bilden die sogenannten **Klima-Chemiemodelle** (engl.: **Chemistry-Climate Models, CCM**), die neben den physikalischen Vorgängen auch komplexere chemische Prozesse berücksichtigen. Auf diese Weise können einerseits kurzskalige troposphärische Emissionen verschiedener chemisch aktiver Substanzen simuliert werden, die insbesondere für politische Entscheidungen und Restriktionen zur Eindämmung des anthropogenen Klimawandels von Bedeutung sind. Andererseits lässt sich nur durch solche Modelle die Komplexität der stratosphärischen Chemie (Ozon, Spurengase, etc.) und die Wechselwirkung von Tropo- und Stratosphäre realitätsgetreu modellieren. Oftmals werden dazu verschiedene modular aufgebaute physikalische und chemische Submodelle in ein großes globales Klimamodell implementiert, welche jeweils einen bestimmten Vorgang, wie Ozonchemie, Wolkenmikrophysik oder Strahlungsprozesse, detailliert beschreiben und so in der Summe eine möglichst reale Simulation der Atmosphäre ermöglichen. Im Falle des Modells **ECHAM/MESSy Atmospheric Chemistry (EMAC, Jöckel et al., 2016)** wird als zugrundeliegendes Klimamodell zum Zeitpunkt dieser Arbeit die fünfte Generation des globalen Klimamodells des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersage - Hamburg (engl.: **European Centre for Medium-Range Weather Forecasts - HAMBURG, ECHAM, Roeckner et al., 2006**) mit verschiedenen Teilen des modularen Erdsmodell-Systems (engl.: **Modular Earth Submodel System, MESSy, Jöckel et al., 2006, 2010**) zu einem globalen Klima-Chemiemodell gekoppelt. MESSy wird dabei von einem Konsortium verschiedener Forschungsinstitutionen gemeinsam entwickelt und stetig verbessert. Der Vorteil des EMAC-Modells ist der modulare Aufbau von MESSy. Die dort integrierten Submodelle sind so strukturiert, dass sie je nach Forschungsgegenstand der Modellsimulation hinzu- oder abgeschaltet werden können, sodass einheitliche Projektionen mit Fokus auf einen bestimmten Schwerpunkt mit einem einzigen Modell leicht umgesetzt werden können. Zudem lassen sich die Auswirkungen des jeweiligen Submodells auf das Ergebnis der Klimasimulation durch Vergleiche umsetzen und lassen so Rückschlüsse auf den Einfluss des im Submodell repräsentierten Prozesses in der Atmosphäre zu.

Die Datensätze, die für diese Arbeit ausgewertet wurden, entstammen EMAC-Modellsimulationen, welche im Rahmen der **ESCiMo Initiative** (engl.: **E**arth **S**ystem **C**hemistry **i**ntegrated **M**odelling) vom MESSy-Konsortium durchgeführt wurden. Diese Simulationen besitzen alle eine Zeitschrittweite von 720s, wobei nur für alle 10h ein über diese Werte gemittelt Feld ausgegeben wird. Das Modell arbeitet mit einer spektralen Auflösung von **T42**, was einem Raster von 128×64 Gitterboxen (Länge \times Breite) mit Abmessungen von je circa $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ entspricht. Zusätzlich dazu besitzt das Modell 90 Höhenschichten (**L90MA**) welche von etwa 1000hPa bis zu einem Druck von circa 0.01hPa (~ 80 km Höhe) bis in die **mittlere Atmosphäre** reichen (Jöckel *et al.*, 2016). Diese große vertikale Auflösung ermöglicht es, die Vorgänge in der Stratosphäre besonders hochaufgelöst zu untersuchen, was gerade für die Zielsetzung dieser Arbeit von Vorteil ist. Zusätzlich wurde mit der Wahl eines geländefolgenden Sigma-Druck-Hybridkoordinatensystems der Einfluss der Orographie auf die unteren Regionen des Modells minimiert und so ein möglichst glatter und stetiger Verlauf der meteorologischen Felder ohne Schnitte der Modellflächen mit dem Terrain gewährleistet (siehe dazu Pielke, 2002 für tiefgehendere Informationen). Damit etwaig inkonsistente Prozesse bei der Initialisierung der Simulationen ausgeschlossen werden können, wird dem Modell zusätzlich ein **Einschwingzeitraum** (engl.: **spin-up**) von 10 Modell-Jahren ausgehend von schon eingeschwingenen vorherigen Simulationen gewährt und die Daten erst nach verstreichen dieser Zeit ausgewertet.

Darüber hinaus kennzeichnen sich die relevanten Datensätze durch zwei weitere Merkmale. Einerseits handelt es sich um sogenannte **freilaufende Simulationen** (engl. **free running**), was bedeutet, dass die Dynamik des Modells nicht vorgeschrieben wird. Dadurch wird das Modell nicht durch vorgeschriebene Algorithmen in Richtung eines vorgegebenen Datensatzes (ERA-Interim Reanalysedaten, Dee *et al.*, 2011) getrieben. Dieser Prozess, der auch als Anstoßen (engl.: **nudging**) bezeichnet wird, soll eine möglichst realitätsgetreue Simulation ermöglichen, wobei das Modell seine Freiheitsgrade behält. Allerdings werden unter anderem Vorticity, Temperatur und der Logarithmus des Bodendrucks durch das Nudging von einem Algorithmus beeinflusst. Der Vorteil der freilaufenden Methode ist, dass man einen in sich konsistenten Modelllauf erhält, der zwar nicht exakt die Realität widerspiegeln kann, aber in seiner Entwicklung in Bezug auf die erwähnten Größen unbeschränkt ist. Außerdem sind in diese Modellsimulationen für alle in Kapitel 2.2.2 erwähnten Substanzen sogenannte **idealisierte Tracer** implementiert, welche in der gesamten Troposphäre ein konstantes Mischungsverhältnis von 1ppt aufweisen. Dies ist besonders für die Untersuchung der BDC relevant, da so etwaige Einflüsse durch einen troposphärischen Trend des Tracers nicht existieren und so eine Änderung der Dynamik nicht fälschlich auf den Einfluss dieses Trends zurückzuführen ist. Das ist zwar nur ein höchst theoretisches Konzept, erleichtert aber die Identifikation und Erklärung von Tracer-Differenzen erheblich, sodass in den folgenden Teilen der Arbeit nur die in der Troposphäre konstanten idealisierten Tracer betrachtet werden.

3.2 Genutzte Datensätze

3.2.1 Hindcast-Daten

Der erste der drei ausgewerteten Datensätze der ESCiMo Initiative ist der der **Hindcast** Simulation. Ein Hindcast ist eine meteorologische Simulation bei der mit Hilfe von realen Beobachtungsdaten versucht wird einen realitätsnahen Zustand des Modells für den Zeitraum der Beobachtungen zu generieren. Diese Beobachtungsdaten dienen hierbei als wichtige Randbedingungen des Klimamodells. Die Hindcast-Daten erstrecken sich im sogenannten **RC1-base-07-Modellauf** (Referenz-Hindcast-Simulation mit Basis-EMAC-Modell ohne gekoppelten Ozean und Aerosolprozesse) von 1950 bis 2011 jeweils als **monatlich gemittelte** Felder (im Gegensatz zu den instantanen Feldern - siehe Kapitel 3.2.3). Hierbei handelt es sich um eine freilaufende Simulation, wobei sich unter Berücksichtigung der oben angeführten Einschwingzeit mit 5 Modell-Jahren Sicherheitsspanne netto eine auswertbare Zeit von 1965 bis 2011

ergibt. Neben dem **Strahlungsantrieb der Erde RF** (engl.: **Radiative Forcing**) und den **Treibhausgaskonzentrationen GHGC** (engl.: **GreenHouse Gas Concentrations**) sind besonders die **Meeresoberflächentemperatur SST** (engl.: **Sea Surface Temperature**) und die **Meereiskonzentration SIC** (engl.: **Sea Ice Concentration**) als Beobachtungsdaten relevant. Sie stammen in dieser Modellsimulation aus dem globalen Messnetz des Wetterdienstes des vereinigten Königreichs (UK Met Office Hadley Centre) und ergeben sich als Komposit aus Satelliten- und in-situ Messungen (*Jöckel et al., 2016*). Diese beiden Variablen sind für das Klima auf der Erde von großer Bedeutung, da sie als untere Randbedingungen die Prozesse der Atmosphäre darüber (Konvektion, Niederschlag, Tropenstürme, Strahlungsflüsse, uvm.) steuern, welche ebenfalls wieder Auswirkungen auf weitere meteorologische Variablen besitzen. Neben diesen Parametern ist auch die Initialisierung der Tracer-Konzentrationen essentiell für realistische Ergebnisse. Für diesen Lauf erfolgte dies mit skalierten Mischungsverhältnissen des Jahres 2000 der EMAC-Simulation von *Jöckel et al., 2010*, da eine sonstige Anpassung der Mischungsverhältnisse dieser Gase durch chemische Prozesse zu lange dauern würde, verglichen mit der Einschwingzeit (*Jöckel et al., 2016*).

3.2.2 Prognose-Daten

Neben dem Hindcast, der sich auf die zweite Hälfte des letzten Jahrhunderts fokussiert, wird auch eine Modellprognose untersucht, welche auch **Forecast** Simulation genannt wird. Dieser mit **RC2-base-04** (Referenz-Forecast-Simulation mit Basis-EMAC-Modell) bezeichnete Modelllauf deckt den Zeitraum 1950 bis 2099 ab und produziert ebenfalls **monatlich gemittelte** Felder. Mit der Einschwingzeit und den 5 Modell-Jahren Sicherheit ergibt sich hier also eine insgesamt auswertbare Periode von 1965 bis 2099. Da für zukünftige Modellrechnungen noch keine Beobachtungen vorliegen, stützt sich diese Simulation einerseits hauptsächlich auf **modellierte SST** und **SIC**, welche extern dem Hadley Centre Global Environment Model version 2 - Earth System (**HadGEM2-ES**, *Collins et al., 2011; Martin et al., 2011*) entnommen werden. Da diese Daten allerdings nur etwa bis ins Jahr 2005 verfügbar sind, wird für den verbleibenden Zeitraum ein Modell (siehe dazu *Jones et al., 2011*) genutzt, welches auf dem Emissionszenario für die repräsentative Entwicklung der Konzentration **RCP6.0** (engl.: **Representative Concentration Pathways**) des Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC, *Intergovernmental Panel on Climate Change, 2014*) basiert und eher mittelstarke Emissionen prognostiziert (*Jöckel et al., 2016*). Durch die Verwendung von rein modellierten SST/SIC-Werten ergibt sich ein **in sich konsistenter Datensatz**, äquivalent zu dem auf Beobachtungen basierenden RC1-base-07-Lauf. Darüber hinaus wird auch für diese Modellreihe die in Kapitel 3.2.1 beschriebene Initialisierung der Tracer-Mischungsverhältnisse zu Beginn des Modellzeitraums genutzt, sodass beide Simulationsreihen in Bezug auf die Tracer eine identische Ausgangsbasis besitzen.

3.2.3 Instantane Daten

Da monatlich gemittelte Felder, wie sie in den oberen beiden Datensätzen genutzt werden, für eine Bestimmung der **Variabilität der Tracer** innerhalb eines Monats nicht sinnvoll sind, werden für diese Analyse die zehnstündig abgespeicherten Rohdaten genutzt, welche im folgenden immer als **instantane Daten** bezeichnet werden. Diese stammen aus den **beiden oben genannten Simulationen** und sind mit ihren jeweiligen Pendanten bis auf das Fehlen der monatlichen Mittelung absolut identisch. Für die Analyse in dieser Arbeit wurden die Monate **März, Juni, September** und **Dezember** des Jahres **1992** ausgewertet, was eine gute Abdeckung der Saisonalität ermöglicht. In guter Näherung kann für die zehnstündigen Werte dieses Datensatzes davon ausgegangen werden, dass die instantanen Daten des RC1-base-07 und des RC2-base-04-Laufs übereinstimmen. Deshalb wird nur der instantane Datensatz der Hindcast-Simulation ausgewertet und angenommen, dass die **Variabilitäten** mit dem Forecast-Lauf identisch sind. Daher repräsentieren die Variabilitäten im Jahr 1992 die für alle weiteren ausgewerteten Jahre das Modells. Diese Annahme ist auch der Tatsache geschuldet, dass die instantanen Felder

ein deutlich größeres Datenvolumen einnehmen und tiefgehendere Untersuchungen über einen breiteren zeitlichen Bereich eine große Menge Speicherplatz und sehr viel Rechenleistung benötigen.

3.3 Vorgehensweise der Analyse

Das Ziel dieser Arbeit ist es, wie schon einleitend dargelegt, anhand der idealisierten chemisch aktiven Tracer zu bestimmen, ob sich über einen **Zeitraum von 10 Jahren Änderungen** in der **stratosphärischen Meridionalzirkulation** (BDC) anhand von **Vertikalprofilen stratosphärischer chemisch aktiver Tracer** detektieren lassen. Die Periode von 10 Jahren wurde gewählt, da dieser Zeitraum eine vergleichsweise solide Statistik gewährt und dennoch gerade so groß ist, dass er durch regelmäßige Messungen (beispielsweise mit AirCore, *Karion et al.*, 2010) abgedeckt werden könnte. Um eventuell vorherrschende saisonale Schwankungen bei dieser Untersuchung auszuschließen, werden die Tracer-Profile in **vier Monaten (März, Juni, September und Dezember)** jeweils in den **nördlichen Mittelbreiten** und den **Tropen** bestimmt und verglichen. Dabei sind diese Monate über einen Zeitraum von 10 Jahren gemittelt, um eine bessere statistische Beschreibung zu generieren. Beispielsweise wird über alle Monate März in einem Zeitraum von 10 Jahren gemittelt. Wichtig bei der Betrachtung ist weiterhin, dass die Spurengase auf die **jeweiligen Mischungsverhältnisse** an der **tropischen Tropopause normiert** sind. Dies ermöglicht es positive/negative Differenzen auf einen erhöhten/verringerten Eintrag dieser Substanz in die Stratosphäre und damit auf die Dynamik zurückzuführen. Das Vorgehen bei der Bestimmung wird in Kapitel 3.3.1 genauer erläutert.

Da es sich um **chemisch aktive Spurengase** handelt, muss sichergestellt werden, dass die photolytische Lebenszeit größer ist, als die Zeitskala des quasi-horizontalen Transports von etwa zwei Monaten, da nur dann davon ausgegangen werden kann, dass dynamische Prozesse über die chemischen dominieren und so die festgestellten Tracer-Differenzen (Differenzen zweier Vertikalprofile der Tracer von verschiedenen Zeitpunkten) hauptsächlich durch eine Änderung des Transports verursacht werden. Dazu werden **Vertikalprofile der photolytischen Lebenszeit** betrachtet und ein **Cut-Off-Level** bestimmt, welches die potentielle Temperatur angibt, bei der beide erwähnte Zeitskalen identisch sind. Oberhalb dieses Levels dominiert die Photolyse, sodass dortige Tracer-Differenzen nicht mehr mit Sicherheit auf die Änderung der Dynamik zurückgeführt werden können. Diese Methode wird in Kapitel 3.3.2 beschrieben.

Neben der Analyse ob solche Änderungen im stratosphärischen Transport Auswirkungen auf die chemisch aktiven Spurengase haben, soll auch untersucht werden, ob diese **Tracer-Differenzen signifikant** sind und durch Messreihen **experimentell detektiert** werden können. Denn überlagert die **allgemeine atmosphärische Variabilität** die Tracer-Differenzen, so ist keine statistisch vertretbare Aussage über eine Veränderung der Spurengasverteilung möglich. Eine experimentelle Anwendung könnte beispielsweise darin bestehen, dass über einen Zeitraum von 10 Jahren im Monat März mit geeigneten Messverfahren (zum Beispiel Ballonaufstiege) in den mittleren Breiten Messreihen durchgeführt werden und diese Monate jeweils über 5 Jahre (nur Monat März!) gemittelt werden. Bildet man dann aus den beiden erhaltenen Werten eine Differenz im Vertikalverlauf, so kann damit, analog zum Modell, eine Änderung der BDC untersucht werden. Allerdings muss hier die Tatsache berücksichtigt werden, dass die **Werte innerhalb dieses Monats** selbst gewissen **Schwankungen unterliegen**. Diese **Variabilität muss kleiner sein als die Tracer-Differenz**, da diese sonst von dem durch die Schwankung verursachten Rauschen überlagert werden und so eine eindeutige Detektion beziehungsweise Identifikation deutlich aufwändiger beziehungsweise beinahe unmöglich wird. Diese Untersuchung wird in Kapitel 3.3.3 näher erklärt.

Zuletzt wird mit der **Betrachtung kürzerlebiger Tracer auf normierten N₂O-Isoplethen** eine Methode eingeführt, die ebenfalls zur Untersuchung der stratosphärischen Dynamik eingesetzt werden kann, aber anders als die Vertikalprofile eine **deutlich reduzierte Variabilität** aufweisen sollte. Denn hierbei werden **Spurengase relativ zueinander** untersucht, weshalb sich transportbedingte Schwankungen

gegenseitig aufheben. Dazu werden analog zu den Vertikalprofilen der Tracer-Differenzen nun die auf die TTL normierten Werte der kurzlebigen Substanzen H1211 und F11 gegen das Referenzgas N₂O graphisch aufgetragen. Vergleicht man nun die Kurven zweier Zeitpunkte miteinander, so kann aus einer Verschiebung dieser Kurven unterhalb des Cut-Off-Levels eine modifizierte Dynamik geschlossen werden. Da bei dieser Betrachtung die **Spurengase in Bezug zu N₂O** betrachtet werden und beide Tracer der gleichen transportbedingten Variabilität unterliegen, reduzieren sich diese Schwankungen bei dieser Analyse gegenseitig und eine Verschiebung der Kurve kann mit einer Änderung der BDC **signifikant** assoziiert werden. Dieses Verfahren wird in Kapitel 3.3.4 erläutert und kann zur Verifikation der Tracer-Differenzen-Methode genutzt werden. All diese oben genannten Untersuchungen werden mit der Programmiersprache **IDL** (engl.: **I**nteractive **D**ata **L**anguage) durchgeführt und ausgewertet, da sie sich besonders zum Umgang mit großen Datenmengen und -feldern eignet.

3.3.1 Bestimmung von Tracer-Differenzen

Zentraler Aspekt dieser Arbeit ist der Vergleich der Vertikalprofile stratosphärischer Spurengase zu verschiedenen Zeitpunkten. Dazu werden nur die monatlich gemittelten Daten aus Hindcast- und Forecast-Simulation genutzt. Ein beispielhaftes Bild dieser Tracer-Differenzen liefern *Moore et al.*, 2013, welche ähnliche Analysen mit einem stark idealisierten TLP-Modell durchgeführt haben. Das entsprechende Vertikalprofil ist in Abbildung 2.12 dargestellt.

Damit diese Analyse alle dynamisch relevanten Prozesse miteinbezieht, muss zunächst eine Transformation der Vertikalcoordinate der Modellfelder von einem druck-basierten in ein **isentropes Koordinatensystem** erfolgen. Dadurch wird vor allem die Variabilität der Tracer in der Stratosphäre reduziert. Damit die gewünschten Tracer-Differenzen den Prozentsatz des Mischungsverhältnisses der Spurengase an der tropischen Tropopause darstellen, müssen die Tracer mit diesen normiert werden, was im nächsten Schritt erfolgt. Dies ermöglicht eine Aussage darüber ob sich die Tracer-Verteilung in der Stratosphäre ändert und ob dies auf einen Wandel des stratosphärischen Transports zurückzuführen ist. Schließlich, zur Generierung einer aussagekräftigen Statistik, werden die Tracermischungsverhältnisse der Monate jeweils einzeln über **10 Jahre gemittelt** (beispielsweise Monat März gemittelt über die Jahre 1992 bis 2001 einschließlich), was auch der Filterung von inter-annualer Variabilität und etwaiger Schwankungen durch den solaren Zyklus dient. Nach einer finalen globalen **zonalen Mittelung** werden die so erhaltenen Vertikalprofile über den Bereich von 40°N bis 50°N noch **meridional gemittelt** und dann zur Differenzenbildung voneinander subtrahiert, wobei die **verschiedenen Monate des Jahres jeweils immer getrennt betrachtet** werden. Ein Beispiel verdeutlicht dies. Zur vereinfachten Bezeichnung wird im Folgenden ein Jahr aus der Mitte des jeweiligen Zeitraums genutzt (1992 bis 2001 wird durch 1997 notiert, 2002 bis 2011 durch 2007, etc.):

$$\text{Differenzenprofil März}_{2007-1997} = \overline{\text{März}_{2002:2011}} - \overline{\text{März}_{1992:2001}}.$$

Wobei hierin die Balken einen Mittelwert über die Zeit und geographische Region darstellen und März stellvertretend für das Vertikalprofil des Mischungsverhältnisses in diesem Monat steht. Mit Hilfe dieser Prozedur ergeben sich Vertikalprofile von Tracer-Differenzen, welche dem in Abbildung 2.12 gezeigten sehr ähnlich sind. Im obigen Beispiel kann so festgestellt werden, wie sich der Spurengasgehalt im März des Mittelungszeitraums 2002 bis 2011 im Vergleich zum März der Periode 1992 bis 2001 verändert hat.

3.3.2 Bestimmung der Cut-Off-Level

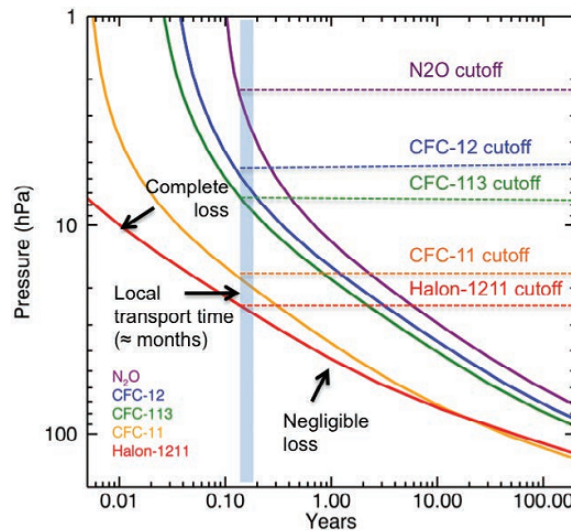


Abbildung 3.1: Tracerlebenszeit im Vertikalverlauf

Gezeigt ist das Vertikalprofil der photolytischen Lebenszeit für die genannten Spurengase in den Tropen. Der blau schattierte Bereich gibt die lokale Transportzeitskala an. Alle Regionen links dieser Markierung werden von der Photolyse dominiert und sind zu vernachlässigen. Rechts davon überwiegt der Einfluss der Dynamik und die Photodissoziation ist von untergeordneter Bedeutung (aus Moore *et al.*, 2013).

Um herauszufinden bis in welche Höhe dynamische Prozesse über die photolytischen Abbaureaktionen überwiegen, muss die photolytische **Lebenszeit im Vertikalprofil** berechnet werden. Bei derjenigen potentiellen Temperatur, bei der die Lebenszeit unter den Wert der dynamischen quasi-horizontalen Transportzeitskala (0.15 Jahre im Mittel) fällt, liegt das Cut-Off-Level. Alle darüberliegenden Regionen werden durch die Photolyse dominiert und sind für diese Arbeit nicht relevant. Diese Analyse wurde ebenfalls von Moore *et al.*, 2013 mit Hilfe eines TLP-Modells durchgeführt, sodass Abbildung 3.1 den vertikalen Verlauf der Lebenszeit verschiedener Tracer beispielhaft darstellt. Hierbei hat N₂O das höchste Cut-Off-Level, da es die aus photochemischer Sicht stabilste Verbindung ist, während H1211 den niedrigsten Cut-Off besitzt, da es rasch durch Strahlung in der Stratosphäre abgebaut wird.

Die Bestimmung der Lebenszeit kann auf zwei Arten erfolgen. Die einfachere und direkte Variante nutzt den in Kapitel 2.2.1 beschriebenen Formalismus über die **Photolyserate** (Gleichung (1)). Da das EMAC-Modell diese Variable nicht ausgibt, sondern nur für die Simulation temporär berechnet, muss eine Alternative über vorhandene Größen gefunden werden. Die Lösung hierfür bieten die **auf den lokalen Spurengasgehalt normierten Vertikalgradienten der Tracermischungsverhältnisse** und die **absoluten lokalen Vertikalgradienten des mittleren Alters der Luft**. Unter der realistischen Annahme, dass in den tropischen Regionen der Stratosphäre bis in circa 1400K (~ 35km) Mischungsvorgänge gegenüber dem vertikalen Aufstieg eine untergeordnete Rolle spielen (siehe Abbildung 2.10), sind normierte lokale vertikale Änderungen im Spurengasmischungsverhältnis $\frac{dx_{\theta}}{d\theta}$ auf der jeweiligen Isentrope (Index θ) nur auf photolytische Reaktionen zurückzuführen, welche vom vertikalen Transport in höher Schichten verlagert werden. Bedenkt man nun zusätzlich, dass der lokale Vertikalgradient des mittleren Alters $\frac{d\tau_{\theta}}{d\theta}$ hierbei die Zeit darstellt, die eine Änderung des Mischungsverhältnisses benötigt um von einer Isentrope zu einer höher liegenden zu gelangen, so kann die angenäherte photodissoziative Lebenszeit τ_{proxy} mit folgender Näherungsformel bestimmt werden:

$$\tau_{\text{proxy}} \approx -\frac{d\Gamma_{\theta}}{d\theta} \cdot \left(\frac{d\chi_{\theta}}{d\theta} \cdot \frac{1}{\chi_{\theta}} \right)^{-1}. \quad (9)$$

Das negative Vorzeichen ist nötig, da der Vertikalgradient ebenfalls negativ ist und nur so eine mathematisch sinnvolle positive Lebenszeit erhalten werden kann. Unter der weiteren Annahme, dass diese Lebenszeiten ebenso für die mittleren Breiten aussagekräftig sind, erhält man mit dieser Näherung realistische Lebenszeiten für alle Substanzen bis zu einer potentiellen Temperatur von 1400K. Darüber setzen durch das Abklingen der Transportbarrieren quasi-horizontale Mischungsprozesse ein, die obige Voraussetzungen für die Nutzung verletzen und so die genäherten Werte verfälschen. Diese Grenze betrifft aber aller Wahrscheinlichkeit nach nur N₂O und F12, da die beiden kürzerlebigen Spurengase ein Cut-Off-Level besitzen, welches deutlich niedriger liegt. Somit ist diese Methode für die Zielsetzung dieser Arbeit ausreichend und liefert realistische Abschätzungen für die Tracer-Analyse.

3.3.3 Bestimmung der Variabilitäten

Um abschätzen zu können, wie stark die **Mischungsverhältnisse der Tracer** und somit auch die **Tracer-Differenzen** innerhalb der einzelnen untersuchten Monate aufgrund der **atmosphärischen Variabilität schwanken**, muss die **Standardabweichung** dieser Spurengase im Vertikalprofil bestimmt werden. Diese Analyse ist notwendig, da nur so statistisch signifikante Aussagen über eine etwaig modifizierte stratosphärische Dynamik möglich sind. Ist die Variabilität der Atmosphäre quantitativ größer als die errechneten Tracer-Differenzen, so könnte dieses Ergebnis von atmosphärischer Variabilität überlagert werden und die Tracer-Differenzen wären in diesem Fall nicht aussagekräftig. Für experimentelle Ergebnisse hätte dies zur Folge, dass die modellierten Tracer-Differenzen mit einer realisierbaren Anzahl von in-situ Messungen nicht detektierbar sind und somit keine Untersuchung der BDC mit diesem Ansatz möglich wäre.

