

Entwicklung und Einsatz eines flugzeuggetragenen Instrumentes zur in-situ-Messung langlebiger Spurengase in der Stratosphäre



Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim
Fachbereich Geowissenschaften / Geographie
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von

Dipl. Phys. Oliver Riediger
aus Konstanz

Vom Fachbereich Geowissenschaften / Geographie der Johann Wolfgang
Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Gerhard Brey
Gutachter: Prof. Dr. Ulrich Schmidt, Universität Frankfurt
Prof. Dr. Thomas Peter, ETH Zürich
Datum der Disputation: 14. Dezember 2000



Inhaltsverzeichnis

Überblick	1
1 Einführung	5
1.1 Dynamik der Stratosphäre	5
1.1.1 Horizontaler Transport	7
1.1.2 Globale Zirkulation und vertikaler Transport	9
1.2 Das mittlere Alter der Luft	9
1.2.1 Konzept	9
1.2.2 Geeignete Alterstracer I: SF ₆	12
1.2.3 Geeignete Alterstracer II: CO ₂	14
I Technik	17
2 Der High Altitude Gas Analyser: HAGAR	21
2.1 Hintergrund	21
2.2 Die Ballonversion des HAGAR	23
2.2.1 Mechanischer Aufbau	23
2.2.2 Elektrischer Aufbau	24
2.2.3 Analytik	25
2.2.4 Der LITES-Testflug	26
2.3 Die Flugzeugversion des HAGAR	28
2.3.1 Das aktive Heiz- und Kühlsystem	28
2.3.2 Mechanische Integration	31
2.3.3 Elektrische Integration	33
2.3.4 Chromatographie	36
2.3.5 Integration eines CO ₂ -Sensors	38
2.3.6 Weitere Verbesserungen und Modifikationen	42
3 HAGAR-Steuereinheit	47
3.1 Anforderungen	47

3.2	Das System	49
3.3	Grundlagen der Multitasking-Programmierung	51
3.3.1	Problematik	51
3.3.2	Der Real-Time-Kernel	52
3.4	Die HAGAR-Steuerungssoftware	55
3.4.1	Konzept	56
3.4.2	Datenstrukturen	57
3.4.3	Tasks	58
3.4.4	Programmablauf	59
3.4.5	Betriebsmodi	60
3.4.6	Flugablauf	61
3.4.7	Benutzerschnittstelle	62
3.5	Weitere Programme	63
4	Datenauswertung	65
4.1	Prozessdaten	65
4.2	Chromatographie	66
4.2.1	Das NOAH-Chrom-Paket	67
4.2.2	Integration der Peaks	68
4.2.3	Bestimmung der Nicht-Linearität	71
4.2.4	Präzision und Stand der Auswertung	76
4.3	LI-COR 6251	78
4.3.1	Datenauswertung im Laborbetrieb	78
4.3.2	Datenauswertung im Flugzeugbetrieb	81
4.3.3	Systematische Korrekturen	83
4.3.4	Fehlergrenzen der CO ₂ -Messung	90
4.4	Kalibriergase	95
II	Feldeinsatz und Validierung	99
5	Messkampagnen	103
5.1	Die Messplattform: M-55 „Geophysica“	103
5.1.1	Technisches	103
5.1.2	Instrumentierung	105
5.2	Die Testkampagne: APE-ETC	108
5.3	Die tropische Kampagne: APE-THESEO	109
5.3.1	Wissenschaftliche Fragestellungen	109
5.3.2	Durchführung	111
5.3.3	Bilanz der HAGAR-Aktivitäten	115
5.4	Die antarktische Kampagne: APE-GAIA	116

5.4.1	Fragestellungen	116
5.4.2	Durchführung	118
5.4.3	Bilanz der HAGAR-Aktivitäten	124
6	Qualitative Bewertung der HAGAR-Messungen	127
6.1	Beispiel I: APE-THESEO, 11.3.1999	129
6.2	Beispiel II: APE-GAIA, 21.9.1999	131
7	Vergleich der HAGAR-Daten	135
7.1	Vorbemerkung: Troposphärische Trends	135
7.2	GhOST	136
7.3	ACATS	139
7.4	Kryosammler	143
7.5	ER-2-Daten für CO ₂ und N ₂ O	144
7.6	Zusammenfassung	146
III	Analyse der Messergebnisse	147
8	Bestimmung des mittleren Alters stratosphärischer Luft	151
8.1	Berechnung des mittleren Alters	152
8.2	CO ₂	154
8.2.1	Methankorrektur	154
8.2.2	CO ₂ -Alter in den Tropen	154
8.2.3	Troposphärischer Trend von CO ₂	157
8.2.4	Ergebnisse	160
8.3	SF ₆	164
8.3.1	Troposphärischer Trend	164
8.3.2	Ergebnisse	165
8.4	Zusammenfassung	166
9	Transport in den Tropen	169
9.1	Vertikalprofile von CO ₂	169
9.1.1	Motivation	169
9.1.2	Messungen	170
9.2	Tracer-Tracer-Korrelationen	173
10	Dynamische Mischungsprozesse am Wirbelrand	177
10.1	Potenzielle Vorticity	178
10.2	Der Filament-Flug vom 8.10.1999	181
10.3	Ereignisse während anderer Flüge	186
10.3.1	Wirbelrand	186

10.3.2	Filamentartige Strukturen	188
10.4	Zusammenfassung	190
11	Zusammenfassung und Ausblick	191
IV	Anhang	197
A	Kalibriergase	199
B	Prazision der Messungen	201
B.1	Gaschromatograph	201
B.2	LI-COR	202
C	Daten der Messfluge	205
C.1	APE-THESEO	205
C.2	APE-GAIA	215
D	Mathematische Methoden	231
D.1	Fehlerfortpflanzung nach Gau	231
D.2	Numerische Bestimmung von Nullstellen	231
D.3	Glattung von Zeitreihen	232
E	Integration von Peaks mittels Gau-Funktionen	235
F	Erluterungen zur Software	239
F.1	Der Flugrechner	240
F.2	Der Entwicklungsrechner	242
F.3	Das Steuerprogramm hagar020.exe	243
F.4	Der Konfigurationseditor helga.exe	248
F.5	Datenaufbereitung: sven020.exe	251
F.6	Datenkomprimierung	252
F.7	Empfang der Avionik-Daten (UCSE)	253
G	Elektrisches Schema	255
	Abbildungsverzeichnis	257
	Tabellenverzeichnis	261
	Abkurzungsverzeichnis	263
	Literaturverzeichnis	267

Überblick

Trotz ihrer – absolut gesehen – geringen Mischungsverhältnisse spielen Spurengase eine entscheidende Rolle für die Atmosphäre unseres Planeten. So sorgt vor allem die Anwesenheit von Kohlendioxid (CO_2) und Wasserdampf (H_2O) durch die Absorption der von der Erde ausgesendeten Infrarotstrahlung für den natürlichen „Treibhauseffekt“. Dieser erhöht die Gleichgewichtstemperatur der Erdoberfläche im Mittel um etwa 30°C [z. B. *Roedel*, 1992] und ermöglicht damit erst ein Leben, wie wir es auf der Erde kennen.

Die optische Absorptionsbande des Sauerstoffmoleküls O_3 („Ozon“) zwischen 210 und 310 nm schützt die Lebewesen auf der Oberfläche vor der gefährlichen UV-Strahlung der Sonne. Die vom Ozon aus der solaren Strahlung absorbierte Energie wiederum bestimmt das Temperaturprofil der Atmosphäre in einem Höhenbereich von ca. 10 bis 50 km. Es ist damit die Ursache für die thermisch stabile Schichtung dieses Bereichs, der als Stratosphäre bezeichnet wird.

Vor diesem Hintergrund ist es keine Überraschung, dass die durch die anwachsende Weltbevölkerung und die zunehmende Industrialisierung angestiegenen anthropogenen Emissionen von langlebigen¹ Spurengasen nicht ohne Folgen für die Atmosphäre geblieben sind [z. B. *WMO*, 1995, 1999; *IPCC*, 1995]. Zu diesen Emissionen zählen Gase mit natürlichen und anthropogenen Quellen wie Lachgas (N_2O), Methan (CH_4) und CO_2 , aber auch Gase mit rein industriellen Quellen wie die Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKWs) oder auch Schwefelhexafluorid (SF_6).

Die wohl bekanntesten Folgen dieser Emissionen sind der anthropogene Treibhauseffekt sowie der vor allem über der Antarktis im Frühjahr beobachtete dramatische Ozonverlust in der Stratosphäre, der auch als „Ozonloch“ bezeichnet wird [*Farman et al.*, 1985] und auch die globale Abnahme der Ozonschicht. Dieses Phänomen tritt als Folge des komplexen Zusammen-

¹Zu den „langlebigen“ Spurengasen werden in diesem Zusammenhang diejenigen Verbindungen gezählt, deren lokale chemische Lebenszeiten mindestens von der gleichen Größenordnung sind, wie die Zeitskalen, auf denen die betrachteten dynamischen Phänomene ablaufen.

spiels einer ganzen Reihe von Parametern auf. Neben dem angewachsenen Reservoir an reaktiven Chlorverbindungen, das letztlich aus der verstärkten anthropogenen Emission von FCKWs herrührt, sind vor allem meteorologische Parameter von Bedeutung. Die tiefen Temperaturen und die dynamische Isolation des Polarwirbels ermöglichen heterogene chemische Reaktionen an polaren stratosphärischen Wolkenteilchen (PSCs²), die den beobachteten rapiden Ozonabbau ermöglichen [z. B. *Solomon*, 1990; *Peter*, 1997].

In den letzten drei Jahrzehnten hat sich durch intensive Forschung das Verständnis um die verschiedenen chemischen und physikalischen Prozesse innerhalb der Stratosphäre enorm verbessert [z. B. *Solomon*, 1999]. Spurengasmessungen dienen dabei dazu, die chemischen Prozesse zu verstehen und die schädlichen Substanzen zu identifizieren. Messungen der zeitlichen Entwicklung der Mischungsverhältnisse in der Troposphäre und der Stratosphäre („Trends“) [*Montzka et al.*, 1996, 1999; *Engel et al.*, 1998] helfen, Zukunftsprognosen über den Ozonverlustes zu treffen. Die Messung langlebiger Spurengase kann aber mehr leisten. Da ihre Lebensdauer auf ähnlichen oder größeren Zeitskalen liegt wie die Transportprozesse, können sie dazu verwendet werden, Luftmassen in der Stratosphäre zu charakterisieren und zu verfolgen. Langlebige Spurengase werden daher auch häufig als „Tracer“ bezeichnet.

Für jene Tracer, die in der Stratosphäre keine Quellen oder Senken haben, ist die räumliche und zeitliche Verteilung vollständig durch die Emission und den Transport bestimmt. Für Gase mit zeitlich nahezu linear ansteigendem troposphärischen Mischungsverhältnis kann dann aus dem stratosphärischen Mischungsverhältnis der Zeitpunkt bestimmt werden, an dem das vermessene Luftpaket im Mittel in die Stratosphäre eingemischt wurde. Die Zeitdifferenz zum Zeitpunkt der Messung wird dann als „mittleres Alter“ stratosphärischer Luft bezeichnet, die verwendeten Tracer als „Alterstracer“ [z. B. *Kida*, 1983; *Bischof et al.*, 1985; *Schmidt & Khedim*, 1991; *Hall & Plumb*, 1994].

Seit mittlerweile über 20 Jahren werden die Mischungsverhältnisse einer großen Anzahl von Spurengasen in der unteren und mittleren Stratosphäre mit Luftprobensammlern an Stratosphärenballonen bestimmt [z. B. *Ehhalt et al.*, 1975; *Schmeltekopf et al.*, 1977; *Goldan et al.*, 1980; *Schmidt et al.*, 1987]. Die Analyse der Luftproben wird bei dieser Methode anschließend im Labor durchgeführt. Dem Vorteil der großen Anzahl an messbaren Verbindungen steht als Nachteil die geringe Anzahl an Datenpunkten gegenüber: die Sammler können nur eine begrenzte Anzahl von Proben (ca. 15) nehmen, was einer vertikalen Auflösung von 1 – 3 km entspricht. Seit einigen Jahren werden jedoch mit Erfolg an Ballonen und auf Höhenforschungsflugzeugen wie der amerikanischen NASA ER-2 in-situ-Instrumente zur Echtzeit-Messung von

²Polare Stratosphärische Wolken, engl. Polar Stratospheric Clouds, kurz PSC

FCKWs, N_2O , CH_4 , CO_2 und anderen langlebigen Spurengasen eingesetzt [z. B. *Moore et al.*, 1997, 2000; *Webster et al.*, 1993; *Podolske & Loewenstein*, 1993; *Elkins et al.*, 1996; *Wofsy et al.*, 1994; *Boering et al.*, 1994; *Robinson et al.*, 2000].

Im Jahre 1996 wurde am Institut für Meteorologie und Geophysik ein Projekt initiiert, ein solches Instrument zu entwickeln und zu betreiben. Es sollte in der Lage sein, in-situ-Messungen langlebiger Spurengase in der oberen Troposphäre, sowie der unteren und mittleren Stratosphäre an Ballonen und auf Höhenforschungsflugzeugen durchzuführen. Die Präzision der Messungen, sowie die räumliche bzw. zeitliche Auflösung sollten dabei ausreichend sein, um Erkenntnisse über dynamische Phänomene in der Stratosphäre gewinnen zu können. Die vorliegende Arbeit stellt nun eine Reihe von zentralen Inhalten dieses Projektes vor.

Die wesentlichen Fragestellungen der stratosphärischen Dynamik stehen am Anfang dieser Arbeit in Kapitel 1. Eine besondere Kenngröße für Transportprozesse ist das mittlere Alter der Luft. Dabei wird vor allem auf die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen „Alterstracer“ SF_6 und CO_2 eingegangen.

Der Hauptteil der Arbeit gliedert sich in drei Teile. Teil I widmet sich der technischen Beschreibung des neu entwickelten „High Altitude Gas Analyser“ (HAGAR). Ein solches Projekt kann nicht von einer Person allein bewerkstelligt werden. Es ist vielmehr eine Aufgabe, die neben dem eigentlichen „HAGAR-Team“ auch eine ganze Reihe von Werkstätten beschäftigte. Teil I der vorliegenden Arbeit soll auch als Dokumentation des gesamten Projektes „HAGAR“ dienen. Dabei werden in allen technischen Kapiteln, die auch die Datenprozessierung umfassen, die Schwerpunkte auf die Bereiche gelegt, die hauptsächlich auf Eigenleistung beruhen (insbesondere Entwicklung der Steuerungssoftware, Integration des CO_2 -Sensor, Integration auf der Geophysica, Bestimmung und Verwendung der nicht-linearen Detektorkennlinien, . . .). Folglich wird die Beschreibung des Instruments und der Datenauswertung in den Kapiteln 2 bis 4 weitgehend so gehalten, dass sie die Dissertation von Martin *Strunk* [1999], die eine Darstellung der ersten Version von HAGAR enthält, ergänzt.

Teil II gibt einen Überblick über die ersten Messungen, die mit HAGAR im Jahr 1999 gemacht wurden. Dabei werden zunächst die drei Messkampagnen, während denen HAGAR Teil der Geophysica-Nutzlast war vorgestellt (Kapitel 5). Die Instrumentierung des Flugzeuges, sowie der Ablauf der Kampagnen werden dargestellt. Neben diesen technischen Fragen werden die grundsätzlichen wissenschaftlichen Fragestellungen erörtert, die der Kampagnenplanung zu Grunde lagen.

Da HAGAR ein neu entwickeltes Messinstrument ist, ist es notwendig, die gewonnenen Messdaten zu vergleichen und zu validieren. Kapitel 6 widmet

sich einer ersten qualitativen Bewertung des HAGAR-Datensatzes. Hier soll nur ein erster Eindruck vom Leistungsumfang des Instrumentes vermittelt werden.

In Kapitel 7 werden schließlich die HAGAR-Daten in Form von Tracer-Tracer-Korrelationen den Ergebnissen verschiedener anderer Instrumente gegenübergestellt, um die Qualität der HAGAR-Daten auch quantitativ bewerten zu können.

In Teil III der Arbeit wird eine erste wissenschaftliche Analyse der HAGAR-Daten durchgeführt. Kapitel 8 diskutiert die Probleme, die in der Praxis bei der Bestimmung des mittleren Alters der Luft aus Spurengasmessungen auftreten. Von besonderer Bedeutung ist hier die Frage nach der Vergleichbarkeit von Altersdaten aus verschiedenen Zeiträumen. Dazu werden die Ergebnisse unter anderem den Ergebnissen von CO₂-Messungen an Bord der ER-2 gegenübergestellt.

In Kapitel 9 werden die Teile der Daten, die HAGAR 1999 während APE-THESEO und den Transferflügen für APE-GAIA aufnehmen konnte vorgestellt. In den Tropen ist Kohlendioxid aufgrund seines starken saisonalen Signals kein geeigneter Alterstracer. Das zeitliche Fortschreiten dieses saisonalen Signals kann aber im Bereich der tropischen oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre als Vertikalprofil gemessen werden [z. B. *Boering et al.*, 1996; *Andrews et al.*, 1999]. Neben CO₂-Vertikalprofilen wird auch die Einmischung von Luft aus mittleren Breiten in den Bereich der Tropen und deren Identifikation anhand von Tracerdaten diskutiert.

Am 8.10.1999 durchflog die Geophysica südöstlich von Feuerland ein Filament, das sich vom antarktischen Wirbel gelöst hatte. Kapitel 10 zeigt, dass HAGAR ein geeignetes Instrument ist, um solche Strukturen aufzulösen, die möglicherweise eine wichtige Rolle für den Spurengastransport in der Stratosphäre spielen. Dieses Ereignis dient hier als Ausgangspunkt einer Diskussion von Mischungsprozessen im Wirbalrandbereich, die in Form solcher Filamente ablaufen. Daher werden weitere dynamische Phänomene im Bereich des als horizontale Transportbarriere wirkenden Polarwirbels untersucht, deren räumliche Ausdehnung weit geringer als die des Filaments vom 8.10.1999 ist. Dabei wird auch geprüft, inwieweit die hochaufgelöste Analyse der potenziellen Vorticity aus meteorologischen Datenfeldern die an Hand von Spurengasmessungen beschriebenen Strukturen nachzeichnen kann.

In Kapitel 11 werden die gewonnenen Erkenntnisse noch einmal zusammenfassend dargestellt. In einem Ausblick sollen nicht nur Wege aufgezeichnet werden, wie die Messungen von HAGAR weiter verbessert werden können. Es soll vielmehr aufgezeigt werden, dass die Auswertung des 1999 mit HAGAR gewonnenen Datensatzes sich mit dem Ende dieser Arbeit immer noch in einem frühen Stadium der Interpretation befindet.

Kapitel 1

Einführung

Der Transport von Spurenstoffen spielt eine wichtige Rolle im komplexen System der Atmosphäre. So beeinflussen die Temperaturverteilung sowie die Verteilung von Ozon und anderen Spurengasen die Chemie und den Strahlungshaushalt innerhalb der Stratosphäre. Gerade Temperatur- und Strahlungshaushalt bestimmen wiederum den Transport. Auch der auf anthropogene Emission von Spurengasen zurückzuführende beobachtete Abbau von stratosphärischem Ozon verändert die Dynamik, da vor allem Ozon für die Temperaturverteilung innerhalb der Stratosphäre verantwortlich ist. Das Verständnis und die Quantifizierung von Transportvorgängen ist daher von besonderer Bedeutung, wenn man Aussagen über eine künftige Entwicklung der Ozonschicht – insbesondere auch über den mittleren Breiten – treffen will.

Im folgenden Abschnitt 1.1 werden die wesentlichen Aspekte des globalen atmosphärischen Transportes, wie er sich heute darstellt, skizziert. Dabei wird immer wieder auf die Bedeutung von Spurengasmessungen hingewiesen werden. Das Konzept des mittleren Alters hat sich als eines der wertvollsten Werkzeuge zur Quantifizierung stratosphärischen Transportes herausgestellt und wird daher in Abschnitt 1.2 getrennt vorgestellt.

1.1 Dynamik der Stratosphäre

Den Beginn der Forschung zu den stratosphärischen Zirkulationsmustern stellte die Entdeckung der Brewer-Dobson-Zirkulation durch *Brewer* [1949] dar. Flugzeugmessungen in der Stratosphäre der mittleren Breiten in bis zu 13 km Höhe zeigten sehr niedrige Werte des Wasserdampfmischungsverhältnisses von nur einigen ppm¹. Der Wasserdampfgehalt nimmt beim Durchgang

¹Einheit des Mischungsverhältnisses (parts per million); dies entspricht einem Spurengasmolekül pro 10⁶ Luftmoleküle. Die zu ppm identische SI-Einheit ist $\mu\text{mol mol}^{-1}$ [z. B.

durch das Temperaturminimum der Tropopause durch Ausfrieren ab. Thermodynamische Überlegungen zeigten jedoch, dass die in der Stratosphäre gemessenen Wasserdampfmischungsverhältnisse nur erreicht werden können, wenn die Luft hauptsächlich durch die bedeutend kältere tropische Tropopause in die Stratosphäre aufsteigt. Aufgrund der Massenerhaltung der Atmosphäre stehen dieser Aufwärtsströmung in den Tropen polwärts und abwärts gerichtete Strömungen in mittleren und hohen Breiten entgegen (vgl. Abbildung 1.1).

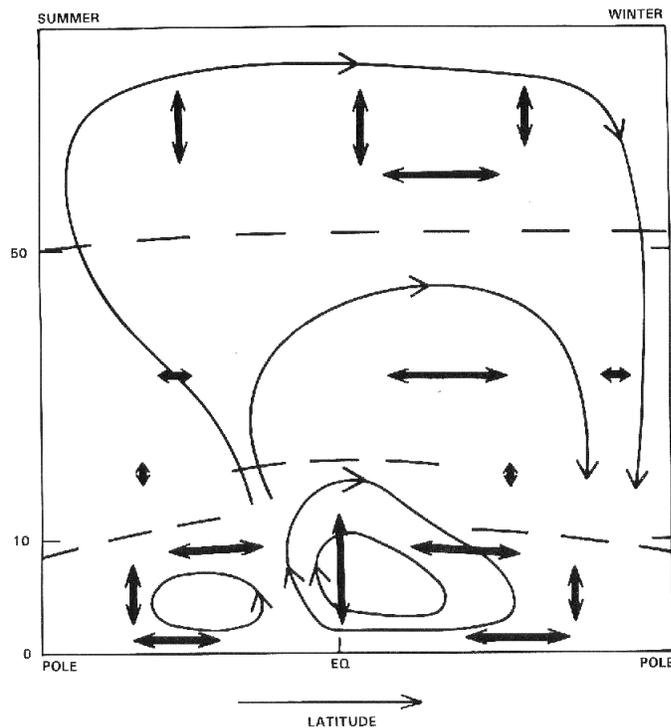


Abbildung 1.1: Vereinfachtes Schema der atmosphärischen Zirkulation nach WMO [1986]. Die dünnen Pfeile geben die Grundströmung an, während die dicken Pfeile Mischung charakterisieren. Tropopause und Stratosphäre sind jeweils mit gestrichelten Linien angedeutet.

Der Grundströmung der Brewer-Dobson-Zirkulation, die bis in die Mesosphäre reicht, sind noch weitere Mischungsprozesse überlagert. Aufgrund der stärkeren Wellenaktivität in der Winterhemisphäre sind Zirkulation und Horizontalmischung hier weit deutlicher ausgeprägt. Doch auch auf der Som-

Seinfeld & Pandis, 1998, S. 19] Analog wird im Weiteren noch ppb (parts per billion, nmol mol^{-1}) und ppt (parts per trillion, pmol mol^{-1}) verwendet.

merhalb der Kugel unterliegt die Luft in der Stratosphäre der hohen und mittleren Breiten noch Absinkprozessen, die jedoch bedeutend schwächer sind.

Während in der Troposphäre wie auch in der Mesosphäre horizontale und vertikale Mischung mehr oder weniger gleichberechtigt sind, ist in der thermisch stabil geschichteten Stratosphäre die horizontale Mischung entlang Isentropen bedeutend schneller als der vertikale, advektive Transport. *Plumb & Ko* [1992] erklären, warum Messungen der Mischungsverhältnisse zweier langlebiger Spurengase in solchen Bereichen definierte, zum Teil lineare Beziehungen („Korrelationen“) aufweisen (müssen).

Korrelationen von solchen Transporttracern stellen ein wichtiges Werkzeug zur Untersuchung von Transportprozessen dar. Denn obwohl die Messungen an Ballonen (Vertikalprofile) und Flugzeugen (größtenteils horizontale Flugmuster) zunächst nur nicht-repräsentative Zustände der Atmosphäre darstellen, erreichen Korrelationen – begrenzt auf bestimmte Bereiche der Stratosphäre – eine gewisse Allgemeingültigkeit. Reversible Fluktuationen treten in den Korrelationsdiagrammen nicht auf, so dass andere für den Spurenstofftransport relevante Prozesse untersucht werden können.

1.1.1 Horizontaler Transport

Durch eine große Zahl an Studien wurde das in Abbildung 1.1 aufgezeichnete Bild der Atmosphäre stark verfeinert. Bei *Plumb & Ko* [1992] wurde die horizontale Mischung innerhalb der Stratosphäre als nahezu breitenunabhängig beschrieben. In der Realität jedoch ist die Stratosphäre durch Transportbarrieren, also Bereiche verringerter Mischung in verschiedene Regionen unterteilt. Vor allem auch mittels Tracermessungen war es möglich, diese Barrieren nicht nur zu identifizieren, sondern auch erste quantitative Beschreibungen des Horizontaltransports in Form von typischen Misch- und Austauschzeiten anzugeben. In Abbildung 1.2 ist dieses verfeinerte konzeptionelle Bild des troposphärischen und stratosphärischen Transports aufgezeichnet.

Messungen von N_2O und CO_2 zeigen, dass der Horizontaltransport in der unteren Stratosphäre in den mittleren Breiten durch eine typische Mischzeit von etwa einem Monat charakterisiert wird. Beobachtungen des CO_2 -Jahresganges in beiden Hemisphären zeigen, dass auch die Einmischung tropischer Luft in mittlere Breiten auf ähnlichen Zeitskalen abläuft [*Boering et al.*, 1996].

Aus der Beobachtung, dass sich Tracerkorrelationen aus den mittleren Breiten und den Tropen unterscheiden, konnte geschlossen werden, dass die Einmischung von Luft aus mittleren Breiten in die Tropen der unteren Stratosphäre stark behindert ist [*Volk et al.*, 1996]. Eine Reihe von Arbeiten versuchen diesen Transport durch Tracermessungen von Ballonen und der

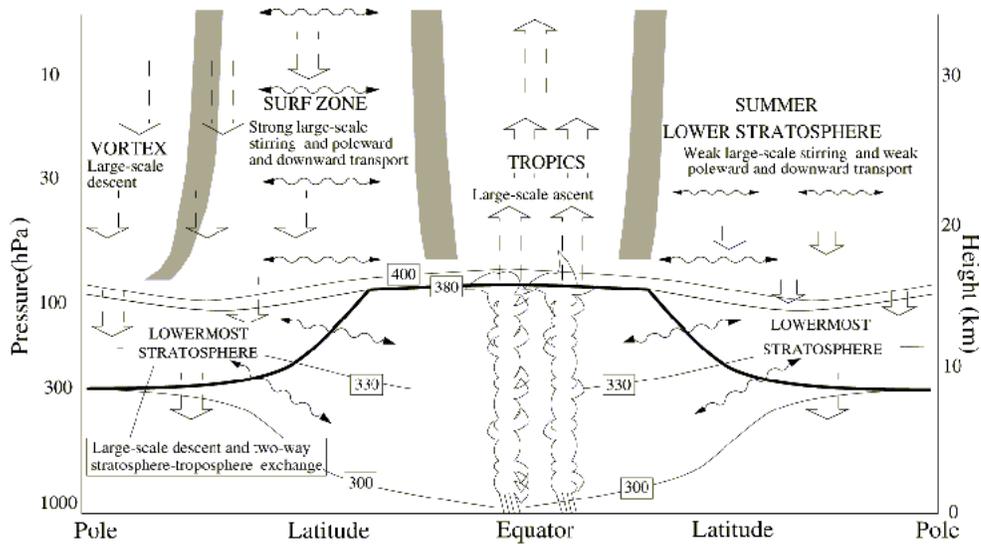


Abbildung 1.2: Konzeptionelles Bild des globalen atmosphärischen Transports vor allem in der Tropopausenregion und der Stratosphäre [WMO, 1999]. Die dicke schwarze Linie markiert den mittleren Tropopausenbereich, wobei auf die Darstellung von Strukturen wie etwa Tropopausenbrüche am Rande der Tropen verzichtet wurde. Die grauen Flächen stellen horizontale Transportbarrieren innerhalb der Stratosphäre dar. Während die großen, geraden Pfeile die Grundströmung des Transportes angeben, kennzeichnen die geschwungenen Pfeile horizontale Mischung entlang von Isentropen.

ER-2 zu quantifizieren [z. B. Volk *et al.*, 1996; Hall & Waugh, 1997; Herman *et al.*, 1998]. Im Bereich der Tropen findet sich der Jahresgang von Tracern wie CO_2 und Wasserdampf aufgrund des starken vertikalen Transports als Vertikalprofil wieder [Boering *et al.*, 1996; Plumb, 1996; Mote *et al.*, 1996; Andrews *et al.*, 1999] (s. auch Abschnitt 1.1.2). Mote *et al.* [1998] bestimmen die Einmischzeit von den mittleren Breiten in die Tropen aus der Dämpfung dieses Signals. Die Ergebnisse der Studien geben typische Einmischzeiten zwischen acht Monaten und zwei Jahren an. Li & Waugh [1999] zeigen in einer Modellstudie, dass gerade diese Einmischung von großer Bedeutung für die globale Verteilung von Spurengasen ist. Neu & Plumb [1999] versuchen in einer vereinfachten Modellstudie einer „leaky pipe“ den Einfluss der Mischung über die subtropische Transportbarriere hinweg auf das Alter der Luft innerhalb und außerhalb der Tropen zu quantifizieren.

Im Spätwinter wurde im Bereich des Polarwirbels, bzw. in Wirbel-Fragmenten nach dem Aufbrechen des Wirbels im Frühling eine Abweichung von den Tracerkorrelationen der mittleren Breiten beobachtet [z. B. Tuck

et al., 1997; *Waugh et al.*, 1997; *Rex et al.*, 1999]. Nach einer Modellstudie von *Plumb et al.* [2000] kann dies durch die Einmischung von Luft aus mittleren Breiten in die äußeren Bereiche des Polarwirbels erklärt werden.

1.1.2 Globale Zirkulation und vertikaler Transport

Der Bereich der Stratosphäre zwischen Tropopause und der 380 K-Isentrope wird als unterste Stratosphäre („lowermost stratosphere“) bezeichnet [*Holton et al.*, 1995]. Diese Isentrope entspricht etwa der mittleren tropischen Tropopausenhöhe von ca. 16 km bzw. 100 hPa. Hier existieren verschiedene Prozesse, die einen Stratosphären-Troposphären-Austausch ermöglichen. Neben isentropem Transport durch die zu den Tropen hin ansteigende Tropopause sind hier vor allem Tropopausenfalten zu nennen.