Allerdings ist bei dieser Methode damit zu rechnen, dass das EMAC-Modell, und damit die verwendeten instantanen Daten, die natürliche atmosphärische Variabilität **unterschätzt** und folglich die Schwankungen in der Realität größer ausfallen. Daher liefert diese Betrachtung nur eine ungefähre Abschätzung dieser Schwankungen und sollte deshalb als Mindestwert der Variabilität verstanden werden. Zunächst wird für jeden Punkt des Modellgitters eine **temporale Standardabweichung** berechnet, die angibt wie stark das Mischungsverhältnis eines Tracers innerhalb eines Monats um den Mittelwert dieses Zeitraums streut. Dies ist für atmosphärische Messungen relevant, da so untersucht werden kann, wie sehr einzelne Messergebnisse in einem Monat nur allein durch die Tatsache von einander abweichen, dass an unterschiedlichen Zeitpunkten detektiert wird. Dabei ist zu erwarten, dass aufgrund schwächerer dynamischer Prozesse, die Standardabweichung in den Sommermonaten der Nordhemisphäre minimal sein wird und erst im Winter ihr Maximum erreicht, was unter anderem durch den polaren Vortex verstärkt wird.

Die zweite Variante ist die der sogenannten **longitudinalen Standardabweichung**, welche eher einen anwendungsbezogenen Hintergrund haben. Hierbei wird für jeden Zeitpunkt innerhalb der vier ausgewerteten Monate für jede geographische Breite in allen Höhenschichten eine Standardabweichung ausgewertet, die angibt, wie stark gemessene Spurengasgehalte auf einer fixen geographischen Breite schwanken. Möchte man zu Beispiel atmosphärenchemische Messergebnisse aus Frankfurt am Main (Deutschland, ~ 50°N 8°E) mit in Calgary (Canada, ~ 51°N 114°W) erhaltenen Daten vergleichen, so ergibt sich allein durch die unterschiedliche Lage auf verschiedenen Längengraden eine Variabilität, die berücksichtigt werden muss. Da für die Tracer-Differenzen des EMAC-Modells allerdings ausschließlich zonal gemittelte Werte genutzt werden, ist hier die longitudinale Variabilität von eher untergeordneter Bedeutung.

Da die Standardabweichung von den Mischungsverhältnissen selbst berechnet wird, zur Analyse aber die Tracer-Differenzen zweier Zeitpunkte dieser Tracerprofile genutzt werden, müssen die erhaltenen Werte für die Variabilität auf die Tracer-Differenzen umgerechnet werden. Dies geschieht mit Hilfe der **Gauß'schen Fehlerfortpflanzung** durch folgende Formel:

$$\sigma_{\text{diff}} = \sqrt{\sigma_{t_1}^2 + \sigma_{t_2}^2} \quad (10)$$

Hierin ist σ_{t_1, t_2} die errechnete Standardabweichung des Tracerprofils zum Zeitpunkt t_1 beziehungsweise t_2 und σ_{diff} die zugehörige Standardabweichung des Tracer-Differenzenprofils $t_2 - t_1$. Tritt der Fall ein, dass die temporale Variabilität die Differenz überlagert, so kann durch den **mittleren Fehler des Mittelwerts** $\overline{\sigma_{\text{diff}}}$ berechnet werden, wie oft innerhalb eines Monats gemessen werden müsste, damit sich diese Schwankung auf ein ausreichend niedriges Niveau reduziert. Dazu dient folgende Gleichung:

$$\overline{\sigma_{\text{diff}}} = \frac{\sigma_{\text{diff}}}{\sqrt{n}} \quad (11)$$

Wobei n die Anzahl der notwendigen Messungen ist. Sollte sich hier herausstellen, dass die benötigte Anzahl von in-situ Messungen zu groß und damit in einem begrenzten Zeitraum nicht realisierbar sein sollte, so muss eine bessere Untersuchungsmethode herangezogen werden, bei der sich die interne Variabilität des Systems schon durch die Wahl der Betrachtungsweise reduziert. Diese Möglichkeit bietet die im Folgenden erläuterte Betrachtung auf N_2O -Isoplethen.

3.3.4 Transformation auf normierte N_2O -Isoplethen

Die Analyse kürzerlebiger Spurengase auf normierten N_2O -Isoplethen kann dazu genutzt werden, die berechneten Tracer-Differenzen auch bei zu starker natürlicher Variabilität mit etwaig modifizierten stratosphärischen Transportprozessen in Verbindung zu bringen. Dazu werden zunächst geeignete Spurengase ausgewählt und deren TTL-normiertes Mischungsverhältnis in den mittleren Breiten gegen das der Referenzsubstanz graphisch aufgetragen. Von den in dieser Arbeit analysierten Tracern eignen sich dazu H1211 und F11 am besten, da ihre mittlere atmosphärische Lebenszeit deutlich geringer ist, als die von Lachgas, welches damit die Referenz darstellt. F12 wird hier aufgrund der mit N_2O vergleichbaren Lebenszeit nicht betrachtet. Vergleicht man die über 10 Jahre monatsweise gemittelten Mischungsverhältnisse beider Gase mit dem der Referenz an zwei unterschiedlichen Zeitpunkten (zum Beispiel 1992 und 2002), so sollte sich hier bei einer Veränderung der Dynamik ebenfalls eine Verschiebung der Kurve zeigen. Eine **signifikante Veränderung des Graphen** deutet hierbei meist eine Modifikation der zugrundeliegenden Transportprozesse an, da sich der stratosphärische Gehalt des jeweiligen Tracers statistisch aussagekräftig ändert und dies durch die Wahl der N_2O -Vertikalkoordinate als Untersuchungsmethode nur in geringem Maße auf eine Schwankung durch Variabilität zurückführen lässt. Denn der Theorie nach sollten sich solche Unsicherheiten auf alle Tracer in der gleichen Art auswirken und so bei einer Darstellung dieser Substanzen gegeneinander deutlich reduzieren. Betrachtet man nun die Kurven dieser Analyse zu zwei unterschiedlichen Zeitpunkten, so sollte bei einer variabilitätgeprägten Tracer-Differenz die Fehlerbalken der beiden Kurven überlappen und die Verschiebung wäre nicht eindeutig der Dynamik zuzuordnen. Ist die Kurvenänderung größer als die beiden Fehlerbalken, so sind Schwankungen von untergeordneter Rolle und das Signal der modifizierten Dynamik zeigt sich in dieser signifikant verschobenen Kurve. Wichtig ist, dass die Richtung der Verschiebung einer Kurve nicht direkt mit dem Vorzeichen der Tracer-Differenz assoziiert werden kann. Dies entspricht den Erwartungen, da sich das N_2O -Mischungsverhältnis, und somit die Vertikalkoordinate, ebenfalls innerhalb der untersuchten Periode ändert und folglich alle Veränderungen des untersuchten kürzerlebigen Stoffes relativ zur Tracer-Differenz von N_2O zu sehen sind und von deren Amplitude abhängen. Generell lässt diese Betrachtung aber die Aussage zu, dass eine **signifikante**

Verschiebung der Kurve immer mit Tracer-Differenzen im entsprechenden Bereich der Stratosphäre einhergeht und somit äquivalente Schlussfolgerungen möglich sind. Wichtig für diese Methode ist die Unsicherheit der Graphen. Diese werden ebenfalls aus den instantanen Daten des EMAC-Modells für die vier betrachteten Monate bestimmt. Dazu wird zunächst die Vertikalkoordinate der Felder der Tracermischungsverhältnisse von der potentiellen Temperatur auf das N_2O -Mischungsverhältnis transformiert. Dann wird analog zu den Variabilitäten der Tracer-Differenzen die **temporale Standardabweichung** bestimmt und als Fehlerbalken an die Kurve der Mischungsverhältnisse aufgetragen. Ist eine entsprechende Verschiebung der Kurve größer als diese Fehlerbalken und ist im gleichen Bereich eine Tracer-Differenz im Vertikalprofil erkennbar, so kann mit statistischer Signifikanz ein Rückschluss auf zeitliche Veränderungen in der stratosphärischen Dynamik ermöglicht werden. Diese Methode ist somit ein sehr nützliches und aussagekräftiges Werkzeug, wenn es um die Identifikation und Erklärung von festgestellten Tracer-Differenzen geht.

4 Ergebnisse

In diesem Kapitel sind die Resultate der Datenauswertung gezeigt. Dabei werden zunächst die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen aus den unterschiedlichen Datensätzen über verschiedene Zeiträume dargestellt. Darauf folgt die Analyse der Variabilitäten der Spurengase und schließlich die Transformation der Vertikalkoordinate von potentieller Temperatur zu normiertem N_2O -Mischungsverhältnis zur Prüfung der Plausibilität der aus den Tracer-Differenzenprofilen gewonnenen Erkenntnisse. Zur Sicherstellung, ob aus beiden verwendeten Datensätzen äquivalente Schlüsse gezogen werden können, wird in Kapitel 6.2 im Anhang dieser Arbeit kurz die Konsistenz der Datengrundlage untersucht.

4.1 Vertikalprofile der Tracer-Differenzen

Hindcast-Datensatz 2007 - 1997

In Abbildung 4.1 sind die dem Hindcast zugehörigen Tracer-Differenzenprofile der mittleren Breiten gezeigt, welche sich aus der Differenz 2007 - 1997 ergeben. Die vier Grafiken stellen die Monate März (oben links), Juni (oben rechts), September (unten links) und Dezember (unten rechts) dar, was in allen folgenden Abbildungen analog ist. Der Index i kennzeichnet, dass es sich bei den jeweiligen Gasen um die erläuterten idealisierten Tracer handelt.

Es fällt auf, dass die Änderung des **mittleren Alters der Luft** und die Veränderung der **chemisch aktiven Tracer** in ihrem **relativen Verlauf** ein **korreliertes Verhalten** in allen vier Monaten aufweisen. Dort wo die Kurve der Spurengase in Richtung positiver Werte ausschlägt, reagiert der Verlauf der AOA-Differenzen mit einem Ausschlag in die entgegengesetzte Richtung. Dies ist deutlich in den Monaten März, Juni und September in der unteren Stratosphäre (bis circa 750K) erkennbar. Dort sind positive Tracer-Differenzen mit entsprechend negativen Werten der AOA-Kurve verbunden. Zusätzlich fällt auf, dass in allen Monaten die Werte der Altersdifferenz negativ sind. Diese beiden Fakten deuten an, dass sich die **Dynamik der BDC insgesamt** in dem hier dargestellten Bereich **verstärkt**, da die Luft so einerseits schneller durch die Stratosphäre transportiert wird, die Spurengase in größerem Maße in die Stratosphäre eingetragen werden und somit kürzere Verweilzeiten in der chemischen Abbauregion aufweisen. Ausgehend von den Resultaten von *Moore et al.*, 2013 wäre zu erwarten, dass in den unteren stratosphärischen Regionen die Tracer-Differenz für H_2 dominiert, während die für N_2O kaum einen von null verschiedenen Wert aufweist. Dies ist in Abbildung 2.12 ersichtlich und lässt sich damit begründen, dass N_2O in dieser Region noch als chemisch inert betrachtet werden kann (siehe Abbildung 4.2) und ein verstärkter Transport kaum Veränderungen der N_2O -Verteilung in der unteren Stratosphäre bewirken sollte. Abbildung 4.1 zeigt allerdings ein gegensätzliches Bild, in dem alle der dargestellten Tracer im Bereich von circa 500K deutliche Tracer-Differenzen besitzen und diese für N_2O eine größere Amplitude als für H_2 aufweisen. Diese Tatsache könnte auf die größere Komplexität des EMAC-Modells zurückgeführt werden, weil dadurch die stratosphärische Meridionalzirkulation umfassender modelliert werden kann und so die Wechselwirkung von Residualtransport und Mischung stärker ausgeprägt ist, als im idealisierten TLP-Modell. Allerdings ist es anhand der Abbildung nur schwer möglich diese Änderungen explizit auf die Residualzirkulation oder die Mischung zurückzuführen.

Zudem existieren auch Bereiche in denen das Feedback der Tracer weniger eindeutig ist. In den Monaten Juni und September ist bei circa 850K erkennbar, dass hier trotz negativer AOA-Differenz gleichzeitig negative Werte in der Tracer-Differenz zu verzeichnen sind. Zwar sieht man auch hier gut das identische relative Verhalten der Kurven, da die Kurve für das mittlere Alter mehr in Richtung positiver Werte ausschlägt. Dennoch ist diese negative Differenz aller in diesem Bereich aussagekräftigen Tracern unerwartet. Auch im Monat Dezember zeigt sich ein ähnliches Verhalten bei einer potentiellen Temperatur von etwa 550K. Zudem fällt auf, dass gerade im Dezember der Verlauf der Graphen der Spurengase eindeutig

variabler ist und stärker zwischen positiven und negativen Werten schwankt. Auch sind die Maxima der Ausschläge gedämpfter und die Altersdifferenz weniger negativ als in den drei übrigen Monaten. Eine plausible Ursache für dieses Verhalten könnte verstärkte Mischung und Residualtransport in die mittleren Breiten hinein sein, welche gerade im Dezember beispielsweise durch eine besonders große **Wellenaktivität auf der Nordhalbkugel** ausgelöst wird. Darüber hinaus könnte aber auch ein abgeschwächter **flacher Ast der Residualzirkulation** dazu führen, dass weniger Luft mit kleinerem Alter und höherer Tracerkonzentration aus den Tropen in die mittleren Breiten der Nordhalbkugel gebracht und mit der dortigen Luft gemischt wird. Die genaue Ursache zu klären erfordert tiefgehendere Nachforschungen, die den zeitlichen Rahmen dieser Arbeit übersteigen würden.

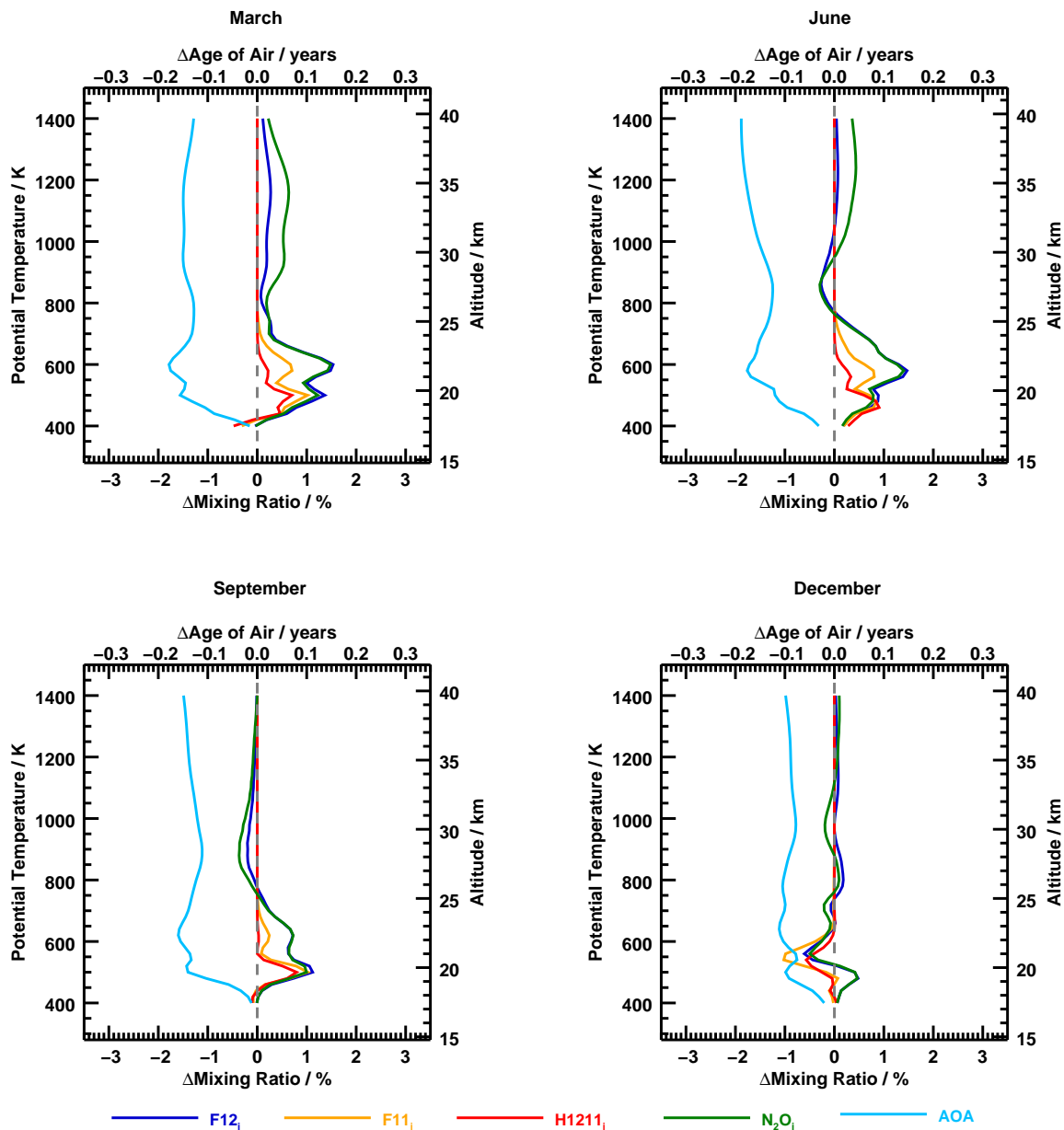


Abbildung 4.1: Tracer-Differenzen 2007 - 1997 in den mittleren Breiten

Dargestellt sind die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen zwischen 2007 und 1997 aus Hindcast-Daten für die Monate März (oben links), Juni (oben rechts), September (unten links) und Dezember (unten rechts). Die Profile sind über den Bereich von 50°N bis 40°N sowie zonal gemittelt.

Um zu klären, ob die hier gezogenen Schlüsse plausibel sind und auf eine modifizierte Dynamik zurückzuführen sind, muss das Cut-Off-Level bestimmt werden (siehe Kapitel 3.3.2). Das geschieht mit Hilfe von Abbildung 4.2, welche die photolytische Proxy-Lebenszeit im Vertikalprofil der Tropen (5°N bis 5°S) darstellt. Da in den Tropen die Photolyse aufgrund der Intensität der dort eingestrahlten solaren Strahlung ihr globales Maximum erreicht, liefert diese Betrachtung eine solide Abschätzung für das globale minimale Cut-Off-Level. Das bedeutet folglich, dass das in den Tropen berechnete Cut-Off-Level auf die Mittelbreiten übertragen werden kann.

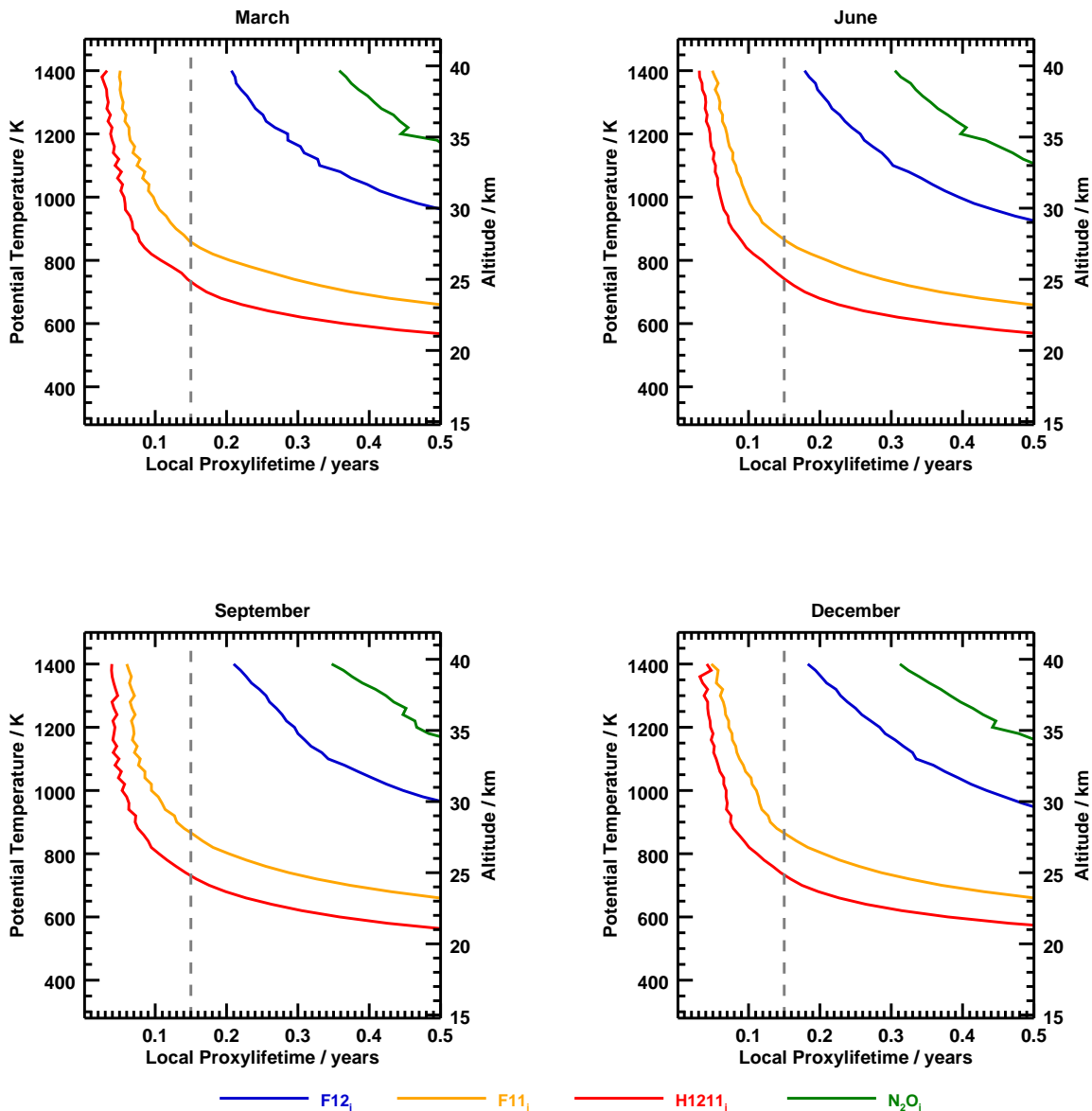


Abbildung 4.2: Cut-Off-Level des Zeitraums 2007 - 1997

Dargestellt sind die Cut-Off-Level der jeweiligen Spurengase in den vier betrachteten Monaten, gemittelt von 5°N bis 5°S und über die Perioden 1997 und 2007. Die graue Linie stellt die Zeitskala dynamischer Prozesse dar.

Anhand von Abbildung 4.2 wird klar, dass die approximativ bestimmten Cut-Off-Level (Schnittpunkt der einzelnen Lebenszeiten mit der grauen Linie), in allen vier Monaten beinahe auf der selben Isentrope liegen. Den Erwartungen entsprechend zeigt sich, dass aufgrund der geringen Saisonalität der solaren Ein-

strahlung in den Tropen die **Cut-Off-Level** in allen vier Monaten dieses Zeitraums weitgehend **konstant** sind. Zu bemerken ist außerdem, dass nur die Cut-Off-Level für **F11** (~ 900K) und **H1211** (~ 700K) genauer bestimmt werden können. Für N_2O und F12 liegen diese oberhalb der potentiellen Grenztemperatur von 1400K. Da oberhalb dieses Wertes die Mischungsbarrieren abklingen und so keine eindeutige Berechnung der Lebenszeit möglich ist, wird das Cut-Off-Level in solchen Fällen auf den **Grenzwert** von **1400K** festgesetzt. Es wird deutlich, dass die oben diskutierten Ausschläge der Kurven in Abbildung 4.1 für alle Substanzen **unterhalb** ihres jeweiligen **Cut-Off-Levels** liegen, sodass davon ausgegangen werden kann, dass die jeweilige Veränderung des Spurengasmischungsverhältnisses **dynamische Ursachen** hat und die **Photochemie** eine **untergeordnete Rolle** spielt. Dies lässt den Schluss zu, dass sowohl die Spurengase, als auch das mittlere Alter der Luft auf die veränderte Dynamik reagieren und ein erkennbares Signal zeigen. Folglich lassen sich demnach auch **chemisch aktive Tracer** in Kombination mit dem mittleren Alter der Luft zur Analyse der Veränderung stratosphärischer Dynamik einsetzen. Zur Klärung, ob die bisher erhaltenen Resultate plausibel sind, werden in Abbildung 4.3 die Tracer-Differenzen aus dem identischen Zeitraum für die Tropen gezeigt.

Hier fallen auf den ersten Blick zwei Tatsachen auf. Zum einen weisen die Graphen mehr Schwankungen zwischen dem positiven und negativen Bereich auf und unterliegen damit offenbar einer stärkeren Variabilität. Überdies lässt sich auch hier gut das korrelierte Verhalten des Alters und der chemischen Tracer erkennen, die analog zu den mittleren Breiten eine solide relative Reaktion auf das Signal der zugrunde liegenden veränderten Dynamik zeigen. Zum anderen ist auch hier die Differenz des mittleren Alters bis auf eine Ausnahme in 650K im März nur negativ und die Luft somit im Jahr 2007 vergleichsweise jünger als in 1997. Das kann, wie im Fall der Mittelbreiten bereits erläutert, auf eine im Allgemeinen stärkere BDC im tropischen Bereich der Stratosphäre hindeuten, weil die Luft schneller durch diese Region hindurch transportiert wird. Dadurch wird die Luft in größerer Menge mit in die Stratosphäre eintretenden Spurengasen angereichert, was auch hier die positiven Tracer-Differenzen erklären könnte. Interessant ist auch, dass die Amplitude der Tracer-Differenzen hier größer sind als in Abbildung 4.1. Eine Ursache hierfür könnte in den Tropen selbst liegen. Da dort die Luft von der Troposphäre in die Stratosphäre eintritt, können sich die Tracer aufgrund der kurzen Transportzeit nicht in dem Maße verteilen, wie sie es auf dem Weg in die mittleren Breiten tun können, und sind so noch vergleichsweise höher konzentriert.

Der bereits erwähnte Abschnitt im März mit den positiven Altersdifferenzen muss nicht unbedingt ein Zeichen einer dortigen abgeschwächten BDC sein. So könnte auch ältere Luft mit einem kleineren Tracermischungsverhältnis aus den Extratropen in diesen Bereich gemischt worden sein. Die Ursache hierfür genauer zu klären gestaltet sich gerade in Tropen besonders schwierig, da hier noch unter anderem die Einflüsse der quasi zweijährigen Oszillation (siehe zum Beispiel *Dunkerton, 1997* oder *Dunkerton und Delisi, 1985*) zu berücksichtigen sind, welche gerade auf der Zeitskala von 10 Jahren, die für diese Differenz genutzt wurde, nicht-lineare Effekte mit sich bringen. Zudem sollte ein einmaliger Ausschlag in den positiven Bereich bei sonst nur negativen nicht direkt als Zeichen einer schwächeren BDC gewertet werden, sondern durch weitere Studien untersucht werden. Darüber hinaus lässt sich auch in den Tropen erkennen, dass der Dezember im Vergleich zu den drei anderen Monaten gedämpftere Ausschläge besitzt und die Tracer-Differenzen im Bereich von -1% bis +1% schwanken. Hierbei fällt bei näherer Betrachtung auch auf, dass sich vor allem in der unteren tropischen Stratosphäre ($\theta < 800\text{K}$) ein Jahresgang erkennen lässt. Im März und Juni finden sich dort negative bis keine signifikanten Tracer-Differenzen, während diese im September und Dezember zu positiven Tracer-Differenzen wurden. An diesem Beispiel lässt sich auch wieder sehr gut das korrelierte Verhalten von Alter und chemischen Tracern erkennen, da das AOA mit entgegengesetztem Verhalten auf diesen Jahresgang reagiert. Daher kann auch in den Tropen davon ausgegangen werden, dass sich **chemisch aktive Tracer** und das **mittlere Alter** der Luft als Mittel zur **Untersuchung der Dynamik** eignen, da diese unterhalb ihres Cut-Off-Levels ein **statistisch signifikantes Signal** auf Änderungen im stratosphärischen Meridionaltransport zeigen. Die Abschätzung

der Ursachen gestaltet sich in dieser Region durch zusätzliche nicht-lineare Effekte allerdings als noch schwieriger, als in den mittleren Breiten. Ob sich dies alles auch in den Prognose-Daten zeigt, wird im folgenden für zwei unterschiedliche Perioden untersucht.

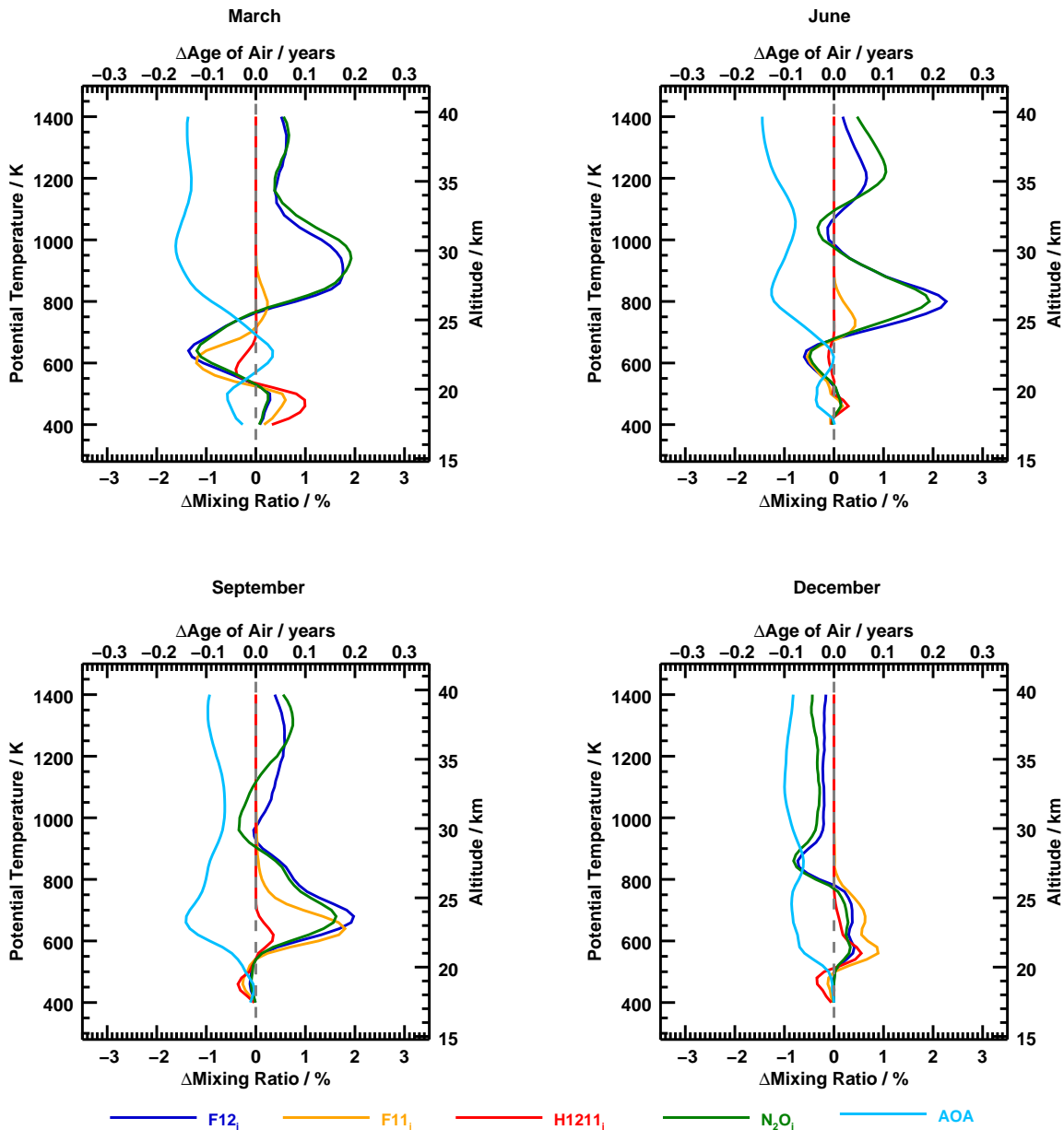


Abbildung 4.3: Tracer-Differenzen 2007 - 1997 in den Tropen

Gezeigt sind die Tracer-Differenzen aus Hindcast-Daten als Differenz aus 2007 und 1997 für die vier untersuchten Monate. Die Daten sind über 5°N bis 5°S und zonal gemittelt.

Prognose-Datensatz 2057 - 2047

In Abbildung 4.4 sind, analog zu 4.1, die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen der Mittelbreiten aus der Differenz 2057 - 2047 dargestellt, wobei die einzelnen Monate äquivalent zu oben angeordnet sind. Hier fällt zunächst einmal auf, dass der Kurvenverlauf der Spurengase sehr ähnlich zu denen in den mittleren Breiten des Hindcast-Datensatzes ist, auch wenn die Graphen hier glatter wirken als oben. Dies liegt wahrscheinlich an der Generierung der Modelldaten aus modellierten SST/SIC im RC2-base-

04-Datensatz. Es zeigen sich ähnliche positive Peaks in 650K diesmal sogar im Dezember, welche in ihrer Amplitude allerdings mit einer Differenz von +4% circa doppelt so groß sind, wie im Zeitraum 2007-1997. Auch ist das gut korrelierte Verhalten der Spurengase und des mittleren Alters zu erkennen, da diese sich wieder durch ein stark ausgeprägtes relatives Verhalten kennzeichnen. Dies deutet darauf hin, dass auch im Prognose-Datensatz zu einem zufällig gewählten Zeitpunkt die **Tracer in gleichem Maße** auf eine **Veränderung in der Dynamik** reagieren. Darüber hinaus zeigen auch die unterschiedlichen chemischen Tracer ein konsistentes Verhalten, bei dem H1211 nur Ausschläge bis in etwa 600K zeigt, während N₂O erneut bis zu einem Niveau von circa 1300K aufweist. Auch ist die Amplitude, wie bei den Abbildungen der Hindcast-Daten tendenziell geringer bei H1211 als bei N₂O.

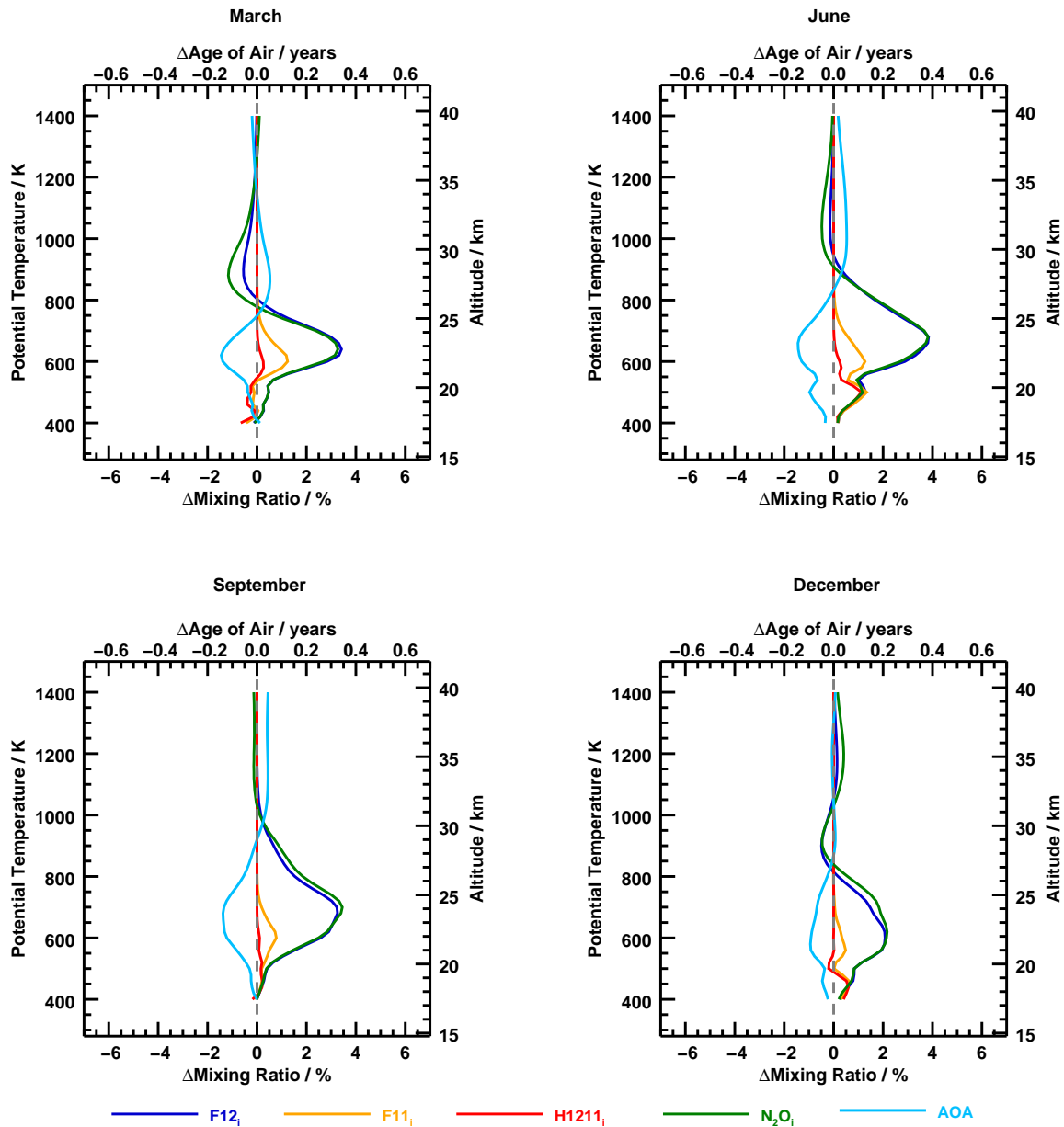


Abbildung 4.4: Tracer-Differenzen 2057 - 2047 in den mittleren Breiten

Aufgetragen sind die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen für die vier bekannten Monate aus den Prognose-Daten erstellt aus der Differenz 2057 und 2047 gemittelt über 50°N bis 40°N sowie zonal.

Diese Amplitude der Ausschläge in der unteren Stratosphäre ist, äquivalent zur obigen Abbildung 4.1, im Monat Dezember minimal mit F12-Werten von circa +2% und im Juni maximal mit F12-Differenzen von etwa +4%. Die Ursache hierfür könnte wieder in dem im Winter verstärkten Transport in der Nordhemisphäre liegen, welcher etwaige Tracer-Differenzen verringert. Dies alles legt die Theorie nahe, dass es sich hierbei um **statistisch signifikante Reaktionen** auf Einflüsse durch eine etwaige Änderung der stratosphärischen Dynamik handelt und unterstützen die These, dass auch **chemisch aktive** Tracer zur Untersuchung dieser Veränderungen genutzt werden können. Bemerkenswert ist allerdings der **Verlauf der AOA-Kurve**. Während in den Mittelbreiten im Zeitraum 2007-1997 in allen Monaten klar erkennbare negative Altersdifferenzen auftraten, muss in Abbildung 4.4 zwischen **oberer** und **unterer Stratosphäre** unterschieden werden. In den Regionen bis etwa 800K erhält man einen zu Abbildung 4.1 sehr ähnlichen Verlauf der Altersdifferenz im negativen Bereich mit einhergehenden positiven Tracer-Differenzen der chemischen Tracer.

Diese Kombinationen deutet, wie oben bereits beschrieben, auf eine **generelle Verstärkung der Brewer-Dobson-Zirkulation** in diesen Regionen der mittleren Breiten in allen Monaten hin, auch wenn dabei wieder nicht zwischen den Änderungen in der Mischung und denen in der Residualzirkulation unterschieden werden kann. Im Bereich oberhalb von 800K zeigt sich nun ein entgegengesetztes Verhalten. Dort ist in den Monaten März, Juni und September eine leichte positive Differenz im mittleren Alter zusammen mit einer entsprechenden negativen Differenz der chemischen Tracer zu erkennen. Nur im Dezember sind die Werte in der oberen Stratosphäre nicht aussagekräftig und zeigen keinen Trend an. In den anderen drei Monaten könnten dies implizieren, dass hier eher eine **Abschwächung der Zirkulation** in den **Mittelbreiten** stattfindet und so die Luft länger zum Durchqueren der Stratosphäre benötigt und eine geringere Tracer-Menge durch die extratropische Pumpe eingetragen wird. Um diese Resultate mit großer Wahrscheinlichkeit auf dynamische Prozesse zurückzuführen, muss erneut das Cut-Off-Level der chemischen Tracer bestimmt werden. Dazu wird Abbildung 6.1 genutzt, welche analog zu oben die photochemische Lebenszeit im Vertikalschnitt in den Tropen für den entsprechenden Analysezeitraum darstellt.

Zu erkennen ist, dass die Cut-Off-Level (Schnittpunkt der Kurven mit der grauen Linie) sehr ähnlich zu denen im Bereich 2007-1997 sind. So besitzen H1211 (~ **700K**) und F11 (~ **900K**) die niedrigsten, während F12 (**1400K+**) und N₂O (**1400K+**) die höchsten Cut-Off-Level aufweisen. Bei den letzten beiden Substanzen ergibt sich erneut das Problem, dass die Transportbarrieren oberhalb von 1400K nicht beständig sind und dort durch Mischung keine eindeutige Bestimmung des Cut-Offs möglich ist. Daher wird jenes hier wieder auf 1400K festgesetzt. Anhand dieser Analyse zeigt sich auch hier, dass alle zu erkennenden Tracer-Differenzen in Abbildung 4.4 **unterhalb** des **Cut-Offs** der jeweiligen Substanz liegt und daher auch hier die dynamischen Prozesse überwiegen. Daher kann davon ausgegangen werden, dass die oben gezogenen Schlüsse mit Hinblick auf eine Änderung in der Dynamik sehr wahrscheinlich und plausibel sind. Zur weiteren Untersuchung sind in Abbildung 4.5 die Profile der Tracer-Differenzen des Analysezeitraums in den Tropen aufgetragen.

Es zeigt sich ein zum Zeitraum 2007-1997 sehr konsistentes Bild. So besitzen das mittlere Alter der Luft und die chemischen Tracer auch hier wieder ein korreliertes Verhalten, auch wenn diese hier stärker zwischen positiven und negativen Werten schwanken als zur vorherigen Periode. Zudem sind die Ausschläge der Kurven in allen Monaten und dabei besonders im Juni in der unteren Stratosphäre (bis 800K) etwas mehr von Schwankungen im positiven Achsenbereich geprägt als vorher. Dies ist auch daran ersichtlich, dass die Maxima der Ausschläge in den Monaten März, Juni und September entgegengesetzt zu denen in Abbildung 4.3 sind. Zudem ist das Minimum der Tracer-Differenzen nicht wie vorher im Dezember zu finden, sondern diesmal im September. Diese Tatsachen deuten darauf hin, dass hier eine besonders ausgeprägte Variabilität der stratosphärischen Zirkulation in Kombination mit weiteren nicht-linearen Effekten vorliegt. Das macht eine **Aussage** über etwaige **Veränderungen der BDC deutlich schwieriger**

als im obigen Fall, sodass Rückschlüsse auf Mischung und Residualzirkulation beinahe unmöglich sind. Dies zeigt sich auch, wenn man sich den Verlauf der AOA-Kurve einmal genauer betrachtet und mit dem in Abbildung 4.3 vergleicht.

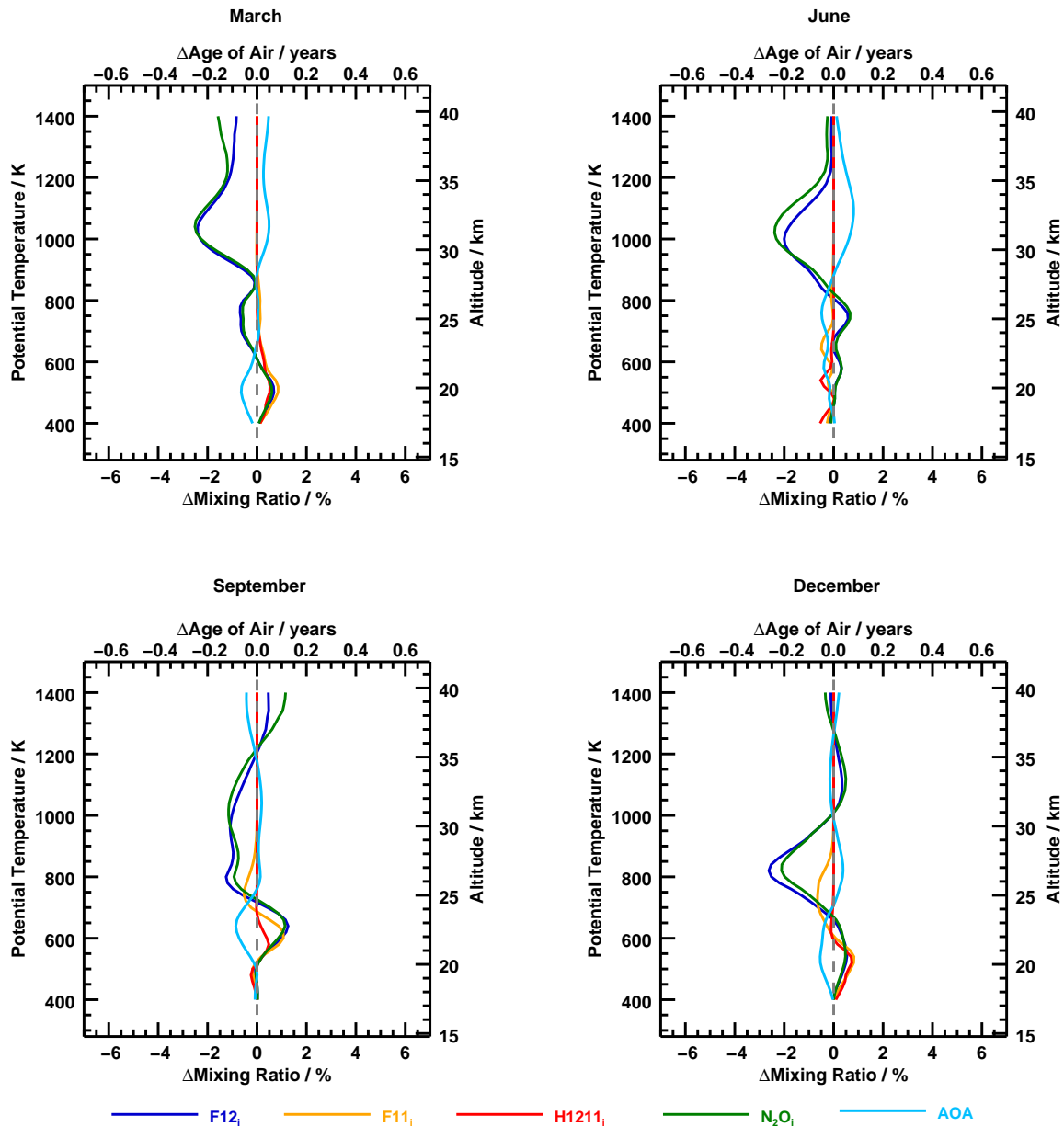


Abbildung 4.5: Tracer-Differenzen 2057 - 2047 in den Tropen

Dargestellt sind die Tracer-Differenzen des Prognose-Datensatzes aus der Differenz 2057-2047 gemittelt über 5°N bis 5°S sowie zonal.

Es fällt dabei auf, dass sich die zwei Bereiche, die sich für die Altersdifferenz in Abbildung 4.4 gezeigt haben, hier nicht wiederfinden. Im Monat September beispielsweise ist ersichtlich, dass bis zu einem Niveau von etwa 700K eine negative AOA-Differenz mit entsprechender positiver Tracer-Differenz ergibt. Darüber ist wenn überhaupt eine positive Altersdifferenz und eine deutlich negative Tracer-Differenz zu sehen. Und ab etwa 1200K stellt sich wieder eine Situation wie im untersten Bereich ein, in der die Differenz des Alters wieder negativ wird. Die Monate März und Dezember verhalten sich hierbei ähnlich. Dies könnte einerseits ein Indikator für die in Abbildung 4.4 gezogenen Schlüsse sein, dass sich die **Zirkulation**

unterhalb von **700K** in den Tropen allgemein eher **verstärkt**, **darüber bis** in ein Niveau von etwa **1200K** **abschwächt** und **oberhalb** davon **keine klare Aussage** über eine etwaige Änderung der Dynamik möglich ist, auch weil der Bereich über 1200K schon sehr nah an den sich auflösenden Transportbarrieren ist. Dadurch kann es vorkommen, dass der Einfluss der sonst in den Tropen eher schwachen Mischung zunimmt und die Tracer-Differenzenprofile dadurch schon verändert werden. Andererseits könnte dies auch durch **natürliche Schwankungen** in der sonst recht schwach ausgeprägten tropischen **Mischung** oder durch andere nicht-lineare Effekte herrühren und nicht zwangsläufig mit einer allgemein verstärkten beziehungsweise abgeschwächten Dynamik zusammenhängen. Dies stützt die These, dass eine klare Aussage über die Ursache hier nicht eindeutig zu treffen ist und weitere Untersuchungen nötig sind. Dennoch sieht man erneut, dass die chemischen Tracer und das Alter auf diese Signale in ähnlichem Maße reagieren und so mit weiterführenden Untersuchungen als Mittel zur Detektion von Transportänderungen genutzt werden können.

Prognose-Datensatz 2077 - 2027

Da die bisherigen Analysen mit einem Vergleichszeitraum von 10 Jahren noch einige kurzskalige Effekte beinhalten könnten, wird im Folgenden die Periode auf 50 Jahre verlängert. Damit sollte zum einen eine Glättung der Kurven gerade in mittleren Breiten erreicht werden, da die Variabilität durch diese Effekte verringert wird. Zum anderen könnte so ein besserer Trend erkennbar sein, weil es wahrscheinlicher ist größere und eindeutigere Tracer-Differenzen (positiv oder negativ) auf dieser längeren Skala zu sehen. Berücksichtigt man die Einschwingzeit des Modells mit den 5 Jahren Sicherheit, so wird klar, dass solch eine Untersuchung **nur** mit den **Prognose-Daten** möglich ist, da der Hindcast-Datensatz nur von 1965 bis 2011 verwertbar ist und daher keine zehnjährlichen Mittel über 50 Jahre erstellbar sind. Abbildung 4.6 zeigt dann die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen die sich aus der Subtraktion der zufällig gewählten Periode 2077 - 2027 ergeben und über den Bereich 50°N bis 40°N und zonal gemittelt wurden. Die Anordnung der Graphen ist identisch mit den obigen Bildern.

Man kann erkennen, dass die Kurven im Vergleich zu Abbildung 4.4 und besonders zu 4.1 geglättet wirken und gerade in der oberen Stratosphäre in nahezu allen Monaten geringere Amplituden zeigen. Außerdem wird klar, dass die **maximalen Tracer-Differenzen** in der **unteren Stratosphäre**, also bis etwa 650K, auftreten und bis auf kleine Ausnahmen im März nur in die **positive Richtung des Graphen** verlaufen. Oberhalb dieses Niveaus finden sich dagegen kaum vergleichbare Peaks, sodass die Kurven dort relativ parallel zur Ordinate liegen. Konsistent zu den obigen Bildern ist auch, dass die größten Amplituden im Monat Juni gefunden werden, während die minimalen in den Dezember fallen. Zusätzlich weist der Dezember auch den ungleichmäßigsten Verlauf der Tracer-Differenzen der chemischen Tracer untereinander auf. Dies könnte, wie oben bereits erläutert, auf die vergrößerte Wellenaktivität im nordhemisphärischen Winter zurückgeführt werden, da auf diese Weise starke Tracer-Differenzen durch bidirektionale Mischung mit Luftmassen außerhalb des Bereichs 50°N bis 40°N und eine zusätzlich intensivierte Residualzirkulation verringert werden. Beim Vergleich dieser Grafik mit den obigen Pendanten fällt auch auf, dass hier die maximalen Tracer-Differenzen nicht von F12 und N₂O erreicht werden, sondern von den kurzlebigen Substanzen F11 und H1211. Dies könnte mit der Tatsache zusammenhängen, dass die Maxima in dieser Grafik zumeist in einem niedrigen isentropen Niveau von 500K liegen, wohingegen sie oben im Bereich von 600K zu finden sind. Einen plausiblen Grund für diese Tatsache zu finden ist allerdings nicht trivial.

Interessant ist in dieser Grafik auch die Korrelation von mittlerem Alter und den Spurengasen. Wie zuvor lässt sich hier auch eine eindeutige **negative Korrelation** zwischen diesen Spurengasen und dem AOA erkennen. Wie bei den chemischen Tracern besitzt auch das mittlere Alter der Luft das Maximum der Differenz im unteren Bereich der Grafik und verläuft oberhalb von 800K in etwa bei einem konstanten Wert. Unerwartet ist, dass die Tracer-Differenzen für diese Periode quantitativ nur circa anderthalb mal

größer sind als die des Zeitraums 2057-2047, obwohl diese fünfmal größer gewählt ist. Dies zeigt sehr gut, dass sich die **einzelnen Trends der zehnjährigen Vergleiche nicht linear kombinieren** und diese Tracer-Differenzen somit in den einzelnen Dekaden nicht gleichförmig sind. Dennoch deuten die hier erhaltenen Ergebnisse an, dass sich über den Zeitraum von 50 Jahren die Mischungsverhältnisse der chemischen Tracer vergrößern, während das mittlere Alter der Luft in den Mittelbreiten kleiner wird.