Wie bereits angedeutet kann der Vertikaltransport innerhalb der Tropen durch Messung eines Tracers mit saisonaler Variabilität wie Wasserdampf oder Kohlendioxid quantifiziert werden [*Mote et al.*, 1996; *Boering et al.*, 1996]. Die Stratosphäre zeichnet diese Signatur wie auf einem vertikal ablaufenden Band auf, weshalb dieser Effekt auch als „tape recorder“ bezeichnet wird [*Plumb*, 1996; *Mote et al.*, 1996].

Die Absinkprozesse im isolierten Polarwirbel können durch die Veränderungen in Vertikalprofilen von Spurengasmischungsverhältnissen identifiziert und quantifiziert werden [*Bauer et al.*, 1994]. Sollte jedoch Einmischung durch die Wirbelgrenze eine signifikante Rolle spielen, so könnte dies die aktuelle Interpretation dieser Daten in Frage stellen, bzw. eine umfassende Interpretation erschweren [*Plumb et al.*, 2000].

Der Transport in der restlichen Stratosphäre ist zunächst schwierig zu quantifizieren, da ein Luftpaket aus Teilpaketen mit individuellem Transportwegen besteht. Das im folgenden Abschnitt vorgestellte Konzept des „mittleren Alters“ stellt ein geeignetes Werkzeug zur Untersuchung des mittleren stratosphärischen Transports dar.

1.2 Das mittlere Alter der Luft

1.2.1 Konzept

Unter der vereinfachenden Annahme, dass alle Luft durch die tropische Tropopause in die Stratosphäre eintritt [*Holton*, 1990], wird die Transportzeit eines Luftpaketes innerhalb der Stratosphäre ab dem Zeitpunkt seines Eintritts in den Tropen gemessen. Diese Transportzeit wird im Allgemeinen als „Alter“ eines Luftpaketes bezeichnet. Nun bleibt aber die Integrität ei-

nes Luftpaketes beim Transport innerhalb der Stratosphäre nicht erhalten. Ein beliebiges Luftpaket stellt also eine Mischung aus Paketen dar, die auf sehr unterschiedlichen Transportwegen dorthin gelangt sein können. In einem statistischen Ansatz bezeichnet *Kida* [1983] dieses Ensemble von Wegen als „Altersspektrum“ eines Luftpaketes. Prinzipiell verbreitert sich dieses Spektrum, je größer die Anzahl der möglichen Transportwege ist und damit im Allgemeinen mit zunehmender Distanz zur tropischen Tropopause.

In verschiedenen experimentellen Studien wurde das Alter stratosphärischer Luft bestimmt [z. B. *Bischof et al.*, 1985; *Schmidt & Khedim*, 1991]. Dabei wurde das Alter aus der „lag-time“ eines konservativen Tracers bestimmt, dessen troposphärisches Mischungsverhältnis einem stetigen zeitlichen Anstieg unterlag. Die „lag-time“ ist die Zeitdifferenz zwischen dem Zeitpunkt der Messung und dem Zeitpunkt an dem der troposphärische Trend das in der Stratosphäre gemessene Mischungsverhältnis aufwies. *Schmidt & Khedim* [1991] bestimmten das typische Alter für die mittlere Stratosphäre in mittleren und hohen Breiten auf knapp sechs Jahre. *Pollock et al.* [1992] errechneten für die untere Stratosphäre aus F115-Messungen Alterswerte zwischen drei und fünf Jahren. In einer Modellstudie, in der ein Tracer verwendet wurde, der ein ähnliches Verhalten aufweist wie CO₂, untersuchten *Hall & Prather* [1993] die räumliche Verteilung des Alters in der Stratosphäre sowie den Einfluss des jahreszeitlichen Zyklus auf die Altersbestimmung.

Hall & Plumb [1994] formulierten schließlich die genauen Voraussetzungen, unter denen ein Spurengas bei der Bestimmung des mittleren Alters Verwendung finden kann: Das Spurengas muss zum einen konservativ sein, darf also keine stratosphärischen Senken oder Quellen haben. Zum anderen muss es einen zeitlich linearen troposphärischen Trend aufweisen, der über einen Zeitraum von mindestens zehn Jahren gut dokumentiert ist. Nur für einen Tracer, der diese Bedingungen erfüllt, stimmt das mittlere Alter bzw. die mittlere Transportzeit, die durch den Schwerpunkt des Altersspektrums bestimmt ist, mit der „lag time“ überein. Solche Tracer werden als „chronologische Tracer“ oder „Alterstracer“ bezeichnet [*Volk et al.*, 1997].

Hall & Waugh [1997] wiesen darauf hin, dass die in Abbildung 1.3 skizzierten Altersspektren zu hohen Altern hin „verschmieren“. Die Folge hiervon ist, dass das mittlere Alter, im Gegensatz zum wahrscheinlichsten Alter, stark von kleinen Mengen sehr alter Luft abhängig ist. Damit ist das mittlere Alter in weiten Teilen der Stratosphäre sensitiv auf die Einmischung von „alter“ Luft aus mittleren Breiten in die Tropen.

Bisher konnte das Altersspektrum nur in Modellen bestimmt werden [z. B. *Hall & Waugh*, 1997]. Neuere Studien zeigen jedoch, dass mit gewissen Modellannahmen in den Tropen und in mittleren Breiten Altersspektren für die untere Stratosphäre auch aus hochaufgelösten CO₂-Messungen gewonnen

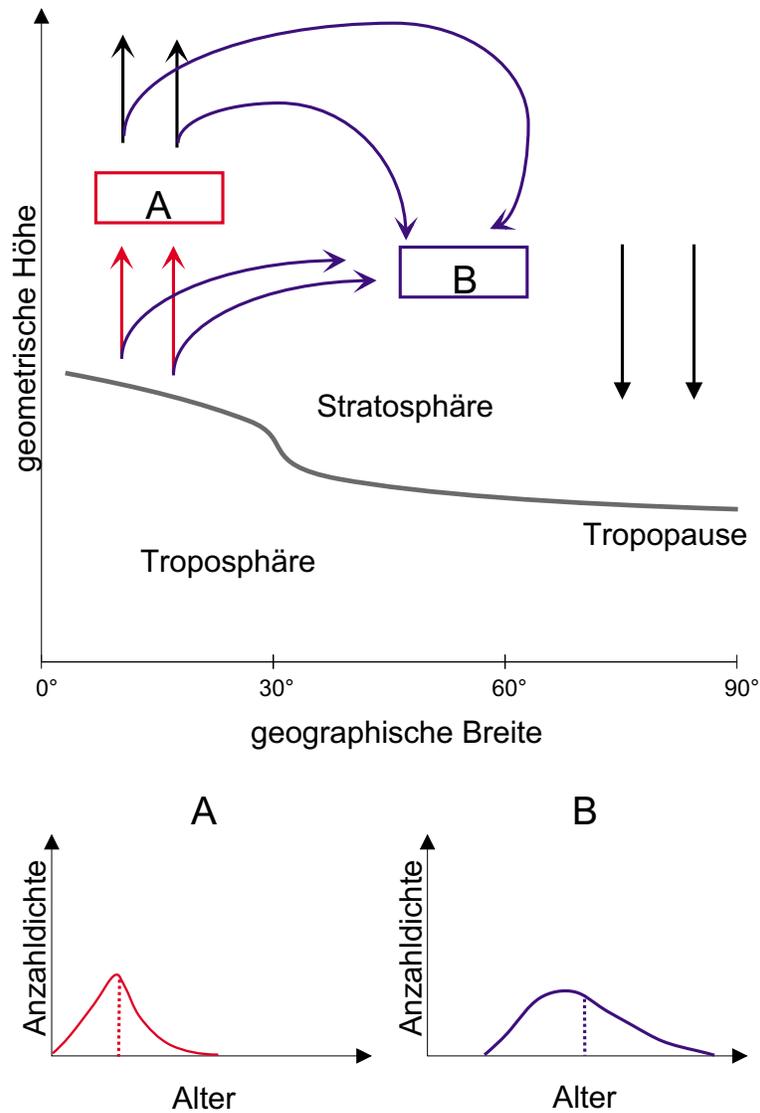


Abbildung 1.3: Konzept des Alters stratosphärischer Luft nach Kida [1983] [Abbildung entnommen aus Strunk, 1999]. Das Altersspektrum ist für zwei typische Situationen in der Stratosphäre (A bzw. B) skizziert. Die gestrichelten Linien geben das mittlere Alter an. Bei „B“ wird der Unterschied zwischen wahrscheinlichstem und mittlerem Alter deutlich.

werden können [Andrews *et al.*, 1999; Andrews, 1999]. Dennoch wird im Folgenden – sofern nicht gesondert darauf hingewiesen wird – „Alter“ synonym mit „mittlerem Alter“ benutzt.

Verschiedene Substanzen erfüllen die geforderten Kriterien für einen Alterstracer. So gibt es Studien mit F115 [Pollock *et al.*, 1992] und CF₄ [Harnisch *et al.*, 1999]. Aus verschiedenen Gründen haben sich jedoch Kohlendioxid (CO₂) und Schwefelhexafluorid (SF₆) bisher als die am besten geeigneten Alterstracer erwiesen. Für sie konnte der troposphärische Trend in ausreichender Genauigkeit über einen ausreichenden Zeitraum hinweg dokumentiert werden. Für beide Moleküle ist dieser Trend über die letzten 15 Jahre durch eine lineare bzw. schwach quadratisch ansteigende Funktion zu beschreiben.

Das Alter kann auch innerhalb von Modellen bestimmt werden. Eine Studie, die die Ergebnisse von 23 Modellen verglich, zeigte jedoch, dass die gemessenen Alter zumeist höher ausfallen als die modellierten [Hall *et al.*, 1999]. Hier zeigt sich noch ein erhebliches Defizit im quantitativen Verständnis des stratosphärischen Transports.

1.2.2 Geeignete Alterstracer I: SF₆

Schwefelhexafluorid (SF₆) ist ein schweres, nicht brennbares, chemisch nahezu völlig inertes und ungiftiges Gas, dessen natürliches Hintergrundmischungsverhältnis mit kleiner als 0,04 ppt angenommen wird [Maiss & Brenninkmeijer, 1998]. Seit den 70er-Jahren jedoch ist das SF₆-Mischungsverhältnis in der Atmosphäre stetig auf jetzt über 4 ppt angestiegen. Grund hierfür sind rein anthropogene Quellen. Aufgrund seiner besonderen physikalischen und chemischen Eigenschaften eignet sich SF₆ besonders für eine Reihe von industriellen Anwendungen. Die stärkste Quelle für SF₆ ist sein Einsatz als Schutzgas in Trafostationen, da es eine sehr große elektrische Überschlagsfestigkeit aufweist. Weitere Einsatzgebiete liegen bei der Herstellung von Aluminium und Magnesium, als Isoliergas in Schallschutzverglasungen und der Verwendung als Füllgas für Autoreifen und Turnschuhsohlen. Details zu den Quellen und eine Quantifizierung für das Jahr 1996 geben Maiss & Brenninkmeijer [1998] an. Anzumerken ist, dass über 90 % der Quellen von SF₆ auf der Nordhalbkugel liegen. Da die Innertropische Konvergenzzone (ITZ) als Transportbarriere in der Troposphäre wirkt, bildet sich ein deutlicher interhemisphärischer Gradient aus. Dieser kann bei Kenntnis der Trends zur Bestimmung der Austauschzeit zwischen Nord- und Südhemisphäre dienen. Hier ergeben sich Werte zwischen 1,3 und 1,7 Jahren [z. B. Geller *et al.*, 1997; Haase, 1999].

Der Anstieg von SF₆ über die letzten 20 Jahre ist gut dokumentiert. Ob-

wohl es erst seit 1996 vom NOAA/CMDL-Netzwerk operationell gemessen wird, konnte aus archivierten Luftproben der Trend seit Ende der 70er-Jahre rekonstruiert werden [Maiss *et al.*, 1996; Geller *et al.*, 1997]. In Abbildung 1.4 ist der Verlauf der troposphärischen SF₆-Mischungsverhältnisse auf der Nord- und Südhalbkugel nach Geller *et al.* [1997] dargestellt. Der Datensatz reicht nur bis ca. 1995, neuere, jedoch noch vorläufige Daten aus dem NOAA-CMDL-Netzwerk, die bis Mitte 1998 reichen, zeigen aber eine gute Übereinstimmung mit der quadratisch ansteigenden Kurve [Haase, 1999]. Andere Daten geben allerdings Hinweise dafür, dass sich der Anstieg im troposphärischen SF₆-Mischungsverhältnis verlangsamt und unter das aktuelle Niveau fällt [Maiss & Brenninkmeijer, 2000]. So gibt Levin für die Altersbestimmung bereits einen linearen Trend über die letzten zehn Jahre an (I. Levin, persönliche Mitteilung). Die Details der aktuellen Problematik bei der Altersbestimmung werden in Kapitel 8 diskutiert.

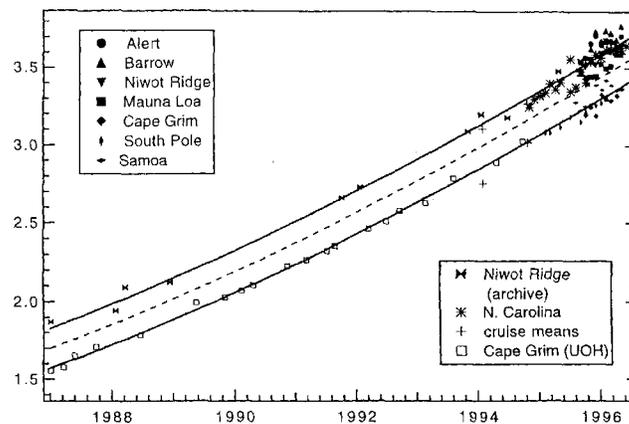


Abbildung 1.4: Troposphärische SF₆-Daten aus der Nord- und Südhemisphäre nach Geller *et al.* [1997]. Die obere durchgezogene Kurve ist aus Messdaten von Stationen auf der Nordhalbkugel, die untere aus Stationsmessungen von der Südhalbkugel gewonnen. Die gestrichelte Linie stellt das globale Mittel dar.

Die Abschätzungen für die atmosphärische Lebenszeit von SF₆ reichen von 800 Jahren [Morris *et al.*, 1995] bis 3200 Jahren [Ravishankara *et al.*, 1993]. Schwefelhexafluorid besitzt nur wenige bekannte Senken. Aufgrund seiner geringen Wasserlöslichkeit sind die Ozeane als Senke auszuschließen. Mögliche Abbaumechanismen stellen Elektronenreaktionen in der Mesosphäre dar [Morris *et al.*, 1995]. Neuere 3D-Modellstudien, die diese mesosphä-

rische Chemie von SF_6 berücksichtigen, zeigen, dass die Profile im über in-situ-Messungen erreichbaren Bereich der Stratosphäre von dieser Senke unbeeinflusst sind. So sollte der mesosphärische Abbau über dem Polarwirbel im Winter erst ab ca. 35 km Höhe zu beobachten sein [Reddmann *et al.*, 2000]. Dennoch wurden während eines Ballonflugs eines kryogenen Luftprobensammlers vom Juni 1997 über mittleren nördlichen Breiten SF_6 -Mischungsverhältnisse gefunden, die experimentelle Hinweise auf eine mögliche Senke in der Mesosphäre darstellen [Strunk *et al.*, 2000].

Den vielen technischen Vorteilen von Schwefelhexafluorid steht als Nachteil gegenüber, dass es eines der effektivsten bekannten Treibhausgase ist. Sein „Global Warming Potential“ (GWP_{100}), also seine über 100 Jahre integrierte und relativ zu Kohlendioxid angegebene Wirkung auf den Strahlungshaushalt, beträgt etwa 24.000 [IPCC, 1990]. Dass es (noch) keinen signifikanten Beitrag zum Treibhauseffekt liefert, liegt in der Tatsache begründet, dass sein Mischungsverhältnis um einen Faktor von 10^8 geringer ist als das von CO_2 . Dennoch wurde SF_6 auch im Protokoll des Klimagipfels von Kyoto in den Korb der Treibhausgase aufgenommen.

1.2.3 Geeignete Alterstracer II: CO_2

Wohl für kaum ein atmosphärisches Spurengas ist der troposphärische Trend so gut dokumentiert wie für Kohlendioxid, das eine so wichtige Rolle für den Lebenskreislauf auf unserem Planeten spielt (vgl. Abbildung 1.5). Obwohl viele der Quellen und Senken für CO_2 bekannt sind, sind die komplexen Wechselwirkungen und Abhängigkeiten, die das troposphärische CO_2 -Mischungsverhältnis bestimmen noch nicht vollständig verstanden [Conway *et al.*, 1994]. So stellt das Pflanzenwachstum, bei dem CO_2 photosynthetisch umgesetzt wird, eine natürliche Senke dar, die eine starke jahreszeitliche Variabilität aufweist. Die wichtigste natürliche Quelle ist das Verrotten von Biomasse, bei der durch Oxidation CO_2 entsteht.

Die wachsende Weltbevölkerung und die zunehmende Industrialisierung führten in diesem Jahrhundert zu einem stetigen Anstieg des CO_2 -Gehalts der Atmosphäre. Hierbei ist von Bedeutung, dass die Menschheit ihren steigenden Energiebedarf vor allem aus der Verbrennung von fossilen Brennstoffen deckt. So betrug das mittlere CO_2 -Mischungsverhältnis um 1900 etwa 280 ppm [Conway *et al.*, 1994], während es am Ausgang des 20. Jahrhunderts etwa 368 ppm beträgt (P. Tans, persönliche Kommunikation). Würden die anthropogenen Emissionen vollständig in der Atmosphäre verbleiben, wäre dieser Anstieg um nahezu 25 % in 100 Jahren noch weit steiler ausgefallen. Schätzungen geben etwa einen Faktor von zwei an, danach verbleiben also nur rund 50 % der anthropogenen CO_2 -Emissionen in der Atmosphäre. Die

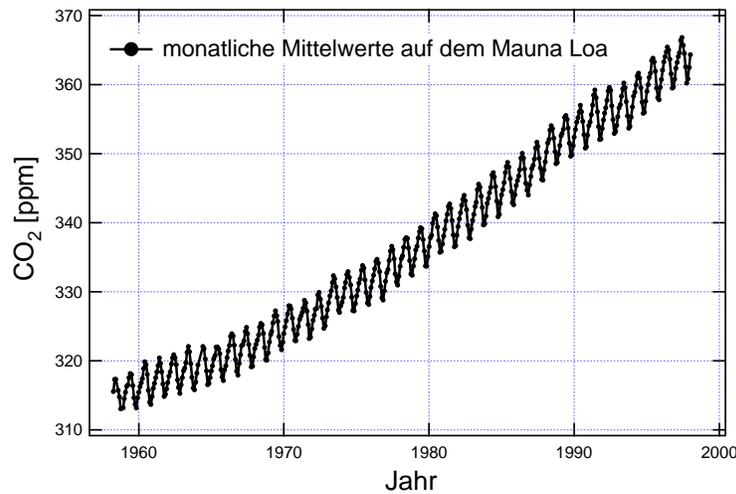


Abbildung 1.5: Monatliche Mittelwerte des CO₂-Mischungsverhältnisses auf dem Mauna Loa/Hawaii (19°N) von 1958 bis 1998 (Daten der Scripps Institution for Oceanography). Dies ist die weltweit längste kontinuierliche Messreihe für CO₂.

Ozeane stellen hier einen Puffer dar, der radikalere Änderungen im CO₂-Gehalt dämpft. Das Verhalten eben dieses Puffers verursacht unter anderem die großen Unsicherheiten bei Prognosen über den künftigen CO₂-Gehalt unserer Atmosphäre. Dennoch gibt es noch Lücken im quantitativen Verständnis des CO₂-Kreislaufs. Nach dem bisherigen Kenntnisstand müsste das troposphärische CO₂-Mischungsverhältnis stärker ansteigen, als es beobachtet wird. Diese Unbekannte im quantitativen Verständnis der CO₂-Senken wird zumeist als „missing sink“ bezeichnet.

Die ideale Eingangsfunktion für die Altersbestimmung würde auf regelmäßigen Messungen des CO₂-Mischungsverhältnisses im Bereich der tropischen Tropopause basieren. Da dies nicht möglich ist, muss auf Daten zurückgegriffen werden, die an Stationen aufgenommen werden, die möglichst repräsentativ für die tropische Tropopause sind. Hier hat sich vor allem die sogenannte „Mauna Loa-Samoa-Kurve“ als geeignet erwiesen. Der Mauna Loa auf Hawaii (19° N, 4169 m Höhe) ist eine ideale Hintergrundstation für die nördlichen Subtropen, während Amerikanisch-Samoa (14° S) dasselbe für die Südhalbkugel darstellt. Beide Stationen gehören zum Netzwerk der National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA). Im Gegensatz den in Abbildung 1.5 dargestellten Daten, die ja nur vom Mauna Loa stammen, weist die Mauna Loa-Samoa-Kurve eine in etwa halbierte jahreszeitliche Amplitude auf.

Die zeitliche Entwicklung des Mischungsverhältnisses, das über die letz-

ten 20 Jahre nahezu linear um ca. 1,5 ppm pro Jahr zunahm, und die Tatsache, dass CO₂ keine atmosphärischen Senken hat, machen es zu einem geeigneten Alterstracer. Es ist lediglich zu beachten, dass innerhalb der Stratosphäre CO₂ durch die Oxidation von Methan produziert wird ($\text{CH}_4 + 2 \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + 2 \text{H}_2\text{O}$). Vor einer Altersbestimmung müssen die CO₂-Mischungsverhältnisse hinsichtlich der Methanoxidation korrigiert werden („Methankorrektur“). Das Konzept des Alters ermöglicht es, die stratosphärischen CO₂-Messungen aus verschiedenen Zeiten direkt miteinander zu vergleichen. So wird seit über einem Jahrzehnt Kohlendioxid als Alterstracer eingesetzt [z. B. *Bischof et al.*, 1985; *Schmidt & Khedim*, 1991; *Boering et al.*, 1996].

Obwohl die Altersbestimmung mit CO₂ und SF₆ gute Übereinstimmungen zeigen [*Strunk et al.*, 2000], muss doch die Frage nach dem Einfluss des saisonalen Zyklus im troposphärischen CO₂-Mischungsverhältnis auf die Altersberechnung gestellt werden. So ist die Amplitude dieser Schwankung mit ca. 1,5 ppm in der gleichen Größenordnung wie der jährliche Anstieg. Wie bereits in Abschnitt 1.1.1 dargestellt, kann das CO₂-Signal innerhalb der Tropen aber auch in den mittleren Breiten bis zu einer Höhe von ca. 16 – 17 km verfolgt werden. Hier ist eine Altersbestimmung direkt aus dem CO₂-Mischungsverhältnis nicht möglich. Messungen zu verschiedenen Jahreszeiten ermöglichen jedoch die Transportzeit aus der Phasenlage des CO₂-Signals zu bestimmen [*Boering et al.*, 1996; *Andrews et al.*, 1999; *Andrews*, 1999]. Das aus der Phase bestimmte Alter weist eine kompakte Korrelation mit dem N₂O-Mischungsverhältnis auf. Dies ermöglicht eine einfache Altersbestimmung durch Messung von N₂O für Mischungsverhältnisse > 275 ppb [*Andrews*, 1999]. Für Bereiche mit geringerem N₂O-Mischungsverhältnis ist das jahreszeitliche CO₂-Signal vollständig gedämpft. Diese Dämpfung ist auf eine Verbreiterung des Altersspektrums zurückzuführen. Deckt dieses Spektrum einen Bereich ab, der deutlich breiter ist als ein Periode von einem Jahr, so werden diese jahreszeitlichen Schwankungen herausgemittelt [*Andrews et al.*, 1999]. Details zur Altersbestimmung mit CO₂ werden wiederum in Kapitel 8 diskutiert.

Teil I
Technik

Überblick

Dieser Teil der vorliegenden Arbeit befasst sich mit verschiedenen technischen Aspekten des neu entwickelten „High Altitude Gas Analyser“ (HAGAR).

In Kapitel 2 wird der mechanische und elektrische Aufbau des Instrumentes dargestellt. Ausgehend von der von *Strunk* [1999] beschriebenen ersten HAGAR-Version, die allein zum Einsatz an Stratosphärenballonen vorgesehen war, wird die systematische Erweiterung und Verbesserung des Instrumentes beschrieben. So wurde HAGAR um einen CO₂-Sensor erweitert, der zeitlich hochaufgelöste Messungen von Kohlendioxid erlaubt. Neben einer weiteren Verbesserung der Chromatographie nimmt vor allem die Integration auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 Geophysica breiten Raum ein. Dafür mussten strenge Normen hinsichtlich mechanischer Stabilität und elektromagnetischer Verträglichkeit berücksichtigt werden, deren Einhaltung die Voraussetzung für eine Zulassung für den Betrieb an Bord der Geophysica ist.

Kapitel 3 stellt die Steuereinheit des HAGAR vor. Nahezu alle Komponenten des Instrumentes werden von einem Industrie-PC angesteuert. Da HAGAR im Ballon wie im Flugzeug vollautomatisch funktionieren muss und unter keinen Umständen das Flugzeug oder wichtige Gerätekomponenten gefährden darf, sind die Anforderungen an die Zuverlässigkeit dieses Systems sehr hoch. Um den vielfältigen Anforderungen gerecht zu werden, wurde im Rahmen dieser Arbeit speziell für HAGAR ein vollkommen neues Steuerprogramm in C entwickelt. Neben dem Leistungsumfang des gesamten Softwarepakets sollen vor allem auch die eingesetzten innovativen Programmieretechniken – wie etwa Multitasking- und Echtzeitfähigkeiten – erläutert werden.

Kapitel 4 widmet sich schließlich der Auswertung der HAGAR-Daten, die vollständig innerhalb des universellen Datenauswertungs- und -visualisierungsprogrammes Igor Pro Version 3.1 der Firma WaveMetrics realisiert ist. Igor Pro bietet neben Tabellen- und Graphikfunktionen eine mächtige Sprache zur Makroprogrammierung. Mit Hilfe von individuellen Dialogfenstern kann eine interaktive Auswertung auch großer Datenmengen durchgeführt werden. Auf Basis dieser Makrosprache entstanden verschiedene Programmpakete zur Auswertung der HAGAR-Daten. Für die Auswertung der Chromatographiedaten stand bereits ein Makropaket (NOAH-Chrom) zur Verfügung, das bei NOAA/CMDL für die Macintosh-Version von Igor entwickelt worden war. Dieses Paket wurde auf die PC-Version angepasst. Dabei wurden neben „Renovierungen“ und Detailverbesserungen auch eine Reihe Neuerungen implementiert, deren Entwicklung zur optimalen Auswertung der HAGAR-Daten notwendig wurde. Im Vordergrund des Kapitels soll jedoch nicht die Programmierung stehen. Es wird vielmehr eine Darstellung

der mathematischen Vorgehensweise bei der Datenauswertung angestrebt, wie sie innerhalb der Programme realisiert wurde.

Kapitel 2

Der High Altitude Gas Analyser: HAGAR

Teil der Themenstellung der vorliegenden Arbeit war die Entwicklung eines in-situ-Messinstrumentes für langlebige Spurengase. Der folgende Abschnitt 2.1 soll die allgemeinen Hintergründe beleuchten, vor denen die Entwicklung eines Instrumentes wie dem „High Altitude Gas Analyser“ (HAGAR) stattfand.

Die Dissertation von Martin *Strunk* [1999] stellt die Grundlage für die Darstellung der ersten Version von HAGAR in Abschnitt 2.2 dar. Aufbauend auf den Erfahrungen des ersten Ballonfluges vom 13. Mai 1998 wurde HAGAR überarbeitet und erweitert. Unter anderem wurde ein Sensor für Kohlendioxid integriert, der die Messung eines zweiten unabhängigen Alterstracers ermöglicht. Ein weiterer Schwerpunkt war die Integration des Instrumentes auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 „Geophysica“. Abschnitt 2.3 stellt die dafür notwendigen Maßnahmen dar.

2.1 Hintergrund

Die Entwicklung eines leichten Instrumentes zur in-situ-Messung von langlebigen Spurengasen in der Stratosphäre am Institut für Meteorologie und Geophysik der Universität Frankfurt begann im Jahre 1997 mit dem Projekt LITES¹. Ziel des von der Europäischen Union geförderten Projektes war es, zwei in-situ-Instrumente für den Einsatz am Ballon zu entwickeln und zu testen, wobei verschiedene Konzepte verfolgt werden sollten. Neben HAGAR entstand an der Universität Cambridge DIRAC (Determination In-situ by Rapid Analytical Chromatography)[*Robinson et al.*, 2000]. DIRAC war zur Messung

¹Lightweight In-situ Tracer Experiment in the Stratosphere

von FCKWs konzipiert. Beide setzen als Analysetechnik Gaschromatographie mit Elektroneneinfangdetektoren (engl. „Electron Capture Detector“, ECD) ein. Diese Technik wird bei NOAA/CMDL in Boulder/Colorado bereits erfolgreich seit Ende der 80er Jahre auf dem Höhenforschungsflugzeug NASA ER-2 eingesetzt. Seit Anfang der 90er demonstriert der Airborne Gas Chromatograph for Atmospheric Trace Species (ACATS) [Elkins *et al.*, 1996], dass in-situ-Messungen von langlebigen Tracern in der Stratosphäre auf einem Höhenforschungsflugzeug mit ausreichender zeitlicher Auflösung und Messgenauigkeit möglich sind. Seit 1996 wird das Lightweight Airborne Chromatograph Experiment (LACE) im Rahmen des OMS²-Projektes erfolgreich an Stratosphärenballonen bis 32 km Flughöhe eingesetzt [Moore *et al.*, 1997; Ray *et al.*, 1999]. Auch an der Universität Frankfurt wurde mit GhOST bereits ein am Forschungszentrum Jülich entwickelter in-situ-Gaschromatograph eingesetzt [Bujok, 1998]. So konnte während drei Kampagnen des EU-Projektes STREAM³ an Bord einer Cessna Citation II der bisher umfangreichste Datensatz für N₂O, F12 und F11 in der Tropopausenregion gewonnen werden.

Die Gaschromatographie zählt mit einer zeitlichen Auflösung im Bereich von Minuten heutzutage zu den langsamen in-situ-Techniken. Mit Laser-Absorptions-Spektrometern wie ATLAS⁴ [Loewenstein *et al.*, 1989; Podolske & Loewenstein, 1993] oder ALIAS⁵ [Webster *et al.*, 1993] ist es möglich die Mischungsverhältnisse von Spurengasen wie N₂O oder Methan im Sekundenabstand zu messen. Auch für Kohlendioxid steht mit den eigentlich für troposphärische Messungen entwickelten Sensoren der Firma LI-COR eine schnelle Messmethode auf der Basis der nicht-dispersiven Infrarot-Absorption (NDIR) von CO₂ zur Verfügung. Ein an die Anforderungen in der Stratosphäre angepasstes Instrument erreicht eine Zeitauflösung von zwei Sekunden [Boering *et al.*, 1994]. Wasserdampf wird an Ballonen und auf Flugzeugen ebenfalls mit hoher zeitlicher Auflösung von Instrumenten wie dem Fast in-Situ Hygrometer (FISH) gemessen [Zöger *et al.*, 1999]. Dennoch gibt es für die Messung von langlebigen Tracern wie Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffen (FCKW) und Schwefelhexafluorid (SF₆) bisher keine alternative Analytik, die die für die Stratosphäre benötigte Messgenauigkeit erbringt.