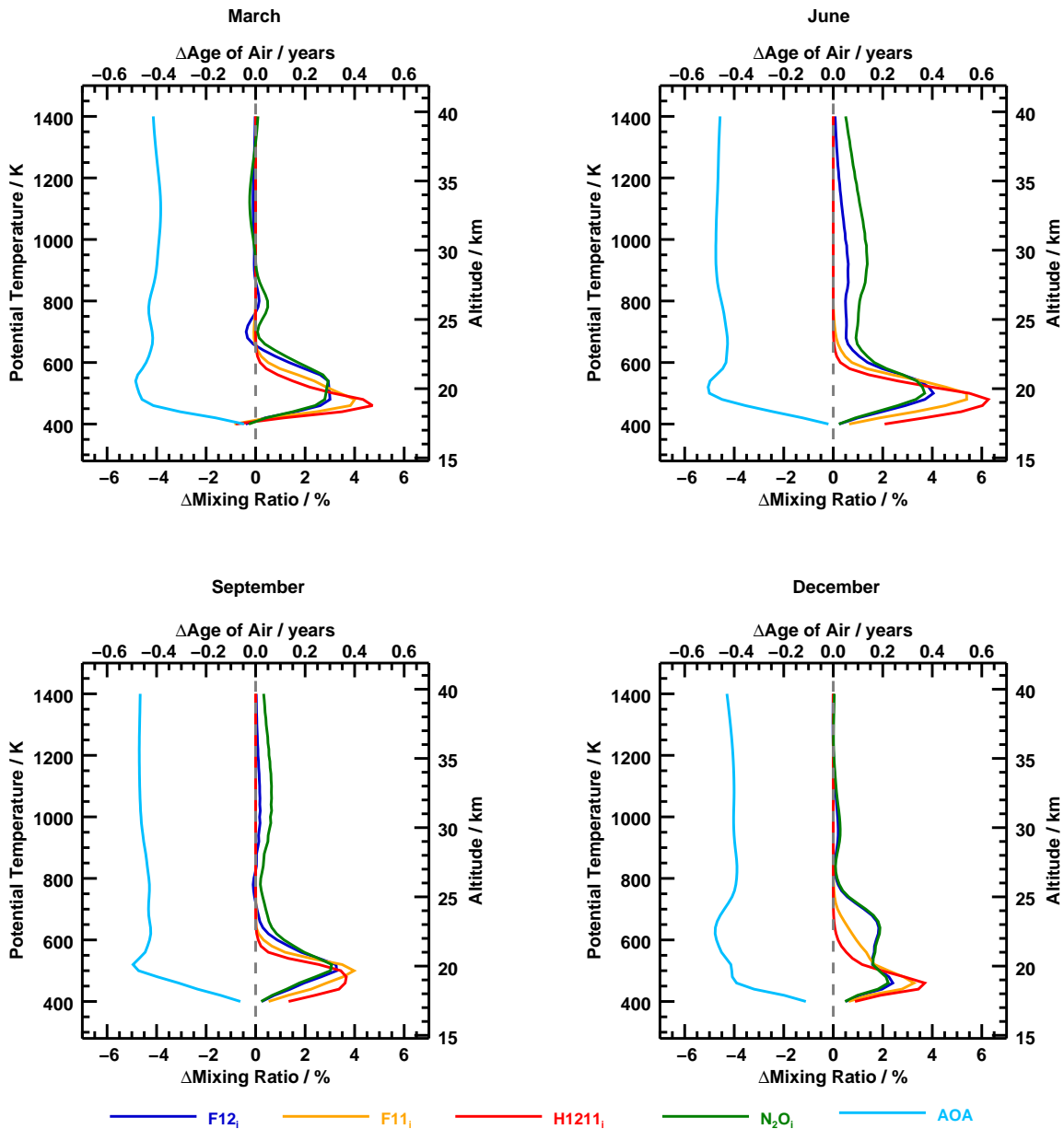


Abbildung 4.6: Tracer-Differenzen 2077 - 2027 in den mittleren Breiten

Abgebildet sind die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen für vier Monate des Prognose-Datensatzes aus der Differenz 2077-2027 gemittelt über 50°N bis 40°N sowie zonal.

Dies lässt, wie im Hindcast-Datensatz, den Schluss zu, dass sich die **BDC** über diesen Zeitraum **insgesamt verstärken** sollte. Zudem wirkt es so, dass dies besonders den **flachen Ast** dieser **Zirkulation** betreffen sollte, da die Tracer-Differenzen in der betreffenden Region ihr Maximum aufweisen. Eine genaue Differenzierung zwischen Mischungsprozessen und Residualzirkulation ist aber auch hier nur anhand dieser Grafik nicht möglich. Zur Überprüfung wird in Abbildung 6.2 im Anhang analog zu oben die

photolytische Lebenszeit im Vertikalschnitt gezeigt und mit der Transportzeitskala verglichen. Wie oben ermöglicht das eine Aussage über den Einfluss von Photolyse und Transport auf die Tracer-Differenzen.

Es ist ersichtlich, dass die Cut-Off-Level konsistent zu den vorherigen Analysen sind. So lässt sich das Cut-Off-Level der beiden kurzlebigen Substanzen H1211 und F11 erneut bestimmen zu circa **700K** und **900K**. Für die beiden langlebigen Stoffe F12 und N₂O muss hier wieder ein Cut-Off von **1400K+** angegeben werden. Anhand dieser Werte wird auch in diesem letzten untersuchten Fall klar, dass die Differenzen der Tracer weit unterhalb der entsprechenden Cut-Off-Level liegen und so davon ausgegangen werden kann, dass die gezogenen Schlüsse plausibel sind.

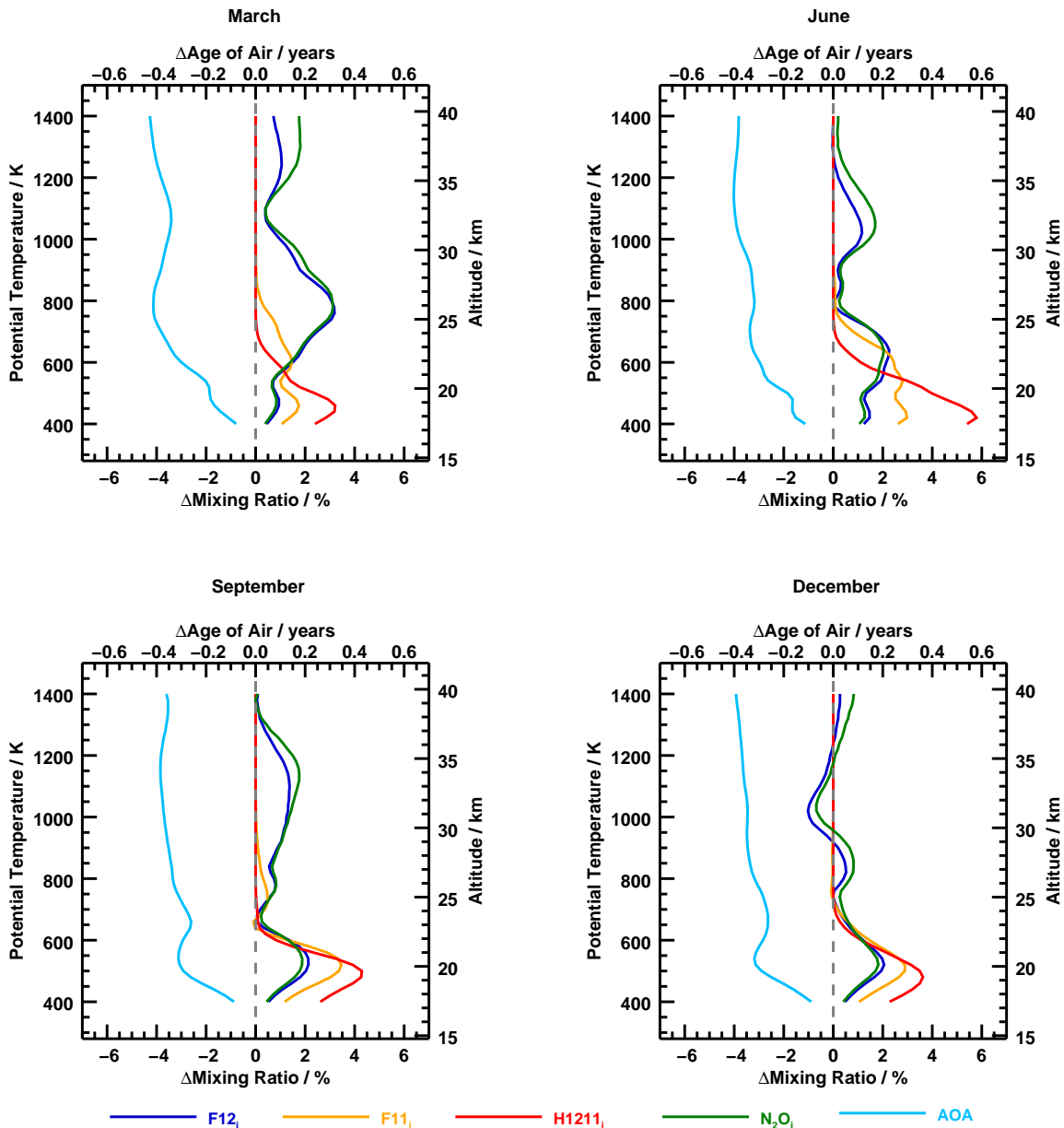


Abbildung 4.7: Tracer-Differenzen 2077 - 2027 in den Tropen

Gezeigt sind die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen der Prognose-Daten, welche sich aus der Subtraktion der Perioden 2077-2027 ergeben. Die Daten wurden über 5°N bis 5°S sowie zonal gemittelt.

Zuletzt wird nun zum Vergleich noch einmal ein Blick auf die tropischen Regionen in diesem Zeitraum

geworfen. Dazu sind in Abbildung 4.7 die Vertikalprofile der Tracer-Differenzen im zonalen und tropischen Mittel des Zeitraums 2077-2027 für die vier bekannten Monate aufgetragen. Diese Darstellung unterscheidet sich von den entsprechenden bisherigen Abbildungen. Dort unterlagen die Kurven einer deutlichen Schwankung und mäanderten zwischen positiven und negativen Tracer-Differenzen. In diesem Fall allerdings alternieren die Kurven zwar auch, aber für die **Spurengase** geschieht dies, mit einer Ausnahme im Dezember, ausschließlich im **positiven Bereich** und für das **mittlere Alter** komplett im **negativen Bereich**, sodass hier erstmals ein **gleichförmiger Trend** in den **Tropen** erkennbar sein könnte. Zudem zeigt sich auch hier, dass sich die Größe der Tracer-Differenzen nicht proportional mit der Länge des Vergleichszeitraums verändert und die einzelnen Dekaden keinen uniformen Trend haben. In konsistenter Weise zu den mittleren Breiten 2077-2027 erkennt man auch hier, dass die Peaks der Substanzen F11 und vor allem H1211 die der anderen quantitativ überragen. Es könnte sein, dass dies auch auf die niedrigere Isentrope (500K) zurückzuführen ist, bei denen diese Ausschläge auftreten.

Betrachtet man nun die Korrelation des mittleren Alters der Luft mit den chemischen Tracern, so ist zwar eine negative Korrelation zu erkennen, allerdings ist diese weniger stark ausgeprägt als in den vorherigen Fällen. Beispielsweise ist im Monat Juni bei einer potentiellen Temperatur von ungefähr 1050K ein positiver Ausschlag der Tracer F12 und N₂O ablesbar, welcher aber kaum mit einem negativen Peak im Graph des AOA einher geht. Dies könnte ein Indiz sein, dass hier **mittleres Alter** und **Spurengase** erstmals **unterschiedlich** auf ein bestimmtes **Signal reagieren**. Eine mögliche Ursache hierfür könnte sein, dass sich Veränderungen in der Mischung und der Residualzirkulation verschieden stark auf das AOA und die chemischen Tracer auswirken. So konnten *Li und Waugh, 1999* anhand eines zweidimensionalen Modells zeigen, dass das mittlere Alter der Luft sensitiver auf ein Signal aus der Veränderung der mittleren meridionalen Zirkulation als aus der Mischung zu reagieren scheint. Dies steht zwar teilweise im Widerspruch zum Konzept des Alterns durch Mischung von *Garny et al., 2014*, kann aber dennoch ein Hinweis darauf sein, dass die **Sensitivität der Tracer** für die **unterschiedlichen Komponenten der stratosphärischen Zirkulation** nicht zu vernachlässigen ist. Für ein besseres Verständnis dieser Einflüsse sind daher weiterführende Untersuchungen notwendig, um die genaue dynamische Ursache dieser Tracer-Differenzen zu klären. Nichtsdestotrotz ist eine negative Korrelation zwischen mittlerem Alter und Spurengasen erkennbar, sodass dynamische Veränderungen gerade in der unteren Stratosphäre und abgesehen von den erwähnten Bereichen die Tracer in ähnlichem Maße zu beeinflussen scheinen. In Kombination mit der Lage der Kurven legt diese Tatsache auch hier den Schluss nahe, dass sich die **stratosphärische Zirkulation** im Bereich der **Tropen** zu **intensivieren** scheint. Dies ist konsistent zu allen obigen Resultaten, auch wenn zur genaueren Klärung weitere Forschungsarbeit notwendig ist. Die gewonnenen Resultate aus diesen beiden Datensätzen sind sehr vielversprechend und aussagekräftig. Allerdings muss für eine konsistente Beschreibung noch überprüft werden, ob die Hindcast- mit den Prognose-Daten übereinstimmt. Dies muss nicht der Fall sein, da die Hindcast-Simulation beobachtete Werte der SST und SIC zum Antrieb des Modells nutzt, während die Prognose einen extern modellierten Datensatz für die SST und SIC verwendet. Da jedes **Klimamodell** eine **starke Eigendynamik** besitzt und sehr von diesen **Randbedingungen abhängt**, ist es nicht von vornherein gegeben, dass diese beiden Simulationen übereinstimmen müssen. Unterscheiden sich die erhaltenen Tracer-Differenzen aus RC1-base-07 und RC2-base-04 in einem identischen Zeitraum signifikant von einander, müssten sie getrennt von einander betrachtet werden. Dadurch ergäben sich zwei mögliche Interpretationen und eine **eindeutige Aussage** über die **erwartete Entwicklung des realen stratosphärischen Transports** wäre **nicht möglich**. Dies wäre besonders für die weitere Themenstellung dieser Arbeit relevant. So könnten die Modelldaten folglich nicht zur Abschätzung verwendet werden, ob sich solche dynamischen Veränderungen experimentell detektieren lassen, weil die Datensätze nicht übereinstimmen und keine konsistenten Ergebnisse liefern. Aus diesem Grund wird in Kapitel 6.2 im Anhang die Konsistenz der Datensätze repräsentativ für die Periode 2007-1997 untersucht.

Als kurzes Fazit bleibt festzuhalten, dass die ausgearbeiteten Resultate aus den Vertikalprofilen der Tracer-Differenzen sehr positiv zu bewerten sind. So konnte gezeigt werden, dass die aufgetretenen Tracer-Differenzen für alle betrachteten Regionen und Zeitintervalle unterhalb der jeweiligen Cut-Off-Level der Substanz lagen und es folglich sehr wahrscheinlich ist, dass diese Unterschiede **dynamischen Ursprungs** sind und nicht durch Veränderungen in der stratosphärischen Chemie verursacht werden. Weiterhin zeigten die Ergebnisse, dass alle Tracer ein gutes **negativ korreliertes Verhalten** mit dem mittleren Alter der Luft aufweisen und daher ähnlich auf Signale durch die modifizierte Dynamik reagieren, wobei hierbei eine **saisonale Schwankung** in der **Amplitude** erkennbar ist. Hierbei konnte sogar in einigen Grafiken ein Trend ausgemacht werden, welcher nahelegt, dass sich die **stratosphärische Zirkulation innerhalb des Modells** bis in ein Niveau von circa 700K besonders in den **mittleren Breiten zu intensivieren** scheint, da hier ein klar erhöhter Gehalt von Spurengasen in Kombination mit einem niedrigeren mittleren Alter der Luft zu identifizieren war. In den Tropen waren diese Tracer-Differenzen weniger eindeutig und variabler, als in höheren Breiten. Hier konnte aber gerade über den langen Vergleichszeitraum festgestellt werden, dass es Hinweise darauf gibt welche eine unterschiedlich starke Reaktion von mittlerem Alter und Spurengasen auf die einzelnen sich verändernden Komponenten der BDC (Mischung und Residualtransport) nahelegen. Generell ist eine **Unterscheidung** zwischen den genauen **Ursachen** dieser **Tracer-Differenzen** nur anhand dieser gezeigten Daten aber **nicht möglich**, sodass weitere Untersuchungen nötig sind.

Diese Schlussfolgerungen legen nahe, dass es möglich ist, eine veränderte stratosphärische Zirkulation auch anhand von chemisch aktiven Tracern festzustellen und man dadurch in der experimentellen Meteorologie ein verbreitertes Spektrum von Substanzen hat, welche zur Erforschung der Stratosphäre genutzt werden können. Denn die Menge der chemisch aktiven Substanzen ist weitaus größer, als die der inerten Substanzen. Ein Problem hierbei stellt die **natürliche Variabilität** der Atmosphäre dar, welche die recht kleinen Tracer-Differenzen überlagern könnte und ein statistisch robustes Resultat aus wenigen Messungen unmöglich machen würde. Aus diesem Grund soll im folgenden Kapitel diese Schwankungen analysiert und abgeschätzt werden, ob über experimentell ermittelte Mischungsverhältnisse Rückschlüsse auf die Veränderung der Dynamik möglich sind.

4.2 Variabilität der Tracer-Differenzen

Dieses Kapitel soll eine Abschätzung der natürlichen Variabilität für die Tracer-Differenzen liefern. Dazu wird mit Hilfe der beschriebenen instantanen Daten des Jahres 1992 für alle vier Monate die **temporale Standardabweichung** der Tracer-Differenz innerhalb eines entsprechenden Monats berechnet und ebenfalls im Vertikalprofil dargestellt. Diese Untersuchung wird hierbei nur für eine beliebig gewählte geographische Breite in den nördlichen Mittelbreiten gemacht, da eine ausführlichere Betrachtung den Rahmen dieser Arbeit übersteigen würden.

Zusätzlich wird analysiert, ob der Wechsel von geographischer zu äquivalenter Breite hier eine bessere Abdeckung der Variabilität mit sich bringt und sich die Standardabweichung auf diese Weise verringert. Zu beachten ist, dass die auf diese Art ermittelte **Variabilität der Profile** des Jahres **1992** als **universal gültig** angenommen werden. Dies ist eine sehr grobe und nicht unbedingt allgemeingültige Abschätzung, wobei es allerdings aufgrund der Größe der instantanen Datensätze im Rahmen dieser Arbeit anders nicht möglich ist die Variabilität genauer zu bestimmen. Abbildung 4.8 stellt die einzelnen temporalen Variabilitäten der vier Monate März, Juni, September und Dezember der Tracer-Differenzen im Vertikalprofil auf geographischer Breite dar. Die Daten beziehen sich auf den Punkt 50°N 8°E, was in etwa die Koordinaten der Stadt Frankfurt am Main sind.

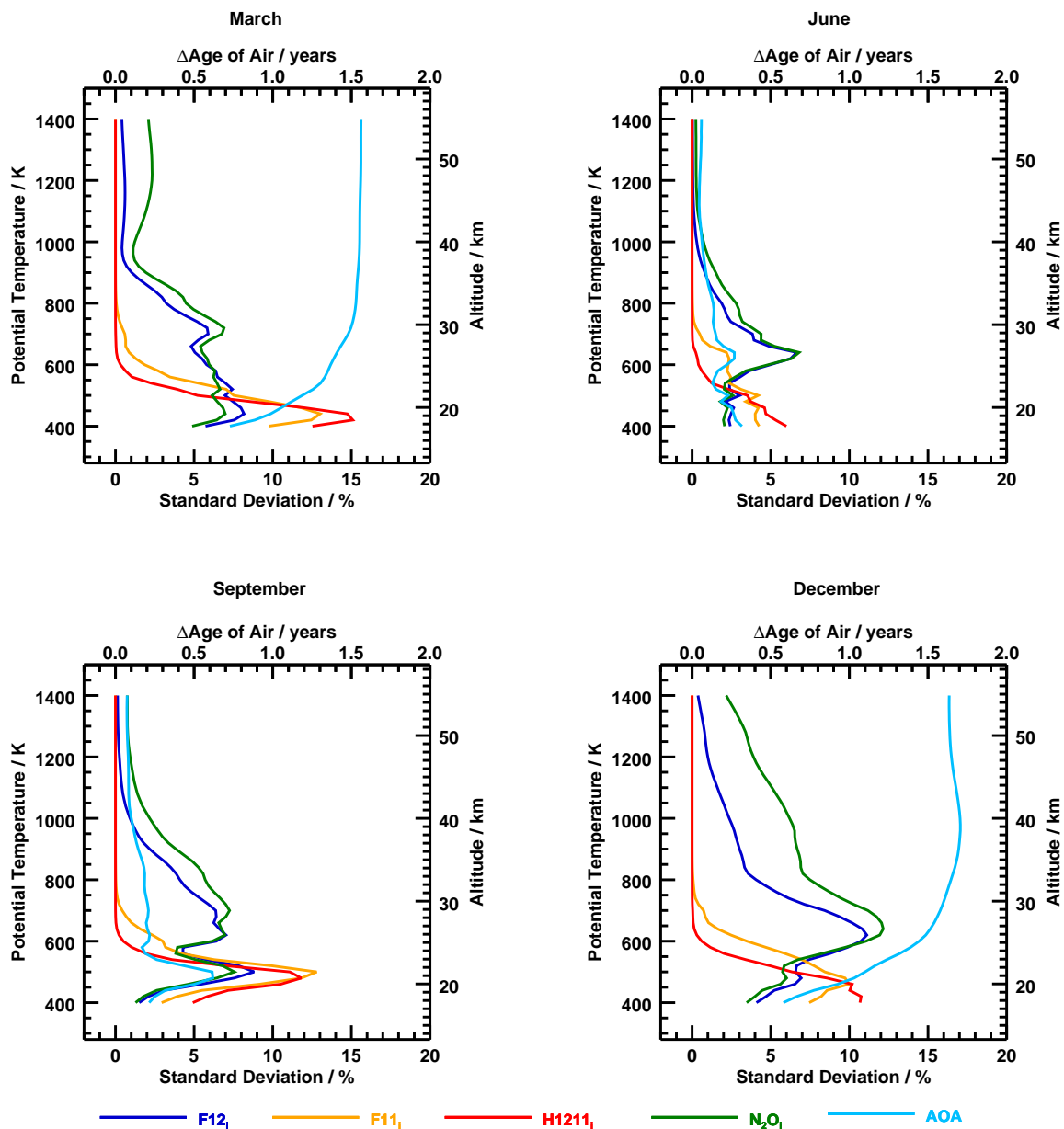


Abbildung 4.8: Temporale Variabilität auf geographischer Breite

Gezeigt ist die auf die TTL normierte temporale Standardabweichung der Tracer-Differenzen im Vertikalprofil für die vier betrachteten Monate bei 50°N und 8°E.

Wichtig ist, dass es sich bei den abgebildeten **Variabilitäten** um **Absolutwerte** handelt. Das heißt, besitzt beispielhaft H1211 auf der 500K-Isentrope im Juni eine zugehörige Differenz von +1%, so muss dies unter Berücksichtigung der Schwankung angegeben werden als $+1\% \pm 3\%$. Es zeigt sich hieran, dass diese Variabilität für die Belange der experimentellen Stratosphärenforschung keinesfalls zu vernachlässigen sind. So weisen gerade die **kürzerlebigen Spurengase** (H1211 und F11) besonders im Bereich der **untersten Stratosphäre** (~ 500K) besonders **starke Schwankungen** auf, während die der **langlebigen Tracer** (F12 und N₂O) erst im Bereich von etwa **700K** ihr **Maximum** erreichen. Darüber nimmt die Standardabweichung für alle Substanzen rasch ab, da die Photodissoziation dort stark zunimmt und so die Mischungsverhältnisse sehr schnell abnehmen. Neben diesen definierten Maxima lässt sich ebenfalls erkennen, dass die **größten Schwankungen** im **Dezember** auftreten, während die **geringsten Am-**

plituden im **Juni** verzeichnet werden. Dies ist entsprechend den Erwartungen, da der Juni sich durch besondere Stabilität und schwachen Transport auf der Nordhalbkugel kennzeichnet. Im Dezember hingegen kommt es durch das Wellenbrechen in der surf zone zu starker Mischung und Residualtransport in den hier dargestellten Mittelbreiten, was die Mischungsverhältnisse stark schwanken lässt. Zusätzlich kann der sich aufbauende Polarwirbel Einfluss auf die Verteilung der Tracer nehmen, was sich in einer vergrößerten Standardabweichung zeigt. Die restlichen beiden Monate stellen Übergangszeiten zwischen dem Minimum und Maximum der saisonalen Veränderung dar, weswegen der September zwar schon größere Amplituden als der Juni aber noch kleinere als der Dezember aufweist. Der März hingegen besitzt eine kleinere Amplitude als der Dezember aber immer noch eine stärkere Schwankung als der Juni, da die Vorgänge auf der winterlichen Nordhalbkugel langsam abklingen. Diese **Saisonalität der Variabilität** muss bei der Planung von Messungen berücksichtigt werden.

Interessant ist auch der Verlauf der Variabilität des mittleren Alters der Luft. In den sommerlichen Monaten Juni und September besitzt die AOA-Kurve eine positive Korrelation mit den Spurengasen, wobei das Maximum des Ausschlags im Juni auf einem Niveau von circa 600K und damit höher liegt, als im September (~ 500K). In den eher **winterlich geprägten Monaten** hingegen ist hier qualitativ **keine Korrelation** zwischen der **Standardabweichung des mittleren Alters** und der **chemischen Tracer** zu erkennen. Während die langlebigen Spurengase oberhalb von etwa 600K noch eine alternierende Standardabweichung besitzen, ist die Variabilität des mittleren Alters im Dezember und vor allem März ab dieser Isentrope beinahe höhenkonstant bei Werten von circa 1.5a. Eine Ursache hierfür könnte wieder in den dynamischen Prozessen der winterlichen Nordhemisphäre gefunden werden. Durch den Auf-/Abbau des Polarwirbels im Dezember/März könnte in Kombination mit starkem Transport und bidirektionalem Austausch, Luft aus höheren Schichten in die mittleren Breiten verbracht werden, sodass die dort in diesen beiden Monaten errechneten Alterswerte stark unterschiedlich sind und so die große Standardabweichung verursacht wird. Das scheint plausibel, da innerhalb des Wirbels oft mesosphärische Luft in die Stratosphäre absinkt und sich dort verteilen kann. Da solche Luftpakete oft mit einem breiten Altersspektrum einhergehen, könnten sich somit unterschiedliche Luftmassen vermischen und so die Variabilität des Alters im Vertikalschnitt vergrößert haben.

Die Analyse dieser Kurven macht deutlich, dass die Dimension der atmosphärischen Variabilität der Tracer-Differenzen zum Teil um ein Vielfaches größer ist, als die Tracer-Differenzen selbst. Dies macht eine exakte Messung der entsprechenden Tracer innerhalb eines Monats über mehrere Jahre und die Schlussfolgerung auf etwaig veränderte dynamische Prozesse sehr schwierig beziehungsweise aufgrund des Rauschens nahezu unmöglich. Es muss demnach eine Möglichkeit gefunden werden die Standardabweichung zu verkleinern. Hierzu gibt es zwei Überlegungen. Einerseits könnte durch einen Wechsel von geographischer auf die **äquivalente Breite** eine Filterung der planetaren Wellen und die mit diesen einhergehende atmosphärische Variabilität erreicht werden. Zum anderen könnten innerhalb eines Monats **multiple Messreihen** in der **identischen Region** durchgeführt werden. Der resultierende mittlere Fehler des Mittelwerts ist geringer als die Standardabweichung bei einer einzelnen Messung. Die dabei aufkommende Frage ist allerdings ob die resultierende Anzahl von Messungen in einem Zeitraum von einem Monat realisierbar sind. Zur weiteren Untersuchung zeigt Abbildung 4.9 die temporale Schwankung der Vertikalprofile der Tracer-Differenzen für die vier Monate auf äquivalenter Breite. Die Position ist mit 50°EQN (engl.: **EQ**ivalent **N**orth) konsistent zu 4.8 gewählt.