²Observation of the Middle Stratosphere

³Stratosphere Troposphere Experiment by Aircraft Measurements

⁴Airborne Tunable Diode Laser Absorption Spectrometer

⁵Aircraft Laser Infrared Absorption Spectrometer

2.2 Die Ballonversion des HAGAR

2.2.1 Mechanischer Aufbau

Die Entwicklung von HAGAR hat in vielerlei Hinsicht von den Erfahrungen mit den in Abschnitt 2.1 erwähnten Gaschromatographen ACATS, GhOST und LACE profitiert. Am auffälligsten ist die äußere Ähnlichkeit mit LACE. Beide Instrumente sind in einem zylindrischen Kessel untergebracht, dessen Innendruck auch in großen Höhen bei nur noch 10 hPa Außendruck auf 600 - 1000 hPa konstant gehalten werden kann. Dieses Kessel- oder Containerkonzept birgt eine Reihe von Vorteilen:

- Die ECDs wie auch der später installierte LI-COR CO₂-Sensor sind sensitiv auf Druckschwankungen. Eine Druckregelung für jede einzelne dieser Komponenten wäre ohnehin unverzichtbar gewesen.
- Das Aufgabesystem des Gaschromatographen im HAGAR besteht aus einer Pumpe, die die Probenluft durch eine Probenschleife in den Kessel drückt. Der Druck in der temperierten Probenschleife ist durch das Kesselkonzept stets konstant. Konstante Aufgabedrucke sind aber die Voraussetzung, die Chromatogramme mit der Peakhöhe als relevanten Parameter auszuwerten, was im Allgemeinen zu einer verbesserten Präzision führt (vgl. Abschnitt 4.2.2).
- Einer der kritischsten Punkte für Instrumente an Stratosphärenballonen ist die thermische Konstanz. Der Wärmeaustausch zwischen Instrument und Umgebung durchläuft während eines Fluges verschiedene Phasen. Im Bereich der Tropopause werden Temperaturen von -70°C und darunter erreicht, wobei der Luftdruck noch ausreichend ist, um eine starke konvektive Abkühlung bzw. Unterkühlung des Instrumentes bewirken zu können. Durch den sinkenden Druck fällt diese Kühlung aber nach und nach weg, es verbleibt die schwächere Strahlungskühlung. Die Temperatur im Instrument steigt an und es droht – zumal bei Flügen mit Sonneneinstrahlung – zu überhitzen. Diese Effekte sind schwer zu quantifizieren. Gleichzeitig stellte die unterschätzte Abkühlung in der Tropopausenregion eines der größten Probleme während des LITES-Testfluges dar; die Temperaturen im HAGAR-Kessel sanken bis -10°C ab.

Dennoch vereinfacht sich durch das Kesselkonzept die Fehlerbehebung auf eine Veränderung der Wärmebilanz Kessel-Außenluft. Im Kessel läuft eine von vier Ventilatoren angetriebene Zirkulation ab, die dank des hohen Kesseldruckes eine effektive konvektive Wärmeverteilung auf

alle Komponenten ermöglicht. Kritische Wärmequellen wie der Steuerrechner und die Gleichspannungswandler (DC-DC-Wandler) werden gekühlt, während andere Komponenten vor einem Unterkühlen bewahrt werden (vgl. Abbildung 2.2).

- Während der ersten wissenschaftlichen Flugzeugkampagne mit HAGAR, die in den Tropen stattfand, zeigte sich noch eine weitere Stärke des Konzepts. Nach dem Abstieg aus der kalten Tropopausenregion auf den Boden, wo feuchtwarme Witterung vorherrschte, bildeten sich große Mengen an Kondenswasser. Für die elektronischen Komponenten von Geräten, die nicht luftdicht abgeschlossen sind, stellt dies eine große Gefahr dar. Da das Kesselinnere von HAGAR jedoch kontinuierlich mit trockenem Trägergas gespült wird, blieben solche Umwelteinflüsse folgenlos.

Der dünne Kessel aus Aluminium ist – gedichtet mit einem O-Ring – über einen Klemmring mit der Grundplatte verbunden. Die durch die verwendete Wabenstruktur sehr leichte und stabile Platte bietet auf der Unterseite eine Reihe von Gewinden, an denen HAGAR in der Gondel befestigt werden kann. Die innere Struktur des Instrumentes besteht aus drei Platten aus Aluminium-Balsaholz-Komposit, die von vier Halbrohren aus Aluminium gehalten werden. Der Werkstoff stammt aus dem kommerziellen Flugzeugbau und bietet hohe mechanische Festigkeit bei geringst möglichem Gewicht. Entsprechend der Funktion der auf ihr montierten Teile werden die Platten im Folgenden als Rechnerebene, GC-Ebene und Pumpenebene bezeichnet (von oben nach unten, s. Abbildungen 2.2).

2.2.2 Elektrischer Aufbau

Auf Ballonen stehen als Stromquellen lediglich Batterien zur Verfügung. Das Konzept von HAGAR sah daher von Beginn an den Betrieb an einer einzigen Gleichstromquelle vor. Da das Instrument für Ballon- und Flugzeugeinsatz vorgesehen war, wurde eine optimale Betriebsspannung von ca. 28 V festgelegt, wie sie auf Flugzeugen gewöhnlich zur Verfügung steht. Tatsächlich arbeitet HAGAR problemlos in einem Spannungsbereich von ca. 18 – 36 V.

Der Stromverbrauch des Instrumentes beträgt im Mittel 260 W, wobei die Spitzenleistungen bei über 500 W liegen. Die größten Verbraucher (Heizung für Säulen und ECDs sowie die Valco-Ventile) benutzen dabei die unregelmäßige Eingangsspannung. Bei der Auswahl der restlichen Komponenten wurde darauf geachtet, nicht zu viele verschiedene Spannungen erzeugen zu müssen. Die Spannungswandlung wurde mit Gleichstromwandlern (DC-DC-Wandler) realisiert, die klein, leicht und robust sind und eine vertretbare

Verlustleistung von ca. 10 % aufweisen. Insgesamt erzeugen vier DC-DC-Wandler Spannungen von 5 V, ± 15 V und 24 V. Für zwei Flusssensoren, die nur mit 10 V Betriebsspannung zu erwerben waren, musste schließlich noch ein kleiner Spannungsregler integriert werden.

Die Stromversorgung sowie die Leitungen von den Datenerfassungs- und Steuerkarten des Rechners (vgl. Abschnitt 3.2) wurden auf zwei Platinen („Verteilerboards“) zusammengefasst. So ist es möglich, für jedes Bauteil (Sensoren, Flussregler, Ventile, etc.) jeweils nur eine Steckverbindung zu benutzen, die Signale und Stromversorgung beinhaltet.

Um eine maximale Flexibilität zu erzielen, sollte HAGAR so weit als möglich über Software zu konfigurieren sein. Die Folge hiervon war ein fast vollständiger Verzicht auf klassische Elektronik (s. Abschnitt 3.1). Lediglich die Verstärkerelektroniken für die ECDs wurden speziell für diese Anwendung in einer kompakten Form von der Firma PCTronik angefertigt. Die Temperaturstabilisierung der Detektor- und Säulenöfen wurde mit vier leichten PID-Temperaturreglern von Watlow realisiert, die die Heizung über Halbleiterrelais ansprechen. Die Regler können vom Steuerrechner lediglich an- und ausgeschaltet werden.

2.2.3 Analytik

HAGAR ist ein Zweikanal-Gaschromatograph. Dies entspricht zwei parallelen Chromatographen mit eigenen Säulen und Detektoren, die sich jedoch Gasversorgung, Aufgabesystem und Steuerelektronik teilen. Obwohl sich die beiden Kanäle weitgehend unabhängig konfigurieren lassen, müssen jedoch die Längen der Chromatographiezyklen identisch bzw. ein ganzzahliges Vielfaches voneinander sein.

Beide Kanäle verwenden in 1/8" Edelstahlrohr gepackte Säulen. In Kanal 1, der zur Messung von Schwefelhexafluorid (SF_6) und F12 (CCl_2F_2) vorgesehen war, sind Vor- und Hauptsäule mit Molekularsieb 5 Å gepackt. Kanal 2 war für die Messung der FCKWs F12, F11 (CCl_3F) und F113 ($\text{C}_2\text{Cl}_3\text{F}_3$) konfiguriert. Als Säulenmaterial dient Porasil C, n-Oktan. Die genauen Konfigurationsparameter der LITES-Konfiguration sind wiederum bei *Strunk* [1999] nachzulesen.

Als Detektor für die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Moleküle eignen sich Elektroneneinfangdetektoren (ECD), die besonders sensitiv auf Moleküle sind, die elektronegative Atome wie Chlor oder Fluor enthalten.

Der Gasfluss innerhalb des Chromatographen wird von verschiedenen Ventilen gesteuert. Neben einigen Magnetventilen sind dies vor allem zwei Zwei-Positionventile und ein Multipositionventil der Firma Valco (s. Abbildung 2.10 auf Seite 43). Entsprechend ihrer Funktion innerhalb des Chroma-

tographen werden die Zwei-Positionsventile als „gas sampling valves“, kurz GSV bezeichnet. Über das Mehrpositionsventil, für das im Weiteren analog die Bezeichnung „stream selection valve“ oder SSV verwendet wird, kann das Gas ausgewählt werden, mit dem die Probenschleife gespült wird.

Die Messung von langlebigen Spurengasen mit Gaschromatographen im Labor ist eigentlich eine sehr langsame Technik. So kann ein Chromatogrammzyklus 15 - 30 min in Anspruch nehmen [z. B. *Müller*, 1998]. Für in-situ-Geräte wurden eine Reihe neuer Techniken entwickelt, die die Messungen deutlich beschleunigen. Sie sollen hier nur stichpunktartig aufgezählt werden:

- Der zunächst größte Effekt wird durch den Verzicht auf die Messung einer Vielzahl von Molekülen erzielt. Während Gaschromatographen im Labor mit ähnlichen Säulen mehr als ein Dutzend Verbindungen messen, werden im HAGAR nur die vier Substanzen, die zuerst eluieren, gemessen. Alle anderen werden wieder rückwärts aus der Säule hinausgespült.
- Eine aktive Kontrolle des Trägergasflusses während des Chromatogramms, die zum ersten Male in LACE angewandt wurde [*Moore et al.*, 2000], eröffnet neue Möglichkeiten. So fällt nach der Injektion der Druck vor den Säulen ab. Durch ein Erhöhen des Drucks bzw. Flusses kann hier Zeit eingespart werden.
- Ebenfalls dem LACE-Team ist die Entwicklung der sogenannten „stacked chromatography“ zu verdanken. Die Grundidee besteht darin, die Zeit nach der Injektion bis zum Signal des ersten Moleküls im Detektor zu nutzen. Ganz konkret erscheint der letzte Peak des vorangegangenen Chromatogramms erst nach der neuen Injektion. Durch dieses Überlappen können effektive Chromatogrammlängen von über zwei Minuten auf Zykluslängen von 80 - 90 s verringert werden (s. Abbildung 2.7). Auch diese Technik ist letztlich nur mit einer aktiven Flussregelung zu realisieren.

Während des LITES-Fluges hatte die HAGAR-Chromatographie auf beiden Kanälen eine Zykluslänge von 80 s, in denen vier verschiedene Moleküle (F12, F11, F113 und SF₆) gemessen werden konnten.

2.2.4 Der LITES-Testflug

Am 13.5.1998 absolvierte HAGAR einen ersten 3,5-stündigen Testflug an einem Stratosphärenballon. Startpunkt war die Heimatbasis der Ballonstartgruppe der französischen Weltraumbehörde CNES in Aire sur l'Adour im

Südwesten Frankreichs. Die LITES-Gondel hatte neben HAGAR noch den Gaschromatographen DIRAC der Universität Cambridge [Robinson et al., 2000], eine vom Finnischen Meteorologischen Institut (FMI) und der Firma Vaisala Oy neu entwickelte, elektrochemische Ozonsonde und einen ebenfalls neu entwickelten leichten Telemetriesender an Bord, der die HAGAR-Daten zum Boden funken sollte. Dort stand ein Empfangsrechner, der die Daten in Echtzeit visualisierte (vgl. Abschnitt 3.5).

Obwohl lediglich während des Aufstieges Vertikalprofile für SF₆ und F12 gewonnen werden konnten, war der Flug doch ein großer Erfolg. Der Steuerrechner arbeitete trotz widriger Bedingungen – so kühlte der Prozessor des PC unter 0°C ab – während des ganzen Fluges problemlos und zeichnete alle wichtigen Prozessdaten auf. Trotz des Ausfalls der Telemetrie konnte auf diese Weise der Flugablauf vollständig nachvollzogen werden. Die im Folgenden aufgelisteten Probleme waren für die im nächsten Abschnitt dargestellte Weiterentwicklung des HAGAR von großer Bedeutung:

- Das auffälligste Problem war, dass die thermische Konstanz des Instrumentes nicht ausreichend gegeben war. Verführt von der Tatsache, dass das geschlossene Instrument am Boden binnen kurzer Zeit überhitzt, wurde die konvektive Kühlung in der freien Atmosphäre stark unterschätzt. So sank die Lufttemperatur innerhalb des Gerätes unter -10°C.
- Unabhängig von der Tatsache, dass die Temperatur im Gerät zu stark schwankte, zeigten einige Komponenten eine zu große Temperaturempfindlichkeit. Insbesondere die Elektrometer für die ECDs drifteten zu stark, was letztlich einen Ausfall von Kanal 2 nach kurzer Flugzeit zur Folge hatte. Des Weiteren fielen die hochauflösenden Analog-Digital-Wandlerkarten, die für die Aufzeichnung der ECD-Signale benutzt wurden, reproduzierbar oberhalb ca. 46°C aus.
- Um Gewicht einzusparen wurden Druckminderer aus Aluminium der Firma Gastech benutzt. Da die Gasflaschen einfach am Gondelrahmen befestigt wurden, waren die Druckminderer den herrschenden Temperaturbedingungen voll ausgesetzt. Durch eine wahrscheinlich auf zu niedrige Temperaturen zurückzuführende Fehlfunktion stieg der Druck auf der Niederdruckseite des Reglers an. Ein dort zum Schutze des Instrumentes angebrachtes Überdruckventil verhinderte zwar weitere Schäden, führte jedoch zu einem großen Trägergasverlust. Es war nicht zu klären, ob das Ventil anschließend eingefroren war oder ob der Regler während des ganzen Fluges nicht zuverlässig arbeitete. Kurz nach

Beginn des langsamen Abstiegs sank jedoch der Druck in der Trägergasflasche so weit ab, dass keine Chromatographie mehr möglich war.

- Neben diesen Punkten gab es eine Anzahl an Details, die nach dieser ersten Messkampagne verbesserungswürdig erschienen. Die meisten hiervon dienten vor allem einem leichteren und sichereren Umgang mit dem Gerät und lassen sich damit unter dem Stichwort „Wartungsfreundlichkeit“ subsummieren.

2.3 Die Flugzeugversion des HAGAR

Grundsätzlich stellen sich auf Gondeln von Stratosphärenballonen und an Bord von Höhenforschungsflugzeugen ähnliche Probleme. Denn zumeist stellen diese Flugzeuge keine bedruckten oder temperierten Einbaubuchten zur Verfügung, so dass die Außenhaut des Flugzeuges lediglich einen Schutz vor den größten Witterungseinflüssen bietet. Daher war es bereits früh Teil des HAGAR-Konzeptes, das Instrument für einen Einsatz im Flugzeug vorzubereiten. Konkret ging es dabei um die M-55 „Geophysica“, ein ehemaliges russisches Spionageflugzeug, das nun für zivile wissenschaftliche Ziele genutzt wird. Auf Details zu diesem Flugzeug soll hier verzichtet werden, da es in Abschnitt 5.1 ausführlich vorgestellt wird.

Ziel dieses Abschnittes ist es, die technischen Maßnahmen vorzustellen, die für die Integration auf der Geophysica notwendig waren. Parallel dazu wurde der Funktionsumfang des HAGAR erheblich erweitert. Neben der Integration eines CO₂-Sensors vom Typ LI-COR 6251 wurde auch die Chromatographie umgestellt.

2.3.1 Das aktive Heiz- und Kühlsystem

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt erläutert, überhitzt HAGAR bei geschlossenem Kessel ohne Kühlung in weniger als einer Stunde. So konnte beim LITES-Testflug der Kessel erst kurz vor dem Start geschlossen werden. An Bord der Geophysica wäre dies unmöglich. Daher musste für den Einsatz im Flugzeug ein aktives Heiz- und Kühlsystem entwickelt werden, das in der Lage ist, die Temperatur im Kessel bei stark wechselnden Außentemperaturen in einem für das Instrument verträglichen Bereich zu halten. Die Heizung besteht aus einer auf den Kessel aufgeklebten Heizmatte, die mit der Standardstromversorgung von 115 V Wechselstrom bei 400 Hz betrieben wird. Diese Lösung wurde gewählt, da die 28 V-Gleichstromversorgung des Flugzeuges eine nur begrenzte Leistung hat.

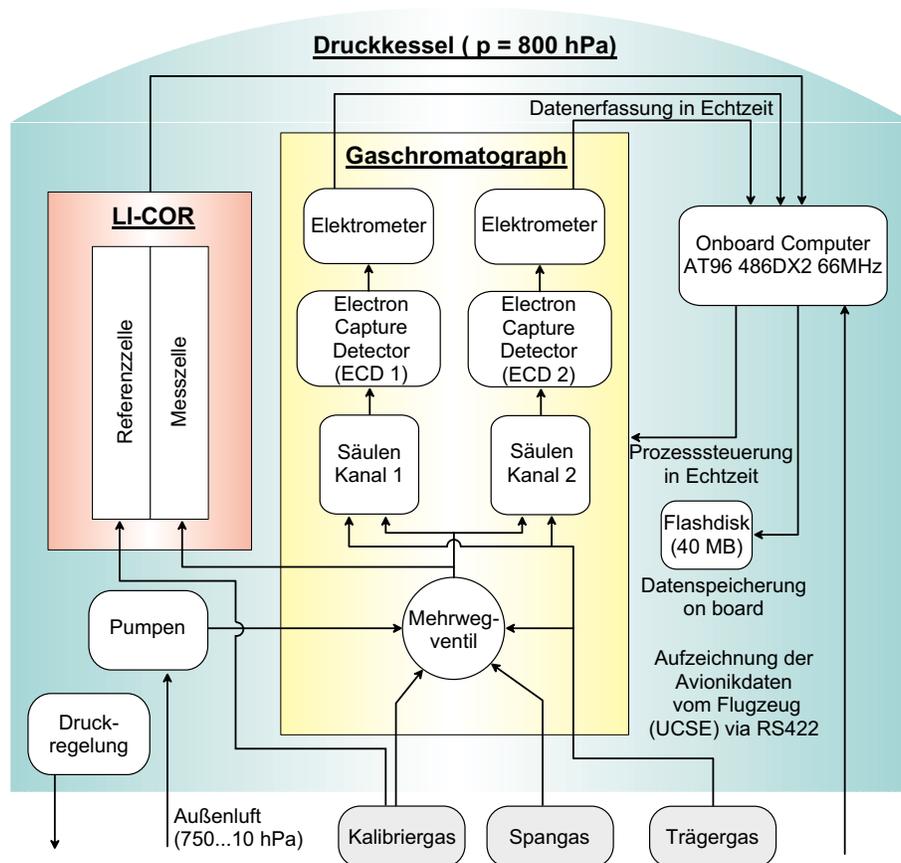


Abbildung 2.1: Vereinfachtes Funktionsschema des HAGAR nach der Integration des LI-COR CO_2 -Sensors.

Da die Temperatur im HAGAR-Kessel nie unterhalb der Umgebungstemperatur liegen muss, wurde die Kühlung über konvektive Wärmeabfuhr mittels Außenluft realisiert. Dazu wurde über den Aluminiumkessel des Instrumentes ein Überkessel aus Edelstahl mit einem um 1 cm vergrößerten Radius gebaut. Am oberen Ende des Überkessels ist ein leistungsfähiger Radiallüfter montiert, der große Mengen Außenluft durch den engen Spalt zwischen den Kesseln bläst (s. Abbildung 2.2). Zusammen mit der internen Zirkulation, die die warme Luft definiert an der Kesselinnenwand entlang strömen lässt, stellt dies eine sehr effektive Abfuhr der im Gerät entstehenden Wärme dar.

Die Kühlungsleistung ist ausreichend, um die Kesselaußenwand in wenigen Minuten nahezu auf die Temperatur der Umgebungsluft ($T_{\text{Umgebung}} + 1^\circ\text{C}$) zu bringen. Damit sollte sie auch noch bei Außentemperaturen von 40°C ausreichend sein, um das Instrument vor Schäden zu bewahren. Dies bestätigte sich bei der tropischen Messkampagne auf den Sey-

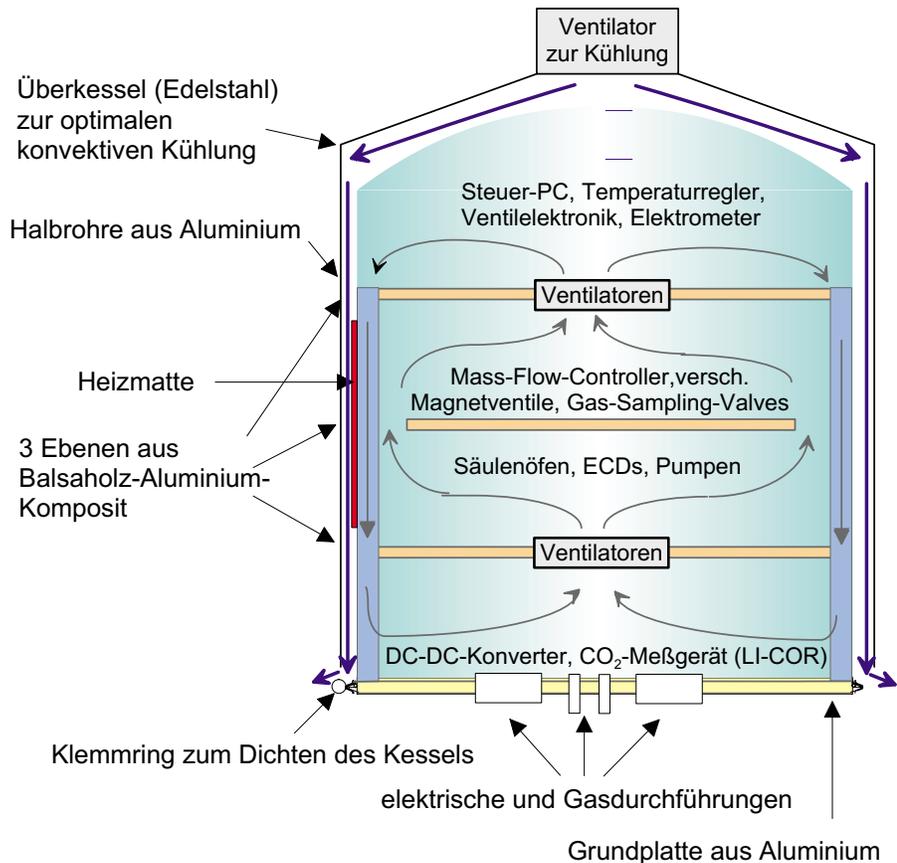


Abbildung 2.2: Schematischer Aufbau des HAGAR. Neben der definierten internen Zirkulation ist auch das neu realisierte aktive Heiz-/Kühlsystem skizziert.

chellen. So konnte das Gerät auch bei Außentemperaturen von 30°C (und Temperaturen in der Einbaubucht der Geophysica von 40°C) längerfristig betrieben werden. Die Lufttemperatur im Instrument bewegt sich dann im unkritischen Bereich von etwa 45°C. Dies stellt lediglich für die CO₂-Messung ein Problem dar, da sich der Sensor dann aufgrund seiner Eigenerwärmung langsam über den Sollwert von 45°C erwärmte. Dies ist jedoch im Allgemeinen nicht kritisch, da die meisten Tests am Boden allein den Chromatographen betreffen.

Interessanterweise stellte sich heraus, dass die Temperaturen im Rumpf der Geophysica nicht unter -40°C fallen. Zusätzlich fällt die Abkühlung, bedingt durch die zusätzliche Isolierschicht, die der Überkessel darstellt, viel schwächer aus, als aufgrund der Erfahrungen vom Ballonflug zu erwarten war. Die Folge war, dass das Steuerprogramm, das bei einer Schwellentem-

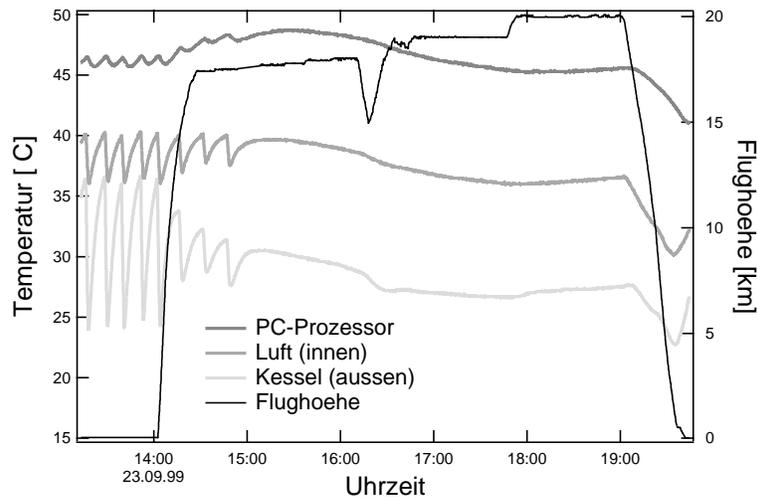


Abbildung 2.3: Typischer Temperaturverlauf im HAGAR während eines Messfluges im Rahmen von APE-GAIA (23.9.1999). Zur Orientierung ist die Flughöhe mit angegeben. Überschreitet die Luft im Inneren des Kessels eine Schwelle von 40°C wird der Ventilator für 90 s eingeschaltet. Dies geschieht am Boden bei Temperaturen von $5\text{--}10^{\circ}\text{C}$ etwa alle 2 – 3 Zyklen.

peratur von zumeist $35\text{--}40^{\circ}\text{C}$ zwischen Heizen und Kühlen wechselt, in den meisten Flügen mehrfach den Ventilator einschaltete, während die Heizung kaum jemals benötigt wurde. Die Temperaturabfrage findet nur einmal pro Zyklus statt, in dieser Zeit verringert der Ventilator die Kesselinnentemperatur auch bei einem minimalen Außendruck von 50 hPa um bis zu 5°C (s. Abbildung 2.3).

2.3.2 Mechanische Integration

Die mechanische Integration des HAGAR auf der Geophysica stellte in zweierlei Hinsicht eine Herausforderung dar. Zunächst musste das Instrument im Vergleich zu seiner „natürlichen“, aufrechten Lage um 90° gekippt eingebaut werden, um in den engen, runden Seitenrumpf des Flugzeugs zu passen. Für diesen Zweck wurde ein Befestigungsrahmen entwickelt, der es erlaubte, das Instrument gekippt an der Bodenplatte zu befestigen (s. Abbildung 2.4). Dazu wurde in der mechanischen Werkstatt des Forschungszentrums Jülich eine neue Bodenplatte gefertigt, die im Gegensatz zur Ballonversion größere und mit sogenannten Helicoils verstärkte Befestigungsgwinde hat. Um die Befestigungen teilweise zu entlasten, wird das andere Ende des Zylinders durch den Außenkessel gestützt, der wiederum mit zwei Stahlbändern fest mit dem

Rahmen verbunden ist. Ähnlich wie in der Ballongondel ruht das Instrument auf vier Federelementen. Diese sind jedoch bedeutend weicher dimensioniert, um vor allem die Vibrationen des Flugzeugs zu absorbieren.

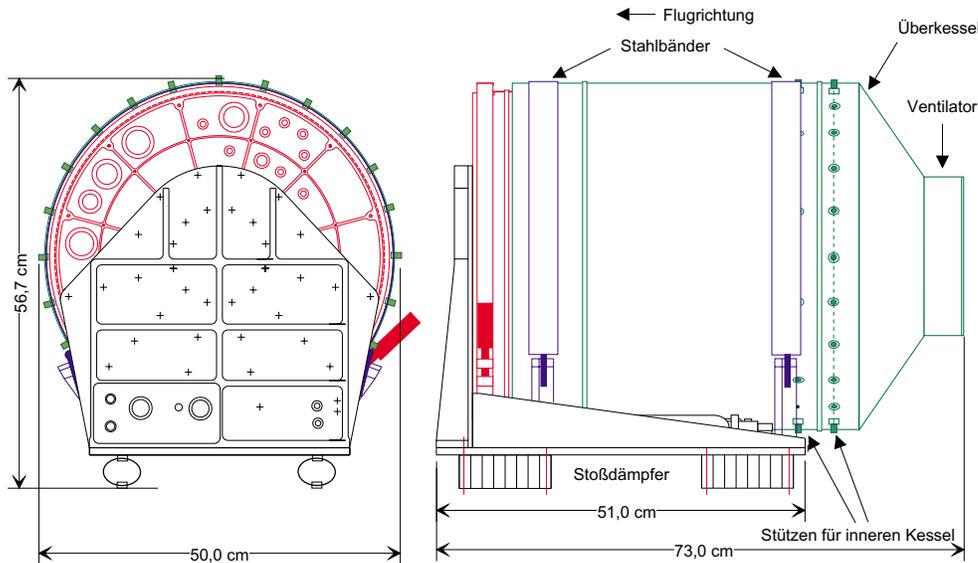


Abbildung 2.4: Konstruktionszeichnung des HAGAR-Rahmens für die mechanische Integration in der Geophysica. In der runden Bodenplatte sind die luftdichten Stecker sowie die Gasdurchführungen skizziert. Im Rahmen befindet sich noch ein getrennter elektrischer Verteiler zum Anschluss von Kesselheizung, Ventilator, Drucksensoren und Gasflaschenheizung.

Diese Konstruktion musste nun die ihre mechanische Belastbarkeit nachweisen. Dazu wurden Beschleunigungstest in einer Zentrifuge und Rütteltests gemäß RTCA/DO-160C durchgeführt. Dies ist eine Normvorschrift, die die Anforderungen für Instrumente regelt, die an Bord von Flugzeugen betrieben werden. Um das eigentliche Instrument vor Beschädigung zu schützen, wurde ein sogenannter Mock-up gebaut, dessen Maße und Gewichtsverteilung mit denen des Instrumentes identisch waren. Die Tests wurden vom Deutschen Zentrum für Luft und Raumfahrt e.V. (DLR) in Berlin, Institut für Weltraumsensorik und Planetenerkundung durchgeführt.