Zunächst einmal ist zu erkennen, dass das Konzept der äquivalenten Breite nicht die Saisonalität der Ergebnisse beeinflusst. So lässt sich gut die Ähnlichkeit mit den obigen Graphen feststellen. Im Juni sind wieder die kleinsten Amplituden der Ausschläge zu finden, während die Maxima im Dezember am größten sind. Auch weisen die Monate März und September das analoge Übergangsverhalten zwischen Sommer und Winter auf. Allerdings hat sich unerwarteterweise durch die Wahl der **äquivalenten Brei-**

te als Koordinate **keine nennenswerte Reduzierung** der **atmosphärischen Variabilität** eingestellt. Die Ausschläge der Kurven sind in nahezu allen betrachteten Monaten identisch mit denen in Abbildung 4.8. Nur im Monat Juni sieht man, dass sich das vorherige Maximum von F12 und N₂O auf der 650K-Isentrope von etwa 7% auf 3.5% reduziert hat. Und im Dezember zeigt zudem die AOA-Kurve einerseits ein verstärkt mäanderndes Verhalten und andererseits auch eine schwache Verkleinerung der Standardabweichung von circa 1.7 auf 1.5 Jahre.

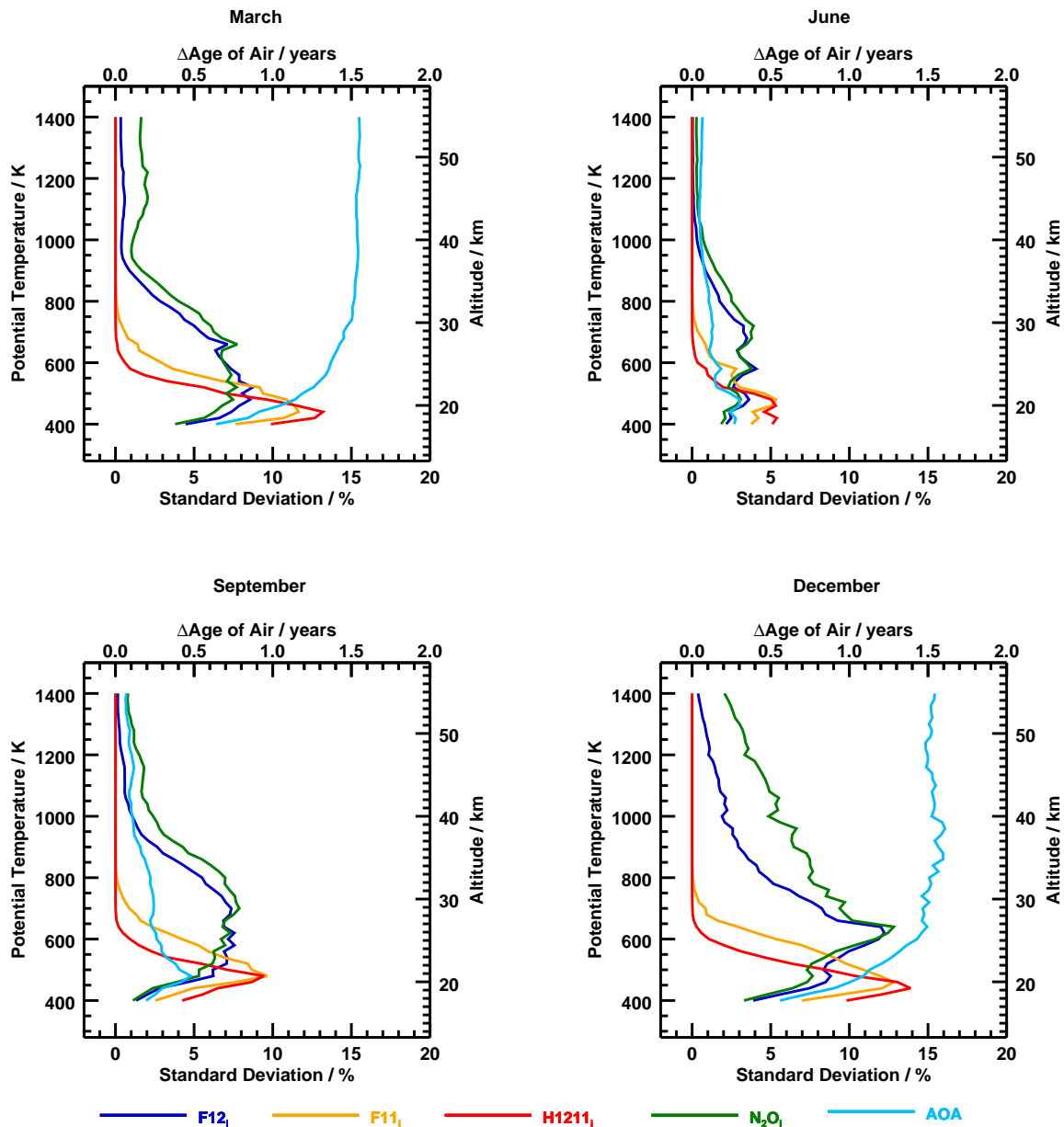


Abbildung 4.9: Temporale Variabilität auf äquivalenter Breite

Abgebildet ist die temporale Standardabweichung der Tracer-Differenzen im Vertikalprofil für die vier betrachteten Monate bei 50°EQN.

Dennoch existieren auch Bereiche in denen die Variabilität zugenommen hat. Beispielsweise haben sich die Werte der langlebigen Spurengase auf der 550K-Isentrope im September von vorher 5% auf beinahe 8% vergrößert. Und auch im März wurden die Kurven für diese Substanzen leicht in positive Richtung verschoben. Interessant hieran ist, dass nur die Spurengase mit langer photolytischer Lebenszeit diese

Vergrößerung zu zeigen scheinen. Hingegen bleiben die Standardabweichung von F11 und H1211 bei Wechsel von geographischer auf die äquivalente Breite konstant.

Diese Ergebnisse sind gegensätzlich zu den Erwartungen und mögliche Ursachen dafür nicht leicht zu identifizieren. Ein Grund könnte einerseits die **Berechnung der äquivalenten Breite selbst** sein. Dadurch, dass diese aus den Feldern der isentropen potentiellen Vorticity berechnet wird, welche selbst innerhalb eines Monats Schwankungen unterliegen, ergibt sich der Wert 50°EQN in diesem Zeitraum aus unterschiedlichen Zahlenwerten der IPV, wobei diese Abweichung vergleichsweise klein ist. Zum Beispiel einmal aus 55PVU und zu einem späteren Zeitpunkt aus 57PVU. Überlegt man nun weiter, dass diese unterschiedliche IPV jeweils mit unterschiedlichen Tracermischungsverhältnissen verbunden ist, könnte es sein, dass so die vergleichsweise große Variabilität zustande kommt. Bezogen auf das Beispiel könnte so der 55PVU-Wert mit einem F12-Mischungsverhältnis von 0.6ppt verbunden sein, während der 59PVU-Wert mit einem Mischungsverhältnis von 0.5ppt einher geht. Rechnet man dies nun auf den Zeitraum eines Monats hoch, ist es plausibel dadurch eine eigene Variabilität zu erhalten, die sich von der auf geographischer Breite kaum unterscheidet. Dies hinge dann mit der räumlichen Verteilung der Tracermischungsverhältnisse auf einer Hemisphäre zusammen, da diese bei der Koordinatentransformation auf die äquivalente Breite an eine andere geographische Breite verschoben werden. Dieses Konzept ist auch anhand des grünen Pfeils in Abbildung 2.8 ersichtlich. Eine weitere Möglichkeit dafür, dass das Konzept der äquivalenten Breite hier keine Verbesserung bringt ist die **Korrelation der potentiellen Vorticity** mit der **Lebenszeit der Spurengase**. Diese Überlegung baut auf der Berechnung der äquivalenten Breite auf. Damit eine Verringerung transportbedingter Variabilität erreicht wird, muss diese **Korrelation stark ausgeprägt** sein. Denn nur so gehen ähnliche Werte der PV mit ähnlichen Werten der Tracer-Mischungsverhältnisse einher und es wird eine Reduzierung der Variabilität auf äquivalenter Breite erzielt. Ist diese Korrelation schwach ausgeprägt, was in der surf zone durch das starke Wellenbrechen realistisch ist, so sind ähnliche PV-Werte durch die ausgelösten Mischungsprozesse mit teilweise stark unterschiedlichen Mischungsverhältnissen verbunden. Zwar sind durch die quasi-horizontale Mischung auch die isentropen Tracer-Gradienten klein, können aber dennoch eine gewisse Variabilität aufweisen. Diese prägt dann das Bild der Standardabweichung auf äquivalenter Breite in dieser Region und sorgt für die Ähnlichkeit mit der Variabilität auf geographischer Breite. Auf diese Weise ergibt sich dann im Vertikalschnitt ein Bild, was sich von der Betrachtung auf geographischer Breite kaum unterscheidet. Dies liefert auch eine Erklärung dafür, dass die äquivalente Breite mit kürzerlebigen Substanzen besser zu funktionieren scheint. Denn die Korrelation der Lebenszeit der Substanzen H1211 und F11 mit der PV ist besser, als die der beiden längerlebigen Spurengase. Daher ist eine Analyse der Variabilität auf äquivalenter Breite nur an Transportbarrieren (Tropopause, Polarwirbel, etc.) sinnvoll.

Fest steht allerdings, dass sich durch die Wahl der äquivalenten Breite als Koordinate keine Verringerung der Variabilität ergeben hat und sie in einigen Regionen sogar leicht zugenommen hat. Dadurch verkleinert dieses Konzept in den mittleren Breiten der Nordhalbkugel die Menge der für eine signifikante Aussage notwendigen atmosphärischen Messungen nicht auf eine realisierbare Anzahl. Zurück auf geographischer Breite, könnte die Nutzung von mehreren Messdaten an einem Punkt die Standardabweichung durch die Anzahl an Datenpunkten verbessern. Das geschieht über den mittleren Fehler des Mittelwerts, welcher in Kapitel 3.3.3 eingeführt wurde. Dazu muss allerdings ein Limit vorgegeben werden, auf welches man die Standardabweichung der einzelnen Tracer verringern möchte um eine **statistisch signifikante Aussage** zu ermöglichen. Dieser Grenzwert hat kleiner zu sein als die Tracer-Differenz, was bei der Abschätzung in Betracht gezogen werden muss. Überdies sollte für diese Betrachtung auf langlebige Tracer zurückgegriffen werden, da diese sich im oben betrachteten Zeitraum von 10 Jahren durch die größten Tracer-Differenzen gekennzeichnet haben. Betrachtet man hierzu Abbildung 4.1, da diese nun repräsentativ für die Gegenwart steht, kann man erkennen, dass im Juni auf der 600K-Isentrope das Maximum der Tracer-Differenz von F12 und N_2O bei circa +1.5% liegt. Eine mögliche Wahl des Limits auf das

man die zugehörige Variabilität verringern möchte könnte hier 1% sein, weil dieser Wert einerseits kleiner als 1.5% ist und andererseits noch nicht zu gering sein sollte, sodass eine vernünftige Anzahl an durchzuführenden Messungen erhalten werden könnte. Für das mittlere Alter der Luft wird diesem Grenzwert entsprechend der Absolutwert 0.1a gewählt. In Tabelle 4.1 sind die Ergebnisse dieser Berechnung für die Position 50°N 8°E und gemittelt von 400K bis 1400K beziehungsweise 800K dargestellt.

Tabelle 4.1: Anzahl hypothetischer Messungen in der Stratosphäre bis 1400K und 800K

	F12	F11	H1211	N ₂ O	AOA
März	9 (36)	4 (19)	3 (14)	15 (37)	210 (170)
Juni	3 (11)	1 (5)	1 (3)	4 (12)	2 (4)
September	8 (30)	3 (15)	2 (10)	12 (31)	3 (8)
Dezember	17 (55)	4 (18)	2 (11)	40 (69)	231 (171)

Darin gibt die erste Zahl die Anzahl von experimentellen Messungen bis 1400K an. Der zugehörige Wert in Klammern drückt die Messanzahl aus, die man unter Berücksichtigung der Tatsache erhält, dass mit modernen und kosteneffizienten Methoden (zum Beispiel AirCore (*Karion et al.*, 2010)) effektiv nur bis in eine Höhe von etwa 35km (~800K) vorgedrungen werden kann. Grundlage für diese Berechnung sind die ermittelten Variabilitäten aus Abbildung 4.8. Es fällt auf, dass im Fall der Spurengase die Zahlenwerte der über die komplette Stratosphäre gemittelten Anzahlen immer geringer sind, als die der korrespondierende Wert in Klammern. Dies ist getreu den Erwartungen, da die größten Variabilitäten in der unteren Stratosphäre zu finden sind und diese so bei der Begrenzung des Bereichs auf 400K bis 800K und anschließender Mittelung stärker gewichtet werden. Auch zeigt sich, dass die kurzlebigen Tracer eine kleinere Anzahl von Messreihen zur Verringerung von atmosphärischen Schwankungen benötigen. Das lässt sich auch mit Hilfe von Abbildung 4.8 begründen. Dort ist ersichtlich, dass die Ausschläge der Kurven von H1211 und F11 in allen Monaten vertikal auf einen schmalen Bereich der untersten Stratosphäre begrenzt sind. In den darüberliegenden vergleichsweise großen Region nimmt die Variabilität dieser Substanzen rapide ab, sodass der Mittelwert in großem Maße von diesen kleinen Schwankungen im Bereich von circa 600K bis 1400K beziehungsweise 800K beeinflusst wird. Die langlebigen Tracer hingegen weisen deutliche Peaks bis in ein isentrope Niveau von etwa 900K auf, sodass hier die kleinen Variabilitäten darüber weniger stark gewichtet werden. Beschränkt man die Region der Mittelung von 400K bis 600K (Tabelle 4.2), so zeigt sich, dass die korrespondierende Anzahl von Messungen der Substanzen F11 und H1211 nun größer ist, als die der langlebigen Tracer.

Tabelle 4.2: Anzahl hypothetischer Messungen in der Stratosphäre bis 600K

	F12	F11	H1211	N ₂ O	AOA
März	49	60	49	40	131
Juni	9	12	10	7	5
September	27	44	36	21	12
Dezember	50	55	40	42	112

Anhand dieser Analyse zeigt sich auch, dass jeweils die Variabilität und somit auch die Zahl der Messreihen der langlebigen Tracer und die der kurzlebigen Tracer in den drei betrachteten Bereichen positiv miteinander korreliert sind. Bei den Werten für die Messungen des mittleren Alters der Luft fällt auf, dass jene aus den sommerlichen Monaten ein identisches Verhalten zu den chemischen Tracern aufweisen. Das äußert sich dadurch, dass die Menge von Messungen gemittelt bis in 800K/600K größer ist, als die bis in ein Niveau von 1400K gemittelte. In den Wintermonaten hingegen ist dies genau umgekehrt. Dort ist die Anzahl bis in 800K geringer als für den ausgedehnteren Bereich. Dieses Verhalten ergibt sich auch bei Betrachtung von Abbildung 4.8, da die Wintermonate genau jene Monate sind, in denen die

Variabilität des Alters einen enormen positiven Vertikalgradienten besitzt. Bei entsprechender Mittelung über diese Region werden folglich diese großen Schwankungen stark gewichtet.

Neben dem Unterschied, welcher sich aus den verschiedenen Mittelungsgebieten ergibt, ist auch hier analog zu den Tracer-Differenzen eine Saisonalität erkennbar. So weist der Juni die geringste atmosphärische Variabilität bei allen Substanzen auf, während der Dezember und der März die stärksten Schwankungen der Tracer-Profile zeigen. Dies ist konsistent zu den erhaltenen Ergebnissen der Tracer-Differenzen, da dort im Juni die größten Tracer-Differenzen und im Dezember die niedrigsten detektiert werden konnten. Die Erklärung für diese Phänomene liegt, wie bereits ausgeführt, im stratosphärischen Transport. Jener ist durch die stärkere Wellenaktivität auf der winterlichen Nordhalbkugel im Dezember und März größer, sodass in diesen Monaten Gradienten im Mischungsverhältnis durch Mischung und Residualzirkulation besonders effizient abgebaut und dadurch innerhalb eines Monats große Schwankungen in den Mischungsverhältnissen und dem Alter an einem fixen Ort hervorgerufen werden.

Insgesamt lässt sich somit festhalten, dass die atmosphärische Variabilität nicht zu vernachlässigen ist und bei der experimentellen Detektion neben den Fehlergrößen der Messgeräte (Ausblick in Kapitel 5) berücksichtigt werden muss. Auch die Saisonalität dieser Standardabweichung ist klar erkennbar. Außerdem zeigte sich, dass die Größenordnung der Tracer-Differenzen viel geringer ist, als die der Schwankungen. Dadurch wird das Signal der modifizierten stratosphärischen Zirkulation, welche sich in den Tracer-Differenzen äußert, durch das natürliche Rauschen überlagert und eine Bestimmung dieser Veränderung mit einigen wenigen Messreihen unmöglich gemacht. Auch die Wahl der äquivalenten Breite hat hier entgegen der Erwartung keine Verbesserung gezeigt. Die Durchführung mehrerer Messreihen ist somit eine sinnvolle Möglichkeit die Variabilität zu reduzieren. Hierbei wurde festgestellt, dass nur in den Sommermonaten in der unteren Stratosphäre eine für alle Tracer vernünftige und eventuell realisierbare Anzahl an Messungen erhalten wurde. So könnte beispielsweise für F11 mit 12 Messungen bis in 600K im Monat Juni die Standardabweichung auf 1% beziehungsweise 0.1a gesenkt werden, sodass diese das Signal der Tracer-Differenzen nicht mehr überlagert. Selbstverständlich ist eine Schwankung von 1% bei einer Tracer-Differenz von +1.5% bis +2% keinesfalls gering, aber dennoch ermöglicht dies vertretbare Aussage anhand von Messwerten über eine etwaige Modifikation der stratosphärischen Meridionalzirkulation. Dennoch könnte eine geeignetere Methode dazu beitragen, die Standardabweichung noch weiter zu senken und so über den vergleichsweise kurzen Vergleichszeitraum von 10 Jahren eine statistisch signifikante Aussage über die Änderung der Zirkulation zu treffen. Dazu wird im Folgenden das normierte Mischungsverhältnis von H1211 und F11 auf normierten N_2O -Isoplethen analysiert.

4.3 Betrachtung auf normierten N_2O -Isoplethen

Damit die in Kapitel 4.1 und 4.2 erhaltenen Resultate und daraus gezogenen Schlüsse weiter untersucht und abgesichert werden können, wird in diesem Kapitel abschließend das normierte Mischungsverhältnis von H1211 und F11 gegen das von N_2O graphisch analysiert und die Lage der Kurve zu einigen oben genutzten Zeitpunkten untersucht. Dies dient auch zur Überprüfung ob diese Methode mit Hilfe von experimentell gewonnenen Daten zur qualitativen Untersuchung einer modifizierten stratosphärischen Dynamik eingesetzt werden kann. Vorteil hieran ist, dass die transportbedingte Variabilität der Spurengase geringer ist, da die Verlagerung für alle Tracer in gleichem Maße erfolgt. Somit kann dieser Vergleich zweier Tracer auch schon durch einige wenige Messreihen ein robustes und signifikantes Ergebnis liefern. Da diese Methode nur unterstützend ausgewertet werden soll, wird hier beispielhaft der Bereich 50°N bis 40°N für die vier Monate März (links oben), Juni (rechts oben), September (links unten) und Dezember (rechts unten) betrachtet werden. Abbildung 4.10 zeigt das Mischungsverhältnis von H1211 und N_2O für die dekadischen Mittelungszeiträume 1997, 2007, 2057 und 2077, welche analog zu den obigen Grafiken gewählt wurden.

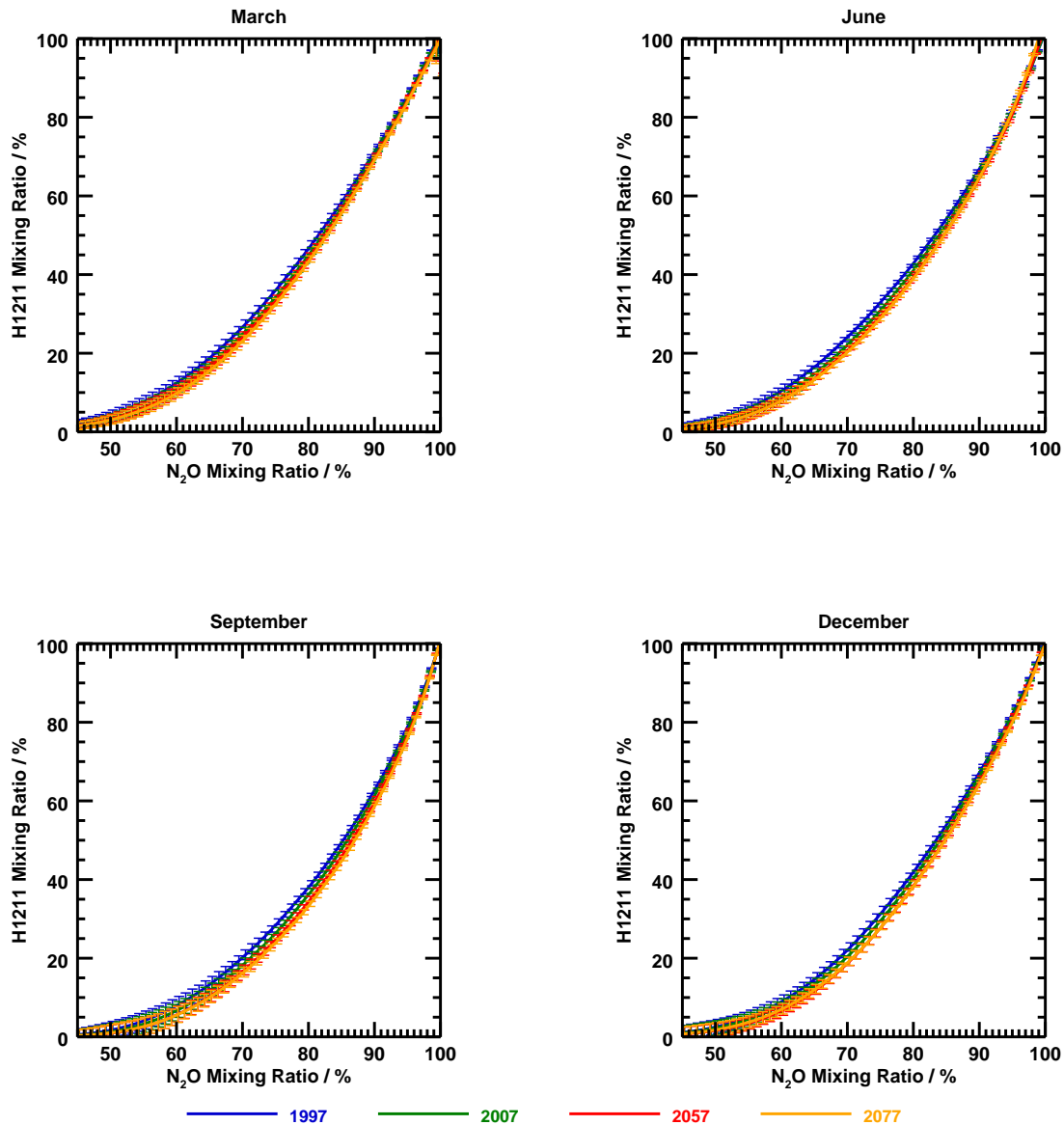


Abbildung 4.10: Normiertes H1211-Mischungsverhältnis auf N_2O -Isoplethen in den mittleren Breiten
 Graphisch aufgetragen ist das Mischungsverhältnis von H1211 gegen das von N_2O für die vier Monate März, Juni, September und Dezember in den Perioden 1997, 2007, 2057 und 2077 für den kompletten Wertebereich. Die Mischungsverhältnisse wurden über $50^\circ N$ bis $40^\circ N$ sowie zonal gemittelt.

Die zugrundeliegenden Daten stammen in diesem Kapitel nur aus dem Prognose-Datensatz und sind analog zu oben auf das zugehörige Mischungsverhältnis an der tropischen Tropopause normiert. Die Wahl der Prognose-Daten begründet sich einerseits dadurch, dass die Konsistenz dieser Datensätze gezeigt wurde und somit angenommen werden kann, dass sich die so erhaltenen Ergebnisse übertragen lassen (siehe Kapitel 6.2). Zum anderen lassen die Prognose-Daten eine Untersuchung bis zum Ende dieses Jahrhunderts zu, sodass eine deutlichere Verschiebung der Kurven erwartet werden kann. Wichtig ist, dass die Standardabweichungen identisch zu oben sind und sich nur durch eine Transformation der Vertikalkoordinate von potentieller Temperatur zu prozentualen N_2O -Mischungsverhältnis von den vorher bestimmten Werten unterscheiden. In der Darstellung in Abbildung 4.10 ist nur der relevante

Wertebereich dieser Mischungsverhältnisse abgebildet. Es fällt auf, dass die Kurven der unterschiedlichen Perioden in allen vier Monaten **zu eng beieinander liegen** um ihre jeweilige Verschiebung inklusive der Fehlerbalken zu analysieren. Es lässt sich zwar ansatzweise erkennen, dass eine Verschiebung vorliegt, aber um diese genauer zu untersuchen muss ein **kleinerer Ausschnitt** dieser Grafik gewählt werden. Anhand von Abbildung 4.10 lässt sich ungefähr abschätzen, dass die maximale Verschiebung der Kurven im Bereich von 65% und 75% des normierten N_2O -Mischungsverhältnisses auftritt. Aus diesem Grund werden die Bereiche der Achsen in den folgenden Abbildungen entsprechend angepasst. Dies verdeutlicht auch, dass sich diese Methode nicht zur Analyse aller Bereiche der Stratosphäre eignet.