Der Test setzt sich aus drei Teilbereichen zusammen: Der Vibrations-test wurde auf einem Rütteltisch durchgeführt, wobei ein Frequenzbereich von 10 Hz bis 1,1 kHz bei einer RMS-Beschleunigung von ca. 5,5 g abgedeckt wurde. In einer Zentrifuge wurde das Instrument verschiedenen Beschleunigungen in sechs Richtungen ausgesetzt. Die genauen Werte sind in Tabelle 2.1 aufgelistet. Nach beiden Tests durften weder Rahmen noch Instrument

Tabelle 2.1: Beschleunigungswerte für den Belastungstest nach RTCA/DO-160C. Die Werte nutzen als Einheiten die Erdbeschleunigung $g = 9,81 \text{ ms}^{-2}$.

Richtung	Beschleunigung
vorwärts	6,0 g
rückwärts	2,0 g
links / rechts	2,0 g
nach oben	2,7 g
nach unten	6,0 g

strukturelle Veränderungen aufweisen. Bei einem abschließenden Schocktest, der die Situation einer Notlandung simulieren soll, wurde HAGAR erneut in allen sechs Richtungen für eine Zeit von 10 ms mit einer Beschleunigung von 9 g konfrontiert. Dabei durften sich keine Veränderungen ergeben, die das Flugzeug gefährden könnten. HAGAR bestand alle Tests ohne Schäden an Rahmen oder Kessel.

Für die Probennahme musste noch ein Einlassrohrsystem gebaut und integriert werden. Der eigentliche Einlass ist an einer Platte am Rumpf befestigt. Um den Staudruck ausnutzen zu können, ist das Rohr so gebogen, dass die Öffnung in Flugrichtung zeigt. Durch ein Loch im Rumpf gelangt das Rohr nach innen. Da HAGAR auf Federelementen montiert ist, musste auch das Einlassrohr flexibel sein. Dies ist durch einen Edelstahlfaaltenbalg realisiert, der direkt an der Verbindung zur HAGAR-Bodenplatte sitzt.

2.3.3 Elektrische Integration

Zunächst waren für die elektrische Integration auf der Geophysica nur kleinere Anpassungen notwendig. So werden vom Flugzeug allen Instrumenten über eine serielle Schnittstelle (RS422) Avionikdaten zur Verfügung gestellt (vgl. Kapitel 3). Des Weiteren existieren für jedes wissenschaftliche Instrument zwei Kontrollleuchten im Cockpit der Geophysica. Durch eine grüne Leuchte wird Betriebsbereitschaft signalisiert, während Fehlfunktionen durch eine gelbe Leuchte angezeigt werden sollen.

Am Ballon wird in einem einfachen Test der Telemetrie und des Telekommandos überprüft, ob die an Bord der Gondel befindlichen wissenschaftlichen Instrumente die Elektronik des Ballonteam's der CNES stören. Können keine negativen Wechselwirkungen festgestellt werden, darf geflogen werden. Für eine Integration eines Instrumentes an Bord der Geophysica muss jedoch ein Zertifikat der elektromagnetischen Verträglichkeit (EMV) wiederum gemäß RTCA/DO-160C, Section 21, Kategorie Z erstellt werden. Dabei werden die leitungsgebundenen elektromagnetischen Störungen in einem Frequenz-

bereich von 150 kHz bis 1 GHz überprüft. Die Abstrahlung wird in einem Frequenzbereich von 30 MHz bis 1215 MHz untersucht. Damit sollen Störungen sowohl des Bordstromnetzes als auch der weiteren Flugzeugelektronik ausgeschlossen werden. Die Tests wurden von der Firma Elekluft GmbH in Bonn durchgeführt.

Bei einem ersten EMV-Test am 9.11.1999 zeigte sich, dass HAGAR in einem Frequenzbereich zwischen 1 und 3 MHz weit oberhalb der erlaubten Grenzwerte für leitungsgebundene Störungen lag (s. Abbildung 2.5). Hauptgrund waren hier die DC-DC-Wandler, die ja als Schaltnetzteile in diesem Frequenzbereich arbeiten. Obwohl Kessel, Bodenplatte und Klemmring einen Faraday'schen Käfig bilden, können doch hochfrequente Störungen entlang der Leitungen, die aus dem Instrument hinausgeführt werden, austreten. Mangelnde Abschirmung, vor allem bei den Kabeln zur Stromversorgung, führen dann zusätzlich zu den leitungsgebundenen Störungen auch noch zu einer Abstrahlung.

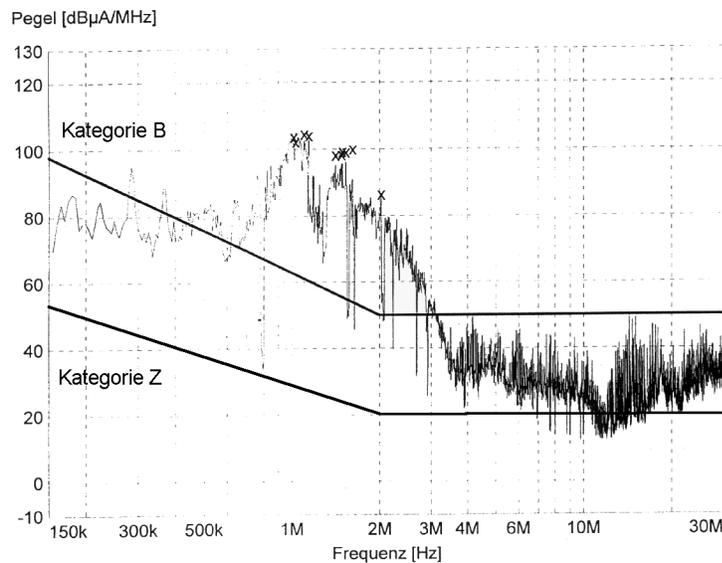


Abbildung 2.5: Beispiel des ersten EMV-Tests vom 9.11.1998. Gezeigt ist der schmalbandige Test der 27 V-Versorgungsleitung. Bandbreite: 10 kHz, Schrittweite 5 kHz, Messzeit: 10 ms. Die obere durchgezogene Linie stellt den erlaubten Grenzwert nach Kategorie B dar. Zur Information ist auch die eigentlich einzuhaltende Kategorie Z eingezeichnet.

Da es zu den DC-DC-Wandlern im HAGAR keine Alternative gibt, konnte statt der Ursache nur die Wirkung bekämpft werden. Der wichtigste Punkt war die Installation von zwei Hochfrequenzfiltern vom Typ Schaffner

2070. Jedes Filter kann symmetrische und asymmetrische Störungen auf einer Gleichstromversorgung von maximal 16 A dämpfen. Ein weiteres, kleineres Schaffner-Filter vom selben Typ säubert die 115 V-Versorgung der Flaschen- und Kesselheizung. Eine optimale Wirkungsweise der Filter ist nur gewährleistet, wenn diese großen und schweren Bauteile (je 1 kg) sehr nahe an den Verbindungen nach draußen montiert werden. Die Leitung zwischen Filter und nach außen führendem Stecker muss dann noch elektrisch abgeschirmt werden. Nur so kann ein Einstreuen der DC-DC-Wandler auf die Leitungen verhindert werden.

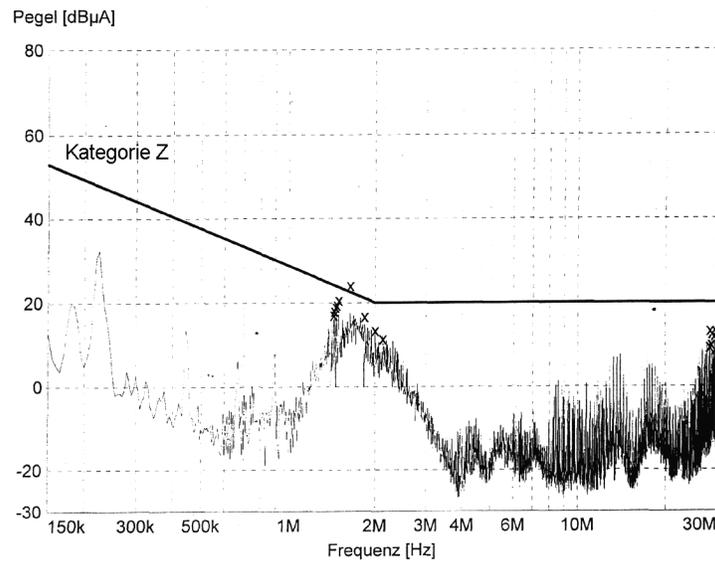


Abbildung 2.6: Beispiel des zweiten EMV-Tests vom 17.11.1998. Gezeigt ist die gleiche Messung wie in Abbildung 2.5. Man beachte jedoch, dass der Grenzwert (dicke Linie) auf dem Niveau der deutlich strengeren Kategorie Z liegt!

Neben der Stromversorgung führen aber auch noch eine ganze Reihe weiterer Kabel aus dem HAGAR-Kessel zum Ventilator, zur Kesselheizung und zu den Druckminderern. Diese waren jedoch von vorne herein abgeschirmt ausgelegt gewesen, so dass sie keine allzu großen Beiträge zur Gesamtstörung leisteten. Ein zweiter EMV-Test am 17.11.1998 zeigte denn auch, dass HAGAR durch die Installation der Filter und die weiteren Abschirmmaßnahmen die geforderten Normen einhalten kann (s. Abbildung 2.6).

Für die Beeinflussung des Instrumentes durch die vom Flugzeug erzeugten Störungen existiert ebenfalls ein Testverfahren. Aus Zeitgründen musste jedoch auf diesen Test verzichtet werden. Glücklicherweise zeigte sich, dass HAGAR grundsätzlich unempfindlich auf derartige elektrische Störungen ist.

Lediglich bei den letzten drei Flügen während APE-GAIA zeigt sich auf dem Detektorsignal von Kanal 1 ein Rauschen von ca. 3 Hz, das am Boden nicht zu reproduzieren war. Nur ein Nebeneffekt ist die Tatsache, dass der Langstreckenfunk der Geophysica ein Rauschen auf dem Signal der Hochdrucksensoren der Gasflaschen erzeugt. Als andere Teams vermuteten, dass ihre Instrumente ernsthaft vom Funk gestört würden, konnten diese Signale als exaktes zeitliches „Funkprotokoll“ benutzt werden.

2.3.4 Chromatographie

Die Chromatographie beider Kanäle wurde gegenüber der früheren Ballonversion auf beiden Kanälen verändert. Kanal 2 ist nun zur Messung von N_2O , F12, Halon-1211 (CBrClF_2) und F11 konfiguriert. Da N_2O vor den übrigen Substanzen eluiert, musste die Chromatographie verlangsamt werden, um eine ausreichende Trennung zwischen N_2O und Sauerstoff (O_2) zu erreichen. Dazu wurden die Säulentemperatur und die Gasflüsse verringert. Auf die Messung von F113 wurde zugunsten der guten Zeitauflösung von 90 s verzichtet.

Zusätzlich wurde für die Messung von N_2O ein anderes Trägergas verwendet. N_2O ist bei absolut reinem Trägergas mit einem ECD nicht zu detektieren. In Gegenwart von Methan jedoch finden Molekülonen-Reaktionen statt, die letztlich zu einer Elektronenaufnahme und damit einem Signal im ECD führen [Phillips et al., 1979]. Statt reinem Stickstoff kommt nun ein Gasgemisch von 1 % CH_4 in 99 % N_2 zum Einsatz. Die Beigabe von CH_4 stört die Messung der übrigen Moleküle nicht.

Durch das Kürzen der Vorsäule von Kanal 1, die hier allein für die Trennung der Substanzen verantwortlich ist, konnte die Chromatogrammdauer auf 45 s verringert werden. Innerhalb dieser Zeit wird nunmehr nur noch SF_6 gemessen. Auf die Messung von F12 auf diesem Kanal wurde verzichtet, da ja bereits Kanal 2 für die Messung von F12 konfiguriert ist. Da beide Kanäle nicht vollständig unabhängig voneinander arbeiten, können sich die Chromatogramme, die in der ersten bzw. zweiten Hälfte des 90 s-Zyklus ablaufen, geringfügig unterscheiden. Daher müssen auch beide Chromatogramme getrennt kalibriert werden. Bei der Auswertung werden die Chromatogramme von Kanal 1 auch isoliert ausgewertet, indem ein dritter, virtueller Kanal eingeführt wird. Wie bereits oben erwähnt, musste bei der Konfiguration der Chromatographie darauf geachtet werden dass die Chromatogrammlängen der beiden Kanäle ein ganzzahliges Vielfaches voneinander sind, da die Kanäle sich z. B. das Aufgabesystem teilen. In den Abbildung 2.7 sind typische Chromatogramme der beiden Kanäle gezeigt.

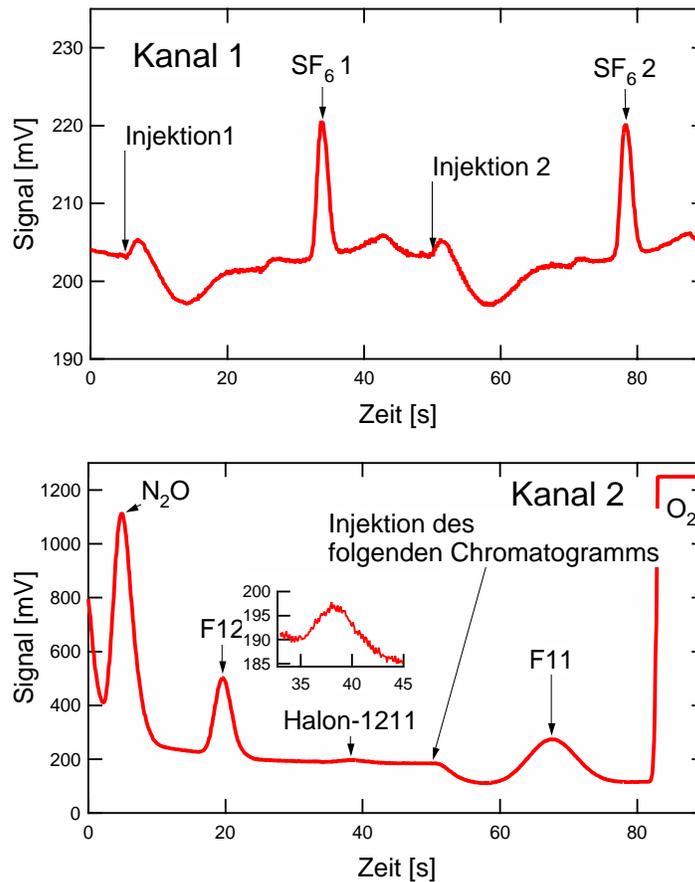


Abbildung 2.7: Typische Chromatogramme für beide Kanäle des HAGAR. Injektion 1 ist auf Kanal 1 beschränkt. An der zweiten Injektion ist sehr gut die Methode der “stacked chromatography“ zu erkennen: während auf Kanal 1 der aktuelle SF₆-Peak folgt, erscheint auf Kanal 2 zunächst der letzte Peak (F11) des laufenden Chromatogramms. Der sehr kleine Halon-1211-Peak in Kanal 2 ist noch einmal vergrößert dargestellt.

Tabelle 2.2: Konfiguration des Gaschromatographen am Ende von APE-GAIA. Es ist zu beachten, dass sich die Retentionszeiten $t_{ret.}$ auf den Zeitpunkt der Injektion beziehen, der auf Kanal 2 41 s vor Beginn des Chromatogramms und auf Kanal 1 5 s nach Beginn des Chromatogramms liegt (vgl. Abbildung 2.7).

	Kanal 1	Kanal 2
Zykluslänge	45 s	90 s
gem. Substanzen	SF ₆ ($t_{ret.} = 29$ s)	N ₂ O ($t_{ret.} = 46$ s) F12 ($t_{ret.} = 60,5$ s) H-1211 ($t_{ret.} = 79,5$ s) F11 ($t_{ret.} = 108,5$ s)
Probenschleife	3,6 mL ab 8.10.1999 2 mL	2 mL 2 mL
Vorsäule	Edelstahlrohr, l = 70 cm, $d_a = 1/8''$, $d_i = 2,38$ mm, gefüllt mit Molekularsieb 5 Å, 80/100 mesh	Edelstahlrohr, l = 80 cm, $d_a = 1/8''$, $d_i = 2,38$ mm, gefüllt mit Porasil C, n- Oktan, 80/100 mesh
Hauptsäule	Edelstahlrohr, l = 100 cm, ab 8.10.1999 120 cm, $d_a = 1/8''$, $d_i = 2,38$ mm, gefüllt mit Molekularsieb 5 Å, 80/100 mesh	Edelstahlrohr, l = 180 cm, $d_a = 1/8''$, $d_i = 2,38$ mm, gefüllt mit Porasil C, n-Oktan, 80/100 mesh
Säulentemperatur	55°C	89°C
ECD-Temperatur	340°C	340°C

2.3.5 Integration eines CO₂-Sensors

Für den Einsatz auf der Geophysica sollte der Funktionsumfang des HAGAR durch den Einbau eines Sensors für Kohlendioxid erweitert werden, um damit einen weiteren Alterstracer zu messen. Die übliche Technik zur Messung von CO₂ ist der Einsatz eines kommerziellen Instrumentes, z. B. vom Typ LI-COR 6251, das an die besonderen Verhältnisse bei in-situ-Messungen an Ballonen und in Flugzeugen angepasst werden muss. Die Technik wird seit einigen Jahren erfolgreich sowohl auf dem amerikanischen Forschungsflugzeug ER-2 als auch auf Ballongondeln eingesetzt [z. B. *Boering et al.*, 1996; *Andrews et al.*, 1999].

Funktionsprinzip des LI-COR

Das LI-COR macht sich die non-dispersive Absorption von Infrarotstrahlung durch CO₂ zu Nutze. Beim Durchgang von Licht durch ein Luftvolumen wird

die Intensität I gemäß dem Lambert-Beer'schen Gesetz verringert:

$$I = I_0 \cdot e^{-kl} = I_0 \cdot e^{-k' \chi_{\text{CO}_2} l} \quad (2.1)$$

$k = k(\lambda)$ bzw. $k' = k'(\lambda)$ bezeichnen die wellenlängenabhängigen Extinktionskoeffizienten, I_0 die Intensität der Lichtquelle und l die Länge der Absorptionsstrecke. χ_{CO_2} ist die Anzahl von CO_2 -Molekülen in einem gegebenen Volumen, das – bei konstanten Bedingungen für Druck und Temperatur – zum Mischungsverhältnis äquivalent ist. Kennt man alle Messparameter und die Konstanten, kann aus einer Intensitätsmessung das CO_2 -Mischungsverhältnis berechnet werden.

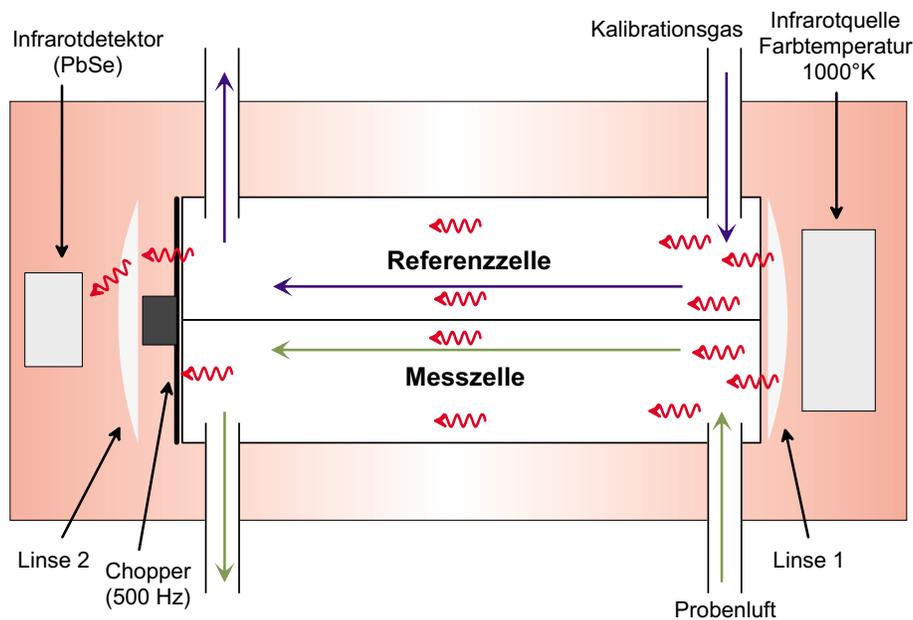


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des LI-COR 6251 CO_2 -Sensors. Auf eine Darstellung technischer Details wurde verzichtet.

Zur Vermeidung von Fehlern - z.B. durch ein Schwanken der Strahlungsintensität I_0 - wird jedoch eine Differenzmessung durchgeführt (s. Abbildung 2.8). Das LI-COR besteht aus zwei identischen, innen mit Gold beschichteten Absorptionszellen mit einem Volumen von je $12,5 \text{ cm}^3$. Die Lichtquelle ist über eine Photodiode und einen Regelkreis auf eine Farbtemperatur von 1000°K stabilisiert. Ein Chopper, der bei einer Frequenz von 500 Hz arbeitet, sorgt nun dafür, dass abwechselnd Licht von der einen bzw. anderen Zelle auf den gekühlten Blei-Selenid-Detektor fokussiert wird. Das Ausgangssignal ist

proportional zur Intensitätsdifferenz. Für die Auswertung ist nur eine exakte Kenntnis des CO₂-Mischungsverhältnisses in der Referenzzelle sowie der Gerätecharakteristika vonnöten.

Am Detektor ist eine mit Magnesium-Perchlorat gefüllte Trockenpatrone angebracht, um den Detektor vor Schäden durch Feuchtigkeit zu schützen. Um eine Verfälschung des Ergebnisses durch CO₂ im Bereich der Chopperscheibe zu vermeiden, muss dieser Bereich stets CO₂-frei gehalten werden. Dazu ist das Volumen, in dem sich die Chopperscheibe befindet, mit einem geschlossenen Luftkreislauf verbunden, in den eine mit Soda-Lime⁶ gefüllte CO₂-Falle integriert ist. Der Chopper selbst wirkt dabei als Pumpe, die diesen Kreislauf antreibt.

Wird die Referenzzelle mit CO₂-freiem Gas gespült, kann aus der Signalspannung des LI-COR direkt das Mischungsverhältnis in der Messzelle bestimmt werden („Absolutmodus“). Im differentiellen Modus wird die Referenzzelle mit einem Gas bekannten Mischungsverhältnisses gespült. Dies birgt eine Reihe von Vorteilen. Die Mischungsverhältnisse der eingesetzten Kalibriergase sollten so gewählt werden, dass sie den Messbereich, der von Interesse ist, möglichst eng umfassen. Die Kennlinie des LI-COR, die im Allgemeinen vom Werk bestimmt worden ist und sich auch mit der Zeit ändern kann, stellt dann eine kleinere Fehlerquelle dar. Im Falle stratosphärischer Messungen, wo der Bereich der auftretenden CO₂-Mischungsverhältnisse kaum mehr als 10 ppm umfasst, weicht die Kennlinie nur noch um maximal 0,15 ppm von einer Geraden ab (s. dazu auch Abschnitt 4.3). Ein weiterer positiver Effekt ist, dass die interne Verstärkung des LI-COR im differentiellen Modus erhöht ist.

Problematik hochpräziser CO₂-Messungen

Für die Altersbestimmung mit einer Genauigkeit von etwa 2 Monaten ist bei der Messung von CO₂ eine Präzision von ca. 0,2 ppm notwendig. Dies entspricht etwa der Größe des Rauschens, das die Firma LI-COR für ihr Instrument angibt. Der Wert von 0,2 ppm ist für das eigentliche Einsatzgebiet des Sensors, der vor allem für den Feldeinsatz – z.B. zur Bestimmung von Photosyntheseraten von Pflanzen – ausgelegt ist, mehr als ausreichend. Im Feld überwiegen ohnehin der Einfluss von wechselnden meteorologischen Bedingungen wie Druck und Temperatur in der Regel das Rauschen.

Da sie nach dem idealen Gasgesetz $n/V = R^{-1} \cdot (p/T)$ miteinander verknüpft sind, ist eine genaue Kenntnis von Druck und Temperatur im Prinzip

⁶Soda-Lime ist ein Handelsname für eine Mischung mit der folgenden Zusammensetzung: 62-91 % CaO, 5-20 % NaOH, 6-18 % H₂O.

Voraussetzung dafür, dass aus der Messung der Absorption das Mischungsverhältnis bestimmt werden kann. Jedoch kann auf die Kenntnis von Absolutwerten verzichtet werden, indem diese Parameter möglichst konstant gehalten und regelmäßige Kalibrationen mit Standardgasen bekannten CO₂-Gehalts durchgeführt werden. Die genaue Abhängigkeit der Messgenauigkeit von Druck und Temperatur wird ebenfalls in Abschnitt 4.3 diskutiert.

Aus diesem Grunde wurde das LI-COR innerhalb des HAGAR-Kessels in ein Gehäuse montiert, das mit einer eigenen Temperaturregelung versehen ist. Da alle 7,5 Minuten mit einem der beiden Standards kalibriert wird, genügt es, bei der Temperatur die zeitliche Drift gering zu halten. So gelang es, die zeitliche Temperaturänderung auf $\frac{dT}{dt} < 1^\circ\text{C/h}$ zu begrenzen. Die Ausgänge der Messzellen enden im Kessel, der eine Druckstabilität von ca. 1,5 hPa hat (s. Abbildung 2.9).

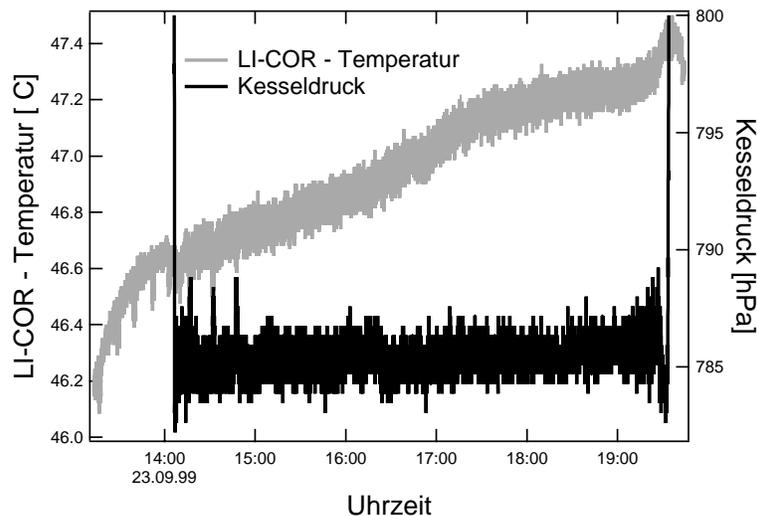


Abbildung 2.9: Typischer Verlauf des Kesseldruckes und der LI-COR-Temperatur während eines Messfluges an Bord der Geophysica (23.9.1999). Die steilen Anstiege des Druckes markieren Start- bzw. Landephase.

Neben der eigentlichen Messung durch das LI-COR muss auch die Aufzeichnung des Ausgangssignals hohen Ansprüchen genügen. Im HAGAR arbeiten hochauflösende, integrierende Analog-Digital-Wandlerkarten für die ECD-Signale und einfachere für die Aufzeichnung der Prozessdaten. Deren Auflösung von 12 bit sollte einer Auflösung von etwa 0,1 ppm entsprechen. Es stellte sich jedoch heraus, dass dies in der Praxis nicht zu erreichen war, weshalb nach der ersten wissenschaftlichen Kampagne (APE-THESEO) eine dritte hochauflösende Messkarte integriert werden musste. Die Problematik der Datenaufzeichnung soll hier jedoch nur erwähnt werden, da hierauf im

folgenden Kapitel 3 ausführlich eingegangen wird, während Fragen der Präzision der Messungen in Abschnitt 4.3.4 ausführlich diskutiert werden.

Eingliederung des LI-COR innerhalb von HAGAR

Da das Originalgehäuse des LI-COR zu groß war, wurde ein kompakteres entwickelt. Der Transformator, der einen Betrieb bei 220 V ermöglicht, wurde entfernt. Stattdessen wurden eine Platine mit Messverstärker und Relais, ein Flussregler, ein Flusssensor und eine Heizung in das Gehäuse integriert.

Wie oben bereits angedeutet, benötigt das LI-COR zwei Kalibriergase. Daher wurden im HAGAR die Voraussetzungen für ein zweites Kalibriergas („Spangas“) geschaffen (Druckregler, Sensoren, etc.). Während die Referenzzelle des LI-COR stets vom ersten Kalibriergas („Referenzgas“) gespült wird ist die Messzelle parallel zur Probenschleife des Chromatographen geschaltet. Dies ist unkritisch, so lange nach der Injektion die mit 7 bar Trägergas gefüllte Probenschleife zunächst über das Magnetventil S3 in den Kessel entleert wird. Wird zuerst das Magnetventil S2 geöffnet, strömt das unter Überdruck stehende Trägergas aus der Probenschleife in das LI-COR und verfälscht die CO₂-Messung erheblich.

Aus der Parallelschaltung von LI-COR und Chromatograph resultiert ein erhöhter Bedarf an Probenfluss von mindestens 300 ml/min. Die bisher verwendeten Pumpen leisten dies fast bis zur maximalen Flughöhe der Geophysica von 50 hPa. Für einen Balloneinsatz bis 10 Pa müssten leistungsstärkere Pumpen eingesetzt werden.

Abbildung 2.10 zeigt die aktuelle Verrohrung im HAGAR. Neben den bereits aufgelisteten Neuerungen, sind noch einige Dinge zu beachten:

- Die Verteilung des Probengasflusses auf LICOR und Gaschromatograph wird über eine Restriktion (C7) am Ende der Probenschleife geregelt. Der Fluss im LI-COR wird über einen Massenflussregler (MFC) konstant gehalten.
- Das Magnetventil vor der Referenzzelle des LI-COR und der Massenflussregler (MFC) vor der Messzelle ermöglichen eine vollständige Separation des CO₂-Sensors und damit einen alleinigen Betrieb des Gaschromatographen.

2.3.6 Weitere Verbesserungen und Modifikationen

In diesem Abschnitt sollen eine Reihe von Verbesserungen und Modifikationen aufgeführt werden, die sich keinem der bisherigen Abschnitte direkt

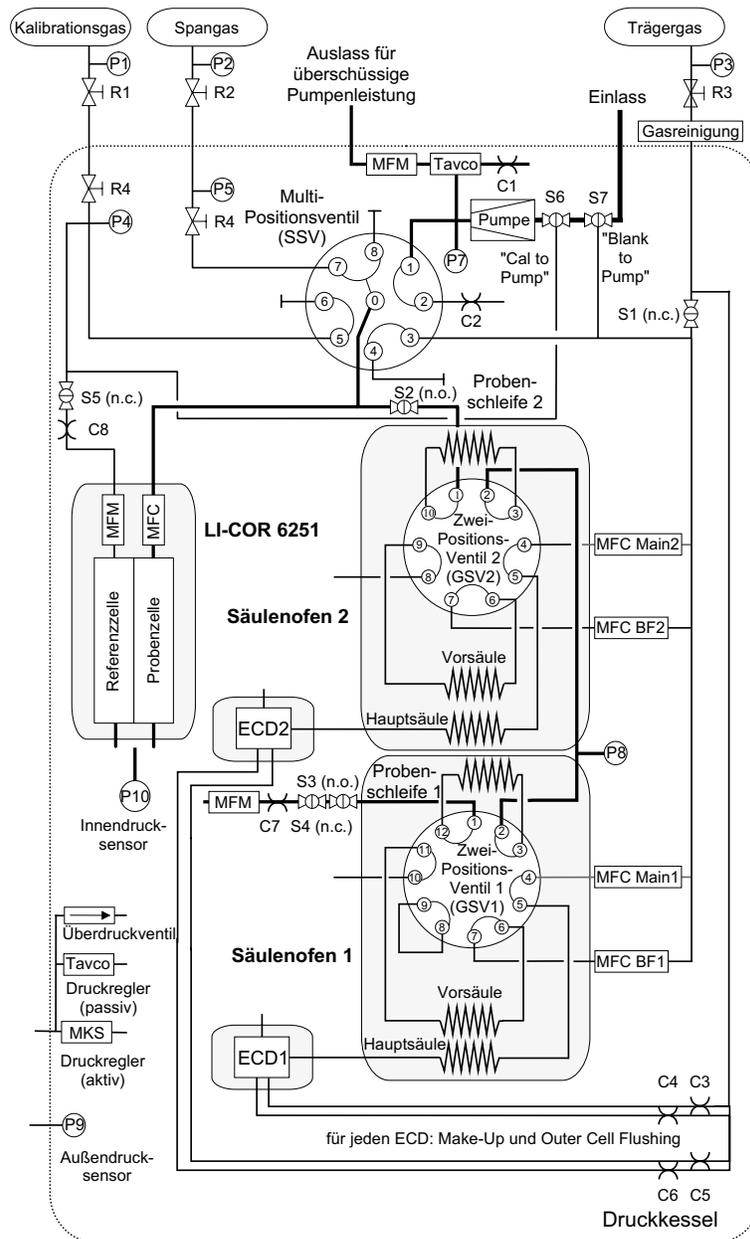


Abbildung 2.10: Verrohrungsdiagramm des HAGAR: Mit Ausnahme der Gasflaschen, der Hochdruckminderer und der Reinigungspatronen für das Trägergas befindet sich alles innerhalb des bedruckten Kessels. Die grauen Bereiche kennzeichnen individuell temperierte Bereiche. Legende: C: kritische Düsen, MFM: Massenflusssensor, MFC: Massenflussregler, P: Drucksensor, S: Magnetventile, der Schaltzustand der Magnetventile ohne angelegte Spannung ist in Klammer angegeben: n.o. offen, n.c.: geschlossen.

zuordnen lassen. Dabei sollen nur die wichtigsten Punkte aufgeführt werden, da die Fülle der Detailverbesserungen den Rahmen unnötig sprengen würde.

- Nachdem die Elektrometer (Detektorsteuerung) während des Ballonfluges eine zu hohe Temperaturempfindlichkeit aufgewiesen hatten, wurden von der Firma PCTronik neue Elektrometer gebaut, wobei auf die Verwendung von möglichst temperaturstabilen Komponenten geachtet wurde. Zudem befinden sich die beiden Elektrometer nun in einem anstatt zwei Gehäusen, um den Platzbedarf dieser Komponenten zu minimieren.

Leider zeigten die neu gebauten Elektrometer eine bisher ungeklärte Fehlfunktion. Befinden sich die Detektoren über längere Zeit in der Sättigung (z. B. während der Aufheizphase), verharrt das Ausgangssignal auf dieser Spannung, auch wenn sich die Bedingungen verändert haben. Durch ein Aus- und wieder Einschalten der Elektrometer kann dieses behoben werden. Aus diesem Grunde können die Elektrometer nun über den Steuerrechner angeschaltet werden; ist das Signal in der Sättigung wird automatisch ein Reset zwischen zwei Zyklen durchgeführt.

- Die Eingliederung des LI-COR in den bestehenden HAGAR machte einige Umbauten notwendig. Der vorgesehene Platz auf der Bodenplatte reichte zunächst nicht ganz aus. Daher wurde das Instrument vollständig zerlegt und alle Ebenen neu gestaltet. Dabei wurde in vielen Bereichen ein kompakteres Design erreicht. Ein wichtiger Aspekt des Neuaufbaus war auch die Reparaturfreundlichkeit. So kann nun die Rechnerebene binnen weniger Minuten abgehoben werden. Lange Kabel ermöglichen auch so den Betrieb des Instrumentes, während man Zugriff auf alle wichtigen elektrischen und mechanischen Komponenten des Gaschromatographen hat. Auch die Bodenplatte, auf der das LI-COR montiert ist, kann nun in vertretbarer Zeit (30 min) vom Rest des Instrumentes getrennt werden, um Wartungsarbeiten durchzuführen.
- Die Druckminderer an den Gasflaschen wurden gegenüber den beim Ballonflug verwendeten ausgetauscht. Es kommen nun etwas schwerere Edelstahl-Druckminderer der Firma Tescom zum Einsatz. Um einer Fehlfunktion vorzubeugen, werden sie beheizt. An jedem der drei Minderer ist eine mit 115 V betriebene Heizpatrone und ein einfacher Temperaturschalter angebracht, der ein Absinken der Temperatur unter 0°C verhindert. Durch die Heizung kann zusätzlich ausgeschlossen werden, dass die Flaschenventile aufgrund zu niedriger Temperaturen undicht

werden. Über den Steuerrechner kann die Heizung an- und ausgeschaltet werden.

- Für den Betrieb an Bord der Geophysica wurden die Heizelemente in den Öfen für Säulen und Detektoren durch leistungsstärkere ersetzt. Dies setzt die Zeitspanne herab, die HAGAR bis zur Betriebsbereitschaft benötigt.
- Ein Problem bei Messungen mit Gaschromatographen sind mögliche Kontaminationen. Kritische Komponenten sind hier neben Lecks vor allem Ventile und Pumpen. Aus diesem Grunde wurden zwei weitere Diagnosemöglichkeiten geschaffen. Vor der Pumpe befinden sich zwei Magnetventile (S6, S7), über die entweder Trägergas oder Referenzgas über die Pumpe in den Gaschromatographen injiziert werden können. Diese Diagnose wird während eines Fluges etwa alle zwei Stunden durchgeführt. Erfreulicherweise zeigte sich, dass diese Befürchtungen bisher unnötig waren, denn es konnten niemals Kontaminationen aus dem Bereich des HAGAR nachgewiesen werden.
- Am Ende der Probenschleife ist ein Magnetventil (S4) eingebaut, das bei ausgeschaltetem Gerät geschlossen ist. So wird ein Verlust von Kalibrationsgas bei einem unkontrollierten Ausschalten des Instrumentes verhindert. Dies ist vor allem bei Stopps auf den Transferflügen von Bedeutung, wo HAGAR ohne Wartung von außen hermetisch abgeschlossen sein sollte.
- Zu Beginn von APE-THESEO war der Massenflussregler, der das Rückspülen der Säulen ermöglicht („MFC BF2“ in Abbildung 2.10) am Ausgang anstatt wie jetzt am Eingang der Vorsäule montiert (jeweils bezogen auf die Richtung des Gasflusses beim Rückspülen). Dies hatte jedoch den Effekt, dass die Retentionszeiten sich kontinuierlich verlängerten, um dann erst nach einigen Stunden konstant zu bleiben. Dieser Effekt war reproduzierbar, konnte jedoch bisher nicht verstanden werden. Durch die Änderung der Verrohrung nach den ersten Flügen von APE-THESEO auf den in Abbildung 2.10 dokumentierten Stand konnte das Problem jedoch beseitigt werden.
- Um das Instrument zwischen zwei Flügen im Flugzeug belassen zu können, musste eine Möglichkeit zum schnellen Herunterladen der Daten geschaffen werden. Aus diesem Grunde wurde der Steuerrechner um einen Netzwerkkarte erweitert, deren Anschluss sich in der Bodenplatte des HAGAR befindet.

Kapitel 3

HAGAR-Steuereinheit

In den folgenden Abschnitten soll die Steuereinheit des HAGAR vorgestellt werden, wobei der Schwerpunkt auf der neu entwickelten Steuersoftware liegen wird. Im ersten Abschnitt wird dafür – analog zur Entwicklung – das Anforderungsprofil aufgezeichnet. Die verwendete Hardware soll in Abschnitt 3.2 nur so weit vorgestellt werden, wie es für ein Verständnis der Funktionsweise bzw. der Aufgabenverteilung innerhalb der Steuereinheit notwendig ist. Die Multitasking-Programmierung stellt eine vielseitige und effektive Technik zur Erstellung von Steuerungssoftware dar. In Abschnitt 3.3 wird diese Technik mit ihren Möglichkeiten, Besonderheiten und Fallstricken vorgestellt. In Abschnitt 3.4 werden schließlich verschiedene technische Facetten des für HAGAR entwickelten Steuerprogrammes beleuchtet.

3.1 Anforderungen

Der Steuerelektronik eines in-situ-Gaschromatographen stellen sich grundsätzlich vier Aufgaben:

- Steuerung der Chromatographiesequenz
- Erfassung und Speicherung der Messsignale
- Erfassung und Speicherung von Prozessdaten („Housekeeping-Daten“)
- Überwachung des Betriebszustandes des Gerätes inkl. Schutz vor Beschädigung

Der erste Punkt wird im Laborbetrieb im Allgemeinen von der Elektronik des Gaschromatographen erledigt. Dabei sind meist nur wenige Aktionen vorgesehen: Hin- und Rückschalten eines Ventils zur Injektion, gegeben-

falls auch ein Temperaturprogramm für die Säule, um eine optimale Trennung aller relevanten Verbindungen zu erreichen. Die meisten Parameter am Gaschromatograph – wie Vordruck bzw. Fluss des Trägergases – werden konstant gehalten. Eine beschleunigte Chromatographie, wie sie in Kapitel 2.2.3 vorgestellt wurde, erfordert jedoch weitergehende Steuerungsmöglichkeiten. Analoge und digitale Signale regeln Flüsse und schalten Ventile während des Zyklus. Für die Optimierung der Chromatographie muss zudem ein manuelles Eingreifen im Betrieb („Handsteuerung“), sowie eine einfache Konfiguration des Chromatographiezyklusses realisiert sein.

Die Prozessdaten werden bei Laborchromatographen zumeist manuell (Laborbuch o.ä.) erfasst oder gelten als bekannt und/oder ausreichend konstant. In einem vollautomatischen System, das stark wechselnden äußeren Bedingungen unterliegt (Druck, Temperatur, Stromversorgung), gleichzeitig aber ohne Bediener auskommen muss, ist die Überwachung möglichst vieler Komponenten unerlässlich. Sie dient nicht nur zur Diagnose des Gerätezustandes, sondern kann auch wertvolle Daten zur Korrektur der wissenschaftlichen Daten liefern, falls die Bedingungen nicht ausreichend konstant waren (vgl. Abschnitt 4.3.3). In HAGAR arbeiten 16 Temperatursensoren und 30 weitere analoge Sensoren für Drücke, Gasflüsse und Betriebsspannungen, die im Sekundentakt erfasst werden sollten.

Um Schäden an einzelnen Komponenten – insbesondere an den ECDs – zu verhindern, muss das Instrument die Signale einzelner Sensoren nicht nur aufzeichnen, sondern auch überwachen. Beim Über- oder Unterschreiten gewisser Grenzwerte müssen geeignete Maßnahmen ergriffen werden, um Schäden zu verhindern.

Für den Laborbetrieb sollten sowohl Mess- wie auch die Prozessdaten am Monitor in Echtzeit ¹ dargestellt werden. Die Chromatogramme sollten dabei in graphischer Form sichtbar sein.

Zusätzlich können noch weitere Aufgaben hinzukommen, wie auf Flugzeugen etwa der Empfang von Avionikdaten über eine serielle Schnittstelle. An Bord der Geophysica stellt die „Unit for Connection with Scientific Equipment“ (UCSE) über eine RS422-Schnittstelle Daten zu Position, Wind, Druck, Temperatur, Flughöhe und Geschwindigkeit zur Verfügung, sowie eine Referenzzeit, die eine Synchronisation aller an Bord befindlichen Experimente ermöglicht.

Beim Einsatz an Stratosphärenballonen besteht die Möglichkeit, die erfassten Daten per Telemetrie (TM) zum Boden zu senden. Des Weiteren kann

¹Auf den Begriff der Echtzeit wird in Abschnitt 3.3 näher eingegangen. Was man als Echtzeit bezeichnet, hängt von den systeminhärenten Zeitskalen ab. So ist etwa für die Darstellung der Messwerte am Monitor eine Verzögerung von bis zu einer Sekunde durchaus mit „Echtzeit“ verträglich.

der Messablauf durch Telekommandos (TC) vom Boden aus beeinflusst werden. Die benötigte Hardware für die Übertragung von TM und TC werden dabei vom Ballonteam der CNES zur Verfügung gestellt. Zwischen Boden- und Flugrechner besteht dann eine serielle Funkverbindung.

Ein Messprogramm sollte so weit wie möglich ohne Recompilierung konfigurierbar sein. Die Chromatogrammzyklen, der Ablauf des Fluges und die Nutzung von Sensoren sollte für den Benutzer ohne Programmierkenntnisse veränderbar sein. Gleichzeitig sollte der Bedarf an Ressourcen wie Speicher und Rechenleistung gering sein, um den Stromverbrauch bzw. die Wärmeentwicklung niedrig zu halten.

Zuletzt muss darauf hingewiesen werden, dass die Stabilität der Software für ein vollautomatisches Messinstrument von großer Bedeutung ist. Obwohl in Industrie-PCs Watchdogs verwendet werden, die beim Absturz des Programmes einen Hardwarereset auslösen, wird der Gaschromatograph bei einem Neustart aus seinem Gleichgewicht gebracht. Der Verlust an wertvoller Messzeit ist also zumeist erheblich größer als der Zeitraum, der zum eigentlichen Neustart nötig ist.

Nicht alle genannten Aufgaben müssen notwendigerweise von einem PC erfüllt werden. Gerade die Überwachungsfunktionen könnten – ähnlich wie die Temperaturregelung von Säulen und Detektoren – auch von „klassischer“ Elektronik erfüllt werden. Teil des HAGAR-Konzeptes ist es jedoch, maximale Kontroll- und Steuerungsmöglichkeiten auch bei geschlossenem Gerät zu haben, wie es nur mit einer vollständigen Ansteuerung der Komponenten via Computer möglich ist.

3.2 Das System

Als Steuerrechner kommt im HAGAR ein Industrie-PC im AT96-Format zum Einsatz. Der Flugrechner hat einen 486DX2-Prozessor mit 66 MHz Systemtakt und 8 MB Arbeitsspeicher. Als Ersatz für eine Festplatte, die unter den rauen mechanischen Bedingungen möglicherweise nicht zuverlässig arbeiten würde, wird ein ATA-Flashspeicher im PC-Card-Format mit einer Kapazität von 40 MB verwendet. Der Adapter ist dabei vollständig kompatibel zu einer IDE-Festplatte, so dass keinerlei weiteren Treiber vonnöten sind. Die Flashkarte ist herausnehmbar und kann in jedem PC-Card-Slot – also auch in den meisten gängigen Notebooks – gelesen und geschrieben werden. Für den Einsatz auf der Geophysica war die Implementation einer Netzwerkkarte (10-Base-2) notwendig, da das Instrument nicht nach jedem Flug ausgebaut und geöffnet wird.

Zur Datenaufzeichnung und Steuerung werden Einschubkarten der Firma

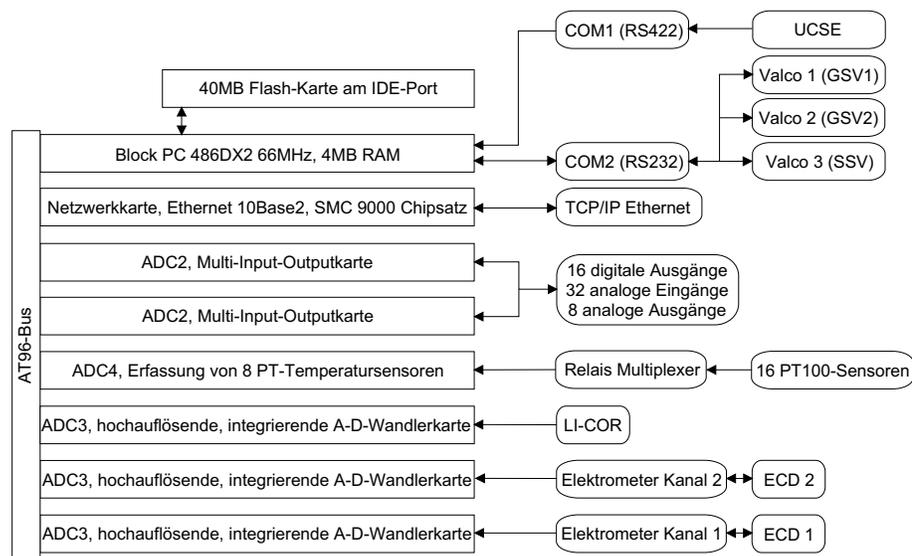


Abbildung 3.1: Blockschaltbild der HAGAR-Steereinheit.

Exxact verwendet. Alle Karten sind vollständig über Software zu konfigurieren. Zur Aufzeichnung der Messdaten (ECDs und LI-COR) kommen drei Analog-Digital-Wandlerkarten (A-D-Wandler) vom Typ ADC3 zum Einsatz. Sie bieten in verschiedenen Messbereichen eine Auflösung von 16 bit bei variabler Integrationszeit. Im HAGAR ist die Wandelrate – also die Anzahl von Datenpunkten pro Sekunde – auf 10 Hz eingestellt, was eine maximale Integrationszeit von 70 ms erlaubt. Beim Start eines jeden Chromatogramms werden die Karten synchronisiert und schreiben dann die Daten in einen internen Datenpuffer. Erst zum Ende des Chromatogramms werden die Daten (ca. 1,8 kB pro Karte und Chromatogramm) ausgelesen.

Die Prozessdatenerfassung mit Ausnahme der Temperaturen und die Steuerung wird von zwei Multifunktionskarten vom Typ ADC2 erledigt. Der Funktionsumfang der Karten ist in Tabelle 3.1 gezeigt.

Im HAGAR werden zur Temperaturmessung PT100-Widerstände eingesetzt. Diese Sensoren bieten den Vorteil einer bekannten, kalibrierten Widerstands-Temperaturkurve; sie sind zudem in vielen verschiedenen Bauformen erhältlich. Die ADC4-Karte von Exxact bietet die Möglichkeit acht solcher Sensoren auszulesen. Da im HAGAR-PC nur noch Platz für eine ADC4-Karte war, jedoch 16 Sensoren benötigt werden, wird die Anzahl über einen externen Relais-Multiplexer verdoppelt. Der auf der ADC4-Karte verwendete A-D-Wandler ist baugleich mit dem auf der ADC3-Karte. Die 16 bit Auflösung entsprechen einer Temperaturentauflösung von $0,1^{\circ}\text{C}$.

Die für die Chromatographie eingesetzten Mehrpositionsventile der Fir-

Tabelle 3.1: Funktionsumfang der ADC2-Karte von Exxact.

Anzahl	Funktion	Bemerkungen
16	analoge Eingänge, 12 bit	einzelwählbar zwischen single-ended und differential-ended; acht verschiedene Spannungsbereiche von 0 V ... +0,6125 V bis -10 V ... +10 V
4	analoge Ausgänge 12 bit	0 ... 10 V
4	digitale Eingänge	nicht verwendet in HAGAR
8	digitale Ausgänge	max. 500 mA
1	Zähler	nicht verwendet in HAGAR

ma Valco werden über die serielle Schnittstelle (COM2, RS232) angesteuert. COM1 dient wahlweise für die Telemetrie (Ballon) oder den Empfang der UCSE-Daten von der Geophysica. Im zweiten Falle ist noch ein RS422-zu-RS232-Konverter vorgeschaltet.

Als Betriebssystem kommt MS-DOS 6.22 zum Einsatz. Ein DOS-System ohne unnötige speicherresidente Programme (TSRs) bietet dem Programmierenden nahezu vollständige Kontrolle über Hardware und Rechenzeit.

Die HAGAR-Software ist fast ausnahmslos in klassischem C nach *Kernighan & Ritchie* [1983] geschrieben. Als Compiler diente Borland C/C++ Version 3.1. Zusätzlich kommt der Real-Time-Kernel RTK 4.5 der Firma On Time zum Einsatz. Er liegt in Form von Bibliotheken vor, die den Umfang von C erweitern. Im folgenden Abschnitt wird ausführlich auf die Vorteile dieses Systems eingegangen.

3.3 Grundlagen der Multitasking-Programmierung

3.3.1 Problematik

In Abschnitt 3.1 wurde dargelegt, welche Aufgaben die Steuereinheit des HAGAR parallel und in Echtzeit erfüllen muss. Der häufig verwendete Begriff „Echtzeit“ ist dabei verwirrend, denn schließlich hat jedes Computersystem eine gewisse Antwortzeit. Eine Definition von „Echtzeit“ ist somit nur im Zusammenhang mit dem zu steuernden oder zu erfassenden System sinnvoll. Für die Steuerung des HAGAR gilt eine Antwortzeit von < 100 ms als Echtzeit. Für die Prozessdaten genügt eine Unsicherheit von < 1 s der Forderung nach Echtzeit.

Die sequentielle Programmierung steht hier vor dem Problem, dass eine genaue Zeitmessung schwierig ist. Der Befehl `delay()`, der normalerweise zur exakten Terminierung von Prozessen verwendet wird, kann nur die Wartezeit des Rechners bestimmen. Die Zeitdauer für den dann ablaufenden Prozess kann allenfalls abgeschätzt werden. Gleichzeitig kann die Uhr des Betriebssystems („Systemuhr“) bei starker Auslastung des Rechners nachgehen.

Von Nachteil ist auch, dass der Rechner während einer durch `delay()` eingeleiteten Wartephase nicht für andere Aufgaben zur Verfügung steht. Systemereignisse, wie etwa der Empfang von Daten über Peripheriegeräte müssen durch regelmäßiges Abfragen der Schnittstelle („Polling“) gewährleistet werden. Um die Antwortzeit des Systems zu verbessern, muss die Pollingfrequenz erhöht werden. Dies führt bei einem komplexen System wiederum zu einer unnötigen Systemlast.

3.3.2 Der Real-Time-Kernel

Die im vorangegangenen Abschnitt dargelegten Probleme können mit dem verwendeten Real-Time-Kernel gelöst werden. Er liegt in Form einiger kompilierter Bibliotheken und Header-Dateien für C/C++ vor. Der Real-Time-Kernel stellt dem Programmierenden eine ganze Reihe von Funktionen zur Verfügung, die sonst unter DOS nicht oder nur schwierig zu realisieren sind:

- Interrupt-getriebene Echtzeituhr.
- Präemptives Multitasking mit individuellen Prioritäten.
- Inter-Task-Kommunikation über Mailboxen, Semaphoren und Messages.
- Interrupt-gesteuertes Ansteuern und Auslesen von Peripherie wie Tastatur und seriellen/parallelen Schnittstellen.
- Überprüfen der Prozessorlast.

Echtzeituhr

Der Real-Time-Kernel stellt dem Programm einen Timer (Echtzeituhr) zur Verfügung, der über einen Interrupt an den Systemtakt (mehrere MHz) der Hardware gekoppelt ist. Damit ist gewährleistet, dass der Timer unabhängig von der Auslastung des Systems ist. Die Zeiteinheit des Timers ist ein „Tick“, wobei die Länge eines Ticks in Millisekunden vorgegeben werden kann. Die Länge eines Ticks stellt die kleinste Einheit für die Zeitmessung innerhalb des

Programmes dar. Eine Verkürzung der Ticklänge erhöht dabei den Verwaltungsaufwand für den Real-Time-Kernel und verlangsamt damit das gesamte System. Im Steuerungsprogramm des HAGAR ist ein Tick 10 ms lang.

Präemptives Multitasking

Obwohl ein mit dem Real-Time-Kernel erstelltes Programm unter DOS arbeitet, bietet es die Vorzüge einer Multitasking-Umgebung. Anders als bei Multitasking-Betriebssystemen wie UNIX, MacOS oder MS-Windows laufen jedoch alle Tasks innerhalb eines Programmes (*.exe-Datei), das vom Betriebssystem die volle Rechenzeit erhält. Alle notwendigen Prozesse müssen also in diesem einen Programm realisiert sein. Dies stellt zwar einen erhöhten Anspruch an die Programmierung ist aber eine sehr kompakte und schnelle Lösung, deren Ansprüche an die Hardware gering sind. So vergrößert der Real-Time-Kernel, der die gesamte Multitasking-Umgebung realisiert, ein C-Programm um weniger als 200 kB.

Tasks laufen nicht wirklich parallel. In einem System kann immer nur ein Task aktiv sein, alle anderen befinden sich in einer Wartestellung. Betriebssysteme wie MS-Windows oder MacOS bieten nur kooperatives Multitasking. Hier muss ein Task explizit Rechenzeit freigeben, so dass andere Tasks laufen können. Hält sich ein Task nicht an die Konventionen, werden alle anderen blockiert. Das präemptive Multitasking im Real-Time-Kernel lässt jeweils den Task mit der höchsten Priorität arbeiten und bringt dazu Tasks mit geringerer Priorität in Wartestellung. Tasks mit niedriger Priorität kommen aber auch hier nur dann zum Zuge, wenn die übrigen Tasks das System nicht vollständig auslasten.

Intertask-Kommunikation

Im Gegensatz zur klassischen, also sequentiellen Programmierung ist innerhalb einer Multitasking-Umgebung die Reihenfolge in verschiedenen Tasks ablaufender Prozesse nicht vollständig deterministisch. In vielen Fällen ist daher eine Synchronisation der Tasks notwendig. Zudem erlaubt das präemptive Multitasking auch das Unterbrechen von nicht beendeten Prozessen, wenn ein Task höherer Priorität aktiv wird. Dies ist besonders dann kritisch, wenn mehrere Tasks auf ein global verfügbares Objekt (Daten, Schnittstellen, Bildschirm etc.) zugreifen wollen. Dies kann nicht nur das Programmergebnis unvorhersehbar beeinflussen, sondern ist bei Hardware-Schnittstellen vor allem ein Risiko für die Systemstabilität.

Der Real-Time-Kernel stellt drei Formen der Intertaskkommunikation zur Verfügung, um diese Probleme zu lösen:

- Message-Passing
- Mailboxen
- Semaphore

„Message-Passing“ stellt die einfachste Form der Intertask-Kommunikation dar. Dabei übergibt ein Task einem definierten anderen Task eine Message, also einen Datensatz. Der Sendertask wird dabei so lange blockiert, bis der Empfängertask zum Empfang bereit ist. Anschließend läuft der Task mit der höheren Priorität weiter. Messages eignen sich sehr gut, um verschiedene Tasks zu quasi-sequentiellen Prozessen zu bewegen.

Mailboxen arbeiten wie Briefkästen für Daten, wobei das FIFO-Prinzip² Verwendung findet. Die maximale Größe der Mailbox kann vorgegeben werden. Der Sendertask muss dabei nichts vom Empfängertask wissen, insbesondere muss kein Task empfangsbereit sein. Der Sendertask läuft nach Ablage der Message in der Mailbox einfach weiter. Der Empfängertask kann die Anzahl der Messages in der Mailbox abfragen oder die Daten entnehmen. Warten mehrere Tasks an einer Mailbox, entnimmt der Task höherer Priorität die Daten.

Semaphore können vereinfacht wie Mailboxen der Länge eins betrachtet werden. Hier sollen vor allem Ressource-Semaphore vorgestellt werden, die ideal zum Schutz globaler Objekte (Daten oder Geräte) eingesetzt werden können. Die Semaphore arbeitet zunächst ähnlich einem Besetzzeichen an einer Tür, Daten werden zwischen Sender- und Empfängertask nicht mehr ausgetauscht. Will ein Task eine Ressource benutzen, so prüft er den Status der Semaphore. Bevor er die Ressource benutzt, setzt er die Semaphore; bei Beendigung wird sie wieder zurückgesetzt. Der Vorteil gegenüber einem beliebigen globalen Flag besteht in der Prioritäten-Vererbung. Wartet nämlich ein Task höherer Priorität an einer Ressource, so erbt der die Ressource besetzende Task diese höhere Priorität. Damit kann verhindert werden, dass ein Task niedriger Priorität einen wichtigeren Prozess durch das Besetzen einer Semaphore länger als unbedingt notwendig aufhält.

Interrupt-Handling

Der Real-Time-Kernel ersetzt den DOS-eigenen Interrupthandler und durch einen neuen mit größerem Funktionsumfang. Neben der Möglichkeit gewissen Ereignissen individuelle Interrupts zuzuordnen, vereinfacht dies vor al-

²FIFO: First In, First Out. Beim FIFO-Prinzip können die Daten nur in der Reihenfolge aus einem Speicher entnommen werden, in der sie gespeichert wurden.

lem den Umgang mit der PC-Peripherie. Für Tastatur, serielle Schnittstellen (COMx) und parallele Schnittstellen (LPTx) existieren bereits einfach einzusetzende, interruptgesteuerte Routinen. Die Schnittstellen werden jeweils durch Mailboxen repräsentiert. Mit Ausnahme der Tastatur gibt es pro Schnittstelle eine Sende- und eine Empfangsmailbox. Ein Task, der auf Tastatureingaben wartet, wartet also an einer Mailbox und behindert das System nicht weiter. Andersherum kann ein Task, der Daten über eine Schnittstelle verschicken will, diese einfach komplett in einen Puffer schreiben. Der Real-Time-Kernel sorgt für einen an Schnittstellengeschwindigkeit und -protokoll angepasstes Versenden der Daten, während das Programm sich wieder anderen Aufgaben widmen kann.

Prozessorlast

Alle vorgestellten Techniken erleichtern die Erstellung eines vielseitigen Steuerprogrammes. Doch ein Real-Time-Kernel erhöht nicht die Rechenleistung eines Rechnersystems. Die interne Verwaltung des Kernel und auch die Taskwechsel selbst benötigen Rechenzeit. Um eine „Echtzeitverarbeitung“ zu gewährleisten, sollte immer genug Rechenzeit zur Verfügung stehen. Im Real-Time-Kernel ist eine Funktion implementiert, die die Auslastung des Prozessors in Prozent zurückliefert. Während der Programmentwicklung ist sie ein gutes Diagnosewerkzeug für nicht multitasking-konforme Programmierung. Aber auch im Betrieb kann sie interessante Informationen liefern. In Abschnitt 3.4.7 wird die Auslastung der Hardware durch das HAGAR-Steuerungsprogramm diskutiert werden.

3.4 Die HAGAR-Steuersoftware

Das Steuerprogramm für HAGAR wurde parallel zu Entwicklung und dem Aufbau der eigentlichen Analytik geschrieben. Um der stetigen Weiterentwicklung folgen zu können, ohne große Teile des Programmes verwerfen zu müssen, wurde ein modulares Konzept entwickelt, das eine einfache Erweiterung des Funktionsumfanges zulässt. Dieses Konzept soll im folgenden Abschnitt 3.4.1 vorgestellt werden. Im Anschluss werden verschiedene Aspekte der Steuersoftware wie die interne Datenstruktur und die einzelnen Gruppen von Tasks betrachtet. In den folgenden Abschnitten 3.4.4 bis 3.4.6 wird dann der eigentliche Programmablauf von drei verschiedenen Seiten her beleuchtet und erläutert. Abschließend wird noch die wichtige Schnittstelle zwischen Benutzer und Programm vorgestellt.