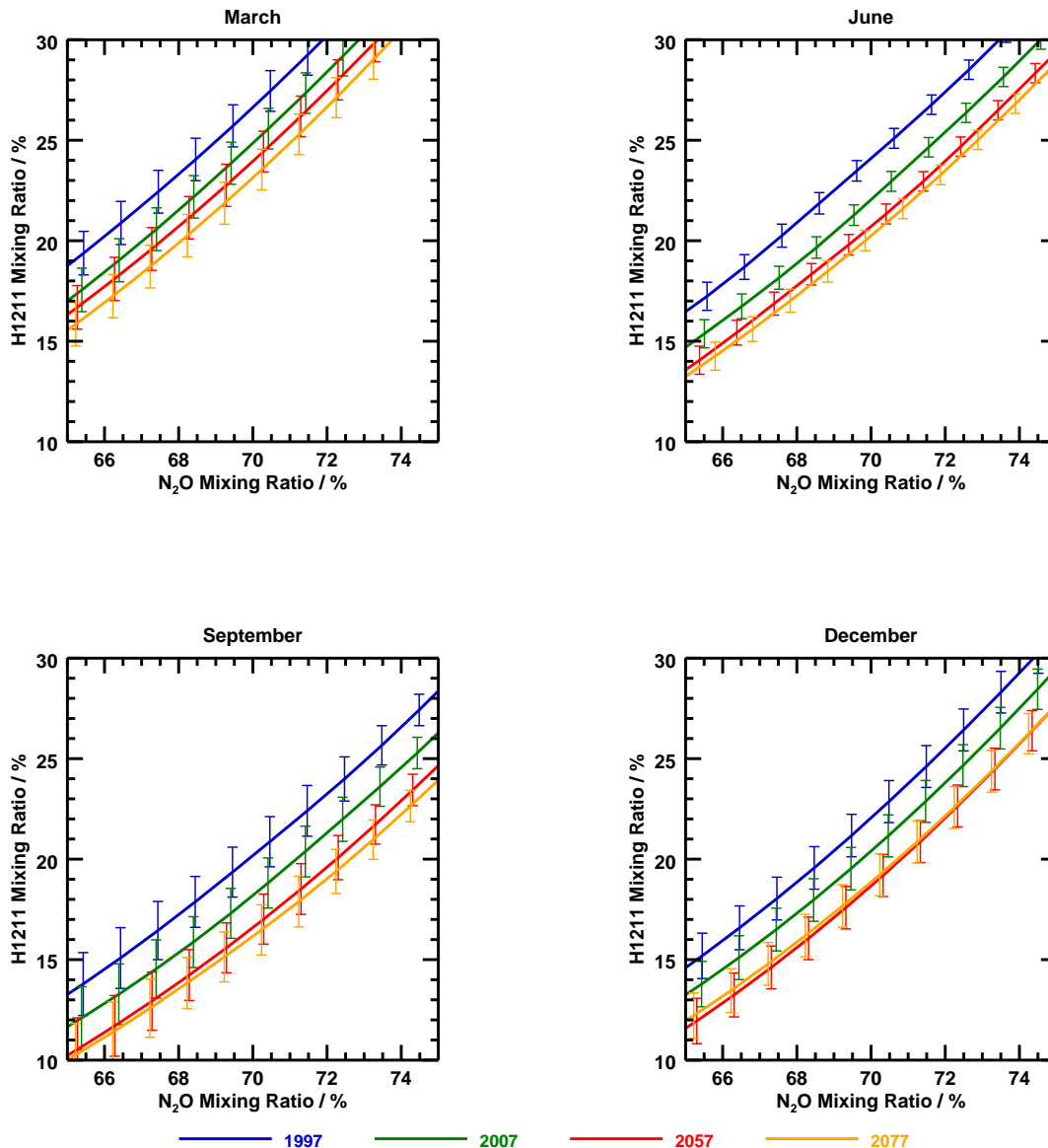


Abbildung 4.11: Ausschnitt des normierten H1211-Mischungsverhältnisses auf N_2O -Isoplethen in den mittleren Breiten. Graphisch aufgetragen ist ein Ausschnitt des Mischungsverhältnisses von H1211 gegen das von N_2O für die vier Monate März, Juni, September und Dezember in den Perioden 1997, 2007, 2057 und 2077. Die Mischungsverhältnisse wurden über $50^\circ N$ bis $40^\circ N$ sowie zonal gemittelt. Die Standardabweichungen sind nicht als Zonalmittel, sondern für $8^\circ E$ äquivalent zu oben gewählt.

Abbildung 4.11 zeigt einen Ausschnitt des H1211-Mischungsverhältnisses in den nördlichen Mittelbreiten für die dekadischen Mittelungsperioden 1997, 2007, 2057 und 2077. Zu erwähnen ist, dass die Werte im Bereich von 65% und 75% des N_2O -Mischungsverhältnisses zwischen den isentropen Leveln 550K und 500K lokalisiert werden können. Diese Tatsache zeigt, dass die **Methode** der N_2O -**Isoplethen konsistente Ergebnisse** zu liefern scheint, da in dieser Region der Stratosphäre die maximalen Tracer-Differenzen detektiert werden konnten und die Verschiebung der Kurven hier ebenfalls maximal zu sein scheint (siehe Abbildung 4.10). Betrachtet man den Verlauf der Graphen der einzelnen Jahre, so fällt auf, dass in fast allen Fällen die späteren Zeiträume bei niedrigeren H1211-Mischungsverhältnissen liegen, während die früheren größere Werte aufweisen. Nur im Dezember sind die H1211-Werte des Jahres 2077 auf der 66%- N_2O -Isoplethe größer, als die der Periode 2057. Dies ist aber aufgrund der überlappenden Fehlerbalken nicht signifikant. Zudem lässt sich eine Saisonalität in allen vier betrachteten dekadischen Mitteln ausmachen. Im Frühjahr 1997 liegt beispielsweise der 20%-Wert von H1211 auf der 66.5%-Isoplethe, während er im Herbst bei circa 70% zu finden ist. Dies passt zur Lebenszeit von H1211. Durch die intensivere solare Strahlung in den Sommermonaten in Kombination mit der vergleichsweise kurzen photolytischen Lebenszeit, wird H1211 in den Sommermonaten schon in niedrigeren Höhen photodissoziiert. Da dies für N_2O nicht der Fall ist, führt dieser verstärkte Abbau dazu, dass sich das H1211-Mischungsverhältnis am Ende der sommerlichen Monate von 20% zu 15% auf der 66.5%-Isoplethe verkleinert hat. Durch den schwächeren Abbau im Winter kann der H1211-Gehalt über diesen Zeitraum wieder „aufgefüllt“ werden. Somit liefern die H1211-Kurven schlüssige und vielversprechende Ergebnisse.

Bevor die Verschiebung dieser Kurven genauer untersucht wird, sind in Abbildung 4.12 die korrespondierenden F11-Graphen für die mittleren Breiten der vier Monate in den identischen Perioden gezeigt. Auch der vertikale Ausschnitt ist analog gewählt. Dort ist zu erkennen, dass die Kurven der Mischungsverhältnisse von F11 zu denen von H1211 sehr ähnlich sind. Allerdings ist im Bereich von 500K bis 550K aufgrund der größeren Lebenszeit von F11 nun ein beinahe doppelt so großes Mischungsverhältnis erkennbar wie für H1211. Zusätzlich überträgt sich auch die erläuterte Saisonalität äquivalent in diese Abbildung. Bezüglich der Lage der einzelnen Perioden ist auszumachen, dass hier ebenfalls der Zeitraum 1997 die größten F11-Mischungsverhältnisse auf einer fixen N_2O -Isoplethe besitzt, während die Periode 2077 die geringsten Werte des F11-Gehalts aufweist. Zudem tritt auch für F11 der Fall ein, dass es eine kleine Region gibt, in der im Dezember 2077 die isoplethen Mischungsverhältnisse nicht-signifikant größer sind, als in 2057. Dies lässt den Schluss zu, dass diese Betrachtungsweise für H1211 und F11 analoge Ergebnisse liefern. Dadurch können bei der Verschiebung der Kurven aus beiden Grafiken in sich geschlossene Hypothesen gefolgert werden. Wählt man beispielhaft die 70%-Isoplethe des prozentualen N_2O -Mischungsverhältnisses aus, so wird deutlich, dass sich die Graphen für beide kurzlebigen Spurengase in allen Monaten in Richtung kleinerer Werte verschieben. Dieses Verhalten wurde in Kapitel 3.3.4 bereits allgemein erläutert. Diese Veränderung ist, wie erläutert, identisch mit einer positiven Tracer-Differenz von H1211, F11 und N_2O . Somit lassen sich die in den obigen Abbildungen im Bereich von 500K bis 550K gefundenen positiven Tracer-Differenzen auch in den hier dargestellten Mischungsverhältnissen ausmachen. In Verbindung mit der Tatsache, dass diese Regionen der Stratosphäre für alle Substanzen noch unterhalb ihres entsprechenden Cut-Off-Levels liegen, weist diese **Verschiebung** ebenfalls auf eine **intensivierte stratosphärische Dynamik** in der **unteren Stratosphäre** hin. Allerdings ist es hier auch nicht möglich die genaue ursächliche Komponente der BDC nur anhand dieser Grafiken zu bestimmen. Interessant ist, dass sich diese Tracer-Differenzen der einzelnen Zeiträume nicht linear sind. So zeigt der Vergleich 2007-1997 eine deutlich stärkere Verschiebung der Kurve, als die Periode 2077-2057. Dadurch zeigt sich auch, dass sich Veränderungen der BDC zwischen den einzelnen Jahren nicht-linear fortpflanzen und somit nicht ohne weitere Untersuchungen auf spätere Zeitpunkte übertragen werden können. Der selbe Schluss konnte schon in Kapitel 4.1 gezogen werden, da auch hier die Tracer-Differenz 2077-2027 nicht um das fünffache größer war, als die von 2007-1997.

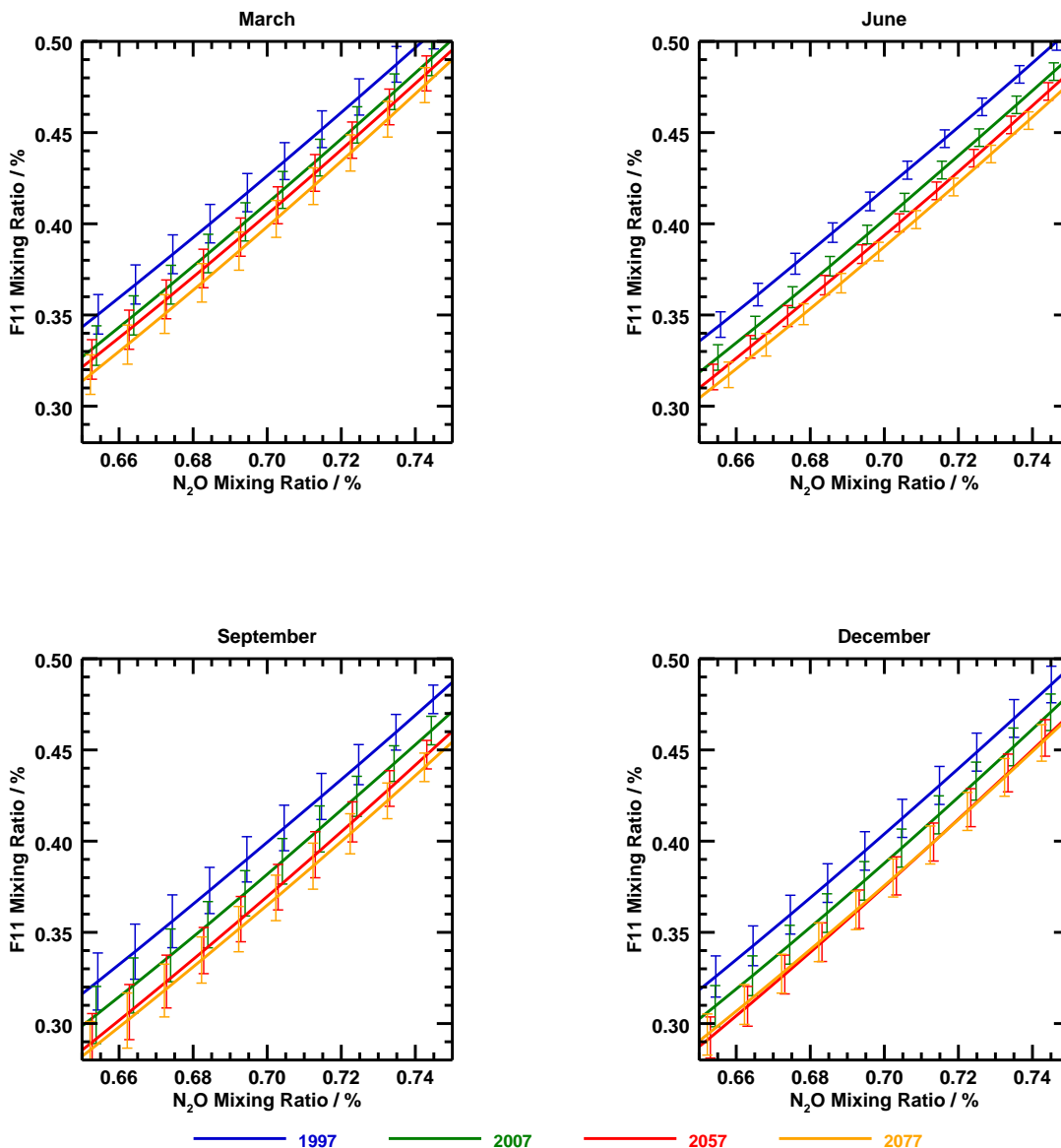


Abbildung 4.12: Ausschnitt des normierten F11-Mischungsverhältnisses auf N_2O -Isoplethen in den mittleren Breiten. Dargestellt ist ein Ausschnitt des Mischungsverhältnisses von F11 gegen das von N_2O für die vier üblichen Monate in den Perioden 1997, 2007, 2057 und 2077. Die Mischungsverhältnisse wurden über $50^\circ N$ bis $40^\circ N$ sowie zonal gemittelt.

Dies alles zeigt, dass die Betrachtung auf N_2O -Isoplethen in Kombination mit den Vertikalprofilen der Tracer-Differenzen dazu in der Lage sind, eine stichhaltige und schlüssige Expertise über die Veränderung der stratosphärischen Meridionalzirkulation zu gewähren. Es ist somit sehr wahrscheinlich, dass sich die BDC besonders in der untersten Stratosphäre über die nächsten Dekaden verstärken wird. Dies steht auch im Einklang zu den Resultaten aus anderen Modellen.

Für den experimentellen Teil dieser Arbeit sind die Fehlerbalken dieser Grafik von besonderer Bedeutung. Sie spiegeln die modellierte Variabilität der Atmosphäre wieder und entsprechen den Standardabweichungen aus Kapitel 4.2. Wichtig zu bemerken ist, dass diese Variabilität wahrscheinlich zu niedrig ausfällt und die reale Variabilität deutlich größer ist. Zur Analyse der Verschiebung betrachtet man zunächst die

Grafik für H1211 (Abbildung 4.11). Dort zeigt sich, dass in den Monaten März, September und Dezember die Balken der 1997-Kurve und 2007-Kurve überlappen. Dies bedeutet, dass es sich hier um eine nicht-signifikante Verschiebung der Graphen handelt und die Schwankungen der Variabilität das Signal der Tracer-Differenz überlagern. Somit kann hier mit einer einzelnen Messung innerhalb eines Monats keine repräsentative Aussage ermöglicht werden. Erst beim Vergleich von 1997 und 2057 sind die Fehlerbalken vergleichsweise klein und es handelt sich um eine signifikante Verschiebung. Es ist daher wahrscheinlich, dass es im Zeitraum 2057-1997 zu einer positiven Tracer-Differenz in der unteren Stratosphäre kommt, was von einer verstärkten Dynamik herrührt. Allerdings ist diese Analyse mit einem Zeitraum von 60 Jahren für eine experimentelle Kampagne deutlich zu groß und somit uninteressant. Für F11 (Abbildung 4.12) ergibt sich ein ähnliches Bild für die Monate März, September und Dezember, was auch hier die Theorie bekräftigt, dass es eine aussagekräftige positive Tracer-Differenz im Zeitraum 2057-1997 gibt und diese eine dynamische Ursache besitzt. Zudem fällt auf, dass das Maß der Verschiebung keine Saisonalität besitzt, da in allen acht Teilen dieser beiden Grafiken der Abstand zwischen den einzelnen Linien nahezu identisch ist. Höchstens im Winter könnten hiervon kleinere Abweichungen festgestellt werden, was allerdings so gering ist, dass die Annahme keiner Saisonalität eine gute Näherung darstellt.

Betrachtet man den Monat Juni, so stellt man fest, dass in dieser Zeit für F11 und H1211 ebenfalls eine Verschiebung der Kurven zu kleineren Werten erfolgt ist. Bemerkenswert ist allerdings, dass diese Veränderung bereits für die vergleichsweise kurze Periode von 2007-1997 signifikant ist, da sich die Fehlerbalken der einzelnen Kurven für beide Substanzen nicht überlappen. Dies ist überraschend, da die Variabilität mit Werten um die 4% für H1211 (Abbildung 4.8) und einer zugehörigen Tracer-Differenz von etwa +0.9% (Abbildung 4.1) dieses dynamische Signal überlagert hat. Durch die Wahl des N_2O -Mischungsverhältnisses als Vertikalkoordinate zur Überprüfung zeigt sich allerdings, dass diese Tracer-Differenz signifikant zu sein scheint. Und auch für F11 ist diese Verschiebung der Kurven aussagekräftig und in Kombination mit den positiven Tracer-Differenzen in dieser Region ein klares Indiz dafür, dass eine **Verstärkung der Zirkulation im Modell** stattgefunden hat. Im Gegensatz zu den übrigen Monaten ist es im Juni allerdings plausibel, dass mit einer einzigen Messung pro Monat Juni über einen Zeitraum von 10 Jahren diese Tatsache überprüft werden kann. Hierbei zeigen die Resultate, dass solche Messungen nur im Monat Juni signifikante Ergebnisse liefern und daher die Messreihen in diesem Zeitraum durchgeführt werden sollten. Das auf diese Weise experimentell bestimmte Tracer-Differenzenprofil kann mit Hilfe der zugehörigen Graphen auf N_2O -Isoplethen trotz der großen natürlichen Schwankungen für eine Identifikation einer veränderten stratosphärischen Dynamik eingesetzt werden. Diese Tatsache zeigt, dass auch chemisch aktive Substanzen bei der Wahl von entsprechenden Vergleichsmethoden zur experimentellen Erforschung der Meridionalzirkulation der Stratosphäre eingesetzt werden können. Allerdings ist der Übertrag dieser theoretisch erhaltenen Ergebnisse auf die Realität deutlich komplexer, obwohl die erhaltenen und präsentierten Resultate äußerst aussagekräftig und positiv sind. Die Einschränkungen, die gemacht werden müssen, sowie eine kurze Zusammenfassung der Ergebnisse der Studien dieser Arbeit werden im folgenden letzten Kapitel ausgeführt. Daran schließt sich ein Ausblick an, wie zukünftige Untersuchungen an diese Arbeit anknüpfen könnten.

5 Resümee und Ausblick

Im folgenden Teil der Arbeit werden die erhaltenen Erkenntnisse zusammengefasst und Einschränkungen beziehungsweise mögliche Fehlerquellen thematisiert. Daran schließt sich ein kurzer Ausblick an, wie die obige Methodik verbessert und so weiterführende Forschung ermöglicht werden kann.

Zusammenfassung und Diskussion

Die **Resultate**, die im Rahmen dieser Arbeit gewonnen wurden, erwiesen sich zu einem sehr großen Teil als **aussagekräftig** und in sich **konsistent**. So wurden für die chemisch aktiven Spurengase H₁₂11, F₁₁, F₁₂ und N₂O sowie für das mittlere Alter der Luft Vertikalprofile der Tracer-Differenzen zwischen zwei Zeitpunkten für die mittleren Breiten der Nordhemisphäre und die Tropen bestimmt. Hierbei zeigte sich einmal, dass diese Differenzen zwischen den chemischen Tracern und dem mittleren Alter eine sehr gute negative Korrelation aufwiesen, was ein Zeichen dafür ist, dass beide Arten von Tracern auf das identische Signal konsistent reagieren. Es konnte weiterhin festgestellt werden, dass diese Ausschläge der Graphen unterhalb des entsprechenden Cut-Off-Levels des Tracers zu finden waren, sodass in diesen Regionen die dynamischen Einflüsse über die photochemischen Prozesse dominieren. Dies lässt den Schluss zu, dass die untersuchten Tracer signifikant auf eine vorherrschende Modifikation der Zirkulation reagieren. Überdies wurde ersichtlich, dass diese Tracer-Differenzen einer Saisonalität unterliegen und in den vier ausgewerteten Monaten März, Juni, September und Dezember zum Teil ausgeprägte Abweichungen in der Stärke ihrer Extrema gezeigt haben.

Ausgehend vom Verlauf und der Form der Tracer-Differenzenprofile, konnte aus zwei der drei betrachteten Zeitintervalle 2007-1997, 2057-2047 und 2077-2027 ein Trend bestimmt werden, welcher es wahrscheinlich macht, dass sich die **Brewer-Dobson-Zirkulation** in den zwei analysierten geographischen Regionen der Erde **innerhalb dieses Jahrhunderts intensivieren** wird. Hierbei zeichnete sich besonders die untere Stratosphäre bis in ein Niveau der potentiellen Temperatur von 800K (~ 25km) konsistent durch besonders große Tracer-Differenzen aus, sodass innerhalb des Modells angenommen werden kann, dass die Verstärkung der Dynamik in diesem Bereich größer ausfallen wird. In den darüberliegenden Regionen ist dieser Trend dagegen geringer ausgeprägt. Zudem zeigten sich im Zeitraum 2057-2047 in den Mittelbreiten oberhalb der 800K-Isentrope negative Tracer-Differenzen bei den Spurengasen und positive im mittleren Alter. Dies ist ein Indiz dafür, dass es in dieser Periode in der oberen Stratosphäre zu einer Abschwächung der Zirkulation kommen könnte, da die Luft langsamer durch die Stratosphäre transportiert wird und auf diese Weise das mittlere Alter größer wird, während gleichzeitig geringere Mischungsverhältnisse der Spurengase durch die tropische Tropopause eingetragen werden. Das wäre auch im Einklang mit den erwähnten Resultaten von *Oberländer-Hayn et al.*, 2015 und *Bönisch et al.*, 2011. Diese Tatsache verdeutlicht auch, dass es sich bei dieser Veränderung der Zirkulation keinesfalls um einen linear fortlaufenden Prozess handelt, da hier viele physikalische und chemische Vorgänge in Betracht gezogen werden müssen. Vielmehr können die Trends in den einzelnen Dekaden zwischen 2027 und 2077 unterschiedlich stark ausgeprägt sein und auch, wie im Fall 2057-2047, in entgegengesetzte Richtungen zeigen. Die insgesamt Tracer-Differenzen dieses Zeitraums von 50 Jahren zeigen dann dementsprechend keine im Vergleich zu 2007-1997 fünffach größeren Tracer-Differenzen. Dieser Fakt unterstreicht auch die Tatsache, dass sich die Vorhersage der veränderten stratosphärischen Zirkulation als besonders komplex und äußerst aufwendig gestaltet. Daher kann man im Fall dieser Resultate von einem wahrscheinlichen Trend innerhalb des EMAC-Modells sprechen. Zieht man darüber hinaus andere Modellstudien in Betracht, welche ebenfalls eine insgesamt Verstärkung der Zirkulation prognostizieren, so ist es gerade für die Periode 2077-2027 nicht unwahrscheinlich, dass auch die Daten des EMAC-Modells hier auf eine verstärkte Dynamik hindeuten. Das muss auch nicht gegensätzlich zu den Resultaten von *Engel et al.*, 2009 aufgefasst werden. Denn die Untersuchung kürzerer Perioden (2057-2047) zeigte, dass sich innerhalb eines kleiner gewählten Zeitraums von zehn Jahren durchaus Ergebnisse aufweisen, die einen Trend besitzen, welcher

statt einer Verstärkung eine Abschwächung der BDC prognostiziert. Dies würde den Schluss zulassen, dass die Meridionalzirkulation der Stratosphäre ein äußerst variables Gebilde ist und einem ständigen Veränderungsprozess unterliegt. Für einen exakten Vergleich mit den Ergebnissen von *Engel et al.*, 2009 müsste allerdings ein zu dieser Veröffentlichung äquivalenter Zeitraum von 30 Jahren untersucht werden.

Wichtig zu erwähnen ist, dass die gezeigten **Ergebnisse** nur eine **allgemeine Aussage** über den **Trend** der stratosphärischen Zirkulation zulassen. Eine **genauere Spezifikation** der **Ursachen** ist nur anhand des Vertikalprofils der Tracer-Differenzen **nicht möglich**, weshalb weitere Forschungen nötig sind. Es lässt sich aber in einigen der Profile erkennen, dass das mittlere Alter und die Spurengase unterschiedlich stark ausgeprägte Tracer-Differenzen in einigen Bereichen der Stratosphäre aufzuweisen scheinen. Dies lässt die Vermutung zu, dass sich eine Veränderung des bidirektionalen Austauschs (Mischung) und der Residualzirkulation in verschieden starker Ausprägung auf chemische Tracer und das mittlere Alter auswirkt. Eine genaue Bestimmung in welcher Region die Mischung und die mittlere meridionale Zirkulation überwiegen ist allerdings nicht möglich. Zwar vermuteten *Li und Waugh*, 1999, dass das mittlere Alter der Luft vermehrt auf Veränderung des Residualtransports reagiert, allerdings steht dies etwas im Gegensatz zu dem Prozess des Alterns durch Mischung (*Garny et al.*, 2014), welcher ausdrückt, dass das Alter der Luft besonders durch Rezirkulation von den Mittelbreiten in die Tropen vergrößert werden kann und so auch durch Mischung beeinflusst wird.

Diese Tatsache unterstreicht, dass es sich bei den beiden Prozessen um ein komplexes Wirkungsgefüge handelt, deren genaue Auswirkungen auf die Verteilung von Tracern in der Stratosphäre noch nicht vollständig verstanden ist. Neben der fehlenden Möglichkeit zur Unterscheidung zwischen den beiden Komponenten der BDC muss auch beachtet werden, dass die hier gezeigten Grafiken nur vergleichsweise kleine Ausschnitte der Stratosphäre darstellen. Für eine eindeutige Aussage über einen globalen Trend müsste diese Untersuchung ausgedehnt werden. Auch kann die Betrachtung von stark gemittelten Daten (monatlich, dekadisch und zonal) dazu führen, dass besonders kleinskalige Effekte in großem Maße geglättet werden und so die berechneten Tracer-Differenzen vom real vorherrschenden Trend abweichen können. Hier seien besonders die Auswirkungen der quasi zweijährigen Oszillation in der tropischen Stratosphäre und die Wechselwirkung der troposphärischen El Nino Southern Oscillation (siehe zum Beispiel *Roedel und Wagner*, 2011) im pazifischen Raum erwähnt. Deren Einfluss auf die darüberliegenden Luftschichten ist nicht vollständig erforscht und könnte durch eine zu intensive Mittelung in den Resultaten nicht enthalten sein. Aber auch wenn durch die Mittelung dem Modellsystem einige Variabilität genommen wurde, so haben die Ergebnisse dennoch gezeigt, dass es möglich ist, Änderungen der stratosphärischen Zirkulation mit Hilfe von chemisch aktiven Tracern sichtbar zu machen und qualitativ zu studieren. Zudem sind die gezogenen Schlüsse konsistent zu Theorie und anderen Modellsimulationen, sodass hier von aussagekräftigen Trends im Modell gesprochen werden kann.