3.4.1 Konzept

Die HAGAR-Steuerungssoftware ist streng modular aufgebaut. Kleine Einheiten haben hier genau begrenzte Aufgaben. Das erleichtert die Wartung, da man zumeist nur in einem begrenzten, überschaubaren Bereich Tests bzw. Änderungen durchführen muss. Gleichzeitig wurde versucht, möglichst rasch eine Entkoppelung der Befehle von ihrem Einfluss auf die Hardware zu erreichen. Nur ein Task/Funktion greift im Allgemeinen auf die entsprechende Hardware zu. Sollte der Ablauf des Programmes im Quellcode geändert werden müssen, sollten hierfür noch keine Kenntnisse über die Treiber zur Hardwareansteuerung notwendig sein.

In einem ersten Schritt werden daher die Befehle zur Ansteuerung von Hardware vollständig von der verwendeten Hardware entkoppelt. Jedem Befehl (z.B. Schalten eines digitalen oder analogen Ausgangs, Auslesen der Daten, . . .) wird eine Befehlsnummer zugeordnet, die innerhalb des Programmes und bei der externen Konfiguration verwendet wird. Diese Befehlsnummer dient als Übergabeparameter für die Funktion, die die Hardware letztlich ansteuert. Befehlsnummern haben den Vorteil, eine hohe Verarbeitungsgeschwindigkeit zu erzielen. Um den Quellcode besser lesbar zu machen, wurden die Nummern über sogenannte Makros durch sinnvolle Namen ersetzt. Makros sind Aliasdarstellungen für Zahlen oder auch Funktionen. Vor dem Compilieren ersetzt der Präprozessor die Makros durch den entsprechenden Code. Diese Technik verbindet eine gute Lesbarkeit des Quellcodes mit einer effektiven Programmierung. Für die Umsetzung des Befehles ist ein Task zuständig, der allein auf die Hardware-Treiber zugreift. Diese mussten zuvor an die Multitasking-Umgebung angepasst werden bzw. vollständig neu entwickelt werden. Sollte in Zukunft einmal andere Hardware zur Steuerung oder Datenerfassung verwendet werden (etwa bei der Temperaturerfassung), so werden nur neue Treiber notwendig, die restliche Steuerungssoftware wird nicht weiter beeinträchtigt.

Mehrere Methoden werden verwendet, um globale Ressourcen zu schützen. Hardwareressourcen werden – mit Ausnahme der ADC3-Karten – von jeweils genau einem Task angesprochen. Dies vereinfacht die Struktur des Programmes und schließt Parallelzugriffe aus. Wo dies unmöglich ist, werden die Ressourcen durch Semaphoren geschützt (vgl. Abschnitt 3.3.2). Auch hier wird darauf geachtet, dass nicht zu viele Tasks um eine Ressource konkurrieren. Für einige globale Daten existiert eine Konvention, dass nur ein Task die Daten schreiben darf, alle anderen nur lesen. So lange die gelesenen Daten keine kritische Rolle für die Systemstabilität spielen, ist dies ein adäquates, einfach umzusetzendes Mittel.

Namen von einzelnen Sensoren, sowie deren individuelle Kalibrations-

funktionen sind, soweit möglich und sinnvoll, nicht fest im Quellcode verankert. Dies betrifft vor allem die Konfiguration der Messkarten, z.B. der Messbereiche. Innerhalb eines Konfigurationseditors (`helga.exe`) können eine Vielzahl von Parametern verändert werden, die das Programm an die aktuelle Konfiguration anpassen. Die Konfiguration wird in vier Dateien gespeichert, die das Steuerprogramm nach dem Start einliest.

3.4.2 Datenstrukturen

Datenstrukturen (C-Befehl `structs`) ermöglichen es unter einem Variablennamen eine ganze Reihe auch heterogener Daten zusammenzufassen. Die einzelnen Teile der Struktur sind dabei „normale“ Variablen wie z. B. `integer` oder `float`. In der HAGAR-Software kommen über 10 verschiedene Strukturen zum Einsatz.

Vier Strukturen werden zur Speicherung der Konfiguration durch den Editor verwendet. Sie enthalten Sensornamen, Angaben über Messbereiche, Kalibrationen und Adressen der Karten. Des Weiteren sind der Ablauf eines Chromatogramms und des Fluges, sowie Grenzwerte gespeichert, bei denen der Betriebszustand des Gerätes während des Flugs verändert wird (z. B. Außendruck). Zuletzt sind noch Kriterien für ein Notabschalten des Instrumentes enthalten, sowie eine Beschreibung der Abschaltsequenz.

Für die Speicherung der Messdaten stehen eine Reihe verschiedener Strukturen zur Verfügung: Zwei für den gesamten Satz von Prozessdaten als Datenwörter bzw. physikalische Daten, eine für Chromatographie- und LICOR-Daten, zwei für die UCSE-Daten und eine für die Zeit (insbesondere den Zeitpunkt des Chromatogrammstarts). Zuletzt steht noch eine Struktur zur Verfügung, die neben der Zeit auch den aktuellen Systemzustand speichert. Diese wird bei jeder Änderung automatisch auf der Flashdisk gespeichert, um so nach einem Totalausfall noch ein Minimum an Diagnosemöglichkeit zu haben.

Vorteil der Strukturen ist das einfache Lesen und Schreiben der HAGAR-Konfigurations- und Datendateien. Um möglichst wenig Speicherplatz zu verbrauchen, sind diese durchweg binär gehalten. Pro Zyklus werden maximal vier Dateien geschrieben, jeweils eine für die Zeit, die Prozessdaten, die Detektorsignale und – sofern gewünscht – die UCSE-Daten. Erst nach dem Flug werden diese Daten zu drei großen Text-Dateien (ASCII-Format) zusammengefasst.

Die Konfigurationsdateien können nur mit einem angepassten Programm editiert werden. Dieses Konzept hat gegenüber reinen ASCII-Konfigurationsdateien zwei Vorteile. Zum einen ist die Verarbeitung einer binären Konfiguration viel einfacher und effizienter. Zum anderen überprüft

der Konfigurationseditor die meisten Angaben auf Konsistenz mit dem System. Dies kann die Wahrscheinlichkeit für Fehleingaben durch den Benutzer, die zu Datenverlust während eines Fluges führen könnten, enorm verringern.

3.4.3 Tasks

Im HAGAR-Steuerprogramm arbeiten abhängig von Konfiguration und Betriebsmodus bis zu zwölf verschiedene Tasks. Alle Tasks arbeiten dabei als zyklische Tasks. Im Quellcode wird ein Task durch eine Funktion ohne Übergabeparameter dargestellt. Kernstück eines zyklischen Tasks ist dann eine `while`-Schleife, die im Allgemeinen auch keine externe Abbruchbedingung hat (`while(1)`). Vor der Schleife kann noch eine Startphase, etwa zur Initialisierung des Tasks, stehen.

Wie oben bereits angedeutet, ist der größte Teil der im HAGAR eingesetzten Tasks jeweils für eine Hardwareressource zuständig: Valco-Ventile an COM2, ADC2- und ADC4-Karten und ADC3-Karten. Diese Tasks befinden sich im Wartezustand, bis sie über Message-Passing Befehle erhalten, die sie dann – entsprechend ihrer individuellen Priorität – ausführen, bevor sie an den Anfang des Zyklus und damit in die Warteposition zurückkehren.

Eine weitere Klasse von Tasks sind jene, die in einem festen Zeittakt ablaufen: Auslesen der Uhrzeit, Auslesen der Prozessorlast, Auslesen der Prozessdaten, Online-Anzeige der Chromatogramme, Telemetrie. Einige Tasks sind während ihrer Wartezeit bereit, Messages zu empfangen. So können sie etwa zwischen zwei Chromatogrammen synchronisiert oder reinitialisiert werden.

Der Takt der Task zum Empfang der UCSE-Daten wird von den vom Bordrechner der Geophysica gelieferten Daten bestimmt. Dieser Task liest diese Daten autonom ein und legt sie in einem Zwischenspeicher ab. Lediglich zwischen den Chromatogrammen wird der Task kurz angehalten.

Eine besondere Rolle kommt dem Task zum Auslesen der Tastatur zu. Sobald ein Tastaturkommando anliegt, wird es in einen oder mehrere interne Befehle übersetzt. Diese werden dann an die entsprechenden Tasks zur Ausführung weitergegeben. Tatsächlich ist dieser Task, der gleichzeitig der Main-Task – entsprechend dem klassischen Hauptprogramm – ist, der einzige der eine Abbruchbedingung hat. Durch ein Tastaturkommando verlässt man die Schleife und leitet damit das Programmende ein.

Der zentrale Task für den Ablauf des Programmes (s. unten) ist der sogenannte Steuertask, der die höchste Priorität aller Tasks hat. Die Zykluslänge dieses Tasks ist durch die Länge des Chromatogramms vorgegeben. Der Steuertask ist die Schaltstelle für den Programmablauf auf den im folgenden Abschnitt gesondert eingegangen wird.

3.4.4 Programmablauf

Grundsätzlich lässt sich der Programmablauf der HAGAR-Steuersoftware in drei Phasen gliedern. In der Startphase werden verschiedene Programmteile und die angeschlossene Hardware initialisiert. Dabei wird zunächst das System des Real-Time-Kernel konfiguriert. Anschließend werden etwaige Kommandozeilenparameter ausgewertet und die Konfigurationsdateien eingelesen. Zuletzt werden die Einschubkarten konfiguriert und initialisiert. Der Erfolg aller Maßnahmen wird am Bildschirm in einem Fenster mitprotokolliert. Sind einzelne Karten nicht funktionstüchtig, werden sie als ungültig erklärt und im weiteren Ablauf des Programmes ignoriert. Da im Falle eines automatischen Betriebes niemand dieses Protokoll verfolgen kann, ist so zumindest gewährleistet, dass das Programm weitestgehend fehlerfrei läuft. Ob trotz einer defekten Karte das Instrument zumindest noch teilweise verwertbare Daten liefert, kann hiermit natürlich nicht gewährleistet werden.

Nach der Initialisierung arbeitet das Programm in Zyklen, deren Länge durch die Länge des Chromatographiezyklus bestimmt ist. Geregelt wird dies durch den bereits erwähnten Steuertask. Zu Beginn eines jeden Zyklus, vor dem eigentlichen Chromatogramm, werden eine Reihe von Prozessdaten überprüft. Bei für das Instrument gefährlichen Werten werden geeignete Maßnahmen ergriffen. Die größte Gefahr besteht in der Überhitzung bzw. einer Unterbrechung der Gasversorgung der Detektoren. Im ersten Fall kann die ^{63}Ni -Folie im ECD schmelzen, während sie im zweiten Fall durch von außen eindiffundierenden Sauerstoff oxidieren. Neben einem teuren Totalschaden des Detektors bedeutet dies auch unnötige – wenn auch ungefährliche – Freisetzung von Radioaktivität. Überhitzt der Detektor oder die Säule eines Kanals, so wird die Heizung abgeschaltet. Das Instrument läuft weiter und man kann weiter auf dem anderen Kanal wissenschaftliche Daten gewinnen. Unterschreiten jedoch der Trägergasdruck im Instrument und der Gasflasche ihre kritischen Marke, so wird HAGAR abgeschaltet. Das Programm läuft weiter, führt aber keine weiteren Aktionen durch.

Nach der Sicherheitsüberprüfung werden die drei Karten zur Messsignalerfassung synchronisiert und gestartet. Auch die Aufzeichnung von Prozess- und UCSE-Daten wird initiiert. Des Weiteren wird die Startzeit des Chromatogramms abgespeichert.

Während des Zyklus läuft eine im Editor zuvor festgelegte Abfolge von Befehlen ab, die eigentliche Chromatographiesequenz. Durch die Wahl der höchsten Priorität für diesen Task ist diese Abfolge während des gesamten Fluges konstant. Lediglich der Befehl für das Mehrpositionsventil ist abhängig von der laufenden Nummer des Zyklus. Hiermit wird das Messprogramm für den Flug festgelegt (wieviele Luftproben, Messungen von Referenz- und

Spangas zur Kalibration).

Am Ende des Zyklus wird die Aufzeichnung der Daten kurz unterbrochen. Während dieser Unterbrechung werden die Daten aus dem Arbeitsspeicher und den auf den Messkarten befindlichen Puffern in vier Dateien auf der Flashdisk geschrieben.

In der Abschaltphase wird das Instrument (Ventile, Heizungen, etc.) in einen definierten Zustand gebracht. Anschließend werden alle Karten angehalten und schließlich alle Tasks und damit auch das Programm selbst terminiert.

3.4.5 Betriebsmodi

Die HAGAR-Steuersoftware kennt drei Betriebsmodi, die weitgehend unabhängig von weiteren Zusatzoptionen wie UCSE-Empfang oder Telemetrie sind:

- Standby-Modus
- Shutdown-Modus
- Standardmodus

Jeder dieser Betriebsmodi wird durch eine im Editor konfigurierbare Befehlssequenz eingeleitet. Zu Beginn eines jeden Zyklus wird überprüft, ob sich der Betriebsmodus, der durch binäre Flags repräsentiert wird, geändert hat. Daraufhin wird die entsprechende Sequenz aufgerufen. Dabei ist der Standardmodus der, in dem die Messungen durchgeführt werden, HAGAR also die Chromatogrammzyklen durchläuft.

Um Trägergas und Speicherplatz zu sparen ist vor allem während der Aufheizphase der Detektoren oder bei Messpausen im Labor der Standby-Modus aktiv. Säulen und Detektoren werden mit geringen Flüssen gespült, das Instrument verharrt in einem konstanten Zustand. Die Speicherung der Detektorsignale ist hier ausgesetzt, lediglich die Prozessdaten werden noch gespeichert.

Beim Übergang in den Shutdown-Modus wird HAGAR soweit als möglich abgeschaltet. Alle Heizungen sind aus, alle Ventile werden geschlossen bzw. in definierte Positionen gefahren. Die ECDs werden nur noch über „Outer-Cell-Flushing“ und „Make-Up“ gespült. So ist auch bei einer nur sehr geringen Restmenge an Trägergas ein Spülen bis zur Abkühlung gewährleistet. Die Datenspeicherung ist vollständig ausgesetzt. Der Shutdown-Modus wird im Notfall und am Ende von Flügen (insbesondere Transferflügen) eingeleitet. Anders als beim Standby-Modus ist ein Erwachen aus diesem Modus grundsätzlich nur durch einen Neustart möglich.

3.4.6 Flugablauf

Da an Bord der Geophysica keinerlei Benutzereingriff möglich ist, muss das HAGAR-Programm vollautomatisch die verschiedenen Phasen des Fluges erkennen und entsprechend reagieren. Dabei existieren zwei unterschiedliche Abläufe für einfache Flüge (normaler Flug während Messkampagnen) und für mehrfache Flüge ohne Servicemöglichkeit (in der Regel Transferflüge), bei denen besonders auf einen geringen Gasverbrauch geachtet werden muss:

1. *Aufwärmphase:* (nur Transferflüge) Das Instrument läuft im Standby-Modus um die Detektoren aufzuheizen. Beendet wird diese Phase entweder nach einer definierten Zeit oder durch den Start der Geophysica, der über einen sinkenden Aussendruck detektiert wird.
2. *Vorbereitungs- oder Kalibrationsphase:* HAGAR geht in den Standard-Modus über. Die Chromatographiezyklen laufen, es werden jedoch nur Kalibriergase injiziert – gemäß einer im Editor eingestellten Reihenfolge.
3. *Messphase:* Ab einer bestimmten Flughöhe, die durch den Außendruck vorgegeben ist, werden die Pumpen aktiviert und gemäß der im Flugplan definierten Reihenfolge Außenluft- und Kalibrationsmessungen durchgeführt. Die Flughöhe für den Beginn der Messungen sollte dabei so gewählt sein, dass die Wahrscheinlichkeit, feuchte troposphärische Luft zu injizieren, gering ist (in der Regel 500 hPa). Zum anderen muss der Kesseldruck bereits dem konstanten Arbeitsdruck (zumeist 800 hPa) entsprechen, was ebenfalls bei einem Außendruck von etwa 500 hPa erreicht ist.
4. *abschliessende Kalibration:* Überschreitet der Außendruck wieder einen eingestellten Wert (in der Regel wiederum 500 hPa), so werden die Pumpen ausgeschaltet und noch drei Kalibrationsmessungen durchgeführt.
5. *Schlussphase:* HAGAR geht in den Shutdown-Modus über.

Werden mehrere Flüge hintereinander durchgeführt (Transferflüge), so werden beim nächsten Einschalten des Gerätes die Daten des letzten Flugs komprimiert, alle internen Zähler zurückgesetzt und eine neue Etappe eingeleitet.

3.4.7 Benutzerschnittstelle

Für Labor- und Flugbetrieb bietet das Steuerprogramm zwei verschiedene Benutzerschnittstellen, die über Kommandozeilenparameter vom Programm angefordert werden können. Im Flugbetrieb genießen Stabilität und zeitliche Reproduzierbarkeit maximale Priorität. Neben dem Initialisierungsprotokoll werden lediglich Uhrzeit, Zeitpunkt innerhalb des Chromatogramms und Prozessorlast in Form eines Textbildschirms angezeigt; da im Flugzeug kein Monitor angeschlossen ist, ist das mehr als ausreichend. Die Auslastung des Systems liegt – außer bei der Datenspeicherung zwischen den Zyklen – immer unterhalb von 10 %. Der Benutzer hat hier keine Einflussmöglichkeiten auf den Programmablauf, das Programm kann per Tastatur nur beendet werden.

Für den Laborbetrieb wurde eine graphische Benutzerschnittstelle entwickelt. Dabei stehen drei Bildschirme zur Auswahl. Auf allen wird die Uhrzeit, einige Statusmeldungen sowie die aktuellen Signale der Detektoren und des LI-COR angezeigt. Auf Schirm #3 werden sämtliche Prozessdaten tabellarisch aufgelistet. Die Daten werden in physikalisch sinnvollen Einheiten hinter dem Namen des jeweiligen Sensors mit einer Frequenz von 1 Hz aktualisiert.

Auf Schirm #1 und #2 werden die Chromatogramme des jeweiligen Kanals dargestellt. Dabei kann die Entwicklung direkt mit dem vorangegangenen Chromatogramm verglichen werden. Zusätzlich sind die für den Kanal relevanten Prozessdaten aufgeführt. Die Echtzeitdarstellung insbesondere der Chromatogramme ($f \approx 5 - 10$ Hz) erfordert sehr viele zusätzliche Taskwechsel, so dass die Prozessorlast auf über 80 % ansteigt. Die Wahl der Taskprioritäten sorgt dafür, dass die Chromatographiezyklen weiterhin zeitlich konstant ablaufen. Die wichtigen Prozesse werden also nicht behindert. Die Aufzeichnung der Prozessdaten aber, die sekundlich stattfinden sollte, verlangsamt sich bereits um etwa 20 %.

Im Laborbetrieb kann der Benutzer über Tastaturbefehle das Instrument beeinflussen. Dabei sind neben dem Wechseln zwischen Standby und Graphikmodus, vor allem ein Schalten aller vom Rechner angesteuerten Bauteile möglich. So können Veränderungen an der Chromatographie manuell eingegeben und das Ergebnis am Monitor sofort überprüft werden, bevor es in die automatische Chromatographiesequenz übernommen wird. Die Liste der Tastaturbefehle ist im Anhang in Abschnitt F.3 gegeben.

3.5 Weitere Programme

Neben der eigentlichen Steuerungssoftware (`hagar020.exe`) existieren noch eine Reihe von Werkzeugen, die hier kurz erwähnt werden sollen. Sie sind mit Ausnahme der Netzwerkanbindung vollständig selbst entwickelt und erleichtern die tägliche Arbeit mit HAGAR:

- Auf den Konfigurationseditor (`helga.exe`) wurde bereits mehrfach hingewiesen. Er ist menügesteuert über Buchstaben und erzeugt neben den Arbeitskonfigurationsdateien auch noch Sicherheitskopien.
- Während der Transferflüge muss in der `autoexec.bat` vor dem Messprogramm `tfpacker.exe` eingebunden sein. Es komprimiert die Daten der vorangegangenen Etappe und setzt alle internen Zähler auf die Startposition zurück.
- Mittels `packdata.bat` bzw. `movedata.bat` können die Daten nach dem Flug komprimiert werden, um sie leichter herunterladen zu können. Anschließend können sie dann mit `unpack.bat` zur Weiterverarbeitung wieder dekomprimiert werden. Diese Batch-Dateien benutzen ebenso wie `tfpacker.exe` die unter der freien GNU-Lizenz erhältlichen DOS-Programme `pkzip.exe` bzw. `pkunzip.exe`.
- Während des Fluges werden $n = (4 \cdot \text{Anzahl Chromatogramme})$ binäre Dateien aufgezeichnet. `sven020.exe` wandelt sie in drei Textdateien (ASCII-Format) für Prozess- und UCSE-Daten (`JJJJMMTT.eng`), Chromatogramme (`JJJJMMTT.itx`) und CO₂-Daten (`JJJJMMTT.co2`) um.
- Im Rahmen des LITES-Projektes wurde auch ein neues leichtes Telemetriesystem getestet. Zum Empfang wurde ein Funkempfänger, ein Modem und ein PC mit serieller Schnittstelle verwendet. Die Empfängersoftware hat dabei dieselben graphischen Fähigkeiten wie das Steuerprogramm. Auch hier werden die Mess- und Prozessdaten mit einer geringen Zeitverzögerung während des Fluges graphisch angezeigt.
- Beim Einsatz auf der Geophysica wird HAGAR nicht mehr nach jedem Flug ausgebaut und geöffnet. Daher wurde eine Netzwerkkarte implementiert. Mittels eines FTP-Clients können die Daten vom Steuerrechner auf einen beliebigen erreichbaren FTP-Server transferiert werden.

Die zweite Anwendung besteht in der Fernsteuerung des HAGAR über ein Netzwerk. Das Programm Carbon Copy 6.0 erlaubt den Export von Monitor und Tastatur von einem zum anderen DOS-Rechner, sofern

beide das Netzwerkprotokoll IPX/SPX unterstützen. Gibt es im Hangar einen Netzwerkanschluss, so kann auch vom Büro aus der Zustand des Instrumentes überprüft werden. Dies ist ein großer Vorteil während Messkampagnen, wo Arbeiten wie Datenprozessierung im Büro durchgeführt werden, während HAGAR im Flugzeug im unklimatisierten bzw. unbeheizten Hangar verbleibt.

Kapitel 4

Datenauswertung

Die Auswertung der HAGAR-Daten teilt sich in drei Bereiche auf: Prozessdaten, Chromatographiedaten und CO₂-Daten. Wie in Kapitel 3.5 beschrieben, werden dafür die ursprünglich binär gespeicherten Daten in drei ASCII-Files umgewandelt, die von Igor Pro eingelesen werden können. Für jedes wurde ein Makropaket unter Igor Pro entwickelt, das zur Weiterverarbeitung der Daten dient. Eine Datei mit Daten und dazugehörigen Makros wird unter Igor als Experiment bezeichnet, so dass also zu jedem Flug drei Experimente angelegt werden. Die Prozessdaten werden visualisiert, um die Abläufe im Instrument während des Fluges schnell anschließend überprüfen zu können (s. Abschnitt 4.1). Für die Chromatographiedaten steht die Makrobibliothek NOAH-Chrom zur Verfügung, die bei der National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) in Boulder entwickelt wurde, um die Daten verschiedenster flugzeug- und bodengestützter Gaschromatographen auszuwerten. Das Paket wird in Abschnitt 4.2 kurz vorgestellt, wobei der Schwerpunkt auf die individuelle Anpassung an die Bedürfnisse von HAGAR gelegt wird. Die Auswertung der CO₂-Daten wird in Abschnitt 4.3 vorgestellt.

4.1 Prozessdaten

Die Prozessdaten umfassen etwa die Hälfte aller in HAGAR anfallenden Daten. Insgesamt werden mit einer Frequenz von 1 Hz maximal 32 analoge Sensoren, 16 Temperatursensoren und der Status von 16 digitalen und 8 analogen Ausgängen aufgezeichnet. Auch der Status der Mehrpositionsventile wird mitprotokolliert. Um den Flugverlauf besser nachvollziehen zu können, werden auch die Detektorsignale mit einer reduzierten Frequenz aufgezeichnet und gemeinsam mit den Prozessdaten abgespeichert. Die Daten werden mit ca. 15 verschiedenen Graphen in sinnvollen Gruppen visualisiert. So existie-

ren Graphen mit Zeitreihen u.a. für

- Betriebsspannungen
- verschiedene Gerätetemperaturen (Luft, Kessel, Prozessor, etc.)
- Detektor- und Säulentemperaturen für beide Kanäle
- Trägergasflüsse der beiden Kanäle
- Pumpen- und Probengasfluss
- Flüsse und Temperaturen im LI-COR
- Hoch- und Niederdrücke der drei Gasflaschen
- Stellung der Valco-Ventile
- Detektorsignale
- Avionikdaten, z.B. Flughöhe, Position

Mit Makros ist es auch möglich, den aus den gemessenen Flüssen bestimmten Gasverbrauch mit dem aus dem Flaschendruck bestimmten zu vergleichen, um so etwaige Lecks im System aufzudecken.

4.2 Chromatographie

Auf den drei Flugzeug-Messkampagnen 1998 und 1999 zeichnete HAGAR ca. 11.000 verwertbare Chromatogramme mit ca. 22.000 Peaks auf. Die großen Datenmengen, sowie die Tatsache, dass die Daten aus einem vollautomatischen Messprozess unter widrigen Bedingungen stammen, machen neben der reinen Auswertung auch umfangreiche Diagnosewerkzeuge notwendig. Nur so können Störungen und instrumentelle Driften identifiziert und gegebenenfalls eliminiert werden. Auch ein individuelles Anpassen des Auswerteprozesses ist notwendig. Dieser sollte transparent, d. h. rechnerisch nachvollziehbar sein und in einem Paket von den Rohdaten zu endgültigen Mischungsverhältnissen führen.

Dies kann angesichts solcher – zum Teil sicher sehr individueller – Wünsche eine kommerzielle Software nicht leisten. Daher wurde das bei NOAA/CMDL entwickelte Makropaket NOAH-Chrom eingesetzt, dessen grundsätzliche Struktur und sein aktueller Leistungsumfang im folgenden Abschnitt 4.2.1 kurz vorgestellt werden. Die folgenden Abschnitte widmen sich dann speziellen Problemen wie der Integration von Peaks (Abschnitt

4.2.2), der Korrektur von Detektor-Nicht-Linearitäten (4.2.3) und der Präzision der Messungen (4.2.4).

4.2.1 Das NOAH-Chrom-Paket

Die oben angeführten Überlegungen führten innerhalb der Halocarbon-Gruppe bei NOAA/CMDL zu dem Entschluss, ein eigenes Software-Paket zu entwickeln. Als Basis wurde das damals nur für Macintosh Computer zur Verfügung stehende Datenauswertungs- und Visualisierungsprogramm Igor Pro von der Firma WaveMetrics gewählt. Der Vorteil eines auf einer Makrosprache aufgebauten Systems ist es, dass individuelle Anpassungen schnell und verhältnismäßig einfach durchgeführt werden können. Dadurch dass die Datenstruktur jedoch offen zugänglich ist, ist es schwierig einem „Wildwuchs“ der Software durch zu viele individuelle Anpassungen Einhalt zu gebieten. Einige Programmierkonventionen sowie die Konstanz der zugrundegelegten Datenbank sollen dies verhindern.

Seit einigen Jahren steht nun Igor auch für PCs unter Windows 9x zur Verfügung. Da NOAH-Chrom neben Makros auch noch compilierten Code (sog. External Operations „ExOps“) einsetzte, war das Paket nicht direkt auf PCs lauffähig. Gleichzeitig war aber der Grund für die Existenz der ExOps durch einen erweiterten Funktionsumfang der neuen Version 3.1 von Igor Pro weggefallen. Das HAGAR-Team entschloss sich daher, NOAH-Chrom an die PC-Version von Igor anzupassen. Mit dieser Umstellung ging eine umfangreiche Renovierung und Straffung des Quellcodes einher. Entstandene logische Brüche wurden behoben, überflüssige bzw. sehr spezielle Funktionen wurden ausgeklammert. Hinzu kamen einige kleinere Werkzeuge zur Pflege der Datenstruktur, sowie individuelle Optionen für HAGAR. Das Paket wurde aber auch so angepasst, dass sowohl Daten der Labor-Gaschromatographen SI-1, SI-1-4, SI-3 und RGA-3 als auch die des sich im Aufbau befindlichen GhOST II damit ausgewertet werden können. Für jeden Chromatographen wurde das Makropaket mit einer individuell angepassten Laderoutine und der entsprechenden Datenbank in einem sogenannten „Stationary“ gespeichert, das als Ausgangspunkt für die Auswertung eines Rohdatensatzes benutzt wird.

Es würde zu weit führen, den vollständigen Funktionsumfang von NOAH-Chrom zu erläutern und darzustellen. Die folgende Aufzählung soll den typischen Gang der Auswertung eines Fluges zusammenfassend darstellen. Die Benutzerführung ist dabei mit einer Reihe von interaktiven Fenstern gelöst, die ein komfortables und effizientes Arbeiten ermöglichen.

- Einlesen der Rohdaten und Erstellen einer Sicherungskopie der Chro-

matogramme eines Fluges.

- Glätten der Chromatogramme mit Mittelwertfilter bzw. Savitzky-Golay-Filter (s. Anhang D.3)
- Halbautomatisches Suchen der Basislinie, bzw. des Start- und Endpunktes jedes Peaks; Integration bzw. Bestimmung der Peakhöhe. Alternativ kann eine Gauß-Funktion an die Peaks angefitet werden (s. Anhang E).
- Erstellen eines Sets von sechs Diagnoseplots für jede Substanz (s. Abbildung 4.2 auf Seite 70). Dies ermöglicht Schwierigkeiten bei den Messungen oder auch der Auswertung aufzudecken. Zweifelhafte Datenpunkte können ausgeklammert werden.
- Optional können die Zeitreihen der Kalibrationsmessungen nachbearbeitet, d. h. geglättet werden. Dies ist sinnvoll, da ja Kalibrationen zunächst als Einzelmessung auch statistischen Fehlern unterliegen. Gleichzeitig muss jedoch verhindert werden, dass ein reales Driften im Instrument herausgeglättet wird. Die in dieser Arbeit vorgestellten Daten sind noch ohne diese Nachbearbeitung ausgewertet.
- Berechnung der Mischungsverhältnisse. Hier kann eine spezielle Detektorkennlinie verwendet werden, die aus Labormessungen gewonnen werden kann (s. Abschnitt 4.2.3).
- Überprüfen der Messungen mittels der Messungen mit dem zweiten Kalibrationsgas („Spangas“). Bestimmung der Präzision während des Fluges.
- Speicherung der Daten im gängigen Format NASA-AMES-1001.

4.2.2 Integration der Peaks

Das zeitabhängige Detektorsignal eines Chromatographen – das Chromatogramm – weist typische lokale Maxima zu bestimmten Retentionzeiten auf, die einzelnen Substanzen zugeordnet werden können (vgl. Abbildung 2.7). Die Bereiche um diese Maxima werden im folgenden als Peaks bezeichnet. Die Basislinie eines Peaks entspricht dem Detektorsignal, das man erhalten würde, wenn Luft injiziert würde, die frei von der betreffenden Substanz ist. Die Fläche des Peaks zwischen Chromatogramm und Basislinie steht nun in einem funktionalen Zusammenhang zur Anzahl der Moleküle in der Luftprobe; diese Fläche ist die eigentliche Größe, die es bei der Chromatographieauswertung zu bestimmen gilt.

In der Realität wird die Basislinie zumeist durch eine lineare Interpolation zwischen zwei Punkten bestimmt, die weit genug vor bzw. hinter dem Peak liegen und noch nicht von anderen Effekten (weitere Peaks oder Druckstöße) beeinflusst sind. Zur automatischen Bestimmung der Peakränder werden zumeist Verfahren eingesetzt, die die Steigung der Kurve betrachten. Ist sie ausreichend flach, befindet man sich abseits vom Peak. Dies funktioniert für viele Laborchromatographen sehr zuverlässig, da sie eine sehr glatte Basislinie und eine gute Trennung der Peaks aufweisen. Die in Abschnitt 2.2.3 beschriebene Beschleunigung der HAGAR-Chromatographie hat aber zur Folge, dass die Basislinie zum Teil sehr stark innerhalb eines Zyklus variiert. Daher wird für die HAGAR-Daten eine Methode benutzt, die die Basislinie durch Anlegen einer Tangente an das Chromatogramm bestimmt; sie ist bei *Volk* [1996] ausführlich beschrieben.

Die automatisch gewonnenen Ergebnisse müssen hier noch einmal visuell kontrolliert werden.

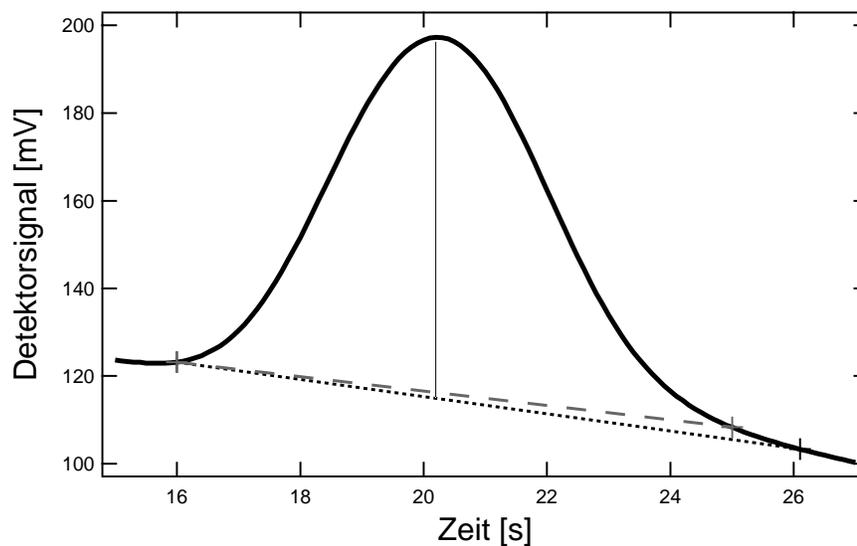


Abbildung 4.1: Einfluss von Fehlern bei der Bestimmung der Basislinie auf die Präzision. Der Unterschied aus den beiden möglichen Basislinien – der in diesem konkreten Beispiel durchaus systematisch sein kann – beträgt in der Peakfläche 4,1 %, während er in der Peakhöhe nur 1,6 % beträgt.

Chromatographen wie HAGAR, deren Probenschleifen im Durchfluss betrieben werden, weisen einen konstanten Injektionsdruck auf. Die Halbwertsbreite¹ eines Peaks ist hier weitgehend konstant. Peakhöhe und -fläche liefern

¹Als Halbwertsbreite eines Peaks wird der Abstand (in Sekunden) der beiden Punkte

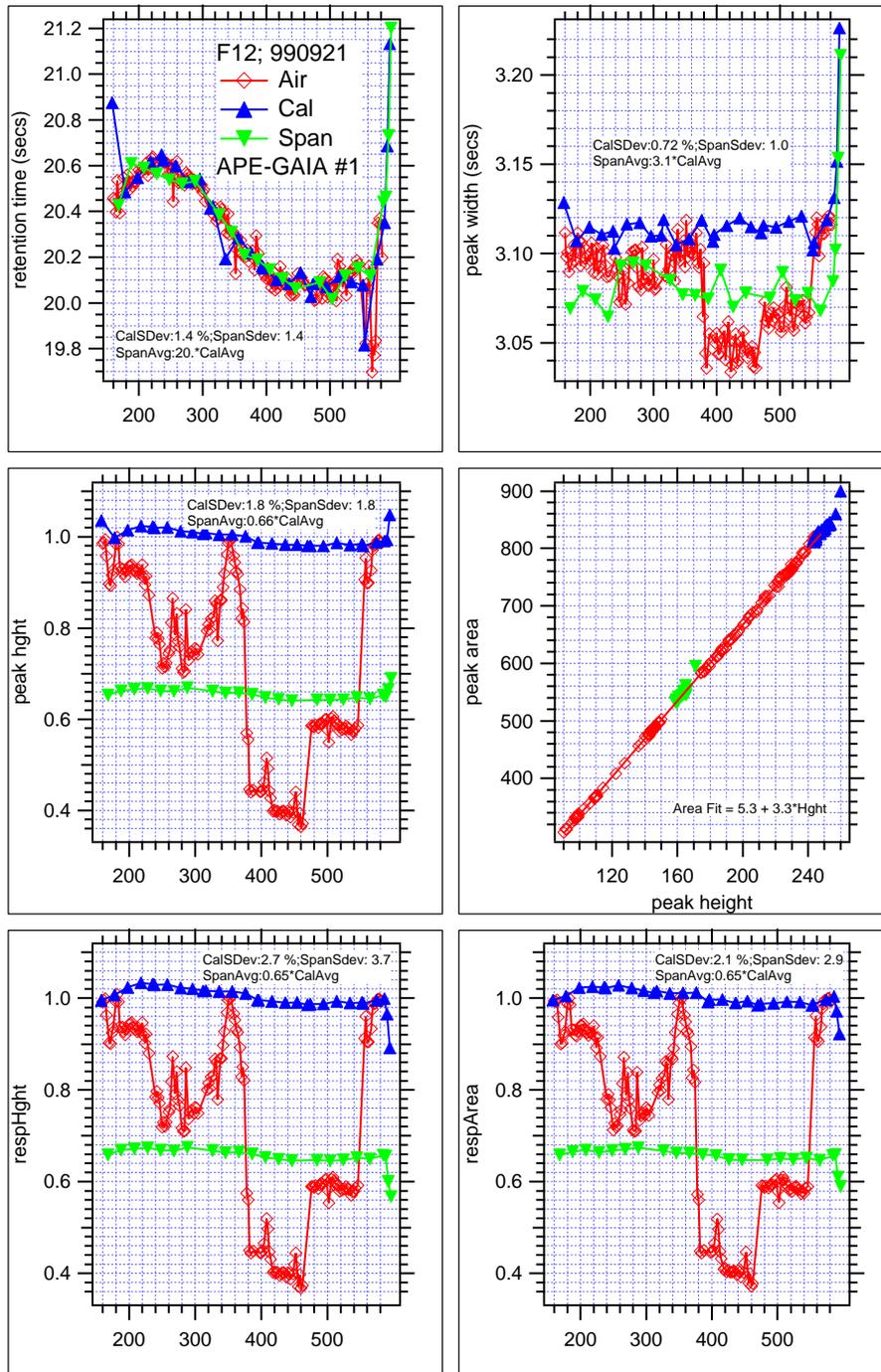


Abbildung 4.2: Peak-Diagnose-Plots in NOAH-Chrom für F12 vom 21.9.1999. Auf der x-Achse ist jeweils die laufende Chromatogrammmnummer angegeben.

dann die identische Information (s. Abbildung 4.2 Graph Mitte rechts). Dies wird in Anhang E noch fundierter begründet werden. Aufgrund der Geometrie ist die Peakfläche aber deutlich sensitiver für Fehler bei der Bestimmung der Basislinie (s. Abbildung 4.1). Dies erklärt zumindest teilweise die Beobachtung, dass eine Auswertung von Chromatogrammen, die die Höhe als relevanten Parameter einsetzt, eine bessere Präzision liefert als eine Auswertung unter Verwendung der Fläche (s. Abbildung 4.2, Graphen in der unteren Reihe).

Bei Chromatographen, deren Probenschleife zunächst evakuiert und anschließend befüllt wird, können verschiedene Injektionsdrücke aufgegeben werden. Unter diesen Voraussetzungen gilt der beschriebene Zusammenhang nicht mehr streng. Insbesondere bei kurzen Säulen kann eine Abhängigkeit der Peakbreite vom Injektionsdruck beobachtet werden [T. Möbius, persönliche Mitteilung], die die Äquivalenz von Peakhöhe und -breite auflöst. Für sehr lange Säulen und verhältnismäßig geringe Druckdifferenzen ist der Effekt jedoch im Allgemeinen zu vernachlässigen und eine Auswertung unter Verwendung der Höhe dennoch sinnvoll.

4.2.3 Bestimmung der Nicht-Linearität

Der Zusammenhang zwischen Peakfläche² und dem Mischungsverhältnis ist im Allgemeinen nicht linear. In diesem Abschnitt soll zunächst erläutert werden, wie diese Nicht-Linearität im Labor bestimmt werden kann. In einem zweiten Schritt wird dargestellt, wie mittels dieser Kennlinien Mischungsverhältnisse aus den während des Fluges gewonnenen Daten berechnet werden können.

Wichtigstes Hilfsmittel zur analytischen Bestimmung der Nicht-Linearitäten der Detektoren ist eine Reihe von Gasen mit bekanntem Mischungsverhältnis bzw. bekanntem Verdünnungsfaktor f . Dafür steht in der Arbeitsgruppe eine Verdünnungsreihe von fünf Flaschen mit bekannten Verdünnungsfaktoren zur Verfügung (Details hierzu s. Abschnitt 4.4).

Gaschromatographie ist kein absolutes Messverfahren. Mischungsverhältnisse können nur über den Vergleich mit Messungen von Kalibriergasen bestimmt werden. Für die Bestimmung der Nicht-Linearität wird regelmässig Luft der Ausgangsflasche (Verdünnungsfaktor $f = 1$, Flasche '0' bzw. 100 %-Flasche) gemessen. Dazwischen werden Luftproben aus den verdünnten Fla-

bezeichnet, die die halbe Höhe des Maximums gegenüber der Basislinie aufweisen.

²Zur Vereinfachung wird im Folgenden bei der Auswertung immer von der Peakfläche die Rede sein, obwohl die aufgezeigte Methodik auch auf die Peakhöhe bzw. die Fitparameter aus der im Anhang E vorgestellten neuen Auswertungsmethode mit Gauß-Funktionen angewandt werden kann.

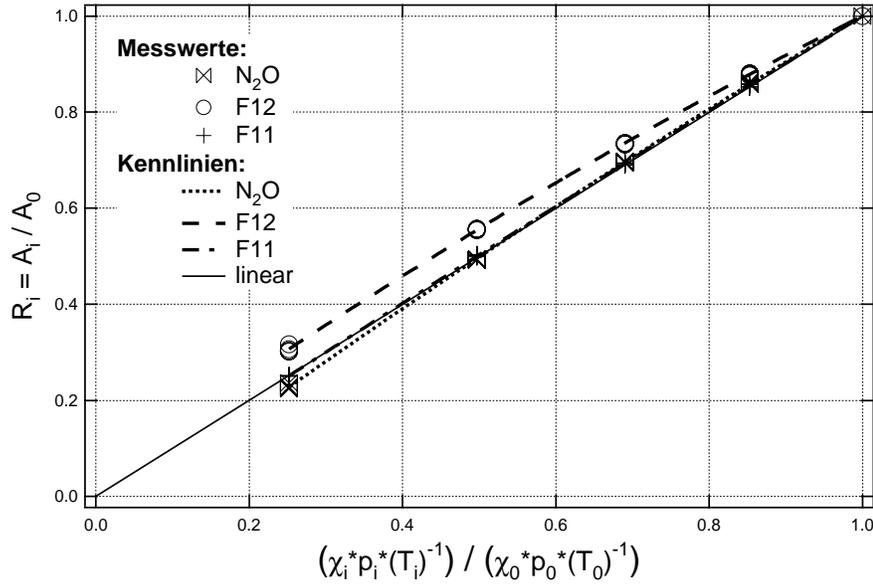


Abbildung 4.3: Bestimmung der Detektorkennlinie für die Peakhöhe von N_2O , F12 und F11 (Messungen vom 30.8.1999). Während die Detektorkennlinie für F11 nahezu linear ist, weist sie für N_2O und F12 signifikante und unterschiedliche Nicht-Linearitäten auf.

schen injiziert (Flaschen $i = 1 \dots 4$). Nun werden die Verhältnisse der Flächen ($R_i = A_i/A_0$) gegen das Verhältnis der injizierten Stoffmengen n aufgetragen:

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{\chi_i}{\chi_0} \cdot \frac{p_i}{p_0} \cdot \frac{T_0}{T_i} \equiv \frac{\tilde{\chi}_i}{\tilde{\chi}_0} \quad (4.1)$$

Dabei geben χ die Mischungsverhältnisse der Flaschen und p , T die jeweiligen Injektionsdrücke und -temperaturen an. $\tilde{\chi}$ stellt also ein um die Injektionsbedingungen erweitertes Mischungsverhältnis dar. Bei konstanten Injektionsbedingungen, ergeben sich für χ bzw. $\tilde{\chi}$ äquivalente Ergebnisse. Definitionsgemäß muss eine Kurve, die durch diese Punkte gefittet wird, durch den Punkt (1,1) führen. Gleichzeitig wird lediglich eine quadratische Krümmung zugelassen. Bei nur fünf Messpunkten ist die Gefahr zu groß, dass Polynome höherer Ordnung Artefakte erzeugen. Damit ergibt sich eine Fitfunktion der Form [Volk, 1996]:

$$R_i = a \cdot \left(\left(\frac{\tilde{\chi}_i}{\tilde{\chi}_0} \right) - 1 \right)^2 + b \cdot \left(\left(\frac{\tilde{\chi}_i}{\tilde{\chi}_0} \right) - 1 \right) + 1 \quad (4.2)$$

Diese Kurve muss nicht notwendigerweise durch den Punkt (0,0) führen. Für Chromatographen (und Trägergase), wo dies jedoch verifiziert ist, kann es für Messungen bis zu sehr geringen Mischungsverhältnissen sinnvoll sein, die Kurve auch durch den Punkt (0,0) zu zwingen. Setzt man (0,0) in Gleichung (4.2) ein, so sind die beiden Fitparameter nicht mehr unabhängig: $b = a + 1$. Die Fitfunktion lautet also:

$$R_i = a \cdot \left(\left(\frac{\tilde{\chi}_i}{\chi_0} \right) - 1 \right)^2 + (a + 1) \cdot \left(\left(\frac{\tilde{\chi}_i}{\chi_0} \right) - 1 \right) + 1 \quad (4.3)$$

Die weitere Vorgehensweise wird nun auf Gleichung (4.2) bezogen, gilt selbstverständlich aber analog für Gleichung (4.3). Bis zu diesem Zeitpunkt spielten Mischungsverhältnisse noch keine Rolle, lediglich die Verdünnungsfaktoren f der Flaschen mussten bekannt sein. Um absolute Werte bestimmen zu können, muss ein Standard bekannten Mischungsverhältnisses gemessen worden sein („Absolutstandard“, Flasche 's'). So kann das Mischungsverhältnis der Flasche '0' (χ_0) durch Auflösen der folgenden Gleichung und Verwendung der Definition aus Gleichung 4.1 bestimmt werden:

$$R_a = a \cdot \left(\frac{\tilde{\chi}_s}{\chi_0} - 1 \right)^2 + b \cdot \left(\frac{\tilde{\chi}_s}{\chi_0} - 1 \right) + 1 \quad (4.4)$$

Diese Vorgehensweise ist in einem speziellen NOAH-Chrom-Kalibrations-Experiment verankert, das eine komfortable Bestimmung der Detektorkennlinien für die verschiedenen Substanzen ermöglicht. In einem Arbeitsgang können mit dem nun bekannten χ_0 gleichzeitig die Mischungsverhältnisse von weiteren Arbeitsstandards bestimmt werden, die zusammen mit der Verdünnungsreihe gemessen wurden.

Es ist zu beachten, dass die Kalibrationsfunktionen aus Gleichung (4.2) bzw. (4.3) nur mit der Angabe der Fitparameter a und b , sowie dem Mischungsverhältnis χ_0 der verwendeten 100 %-Flasche vollständig beschrieben werden. Innerhalb von NOAH-Chrom besteht daher die Möglichkeit die Parameter a , b und χ_0 für jedes Molekül und jedes Attribut (Peakfläche, Peakhöhe, etc.) aus der Kalibration zu importieren, um sie dann bei der Berechnung von Mischungsverhältnissen zu verwenden.

Idealerweise sollten die Kennlinien der Detektoren zumindest vor und nach jeder Messkampagne bestimmt werden. Unglücklicherweise steht die Verdünnungsreihe erst seit August 1999 zur Verfügung, so dass für die Datenauswertung lediglich zwei Kalibrationen benutzt werden können, die direkt vor und nach APE-GAIA durchgeführt wurden.

Die im Labor bestimmten Detektorkennlinien können zunächst nicht direkt auf die Flugdaten angewandt werden. Die ist zum einen darauf zurückzuführen, dass während der Flüge wird im Allgemeinen ein Standard (Referenzgas, Index 'r') verwendet wird, der sich von der 100 %-Flasche der Verdünnungsreihe unterscheidet. Die Kurve aus Gleichung (4.2) gilt jedoch nur dann unverändert, wenn die Flasche mit dem Mischungsverhältnis χ_0 als Standard benutzt wird. Da das Verhältnis χ_r/χ_0 und A_r bekannt sind, kann A_0 aus Gleichung (4.2) berechnet werden. A_0 ist dann die Peakfläche, die sich bei Messung der 100 %-Flasche bei identischen Injektionsbedingungen ergeben würde. Mit diesem – auf einer Kalibrationsmessung basierenden – Wert können nun die Mischungsverhältnisse der Luftproben unter Verwendung der Kalibrationsfunktion berechnet werden; auch dies ist in NOAH-Chrom realisiert.

Die zweite Ursache für eine Abweichung der realen Kennlinien von den im Labor bestimmten ist wahrscheinlich in der schwankenden Reinheit des verwendeten Trägergases zu suchen. Dies kann auf die verwendeten Gasflaschen aber auch auf die – möglicherweise temperaturbedingt – variierende Effizienz der Gasreinigungspatronen, die sowohl im Flugzeug als auch bei der Laborkalibration verwendet wurden, zurückzuführen sein. Eine Verunreinigung im Trägergas kann zur Folge haben, dass eine Peakfläche von null nicht mehr einem Mischungsverhältnis von null entspricht, da das Detektorsignal proportional zur Differenz Probe - Trägergas ist.

Die lineare und im von APE-GAIA abgedeckten Breitenbereich universelle Korrelation zwischen F12 und N₂O bietet ein ideales Testfeld, um solche Effekte zu diagnostizieren. Aufgrund der vergleichbaren Lebenszeiten der beiden Substanzen ist die F12-N₂O-Korrelation über den gesamten mit der Geophysica erreichbaren Höhenbereich nahezu linear. Damit kann sie in keiner Weise etwa durch Transportbarrieren oder Mischung verändert werden. Systematische Abweichungen zwischen den Daten zweier Flüge, wie sie in den schwarzen Datenpunkten in Abbildung 4.4 zu sehen sind, müssen also apparativer Natur sein.

Die Gültigkeit der im Labor ermittelten Detektorkennlinien während der Flüge kann außerdem durch die Verwendung der Ergebnisse aus der Messung des zweiten Kalibrationsgases („Span“) verifiziert werden. Der Span wird ebenso häufig (alle 15 Minuten bzw. 10 Zyklen) gemessen wie das Referenzgas, jedoch jeweils um fünf Zyklen versetzt. Es zeigt sich nun, dass die Gesamtheit der Messungen eines Fluges das nominelle Mischungsverhältnis des Spangases innerhalb der Fehlergrenzen nicht reproduzieren kann. Die Möglichkeit, dass dies auf einen Abfüllfehler der Fluggasflaschen zurückzuführen ist, kann ausgeschlossen werden. Die CO₂-Messungen, die auf solche Fehler deutlich sensitiver sein müssten, zeigen eine sehr gute Übereinstimmung

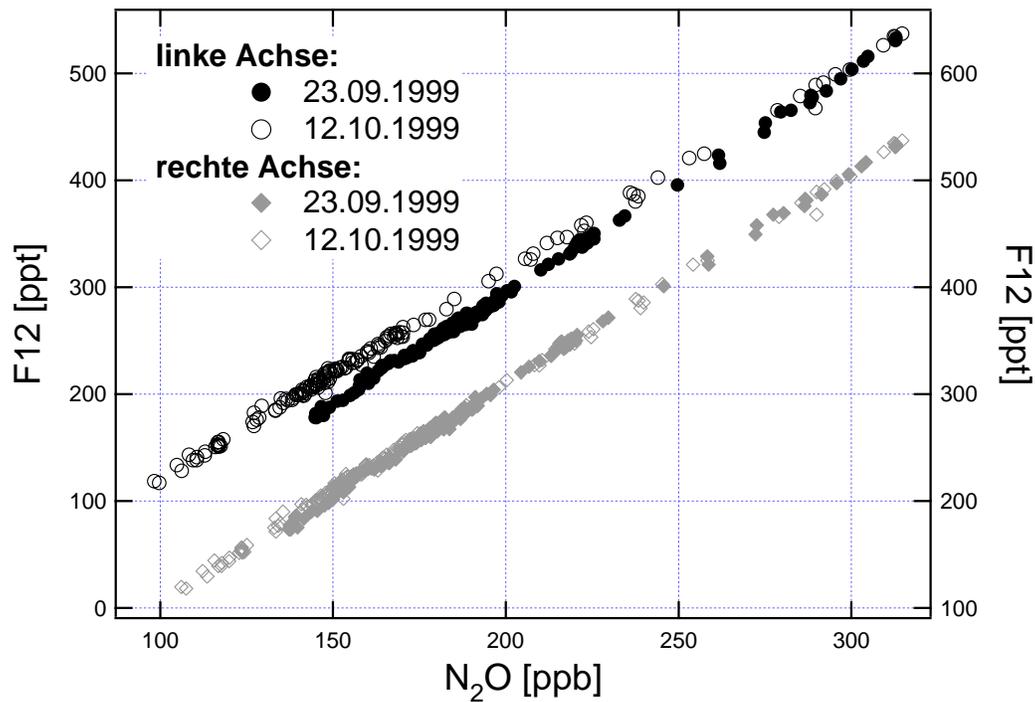


Abbildung 4.4: Auswirkungen der durch Spanmessungen korrigierten Detektorkennlinie auf die F12-N₂O-Korrelation von HAGAR. Die schwarzen Kreissymbole zeigen die Ergebnisse zweier Flüge bei Anwendung der Laborkennlinien. Es ist zu erkennen, dass es signifikante Abweichungen zwischen den Flügen gibt. Die grauen Rautensymbole zeigen Daten derselben Flüge, die jedoch mit der durch Spanmessungen modifizierte Kennlinie ausgewertet wurden. Um den Effekt besser zu visualisieren, wurden die Daten der beiden Methoden auf verschobenen y-Achsen eingezeichnet.

zwischen den verschiedenen Flügen.

Es ist daher notwendig die Detektorkennlinie aus Gleichung (4.2) für jeden Flug anzupassen. Unter der Annahme, dass die Form der Kurve, repräsentiert durch das Verhältnis der Parameter a und b aus Gleichung (4.2), erhalten bleibt, kann die Kurve korrigiert werden. Dafür wird für jeden Messpunkt des Spangases das Verhältnis der Peakflächen zu den benachbarten Referenzgasmessungen bestimmt (A_{Span}/A_0). Mittelung über alle Spanmessungen ergibt ein mittleres Span-Cal-Verhältnis \overline{SCR} , das für jeden Flug und jedes Molekül bestimmt werden muss. Es unterscheidet sich im Allgemeinen für verschiedene Integrationsgrößen. Gleichung (4.2) wird nun so modifiziert, dass $R_f = 1$ erfüllt bleibt und ebenso $\overline{R_{Span}}(\tilde{\chi}_{Span}) = \overline{SCR}$ gilt:

$$(\overline{SCR} - 1) = k \cdot \left[a \cdot \left(\frac{\tilde{\chi}_{Span}}{\tilde{\chi}_0} - 1 \right)^2 + b \cdot \left(\frac{\tilde{\chi}_{Span}}{\tilde{\chi}_0} - 1 \right) \right] \quad (4.5)$$

mit dem Korrekturfaktor k , der für jeden Flug, jedes Molekül und jede Integrationsgröße gegebenenfalls getrennt bestimmt werden muss. Bei der Konzentrationsbestimmung kommt dann Gleichung (4.2) mit den verbesserten Koeffizienten $\tilde{a} = a \cdot k$ bzw. $\tilde{b} = b \cdot k$ zum Einsatz. Abbildung 4.4 zeigt eindrucksvoll die Auswirkungen dieser verbesserten Auswertemethode auf die F12-N₂O-Korrelation.

Es soll nicht verschwiegen werden, dass zur Bestimmung der verbesserten Fitfaktoren \tilde{a} und \tilde{b} Werte für A_0 benutzt wurden, die aus der Messung des Flugstandards und der Verwendung der Laborkoeffizienten a und b berechnet wurden. Dies stellt prinzipiell eine Fehlerquelle bei der Berechnung der Mischungsverhältnisse dar. Unter der Voraussetzung, dass sich die Mischungsverhältnisse des Flugstandards und der 100 %-Flasche nicht sehr unterscheiden, ist der Fehler, der aus dem „Hochrechnen“ der Standardmessungen im Fluge resultiert, gering. Da beide Flaschen in etwa troposphärische Hintergrundbedingungen widerspiegeln, liegen die Differenzen in den Mischungsverhältnissen im Bereich von wenigen Prozent. Zudem liegt der Korrekturfaktor k für die Fitkoeffizienten nahe bei eins, so dass der Gesamtfehler in der Größenordnung von $10^{-5} \cdot \chi_0$ liegt und somit vollständig zu vernachlässigen ist.

4.2.4 Präzision und Stand der Auswertung

Prinzipiell sind verschiedene Methoden zur Bestimmung der Präzision der gaschromatographischen Messungen denkbar. Die Benutzung eines zweiten Kalibrierungsgases ermöglicht aber eine einfache Methode, die weitgehend ohne weitere statistische Annahmen auskommt. Während des Fluges wird alle 15 Minuten Spangas injiziert. Bestimmt man χ_{Span} ebenso wie die Mischungsverhältnisse von Luftproben, so ist die Standardabweichung dieser ca. 20 Messpunkte pro Flug ein geeignetes Maß für die statistische Unsicherheit der Messung. Sie liegt für N₂O, F12 und F11 zumeist unterhalb 1 % (vgl. Anhang B.1). Diese Daten haben die erwartete Qualität und können daher als endgültig bezeichnet werden. Die SF₆-Präzision liegt zwischen 3 % und 5 %. Halon-1211 konnte ebenfalls mit etwa 5 % Präzision gemessen werden.

Der zeitliche Abstand zwischen zwei Kalibrationen ist mit 15 Minuten ausreichend gering für einen in-situ-Gaschromatographen. Obwohl das Detektorsignal der Referenzgasmessungen im Allgemeinen während eines Fluges

sehr stabil ist, können die Informationen der Spangasmessungen ebenfalls zur Kalibration benutzt werden, wenn man das Ergebnis der Integration durch \overline{SCR} dividiert. Damit verdoppelt sich die Anzahl der zur Verfügung stehenden Kalibrationsmessungen, was zum einen unter Umständen die Präzision verbesserte. Zum anderen können jetzt aber auch wertvolle Messpunkte am Anfang des Fluges ausgewertet werden, die bisher nicht verwendet werden konnte, da das Instrument bei der ersten Kalibration noch nicht im Druckgleichgewicht war.

Für Peaks mit einem guten Signal-Rausch-Verhältnis stellt die in Abschnitt 4.2.2 beschriebene Standardintegrationsmethode ein geeignetes Werkzeug dar. So ergab die Auswertung der HAGAR-Chromatogramme für N_2O , F12 und F11 ein gute bis sehr gute Präzision, deren Limitierung nicht mehr die Auswertemethode, sondern die tatsächliche technische Reproduzierbarkeit des gesamten Instruments ist. Für die „kleinen“ bzw. „schmalen“ Peaks (Halon-1211 bzw. SF_6) ist die Lage möglicherweise anders; hier beinhalten die Chromatogramme mehr Information, als mit der Standardmethode benutzt werden kann. Daher wurde eine neue Auswertemethode entwickelt, die die Peaks durch Gauß-Funktionen annähert. Sie befindet sich noch in der Phase der Erprobung, da sie nicht so einfach anzuwenden ist wie die Standardmethode. Die neue Methode, die eine deutliche Verbesserung der Präzision verspricht, wird im Anhang E vorgestellt. Alle präsentierten Daten sind jedoch noch wie bisher unter Verwendung der Peakhöhe ausgewertet worden. Die SF_6 - und Halon-1211-Daten sind daher auch noch als vorläufig anzusehen.

Die Auswertung von Halon-1211 zeigte noch ein weiteres Problem auf. Das Halon-Mischungsverhältnis sollte auf Grund seiner kurzen Lebenszeit auf großer Höhe auf null zurückgehen. Doch sogar im Polarwirbel, wo F11 auf nahezu 0 ppt absinkt, ergibt die Auswertung ein Halon-Mischungsverhältnis von ca. 0,8 ppt, entsprechend 20 – 25 % des troposphärischen Hintergrundwertes. Dies ist unrealistisch, da die Lebenszeit von F11 doppelt so hoch ist wie die von Halon-1211. Es scheint also, dass eine unbekannte Substanz mit Halon-1211 koeluiert. Unter der Annahme, dass das Mischungsverhältnis dieser Substanz in allen Luftproben, sowie im Referenzgas weitgehend konstant ist, wurden die Halon-1211-Daten korrigiert. Dabei wurde der Wert von 0,8 ppt als Nullpunkt festgelegt ($\chi_{Standard} = 3,8$ ppt):

$$\chi_{H1211,korr.} = (\chi_{H1211,Auswertung} - 3,8) \cdot \frac{3,8}{3} + 3,8 \quad (4.6)$$

Im Rahmen der geplanten verbesserten Auswertung von SF_6 und Halon-1211, die die Verwendung der Methode mit Gauß-Funktionen beinhaltet, wird auch diese einfache Korrektur ersetzt werden müssen.