Neben der Abschätzung dieser Veränderung der Dynamik, war es das Ziel, die Möglichkeit einer experimentellen Erforschung der Thematik zu überprüfen. Zu diesem Zweck muss die **natürliche Variabilität** des Systems **Atmosphäre im Modell** bestimmt werden und mit den erhaltenen Tracer-Differenzen verglichen werden. Die hierfür genutzt Datensätze sind feiner aufgelöst, sodass innerhalb eines Monats eine ausreichend große Datenmenge zur Verfügung steht und so für die oben angesprochenen Monate März, Juni, September und Dezember jeweils eine temporale Standardabweichung der Tracer-Differenzen erhalten wurde. Es bleibt hierbei allerdings festzuhalten, dass es sich um eine **modellierte Variabilität** handelt und es sehr wahrscheinlich ist, dass die **reale Variabilität deutlich größer ausfallen** dürfte. Diese Tatsache ist auch deshalb zu erwarten, weil in dieser Arbeit die **experimentelle Unsicherheit vernachlässigt** wurde und nur die modellierte Variabilität der Atmosphäre betrachtet wird. Im Falle von realen in-situ Messungen ergeben sich zusätzlich zur natürlichen Variabilitäten auch Unsicherheiten allein durch die Messtechnik, welche dafür sorgen, dass die Variabilität insgesamt noch größer ausfällt. Dies

muss in zukünftigen Analysen berücksichtigt werden und könnte zugleich ein Ansatzpunkt für weitere Studien sein. Zudem wurde diese Analyse unter der Voraussetzung durchgeführt, dass die in den Monaten des Jahres 1992 ermittelte Standardabweichung für alle Jahre des Modellzeitraums universal ist. Dies ist eine grobe Abschätzung und es bedarf weiterer Untersuchungen um die Rechtmäßigkeit dieser Annahme zu gewährleisten. Mit Beachtung dieser Einschränkungen zeigte sich schnell, dass in den nördlichen mittleren Breiten, welche beispielhaft besprochen wurden, diese atmosphärische Variabilität zum Teil um ein Vielfaches größer war, als die entsprechende Tracer-Differenz. Auch die Wahl der äquivalenten Breite als Koordinate brachte hier keine Verbesserung mit sich. Es ist daher unmöglich anhand von einer einzigen Messung aus dem Vertikalprofil der Tracer-Differenz eine klare Aussage über die Veränderung der Zirkulation zu erhalten, da dieses Signal von einem großen statistischen Rauschen überlagert ist. Eine Lösung, die für dieses Problem präsentiert wurde, ist die Durchführung vermehrter Messreihen, sodass sich die Schwankungen im Mittel reduzieren. Deutlich wurde anhand dieser Überlegungen, dass die notwendige Anzahl dieser Messungen mit der Höhe und der betrachteten Substanz variiert. Zieht man in Betracht, dass man mit modernen kosteneffizienten Detektionsverfahren bei regelmäßigen Messungen nur bis in eine Höhe von maximal 35km vordringen kann, so wäre der Monat Juni die beste Wahl für solche Untersuchungen. Denn durch die vergleichsweise geringe Wellenaktivität auf der Nordhalbkugel sind natürliche Schwankungen in dieser Zeit minimal. Die Ergebnisse zeigten, dass man so über einen Zeitraum von 10 Jahren im Juni pro Jahr je nach betrachtetem Tracer zwischen 3 und 12 mal Messungen bis in etwa 800K durchführen müsste, um eine Verringerung der Standardabweichung auf 1% zu erreichen. Dies ist zwar immernoch eine recht große Unsicherheit, könnte aber bei entsprechender Tracer-Differenz eine signifikante Aussage ermöglichen. Allerdings wäre dies dennoch ein recht aufwendiges Verfahren, sodass mit der Einführung des N_2O -Koordinatensystems eine Alternative geschaffen wurde.

Hierbei wurden die TTL-normierten Mischungsverhältnisse der Substanzen H1211 und F11 gegen das Referenzgas N_2O dargestellt und zu den verschiedenen Vergleichszeitpunkten betrachtet. Eine Verschiebung der Kurve auf einer konstanten N_2O -Isoplethe zu geringeren H1211/F11-Werten ist äquivalent zu einer positiven Tracer-Differenz im entsprechenden Bereich des Vertikalprofils. Die Betrachtung zweier Tracer eignet sich sehr gut für experimentelle Belange, da es hierbei mit einer leicht zu realisierenden Anzahl von Messreihen möglich ist ein robustes Ergebnis zu erhalten und damit eine signifikante Aussage zu treffen. Es zeigte sich, dass diese Methode analoge Resultate zu den Tracer-Differenzen produziert und somit Aussagen über die Veränderung der Dynamik ermöglicht. Zudem reduziert sich die Unsicherheit der einzelnen Tracer durch den Vergleich miteinander. Daher ist es möglich diese Unsicherheit als Fehlerbalken an die Kurven zu zeichnen und zu vergleichen, ob die entsprechende Verschiebung größer ist, als die Schwankung. Allerdings gibt es auch hier Einschränkungen. Die Nutzung der **modellierten Variabilität** auf den einzelnen N_2O -Isoplethen liefert eine recht **konservative Abschätzung** der tatsächlich beteiligten **physikalischen Vorgänge**. Denn durch diese Methode werden Transportprozesse zwischen den einzelnen Isoplethen in der Variabilität nicht erfasst und vernachlässigt. Eine Möglichkeit dies zu umgehen und gleichzeitig eine realistischere Variabilität zu erhalten, wäre die modellierte Variabilität zu verdoppeln, um eine bessere Abschätzung der Realität zu gewinnen. Danach könnte die Korrelation von H1211 und F11 mit N_2O mit Hilfe eines geeigneten nicht-linearen Fits mathematisch im Rahmen dieser Variabilität gefunden werden. Die Unsicherheit dieser Regression sollte dann deutlich geringer ausfallen und könnte bei entsprechender Darstellung als Fehlerbalken so in allen analysierten Monaten zu einer signifikanten Verschiebung führen. Dies könnte ein Ansatzpunkt für zukünftige Fragestellungen sein.

Nichtsdestotrotz zeigt die hier verwendete konservative Methode, dass es nur im Monat Juni für beide Spurengase eine signifikante Verschiebung dieser Kurven im Intervall 2007-1997 gab und man so schon mit einer einzelnen Messung durch diese Methode eine experimentell ermittelte Aussage über die Zirkulation treffen kann. Auch weil die entsprechende Verschiebung unterhalb des Cut-Off-Level der Substanz stattfindet. Somit ergibt sich durch die Kombination von Tracer-Differenzen, Variabilität und

N₂O-Isoplethen-Methode eine Betrachtungsweise, die eine realistische Theorie über dynamisch induzierte Veränderungen zulässt. Allerdings muss hier beachtet werden, dass in dieser Arbeit nur idealisierte Tracer ausgewertet wurden und diese keinen troposphärischen Trend aufweisen. In der Realität besitzen alle hier angeführten Spurengase ein variables und trendbehaftetes troposphärisches Mischungsverhältnis. Teilweise ist dieser Trend auch in großem Maße nicht-linear. Das hat zur Folge, dass sich diese zeitliche Veränderung bis in die Stratosphäre fortpflanzt und sich dort auch in den Tracer-Differenzen wiederfindet. Um dann eine eindeutige These über die Modifikation der Zirkulation aufzustellen, muss dieser Trend korrigiert werden. Da hierfür bisher kein Verfahren existiert, ergibt sich so ein Problem, das einen Übertrag der hier erhaltenen Ergebnisse nur mit Einschränkungen erlaubt.

Dennoch haben die Resultate dieser Arbeit gezeigt, dass man mit Hilfe von chemisch aktiven Substanzen im Vertikalprofil die stratosphärische Zirkulation untersuchen kann. Hierbei wurde auch die Möglichkeit einer experimentellen Studie aufgezeigt. Auch wenn die erhaltenen Ergebnisse nur idealisiert sind, lassen sie doch erahnen, wie sich die äußerst vielschichtige Brewer-Dobson-Zirkulation der Stratosphäre in Zukunft entwickeln wird und geben Anregungen für weiterführende Forschungsprojekte, die auf dieser Arbeit aufbauen könnten.

Ausblick

Da der zeitliche Rahmen dieser Masterarbeit begrenzt war, konnte die oben genannte Thematik nur qualitativ analysiert werden und nicht in ihrem vollen Umfang erforscht und quantifiziert werden. Eine Möglichkeit, wie sich dies weiterführen und tiefer ergründen lässt, ist die Ausweitung der betrachteten Substanzen von den idealisierten auf die realistischen Tracer. Dazu müsste im ersten Schritt eine Methode entwickelt werden, den **atmosphärischen Trend** dieser Spurengase zu bestimmen und dann im zweiten Schritt aus den Mischungsverhältnissen herauszurechnen. Problem hieran ist die Nichtlinearität dieses Trends, was eine explizite mathematische Berechnung äußerst schwierig macht. Mit Hinblick auf das mittlere Alter der Luft ergibt sich aus experimenteller Sicht ein ähnliches Problem. Das **mittlere Alter der Luft** ist keine direkt messbare Größe, sondern wird wie gezeigt über die Verteilungsfunktion eines chemisch inerten Tracers innerhalb der Stratosphäre bestimmt. Da hierbei der **troposphärische Trend** dieser Substanz eine essentielle Rolle spielt, müssen für genaue Aussagen auf experimenteller Basis die Nichtlinearitäten des troposphärischen Trends mit Hilfe eines Polynoms genähert werden, um den Trend auf diese Weise durch eine mathematische Funktion zu beschreiben und daraus das mittlere Alter zu bestimmen. Hierbei können Unsicherheiten bei der Charakterisierung des Trends und im Altersspektrum zu Unsicherheiten im mittleren Alter der Luft führen, sodass AOA-Differenzen nicht mehr als signifikant zu betrachten sind. Daher muss das **Altersspektrum** eines chemisch inerten Alters-Tracers aus Messdaten so exakt wie möglich bestimmt werden, was ein Ansatzpunkt für zukünftige Arbeiten sein kann.

Darüber hinaus könnte durch eine genauere Analyse der Variabilitäten an verschiedenen geographischen Orten eine Statistik erstellt werden, woraus der bestmögliche Detektionsort und -zeitpunkt hervorgeht, an dem diese Schwankungen minimal sind. Hierbei müsste dann für aussagekräftige Resultate auch die **experimentelle Variabilität** durch die **Messgeräte** berücksichtigt werden. Das würde eventuelle Messkampagnen deutlich vereinfachen und weniger aufwändig gestalten, sodass eine statistisch signifikante Aussage möglich ist. Auch könnte mit Hilfe einer zukünftigen Version des EMAC-Modells, welche das verbesserte **ECHAM6-Modell** beinhaltet (Stand: 01.07.2016), genauere und präzisere Ergebnisse produziert werden, die mit den hier präsentierten Resultaten verglichen werden könnten. Auf diese Weise könnte man die Plausibilität dieser Arbeit weiter überprüfen und eventuell weitere Verbesserungen ermöglichen, was das Verständnis der stratosphärischen Zirkulation weiter fördert.

Schließlich könnte ein weiterer Forschungsgegenstand sein, dass der Einfluss veränderter chemischer

Prozesse auf die Spurengasverteilung untersucht wird. Diese Überlegung wurde in dieser Arbeit nicht berücksichtigt und der Photolyseprozess als konstant angenommen. Allerdings könnte es im Zuge des Klimawandels dazu kommen, dass sich photochemische Prozesse als nicht konstant erweisen. Durch eine Verstärkung der Ozonschicht könnte die Photolyse in den Regionen unterhalb des maximalen Ozongehalts abnehmen, da die Strahlungsintensität durch die Absorption darüber abgenommen hat. Dadurch würde sich die Senke der kürzerlebigen Spurengase verringern und müsste bei den Tracer-Differenzen berücksichtigt werden. Die Kombination dieser Überlegung mit der hier angewandten Methodik könnte so zu genaueren Resultaten führen. Alles in allem ist die Thematik wie sich die stratosphärische Meridionalzirkulation in Zukunft entwickeln wird noch nicht in ihrem vollen Umfang verstanden und muss weiter erforscht werden. Allerdings konnte diese Arbeit dazu beitragen, einige Resultate aus Modelldaten zu gewinnen und diese auf experimentelle Belange zu übertragen. Dadurch ergeben sich wichtige Schlüsse für die Verbindung von Modell, in-situ Forschung und Realität, die auch in Zukunft weiter ergründet werden muss. Denn nur so können auf dem Gebiet der Stratosphärenforschung neue Erkenntnisse erlangt, langfristige Fortschritte erzielt und die komplexe Thematik weiter verstanden werden.

6 Anhang

6.1 Cut-Off-Level der analysierten Prognose-Daten

Intervall 2057 - 2047

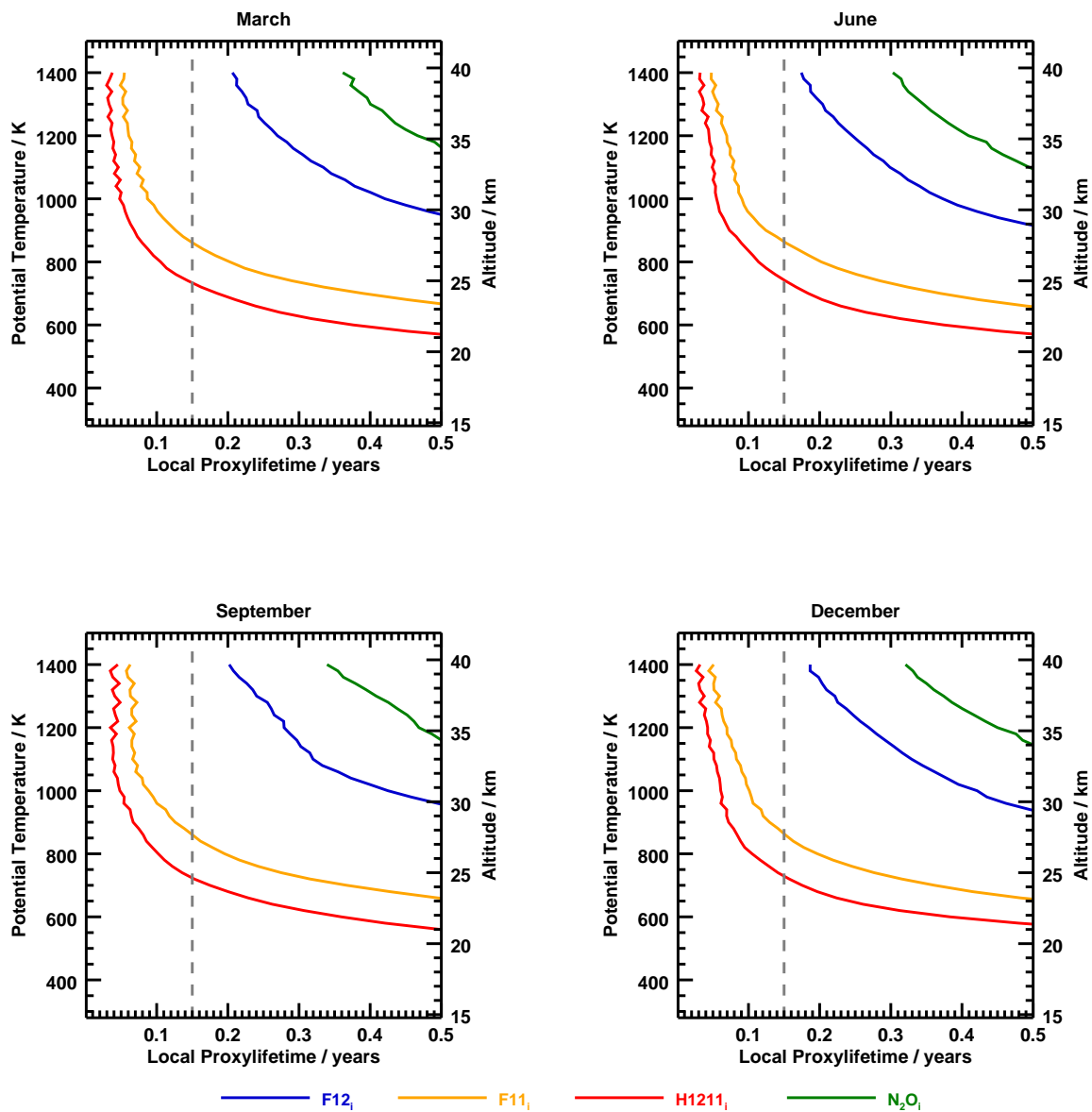


Abbildung 6.1: Cut-Off-Level des Zeitraums 2057 - 2047

Gezeigt sind die Cut-Off-Level der jeweiligen Spurengase in den vier betrachteten Monaten, gemittelt von 5°N bis 5°S und über die Perioden 2047 und 2057. Die graue Linie gibt die Zeitskala der Dynamik an.

Intervall 2077 - 2027

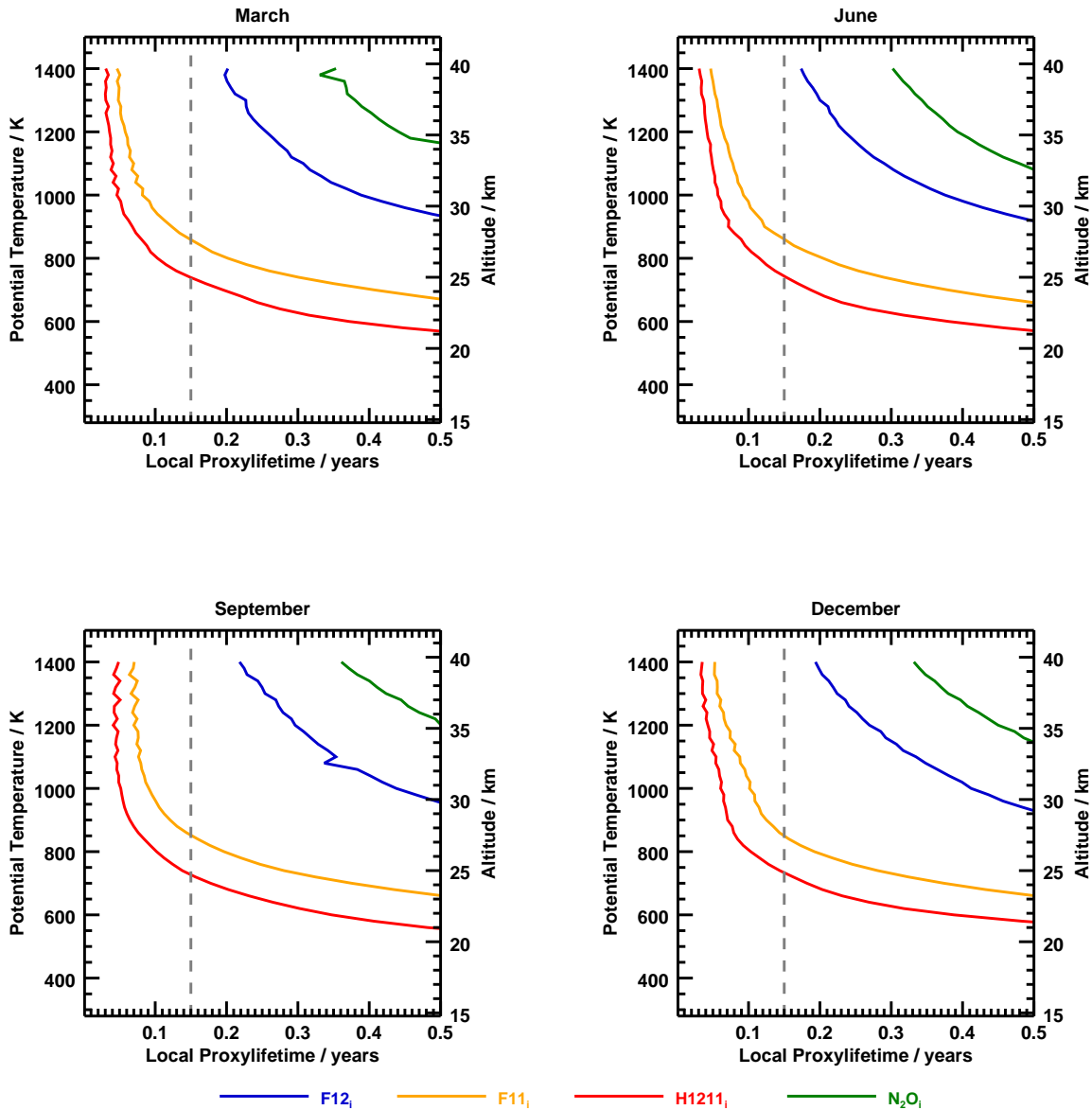


Abbildung 6.2: Cut-Off-Level des Zeitraums 2077 - 2027

Dargestellt sind die Cut-Off-Level der chemischen Tracer in den vier betrachteten Monaten, gemittelt von 5°N bis 5°S und über die Perioden 2027 und 2077. Die graue Linie gibt die Zeitskala der Dynamik an.

6.2 Konsistenz der Datensätze

Zur Analyse, ob die beiden verwendeten Datensätze des EMAC-Modells in sich geschlossene Ergebnisse liefern, wird hier einerseits die Korrelation der Datensätze an sich anhand von Absolutwerten geprüft. Darüber hinaus muss zusätzlich untersucht werden, ob die Korrelation der Tracer-Differenzen signifikant ist. Nur auf diese Weise lässt sich eine sichere Aussage über die Konsistenz der unterschiedlichen Modellläufe treffen. Dazu ist in Abbildung 6.3 ein absolutes Vertikalprofil der vier betrachteten Spurengase für die mittleren Breiten in der Mittelungsperiode 1997 gezeigt, wobei die gestrichelten Kurven Daten des Hindcasts (**RC1**-base-07) und die durchgezogenen die der Prognose (**RC2**-base-04) symbolisieren.

Man erkennt klar, dass die Tracer aus den beiden Modellläufen sehr gut miteinander **übereinstimmen** und ein beinahe **identisches Verhalten** zeigen. Auch wird ersichtlich, dass die Größenordnung der Mischungsverhältnisse innerhalb der Datensätze ebenfalls fast exakt übereinstimmt und sich nur im Winter kleinere Unterschiede für die Substanzen F12 und N₂O ergeben.

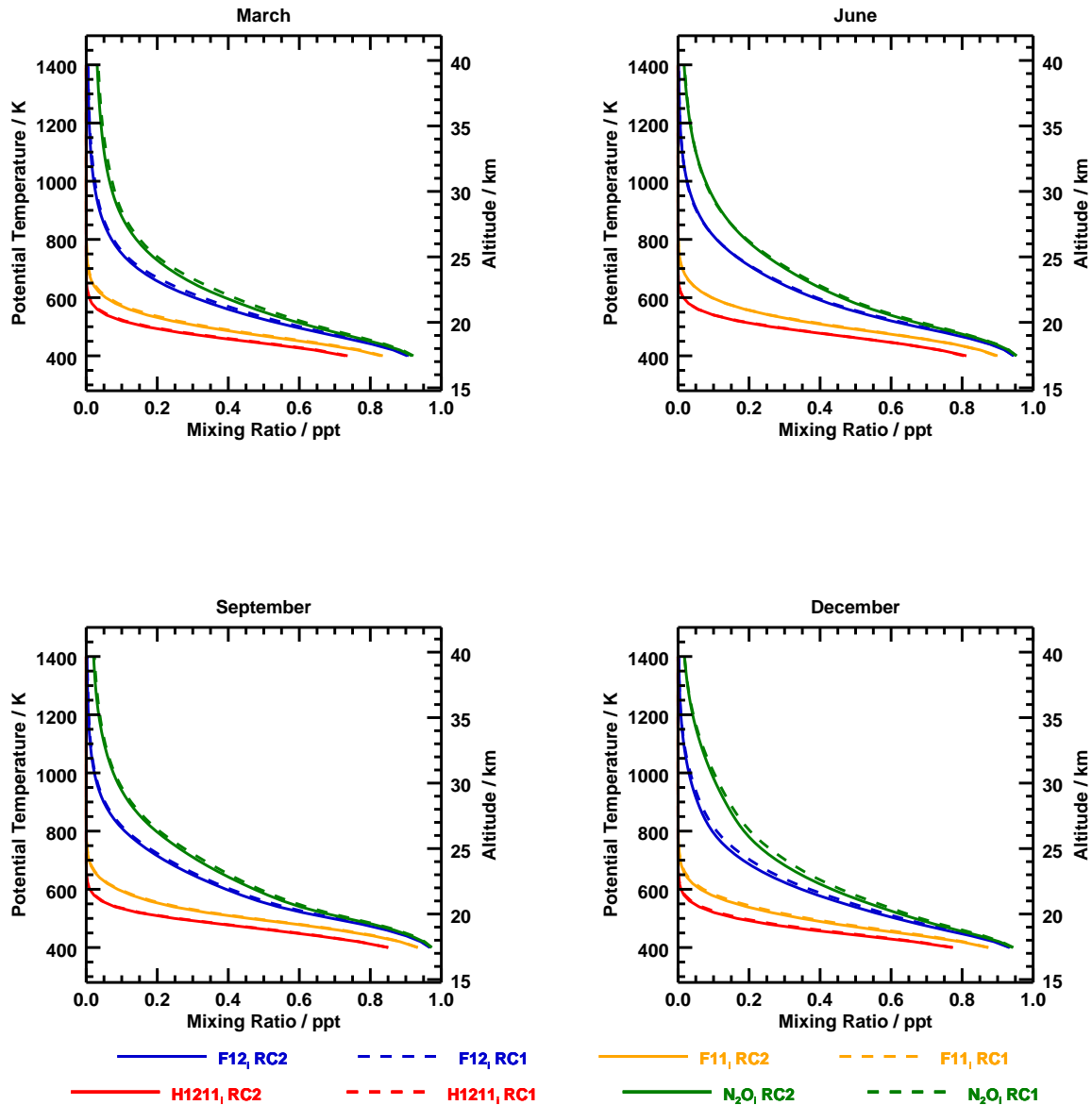


Abbildung 6.3: Absolute Tracer-Profile in den mittleren Breiten

Dargestellt sind die absoluten Vertikalprofile der chemischen Tracer der vier bekannten Monate beispielhaft für die Periode 1997. Die Daten wurden über 50°N bis 40°N sowie zonal gemittelt.

Um diesen qualitativen Eindruck quantitativ zu untersuchen, sind in Tabelle 6.1 und 6.2 die entsprechenden Korrelationskoeffizienten der Spurengase für den Zeitraum 1997 zwischen den beiden Datensätze für die Mittelbreiten und auch für die Tropen dargestellt. Die Werte unterstreichen die Hypothese, die sich beim visuellen Vergleich der Profile ergeben hat. So sind die **Korrelationskoeffizienten** in den mittleren Breiten sowie den Tropen für alle berechneten Zeiten **nahezu exakt 1** und mit einer Wahrscheinlichkeit von mehr als 95% signifikant. Dies bedeutet, dass zwischen den Tracern der einzelnen Datensätze eine

perfekte positive Korrelation besteht und es wahrscheinlich ist, dass auf diese Weise konsistente Ergebnisse für die in dieser Arbeit analysierten Regionen aus den Daten ermittelt werden können. Interessant ist, dass sowohl in den Tropen als auch den mittleren Breiten der Nordhalbkugel die Korrelation für H1211 im Juni und September, als den sommerlichen Monaten, nicht ganz 1 ist. Und auch das mittlere Alter der Luft, welches in den Grafiken nicht abgebildet ist, zeigt diese geringe Abweichung von der perfekten Korrelation im September. Allerdings sind diese Unterschiede klein genug, dass im Rahmen der **Eigendynamik** des Modell davon ausgegangen werden kann, dass die **Datensätze konsistente** Ergebnisse liefern. Zudem sind diese kleinen Unterschiede zwischen den einzelnen Modellsimulationen auch ein Beleg dafür, dass das EMAC-Modell auf den Unterschied zwischen beobachteten und modellierten SST/SIC reagiert und daraus differenzierte Datensätze errechnet. Allerdings zeigen die in Kapitel 4.1 vorgestellten Resultate auch, dass die Größenordnung der berechneten Tracer-Differenzen mit einigen wenigen Prozent vergleichsweise gering ist. Aus diesem Grund lässt die alleinige Betrachtung der Korrelation der Absolutwerte noch keine sicheren Rückschlüsse auf die Korrelation der Tracer-Differenzenprofile untereinander zu.

Tabelle 6.1: Korrelationskoeffizienten der Absolutprofile in den mittleren Breiten in der Periode 1997

	F12	F11	H1211	N ₂ O	AOA
März	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
Juni	1.000	1.000	0.990	1.000	1.000
September	1.000	1.000	0.995	1.000	0.986
Dezember	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000

Tabelle 6.2: Korrelationskoeffizienten der Absolutprofile in den Tropen in der Periode 1997

	F12	F11	H1211	N ₂ O	AOA
März	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
Juni	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
September	1.000	1.000	0.999	1.000	0.997
Dezember	1.000	1.000	1.000	1.000	0.999

Um diese zu überprüfen sind in Abbildung 6.4 die Tracer-Differenzen im Vertikalprofil für die mittleren Breiten der Nordhalbkugel aus dem RC1-Datensatz (gestrichelte Linien) und dem RC2-Datensatz (durchgezogene Linien) dargestellt. Zusätzlich zeigen Tabelle 6.3 und 6.4, analog zu 6.1 und 6.2, die Korrelationskoeffizienten der Tracer-Differenzen in den Mittelbreiten und Tropen für den Vergleichszeitraum 2007-1997. Die rot markierten Werte stellen hierbei Korrelationskoeffizienten dar, bei denen die Wahrscheinlichkeit der Signifikanz der Korrelation geringer als 95% ist. Auf den ersten Blick fällt anhand dieser Darstellung auf, dass die **Tracer-Differenzen** miteinander **positiv korreliert** zu sein scheinen, diese Korrelation allerdings deutlich weniger perfekt ausgeprägt ist, wie bei den absoluten Profilen. So weisen die Tracer-Differenzen der einzelnen Datensätze besonders in den Monaten März, Juni und September einen teilweise sehr ähnlichen Verlauf auf, auch wenn die Größenordnung der Tracer-Differenzen aus dem Prognose-Datensatz in allen Monaten bis etwa 800K für alle Tracer niedriger ausfallen als bei den Hindcast-Daten. Oberhalb stellt sich dann eine umgekehrte Situation ein und die RC1-Tracer-Differenzen sind kleiner als ihre Pendanten. Dennoch lässt sich eine positive Korrelation in diesen drei Monaten identifizieren und legt den Schluss nahe, dass die Datensätze auch bei den Tracer-Differenzen konsistent sind. Nur im Dezember finden sich besonders oberhalb der 800K-Isentrope ausgeprägte Unterschiede zwischen dem Kurvenverlauf der einzelnen Datensätze. Hier sind es vor allem die langlebigen Spurengase, die in bestimmten Abschnitten der Grafik sogar ansatzweise negative Korrelationen zu besitzen scheinen. Bei Betrachtung der entsprechenden Korrelationskoeffizienten der Mittelbreiten (Tabelle 6.3) fällt in der Tat

auf, dass diese bisweilen eindeutig kleiner sind als 1. Allerdings sind bis auf drei dieser Werte mit einer Wahrscheinlichkeit von mehr als 95% signifikant, sodass auch kleine Werte eine Korrelation der Daten implizieren. Interessant ist hier der Koeffizient für N_2O im Winter. Hier zeigt sich eine negative Korrelation, welche sogar als signifikant angesehen werden kann, was sich anhand des qualitativen Eindrucks im Dezember in Abbildung 6.4 nachvollziehen lässt.

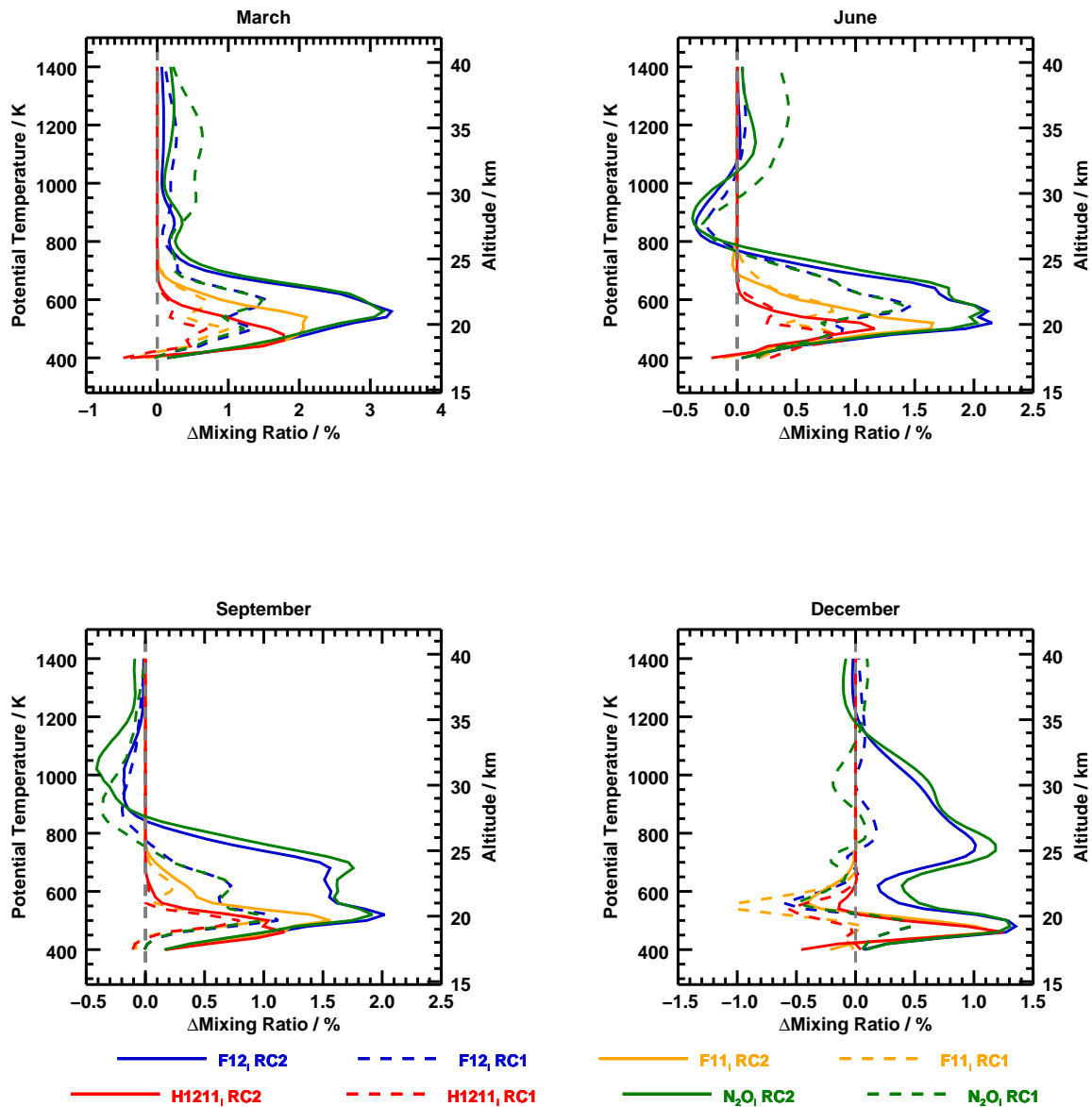


Abbildung 6.4: Tracer-Differenzenprofile in den mittleren Breiten

Dargestellt sind die Tracer-Differenzen im Vertikalprofil in den vier bekannten Monaten beispielhaft für die Periode 2007-1997. Die Daten wurden über 50°N bis 40°N sowie zonal gemittelt.

Bemerkenswert ist überdies, dass sich für die kurzlebigste der Substanzen, nämlich H1211, nur im September eine signifikante positive Korrelation findet. Die geringe Korrelation der Tracer-Differenzen im Winter kann auf die starke Wellenaktivität und die dadurch erhöhte transportbedingte Variabilität zurückgeführt werden, da sich diese durch die Freiheitsgrade des Modells innerhalb der einzelnen Simulationen unterschiedlich äußern kann.

Tabelle 6.3: Korrelationskoeffizienten der Tracer-Differenzenprofile in den mittleren Breiten in der Periode 2007-1997

	F12	F11	H1211	N ₂ O	AOA
März	0.880	0.946	0.187	0.788	0.250
Juni	0.883	0.373	0.050	0.843	0.413
September	0.773	0.484	0.316	0.613	0.383
Dezember	0.275	0.247	-0.133	-0.338	0.702

Tabelle 6.4: Korrelationskoeffizienten der Tracer-Differenzenprofile in den Tropen in der Periode 2007-1997

	F12	F11	H1211	N ₂ O	AOA
März	0.413	0.636	0.678	0.625	0.854
Juni	0.567	0.270	0.176	0.584	0.725
September	0.219	0.641	0.380	-0.045	0.575
Dezember	-0.007	0.658	0.598	-0.096	0.356

Anhand dieser Resultate ist es wahrscheinlich, dass man von einer Korrelation und damit von der Konsistenz der Datensätze in den mittleren Breiten ausgehen kann. In den Tropen scheint die Korrelation weniger stark ausgeprägt, da hier fünf anstatt drei der zwanzig Korrelationskoeffizienten nicht signifikant sind. Zudem weist hier H1211 eine positive Korrelation in allen analysierten Monaten auf. Die signifikanten Koeffizienten geben durchweg positive Korrelation wieder, sodass man auch in diesem Bereich mit großer Wahrscheinlichkeit davon ausgehen kann, dass die einzelnen Datensätze konsistente Resultate ermöglichen und man beide Datensätze im Rahmen der Eigendynamik des EMAC-Modells miteinander vergleichen kann. Dies lässt sich auch mit den Korrelationen der Absolutprofile und der Tatsache begründen, dass die in Kapitel 4.1 gewonnenen Ergebnisse und gezogenen Schlüsse aufgrund ihrer Ähnlichkeit und Qualität nahelegen, dass beide Datensätze ein äquivalentes Verhalten aufweisen. Dass sich dennoch in einigen Bereichen deutliche Unterschiede zwischen den Werten der Tracer-Differenzen der einzelnen Datensätze ergeben zeigt auch, dass eine Konsistenzanalyse sinnvoll und notwendig ist, um diese Vermutung zu bestätigen und falsche Theorien beziehungsweise Interpretationen auszuschließen.

Literaturverzeichnis

- Austin, J., und F. Li (2006), On the relationship between the strength of the Brewer-Dobson circulation and the age of stratospheric air, *Geophysical Research Letters*, 33(17).
- Boering, K. A., S. C. Wofsy, B. C. Daube, H. R. Schneider, M. Loewenstein, J. R. Podolske, und T. J. Conway (1996), Stratospheric Mean Ages and Transport Rates from Observations of Carbon Dioxide and Nitrous Oxide, *Science*, 274(5291), 1340–1343.
- Bönisch, H., A. Engel, T. Birner, P. Hoor, D. W. Tarasick, und E. A. Ray (2011), On the structural changes in the Brewer-Dobson circulation after 2000, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(8), 3937–3948.
- Brasseur, G., und S. Solomon (2005), *Aeronomy of the middle atmosphere*, Bd. v. 32, 3rd rev. and enl. ed. Auflage, Springer, Dordrecht.
- Brewer, A. W. (1949), Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 75(326), 351–363.
- Brimblecombe, P. (1996), *Air composition & chemistry*, Bd. 6, 2. Auflage, Cambridge University Press, Cambridge.
- Collins, W. J., N. Bellouin, M. Doutriaux-Boucher, N. Gedney, P. Halloran, T. Hinton, J. Hughes, C. D. Jones, M. Joshi, S. Liddicoat, G. Martin, F. O'Connor, J. Rae, C. Senior, S. Sitch, I. Totterdell, A. Wiltshire, und S. Woodward (2011), Development and evaluation of an Earth-System model – HadGEM2, *Geoscientific Model Development*, 4(4), 1051–1075.
- Crutzen, P. J. (1970), The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96(408), 320–325.
- Dee, D. P., S. M. Uppala, A. J. Simmons, P. Berrisford, P. Poli, S. Kobayashi, U. Andrae, M. A. Balmaseda, G. Balsamo, P. Bauer, P. Bechtold, Beljaars, A. C. M., van de Berg, L., J. Bidlot, N. Bormann, C. Delsol, R. Dragani, M. Fuentes, A. J. Geer, L. Haimberger, S. B. Healy, H. Hersbach, E. V. Hólm, L. Isaksen, P. Kållberg, M. Köhler, M. Matricardi, A. P. McNally, B. M. Monge-Sanz, J.-J. Morcrette, B.-K. Park, C. Peubey, P. de Rosnay, C. Tavolato, J.-N. Thépaut, und F. Vitart (2011), The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(656), 553–597.
- Dobson, G. M. B. (1956), Origin and Distribution of the Polyatomic Molecules in the Atmosphere, *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 236(1205), 187–193.
- Dunkerton, T. J. (1997), The role of gravity waves in the quasi-biennial oscillation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D22), 26,053–26,076.
- Dunkerton, T. J., und D. P. Delisi (1985), Climatology of the Equatorial Lower Stratosphere, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 42(4), 376–396.
- Engel, A., T. Möbius, H. Bönisch, U. Schmidt, R. Heinz, I. Levin, E. Atlas, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Sugawara, F. Moore, D. Hurst, J. Elkins, S. Schauffler, A. Andrews, und K. Boering (2009), Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years, *Nature Geoscience*, 2(1), 28–31.
-

- Ertel, H. (1942), Ein neuer hydrodynamischer Erhaltungssatz, *Die Naturwissenschaften*, 30(36), 543–544.
- Europäische Union (2000), Verordnung (EG) Nr. 2037/2000 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 29. Juni 2000 über Stoffe, die zum Abbau der Ozonschicht führen.
- Fueglistaler, S., A. E. Dessler, T. J. Dunkerton, I. Folkins, Q. Fu, und P. W. Mote (2009), Tropical tropopause layer, *Reviews of Geophysics*, 47(1).
- Garcia, R. R., und W. J. Randel (2008), Acceleration of the Brewer–Dobson Circulation due to Increases in Greenhouse Gases, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 65(8), 2731–2739.
- Garny, H., T. Birner, H. Bönisch, und F. Bunzel (2014), The effects of mixing on age of air, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(12), 7015–7034.
- Gerber, E. P., A. Butler, N. Calvo, A. Charlton-Perez, M. Giorgetta, E. Manzini, J. Perlwitz, L. M. Polvani, F. Sassi, A. A. Scaife, T. A. Shaw, S.-W. Son, und S. Watanabe (2012), Assessing and Understanding the Impact of Stratospheric Dynamics and Variability on the Earth System, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 93(6), 845–859.
- Hall, T. M., und R. A. Plumb (1994), Age as a diagnostic of stratospheric transport, *Journal of Geophysical Research*, 99(D1), 1059.
- Haynes, P. H., M. E. McIntyre, T. G. Shepherd, C. J. Marks, und K. P. Shine (1991), On the “Downward Control” of Extratropical Diabatic Circulations by Eddy-Induced Mean Zonal Forces, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 48(4), 651–678.
- Holton, J. R. (2004), *An introduction to dynamic meteorology*, Bd. v. 88, 4th ed. Auflage, Elsevier Academic Press, Burlington, MA.
- Holton, J. R. (2015), Stratosphere/Troposphere Exchange & Structure | Global Aspects, in *Encyclopedia of Atmospheric Sciences*, S. 257–261, Elsevier.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood, und L. Pfister (1995), Stratosphere-troposphere exchange, *Reviews of Geophysics*, 33(4), 403.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (2014), *Climate Change 2013 - The Physical Science Basis*, Cambridge University Press, Cambridge.
- Jöckel, P., H. Tost, A. Pozzer, C. Brühl, J. Buchholz, L. Ganzeveld, P. Hoor, A. Kerkweg, M. Lawrence, G., R. Sander, B. Steil, G. Stiller, M. Tanarhte, D. Taraborrelli, J. van Aardenne, und J. Lelieveld (2006), The atmospheric chemistry general circulation model ECHAM5/MESy1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12), 5067–5104.
- Jöckel, P., A. Kerkweg, A. Pozzer, R. Sander, H. Tost, H. Riede, A. Baumgaertner, S. Gromov, und B. Kern (2010), Development cycle 2 of the Modular Earth Submodel System (MESy2), *Geoscientific Model Development*, 3(2), 717–752.
- Jöckel, P., H. Tost, A. Pozzer, M. Kunze, O. Kirner, Brenninkmeijer, Carl A. M., S. Brinkop, D. S. Cai, C. Dyroff, J. Eckstein, F. Frank, H. Garny, K.-D. Gottschaldt, P. Graf, V. Grewe, A. Kerkweg, B. Kern, S. Matthes, M. Mertens, S. Meul, M. Neumaier, M. Nützel, S. Oberländer-Hayn, R. Ruhnke, T. Runde, R. Sander, D. Scharffe, und A. Zahn (2016), Earth System Chemistry integrated Modelling (ESCiMo) with the Modular Earth Submodel System (MESy) version 2.51, *Geoscientific Model Development*, 9(3), 1153–1200.
-

- Jones, C. D., J. K. Hughes, N. Bellouin, S. C. Hardiman, G. S. Jones, J. Knight, S. Liddicoat, F. M. O'Connor, R. J. Andres, C. Bell, K.-O. Boo, A. Bozzo, N. Butchart, P. Cadule, K. D. Corbin, M. Doutriaux-Boucher, P. Friedlingstein, J. Gornall, L. Gray, P. R. Halloran, G. Hurtt, W. J. Ingram, J.-F. Lamarque, R. M. Law, M. Meinshausen, S. Osprey, E. J. Palin, L. Parsons Chini, T. Raddatz, M. G. Sanderson, A. A. Sellar, A. Schurer, P. Valdes, N. Wood, S. Woodward, M. Yoshioka, and M. Zerroukat (2011), The HadGEM2-ES implementation of CMIP5 centennial simulations, *Geoscientific Model Development*, 4(3), 543–570.
- Karion, A., C. Sweeney, P. Tans, and T. Newberger (2010), AirCore: An Innovative Atmospheric Sampling System, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 27(11), 1839–1853.
- Klein, H. (2004), Untersuchungen zur Homogenität des arktischen Polarwirbels auf Grundlage von meteorologischen Daten und Messungen luftchemischer Tracer, Diplomarbeit, Goethe Universität Frankfurt am Main, Frankfurt am Main.
- Knox, J. A. (1998), On converting potential temperature to altitude in the middle atmosphere, *Eos, Transactions American Geophysical Union*, 79(31), 376–378.
- Kraus, H. (2004), *Die Atmosphäre der Erde*, 3. Auflage, Springer, Berlin.
- Labitzke, K. (1999), *Die Stratosphäre*, Springer, Berlin.
- Li, F., J. Austin, and J. Wilson (2008), The Strength of the Brewer–Dobson Circulation in a Changing Climate: Coupled Chemistry–Climate Model Simulations, *Journal of Climate*, 21(1), 40–57.
- Li, S., und D. W. Waugh (1999), Sensitivity of mean age and long-lived tracers to transport parameters in a two-dimensional model, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D23), 30,559–30,569.
- Martin, G. M., N. Bellouin, W. J. Collins, I. D. Culverwell, P. R. Halloran, S. C. Hardiman, T. J. Hinton, C. D. Jones, R. E. McDonald, A. J. McLaren, F. M. O'Connor, M. J. Roberts, J. M. Rodriguez, S. Woodward, M. J. Best, M. E. Brooks, A. R. Brown, N. Butchart, C. Dearden, S. H. Derbyshire, I. Dharsai, M. Doutriaux-Boucher, J. M. Edwards, P. D. Falloon, N. Gedney, L. J. Gray, H. T. Hewitt, M. Hobson, M. R. Huddleston, J. Hughes, S. Ineson, W. J. Ingram, P. M. James, T. C. Johns, C. E. Johnson, A. Jones, C. P. Jones, M. M. Joshi, A. B. Keen, S. Liddicoat, A. P. Lock, A. V. Maidens, J. C. Manners, S. F. Milton, Rae, J. G. L., J. K. Ridley, A. Sellar, C. A. Senior, I. J. Totterdell, A. Verhoef, P. L. Vidale, und A. Wiltshire (2011), The HadGEM2 family of Met Office Unified Model climate configurations, *Geoscientific Model Development*, 4(3), 723–757.
- McIntyre, M., und T. Palmer (1984), The 'surf zone' in the stratosphere, *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, 46(9), 825–849.
- Molina, M. J., und F. S. Rowland (1974), Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalysed destruction of ozone, *Nature*, 249(5460), 810–812.
- Moore, F., E. Ray, K. Rosenlof, J. Elkins, P. Tans, A. Karion, und C. Sweeney (2013), A Cost-Effective Trace Gas Measurement Program for Long-Term Monitoring of the Stratospheric Circulation, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 95(1), 147–155.
- Neu, J. L., und R. A. Plumb (1999), Age of air in a "leaky pipe" model of stratospheric transport, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D16), 19,243–19,255.
- Oberländer-Hayn, S., S. Meul, U. Langematz, J. Abalichin, und F. Haenel (2015), A chemistry-climate model study of past changes in the Brewer-Dobson circulation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(14), 6742–6757.
-

- Pielke, R. A. (2002), *Mesoscale meteorological modeling*, Bd. 78, 2 Auflage, Academic Press, San Diego.
- Plumb, R. A. (2002), Stratospheric Transport, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 80(4B), 793–809.
- Ray, E. A., F. L. Moore, K. H. Rosenlof, S. M. Davis, H. Boenisch, O. Morgenstern, D. Smale, E. Rozanov, M. Hegglin, G. Pitari, E. Mancini, P. Braesicke, N. Butchart, S. Hardiman, F. Li, K. Shibata, and D. A. Plummer (2010), Evidence for changes in stratospheric transport and mixing over the past three decades based on multiple data sets and tropical leaky pipe analysis, *Journal of Geophysical Research*, 115(D21).
- Roeckner, E., R. Brokopf, M. Esch, M. Giorgetta, S. Hagemann, L. Kornblueh, E. Manzini, U. Schlese, und U. Schulzweida (2006), Sensitivity of Simulated Climate to Horizontal and Vertical Resolution in the ECHAM5 Atmosphere Model, *Journal of Climate*, 19(16), 3771–3791.
- Roedel, W., und T. Wagner (2011), *Physik unserer Umwelt: die Atmosphäre*, 4. Auflage, Springer, Berlin and Heidelberg.
- Rossby, C.-G. (1936), *Dynamics of steady ocean currents in the light of experimental fluid mechanics*, Massachusetts Institute of Technology and Woods Hole Oceanographic Institution, Cambridge, MA.
- Rowland, F. S., und M. J. Molina (1975), Chlorofluoromethanes in the environment, *Reviews of Geophysics*, 13(1), 1–35.
- Scaife, A. A., C. K. Folland, L. V. Alexander, A. Moberg, und J. R. Knight (2008), European Climate Extremes and the North Atlantic Oscillation, *Journal of Climate*, 21(1), 72–83.
- Schmidt, U., A. Engel, und M. Volk (2002), Ist der globale Ozonabbau gestoppt? Spurengasmessungen in der Stratosphäre geben Aufschluss, in *Geowissenschaften in Frankfurt, Kleine Senckenberg-Reihe*, Bd. 43, herausgegeben von A. Junge, S. 1–12, Schweizerbart, Stuttgart.
- Scott, R. K., und J.-P. Cammas (2002), Wave Breaking and Mixing at the Subtropical Tropopause, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(15), 2347–2361.
- Seinfeld, J. H., und S. N. Pandis (2006), *Atmospheric chemistry and physics*, 2. Auflage, J. Wiley, Hoboken, N.J.
- SPARC (2013), Lifetimes of Stratospheric Ozone-Depleting Substances, Their Replacements, and Related Species.
- Staehelin, J., Harris, N. R. P., C. Appenzeller, und J. Eberhard (2001), Ozone trends: A review, *Reviews of Geophysics*, 39(2), 231–290.
- Thompson, D. W. J., M. P. Baldwin, und S. Solomon (2005), Stratosphere–Troposphere Coupling in the Southern Hemisphere, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 62(3), 708–715.
- Volk, C. M., J. W. Elkins, D. W. Fahey, R. J. Salawitch, G. S. Dutton, J. M. Gilligan, M. H. Proffitt, M. Loewenstein, J. R. Podolske, K. Minschwaner, J. J. Margitan, und K. R. Chan (1996), Quantifying Transport Between the Tropical and Mid-Latitude Lower Stratosphere, *Science*, 272(5269), 1763–1768.
- Wallace, J. M., und P. V. Hobbs (2006), *Atmospheric science*, 2. Auflage, Elsevier Academic Press, Boston.
- Waugh, D. (2009), Atmospheric dynamics: The age of stratospheric air, *Nature Geoscience*, 2(1), 14–16.
-

World Meteorological Organization (2014), Assessment for Decision-Makers: Scientific Assessment of Ozone Depelction: 2014.

Selbständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, Marius Hauck, dass ich obige Arbeit eigenständig verfasst, nur die im Literaturverzeichnis angegebenen Quellen, Hilfsmittel und Abbildungen benutzt sowie Quellen der Abbildungen und Zitate deutlich gemacht habe.

Die Arbeit ist in dieser oder ähnlicher Form bei keinem anderen Prüfungskomitee vorgelegt worden.

Hanau, den 20.10.2016

Marius Hauck

Danksagung

Zunächst möchte ich mich bei Prof. Dr. Andreas Engel bedanken, der mir die Arbeit auf dem Gebiet der stratosphärischen Forschung ermöglicht und durch sehr viele konstruktive Gespräche maßgeblich zu ihrem Gelingen beigetragen hat. Zudem hat er mir die Möglichkeit gegeben meine Kenntnisse der Thematik durch die Teilnahme an der SHARP Konferenz 2016 und dem EMAC Symposium 2016 noch zu vertiefen und einen Einblick in den aktuellen Stand der Forschung zu gewinnen.

Weiterhin gilt mein Dank Dr. Harald Bönisch, ohne dessen Betreuung und jahrelange Erfahrung obige Arbeit nicht möglich gewesen wäre. Trotz seines Wechsels vom Institut für Atmosphäre und Umwelt (IAU) zum Karlsruher Institut für Technologie (KIT) war er stets für Fragen und Anfragen zur Stelle und konnte selbst bei schwierigen Problemen in der Programmierung über die Distanz immer mit einem oftmals simplen aber sehr effektiven Rat weiterhelfen.

Außerdem möchte ich mich bei Jennifer Ostermöller bedanken, für die sehr gute Betreuung, die vielen fachlich konstruktiven Diskussionen und die generelle Hilfe bei Problemen aller Art. Ihre Tür stand zu jeder Zeit für mich offen und sie hatte stets einen guten Ratschlag für das weitere Vorgehen bei der Arbeit parat und konnte mich auch in negativen Phasen immer motivieren. Überdies sei ihr für die literarische Durchsicht der Arbeit gedankt.

Besonderer Dank sei auch Dr. Patrick Jöckel vom Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Oberpfaffenhofen ausgesprochen, der die nötigen Datensätze für diese Arbeit bereitgestellt hat und stets für Fragen bezüglich des EMAC-Modells offen war.

Des Weiteren möchte ich mich noch bei meiner Familie und meinen Freunden bedanken, die mich während meines kompletten Studiums unterstützt und auch in schwierigen Zeiten immer Worte der Motivation gefunden haben. Ohne sie wäre diese Arbeit ebenfalls nicht möglich gewesen.

Zuletzt widme ich diese Masterarbeit meinem verstorbenen Großvater Kurt Odenwald, der mein gesamtes Studium immer mit sehr großem Interesse und Stolz verfolgte, diese Abschlussarbeit aber aufgrund seiner schweren Krankheit leider nicht mehr erleben konnte.