4.3 LI-COR 6251

Der LI-COR-CO₂-Sensor ist so konzipiert, dass bei Kalibrationen das Gerät nachjustiert werden kann; auf diese Voraussetzung bauen auch die in Abschnitt 4.3.1 vorgestellten Grundgleichungen auf. Da beim Einsatz im Flugzeug keinerlei Eingriffsmöglichkeiten bestehen, musste eine neue Auswertemethode entwickelt werden. Deren Vorteile werden ausführlich in Abschnitt 4.3.2 dargestellt. Im Flugzeugbetrieb existieren auch noch einige systematische Störungen, die im Verlauf der Auswertung korrigiert werden müssen; diese Korrekturen werden in Abschnitt 4.3.3 erläutert. Abschließend werden in Abschnitt 4.3.4 die Fehlergrenzen der CO₂-Messungen, sowie deren mögliche Ursachen diskutiert werden. Alle vorgestellten Funktionen der CO₂-Datenauswertung können interaktiv in einem eigenen Igor-Experiment durchgeführt werden, auf das jedoch nicht weiter eingegangen wird.

4.3.1 Datenauswertung im Laborbetrieb

Die Darstellung der Auswertung von LI-COR-Daten in diesem Abschnitt folgt weitgehend dem Handbuch zum LI-COR [LI-COR, 1992]. Die Gleichungen bilden die Voraussetzung für die für HAGAR entwickelte Auswertung, die anschließend vorgestellt wird.

Berechnung von CO₂-Mischungsverhältnissen aus LI-COR-Daten

Jeder LI-COR CO₂-Sensor ist im Werk kalibriert worden. Die Kalibrationskurve liegt in Form eines Polynoms dritter Ordnung vor:

$$F(x) = a_1x + a_2x^2 + a_3x^3 \quad (4.7)$$

Die allgemeine Formel zur Bestimmung der Konzentration aus dem Spannungssignal des LI-COR lautet:

$$\chi = F\left(V\frac{P_0}{P}\right)\left(\frac{T}{T_0}\right) \quad (4.8)$$

wobei χ das CO₂-Mischungsverhältnis, P, P_0 den Druck und T, T_0 die absolute Temperatur in °K zum Zeitpunkt der Messung bzw. der Werkskalibration bedeuten. Gleichung (4.8) kann nur im Absolutmodus direkt angewendet werden, wenn für das CO₂-Mischungsverhältnis in der Referenzzelle $\chi_R = 0$ gilt. Für genauere Messungen in einem begrenzten dynamischen Bereich empfiehlt sich der differentielle Modus bei dem die Referenzzelle mit einem Kalibriergas

mit bekanntem CO_2 -Mischungsverhältnis χ_R gespült wird. Die Genauigkeit der Messung wird aber nicht allein durch die geringere Differenz der Mischungsverhältnisse χ_R im Referenzgas und χ in der Luftprobe erhöht. Die LI-COR-Elektronik ist so ausgelegt, dass eine Erhöhung des Mischungsverhältnisses in der Referenzzelle zu einer Erhöhung der Signalverstärkung führt, die Kalibrationskurve wird steiler:

$$\chi = F \left[(VG + V_R) \frac{P_0}{P} \right] \left(\frac{T}{T_0} \right) \quad (4.9)$$

χ und V sind hier das Mischungsverhältnis der Luftprobe bzw. das dazugehörige Spannungssignal. V_R ist die Spannung, die das LI-COR ausgeben würde, wenn die Referenzzelle mit CO_2 -freier Luft und die Messzelle mit dem Referenzgas gespült würde. V_R kann entweder durch direkte Messung oder gemäß

$$V_R = F^{-1} \left[\chi_R \left(\frac{T_0}{T} \right) \right] \left(\frac{P}{P_0} \right) \quad (4.10)$$

bestimmt werden. Für den Verstärkungsfaktor G gilt:

$$G = \left(1 - \frac{V_R}{K} \right) \quad (4.11)$$

Die Konstante K wird bei der Werkskalibration bestimmt und ist somit gegeben. Der Hauptvorteil des differentiellen Modus ist jedoch nicht die Sensitivitätserhöhung, die durch G repräsentiert wird. Vielmehr ist der Term $V_R (P_0 P^{-1})$ aus Gleichung (4.9) unabhängig von der Druckmessung (vgl. Gleichung (4.10)). Im Falle stratosphärischer Messungen, wo das CO_2 -Mischungsverhältnis im Moment etwa einen Bereich von 360 ppm bis 370 ppm abdeckt, ist bei geeigneter Wahl des Referenzgas der druckabhängige Term $V_P G (P_0 P^{-1})$ in Gleichung (4.9) etwa um einen Faktor 30 kleiner als der druckunabhängige $V_R (P_0 P^{-1})$.

Für das Erreichen einer Präzision von 0,1 ppm müssten im Absolutmodus der Druck mit einer Absolutgenauigkeit von 0,25 hPa und die Temperatur mit 0,1 K Genauigkeit gemessen werden. Dies ist in der Realität nicht zu erreichen. Im differentiellen Modus sinken die Ansprüche in erster Näherung in etwa um den erwähnten Faktor von ca. 30.

Kalibration des CO₂-Sensors im Labor

Um Gleichung (4.9) benutzen zu können, muss das LI-COR kalibriert werden. Dazu können im Laborbetrieb zwei Regler nachjustiert werden. In einem ersten Schritt wird die Nulleinstellung („ZERO“) justiert. Dafür werden Referenz und Messzelle mit dem Referenzgas gespült. Der Zero-Regler wird so eingestellt, dass das LI-COR eine Spannung von 0 mV ausgibt.

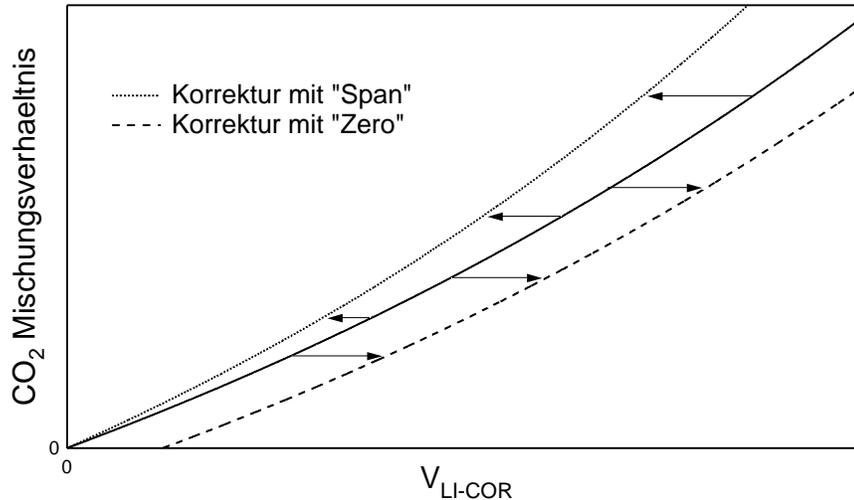


Abbildung 4.5: Einfluss der Zero- und Spanregler auf das Ausgangssignal des LI-COR [adaptiert nach LI-COR, 1992].

Anschließend muss die Verstärkung („SPAN“) eingeregelt werden. Dazu wird in einem zweiten Schritt die Referenzzelle mit dem Referenzgas und die Messzelle mit dem zweiten Kalibrierigas, dem Spangas gespült, dessen CO₂-Mischungsverhältnis mit χ_S bezeichnet ist. Der Span-Regler am LI-COR wird nun so eingestellt, dass eine Spannung V_S gemäß

$$V_S = F^{-1} \left[\chi_S \left(\frac{T_0}{T} \right) \right] \left(\frac{P}{P_0} \right) \quad (4.12)$$

ausgegeben wird. In Abbildung 4.5 wird anschaulich die Wirkungsweise von Zero und Span gezeigt. Ein Verstellen des Spanreglers kommt dabei einer Veränderung des Druckes gleich. Im Laborbetrieb kann man so Druckänderungen kompensieren, falls keine geeignete Druckmessung zur Verfügung steht. Diese Tatsache wird in Abschnitt 4.3.2 Verwendung finden. Die dort beschriebene Auswertung der HAGAR-Flugdaten macht sich diese Äquivalenz von Druck und Span-Regler ebenfalls zunutze, jedoch in umgekehrter Weise.

4.3.2 Datenauswertung im Flugzeugbetrieb

Für den Betrieb am Boden empfiehlt der Hersteller, das LI-COR täglich zu kalibrieren. Angesichts der hohen Anforderungen an die Präzision der Messungen und der schwierigen Verhältnisse an Bord eines Höhenforschungsflugzeuges muss dieses Intervall hier deutlich kürzer ausfallen. Im HAGAR wird in jedem fünften Zyklus – entsprechend 7,5 min – mit Referenz- oder Spangas kalibriert. Da während des Fluges die Zero- und Spanregler nicht nachjustiert werden können, muss dies die Datenauswertung leisten. Ziel ist es dabei, am Schluss für jeden Messpunkt eine Funktion zur Verfügung zu haben, mit der man das CO₂-Mischungsverhältnis gemäß Gleichung (4.9) bestimmen kann. Der mathematische Weg dorthin wird in den folgenden Abschnitten dargestellt.

Zunächst wird die Zeitreihe des LI-COR-Signales gemäß der Stellung des SSV in Probe-, Referenzgas- und Spangasmessung sortiert. Die Signale werden dann für jede einzelne Kalibrationsperiode von etwa 25 s gemittelt. Pro Flugstunde ergeben sich dann je vier Messpunkte für das Referenzgas und das Spangas. Eine zeitliche lineare Interpolation zwischen diesen Werten ergibt für jeden Zeitpunkt des Fluges eine Spannung für Referenz- und Spangasmessung.

Wie bereits oben dargestellt, müssten die Zero- und Spanregler am LI-COR korrekt eingestellt werden, um eine Funktion gemäß Gleichung (4.9) aufstellen zu können. Ist dies nicht der Fall, kann man die Wirkungsweise der beiden Regler auch auf die Daten anwenden. Dazu wird die Datenreihe aus der Referenzgasmessung auf null gesetzt, um so die „Zerodrift“ zu eliminieren. Die Signale aus der Spangasmessung und der Proben werden analog um diesen (zeitlich nicht konstanten) Offset verschoben.

Eine Veränderung des Spanreglers ist äquivalent zur Änderung des Druckes. Man kann also den Druck als Summe aus dem realen, gemessenen Druck und einer Druckabweichung, die aus der Einstellung des Spanreglers resultiert darstellen:

$$P = P_{gemessen} + \tilde{P} \quad (4.13)$$

\tilde{P} kann nun aus den Kalibrationsdaten durch Auflösen der folgenden Gleichung – etwa mittels Newton'schem Näherungsverfahren (s. Anhang D.2) – gewonnen werden.

$$\chi_S = F \left[(V_{SG} + V_R) \frac{P_0}{(P_{gemessen} + P_{Span})} \right] \left(\frac{T}{T_0} \right) \quad (4.14)$$

mit dem CO₂-Mischungsverhältnis χ_S im Spangas und dem gemessenen Spannungssignal V_S . V_R wird aus Gleichung (4.10), G aus den Gleichungen (4.10) und (4.11) bestimmt. \tilde{P} setzt sich in der Realität aus mehreren Anteilen zusammen:

1. Stellung des Spanreglers am LI-COR
2. Fehler bei der Absolutmessung des Drucksensors
3. „Spandrift“
4. nicht weiter zu klärende Drift des gesamten CO₂-Sensors

Durch diese Vorgehensweise ist es möglich, die Notwendigkeit großer Absolutgenauigkeiten bei der Messung von Druck und Temperatur zu umgehen. Bei der Kalibration werden eine Reihe systematischer, aber nicht näher zu bestimmender Fehler \tilde{P} zusammengefasst. Es muss darauf hingewiesen werden, dass die Zusammenfassung dieser Fehlerquellen in einen Druck nur unter der Voraussetzung einer linearen Kennlinie des LI-COR absolut richtig ist. Im Falle der HAGAR-Messungen, wo nur etwa ein Bereich von 10 ppm unterhalb des Referenzgases von 369 ppm vermessen wird, macht jedoch die Benutzung der realen Kennlinie gegenüber einer linearen maximal 0,2 ppm aus. Sie ist damit ausreichend flach, damit aus der Verwendung von \tilde{P} keine weiteren relevanten systematischen Fehler entstehen.

Letztlich stellt \tilde{P} bzw. dessen Streuung ein Maß für die erzielbare Präzision während eines Fluges dar, worauf in Abschnitt 4.3.4 noch vertieft eingegangen wird.

Würde \tilde{P} für jeden einzelnen Datenpunkt aus den zeitlich interpolierten Kalibrationsdaten bestimmt, so würden Druckschwankungen (etwa aufgrund des elektrischen Einflusses des Ventilators), die auf einer Zeitskala von einigen Sekunden spielen nicht berücksichtigt. Daher wird \tilde{P} nur zu den Zeiten bestimmt, da tatsächlich das Spangas gemessen wurde, wobei eine sanfte Glättung (gleitendes Mittel über drei Punkte) dieser Zeitreihe möglich ist. Auch hier wird wieder eine zeitliche Interpolation durchgeführt, so dass zu jedem Datenpunkt auch ein Wert für \tilde{P} existiert.

Die CO₂-Mischungsverhältnisse werden schließlich gemäß folgender Gleichung bestimmt:

$$\chi = F \left[(VG + V_R) \frac{P_0}{(P_{gemessen} + \tilde{P})} \right] \left(\frac{T}{T_0} \right) \quad (4.15)$$

wobei V_R und G wiederum für jeden Messpunkt aus den Gleichungen (4.10) und (4.11) gewonnen werden.

4.3.3 Systematische Korrekturen

Die bisher dargestellte Auswertung stellt die prinzipielle Vorgehensweise dar. Hinzu kommen jedoch noch eine Reihe von Korrekturen, die technischer aber auch physikalischer Natur sind.

Vorbereitung der Rohdaten

Anhand der Prozessdaten müssen zunächst die Rohdaten des LI-COR auf systematische Fehler korrigiert werden.

Totzeit nach Schalten des SSV Direkt nach dem Schalten des SSV befindet sich ein Gasgemisch in der Probenzelle, das keine verwertbaren Daten liefert. Die Totzeit kann entweder abgeschätzt oder aber im Experiment bestimmt werden. Die Abschätzung basiert auf der Annahme, dass die Autokorrelation der Datenreihe bei zweimaligem Spülen der Messzelle verschwindet. Für die Totzeit ergibt sich somit:

$$t_{tot,abgeschätzt} = \frac{2 \cdot \text{Zellvolumen} \cdot 60}{f_{\text{Messzelle}}} = \frac{2 \cdot 12,5 \cdot 60}{f_{\text{Messzelle}}} = \frac{1500}{f_{\text{Messzelle}}} \quad (4.16)$$

Zur direkten Bestimmung der Totzeit wurden in einem Laborexperiment abwechselnd Referenz- und Spangas bei verschiedenen Probengasflüssen gemessen. Die Totzeit ist dann die Zeit vom Schalten des Ventils bis sich das LI-COR-Signal wieder stabilisiert. Die Auswertung der Daten ergibt:

$$t_{tot,gemessen} = \frac{1400}{f_{\text{Messzelle}}} \quad (4.17)$$

was in guter Übereinstimmung zur Abschätzung steht. Um immer auf der sicheren Seite zu sein, wird bei der Auswertung eine etwas konservativere Formel verwendet:

$$t_{tot,Auswertung} = 5 + \frac{1400}{f_{\text{Messzelle}}} \quad (4.18)$$

Störeinfluss des Ventilators Der große Ventilator zur Kühlung des Kessels induziert eine Störung in der Signalaufzeichnung. Die Spannungen der meisten Prozessdaten sowie das LI-COR-Signal sind bei laufendem Ventilator um einen konstanten Offset erhöht. In einem ersten Schritt werden daher das Temperatursignal und die Signalspannung des LI-COR korrigiert. Der Offset wird dabei für jeden Flug individuell visuell korrigiert. In Abbildung 4.6 ist dies exemplarisch für das LI-COR-Signal gezeigt. Die Korrektur ist dabei ein für den gesamten Flug konstanter Term, obwohl die Abbildung nur einen Ausschnitt des Fluges vom 23.9.1999 zeigt.

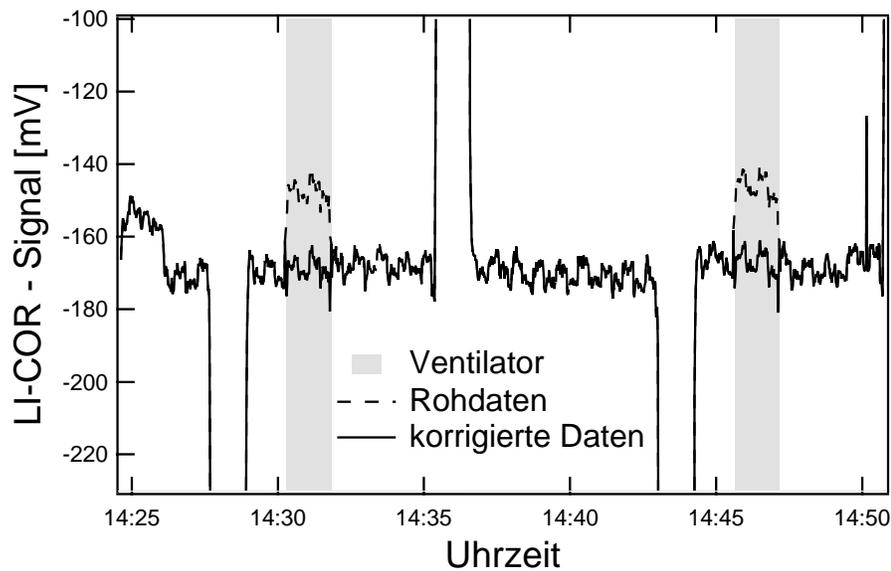


Abbildung 4.6: Beseitigung des Störeinflusses des Ventilators auf die LI-COR-Rohdaten durch visuelle Korrektur. Die Bereiche in denen die LI-COR-Daten den Graphen nach oben oder unten verlassen sind Kalibrationen mit Referenz- bzw. Spangas. Für die Temperatur ergibt sich ein analoges Bild.

Variierender Probenzellenfluss. Der Fluss in der Messzelle limitiert die zeitliche Auflösung des LI-COR (vgl. den folgenden Abschnitt 4.3.4). Für die meisten Flüge wurde daher der LI-COR-Fluss auf den Maximalwert des Flussreglers von 200 ml min^{-1} eingestellt. Auf großer Flughöhe erreichen aber die Pumpen nur noch einen Gesamtfluss von unter 300 ml min^{-1} , der sich im Verhältnis 1:1 auf Gaschromatograph und LI-COR verteilt. Die Probenschleife des Gaschromatographen ist nur etwa die halbe Zykluszeit auf Durchfluss geschaltet, während die Messzelle des CO_2 -Sensors kontinuierlich gespült

wird. Somit ergeben sich im LI-COR Flussänderungen von $> 50 \text{ ml min}^{-1}$. Mit dieser Änderung des Probenflusses im LI-COR geht auch eine abrupte Änderung der Signalspannung des Sensors einher, die in den Flugdaten deutlich zu erkennen ist.

Obwohl dieser Effekt reproduzierbar in allen Flügen aus APE-GAIA zu sehen ist, gelingt es jedoch nicht, ihn im Labor zu simulieren und zu quantifizieren. Die Annahme, dass ein erhöhter Fluss aufgrund der Restriktion vom Flussregler bis zum Zellenausgang in einem erhöhten Druck und damit einer Signalverfälschung resultieren würde, kann so nicht bestätigt werden. So kann nur vermutet werden, dass das einströmende Gas eine andere Temperatur als die Zelle hat. Ein größerer Probenfluss hätte dann eine stärkere Temperaturänderung zur Folge, da das System das thermische Gleichgewicht noch nicht erreicht hat.

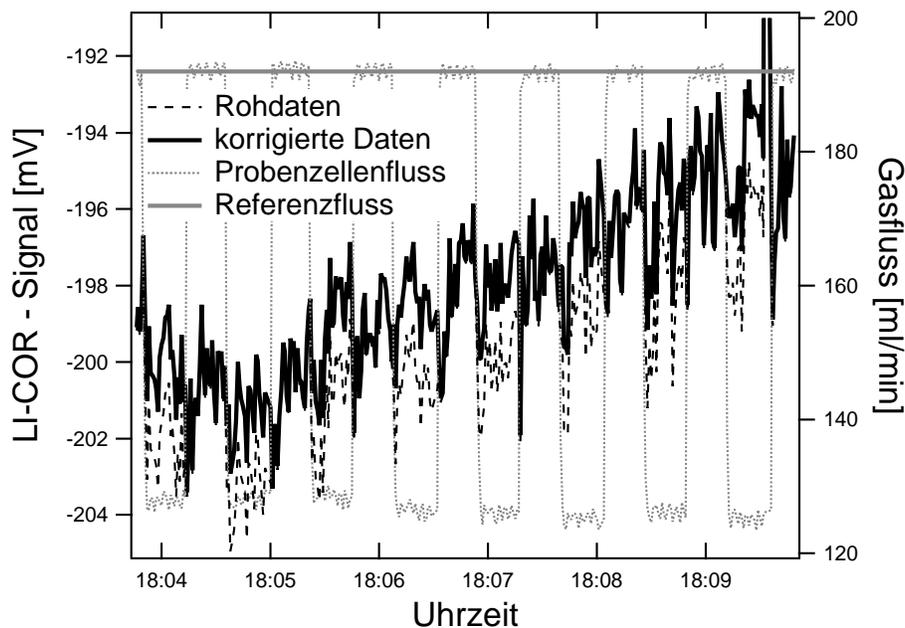


Abbildung 4.7: Einfluss des wechselnden LI-COR-Flusses auf das Ausgangssignal. In diesem Bild ist lediglich die grundsätzliche Abhängigkeit des Signals vom Probenzellenfluss, nicht jedoch der lineare Zusammenhang aus Gleichung (4.19) zu erkennen.

Eine Auswertung der Flugdaten ergibt, dass sich die Flussabhängigkeit der LI-COR-Signale mit einer linearen Korrektur annähern lässt:

$$\Delta V = g \cdot \Delta f = g \cdot (f - f_0) \quad (4.19)$$

Dabei ist mit f der aktuelle Probenfluss und mit f_0 ein Probenfluss bezeichnet, der als Referenz benutzt wird (s. Abbildung 4.7). Da Referenzgas und Spangas den maximal eingestellten Probenfluss zur Verfügung stellen, wird dieser als Referenz benutzt. Da das Messsignal im Flug nicht nur durch die Flussänderung, sondern vor allem durch Gradienten im CO₂-Mischungsverhältnis bestimmt wird, ist eine Bestimmung des Proportionalitätsfaktors g aus den Flugdaten nicht mit ausreichender Genauigkeit möglich. Daher wird auch dieser Faktor interaktiv nach visuellen Kriterien vom Benutzer bestimmt.

Rauschen der Prozessdaten Damit das Rauschen der Prozessdaten nicht die Präzision der Messungen verschlechtert, werden die Zeitreihen von Temperatur und Druck im LI-COR geglättet. Da für den zeitlichen Gradienten der Temperatur $\frac{dT}{dt} < 1 \text{ °C h}^{-1}$ gilt, wird ein gleitender Mittelwert über 91 s (eine Zykluslänge) gebildet. Die Druckschwankungen finden auf Zeitskalen von einigen Sekunden statt, weshalb die Druckmessung mit einem gleitenden Mittel von 5 s geglättet wird.

Messverstärker Um den Messbereich der A-D-Wandlerkarte optimal ausnutzen zu können, wurde hinter dem LI-COR-Ausgang eine Messverstärker installiert. Dieser verstärkt das Ausgangssignal um einen Faktor sechs. Vor der Datenauswertung werden die LI-COR-Rohdaten um diesen Faktor korrigiert.

Wasserdampf-Korrekturen

Die Messung von CO₂-Mischungsverhältnissen mittels Infrarot-Absorption kann durch die Gegenwart von Wasserdampf auf drei Wegen verfälscht werden:

- IR-Absorption des Wasserdampfes im für CO₂ relevanten Wellenlängenbereich
- Druckverbreiterung
- Verdünnung

Durch eine geeignete Wahl der Wellenlänge, bei der die Absorption gemessen wird, kann der erste Punkt vermieden werden. Im LI-COR sorgt ein Bandpassfilter mit einer spektralen Breite von 150 nm dafür, dass die IR-Messung auf der 4,26 µm-Absorptionsbande des CO₂ durchgeführt wird; in diesem Bereich weist H₂O nur eine schwache Absorption auf. Der Einfluss

von H_2O ist hier vollständig zu vernachlässigen. Die weiteren Punkte zwei und drei werden im Folgenden diskutiert.

Druckverbreiterung Die energetisch eng beieinander liegenden Schwingungs- und Rotationszustände der Moleküle ermöglichen eine breitbandige Absorption von IR-Strahlung in Gasen. Durch die Stöße mit anderen Molekülen werden diese Zustände verändert. Dies resultiert nicht nur in einer Verbreiterung der Linie eines diskreten Überganges, sondern auch in einer Verbreiterung der Absorptionsbande. Da die Stöße proportional zum Druck ansteigen, nimmt auch die Breitbandabsorption mit ansteigendem Druck zu.

Wäre der Effekt unabhängig vom Stoßpartner, so wäre die Druckverbreiterung unabhängig von der Zusammensetzung des Gases und lediglich eine Funktion des Druckes. Um den Einfluss der Stoßpartner quantifizieren zu können, wird die Druckverbreiterung mit Hilfe des Konzeptes des effektiven Druckes P_e dargestellt:

$$P_e = \sum_{\text{alle Inhaltsstoffe}} a_i p_i \quad (4.20)$$

Die Gewichtungsfaktoren a_i sind dabei ein Maß für die durch das entsprechende Gas verursachte Druckverbreiterung. a_i wird dabei immer relativ zu N_2 angegeben, d.h. $a_{\text{N}_2} = 1$. Erhöht man den Druck eines Gasgemischs mit Druck P durch Hinzufügen eines weiteren Gases um Δp , so verändert sich die Druckverbreiterung, als hätte man mit Stickstoff um $a_i \Delta p$ aufgedrückt.

H_2O ist der einzige Bestandteil der Luft, dessen Anteil von nahe Null bis in den Prozentbereich schwanken kann. Für die LI-COR-Korrektur kann daher vereinfacht die Luft in einen trockenen Teil und den Wasserdampf aufgeteilt werden, wobei dann für Drücke und Mischungsverhältnisse gilt:

$$P = P_t + P_{\text{H}_2\text{O}} \quad (4.21)$$

$$1 = \chi_t + \chi_{\text{H}_2\text{O}} \quad (4.22)$$

Für den effektiven Druck ergibt sich dann:

$$\begin{aligned} P_e &= a_t P_t + a_{\text{H}_2\text{O}} P_{\text{H}_2\text{O}} \\ &= P (a_t \chi_t + a_{\text{H}_2\text{O}} \chi_{\text{H}_2\text{O}}) \end{aligned} \quad (4.23)$$

Die LI-COR-Instrumente sind mit Luft kalibriert, weshalb auch $a_t = 1$ gesetzt werden kann. Einsetzen von Gleichung (4.22) in Gleichung (4.23) ergibt dann:

$$\begin{aligned} P_e &= P [1 + (a_{\text{H}_2\text{O}} - 1) \chi_{\text{H}_2\text{O}}] \\ &= P f(\chi_{\text{H}_2\text{O}}) \end{aligned} \quad (4.24)$$

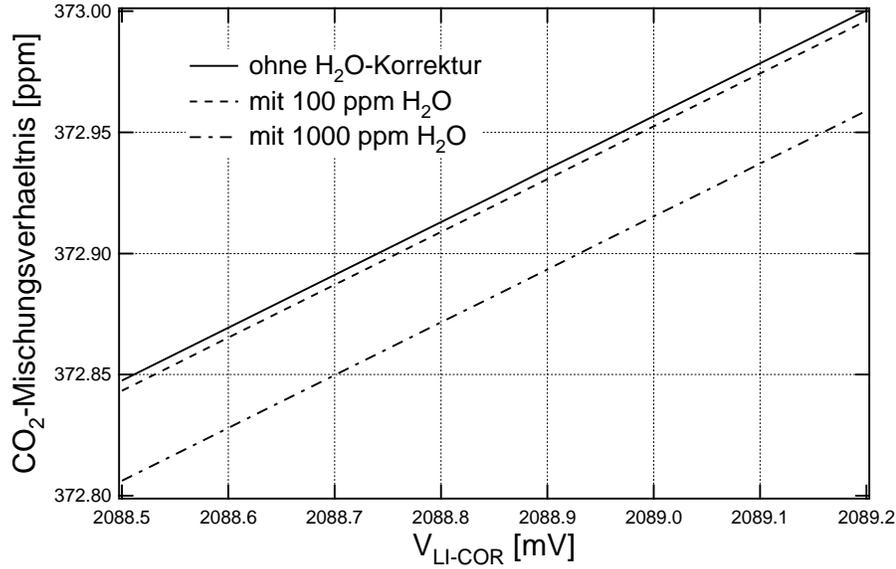


Abbildung 4.8: Korrektur der Druckverbreiterung bei verschiedenen H_2O -Mischungsverhältnissen

mit $f(\chi_{\text{H}_2\text{O}}) = 1 + (a_{\text{H}_2\text{O}} - 1)\chi_{\text{H}_2\text{O}}$. Da das LI-COR mit Luft und nicht mit N_2 kalibriert wurde, kann für $a_{\text{H}_2\text{O}}$ kein Literaturwert verwendet werden, er wurde vielmehr von der Herstellerfirma empirisch auf $a_{\text{H}_2\text{O}} = 1,5$ bestimmt.

Gleichung (4.8) basiert auf einer empirischen Herleitung, weshalb hier P nicht einfach durch P_e ersetzt werden kann. Aus einer physikalisch korrekten Herleitung ergibt sich anstatt der Gleichungen (4.9) und (4.10) [s. *LI-COR*, 1992, und Referenzen darin]:

$$\chi_P = f(\chi_{\text{H}_2\text{O},P}) F \left[\left(\frac{VG + V_R}{f(\chi_{\text{H}_2\text{O},P})} \right) \frac{P_0}{P} \right] \frac{T}{T_0} \quad (4.25)$$

$$V_R = f(\chi_{\text{H}_2\text{O},R}) F^{-1} \left[\frac{\chi_R}{f(\chi_{\text{H}_2\text{O},R})} \left(\frac{T_0}{T} \right) \right] \frac{P}{P_0} \quad (4.26)$$

mit den H_2O -Mischungsverhältnissen $\chi_{\text{H}_2\text{O},P}$, $\chi_{\text{H}_2\text{O},R}$ im Proben- bzw. Referenzgas. In Abbildung 4.8 wird die Abweichung von Gleichung (4.25) zu Gleichung (4.9) bei verschiedenen H_2O -Mischungsverhältnissen gezeigt. Selbst für tropische Flüge ist der Effekt gering. Während APE-THESEO liegt er bis zu einer Größenordnung unterhalb der erzielten Präzision (vgl. Abschnitt 4.3.4).

Verdünnung Der Druck eines Gasgemisches ergibt sich aus der Summe der Partialdrücke der Inhaltsstoffe:

$$P = \sum_{\text{alle Inhaltsstoffe}} p_i \quad (4.27)$$

Wird eine Komponente bei konstantem Druck entfernt, so erhöht sich der Partialdruck der restlichen Komponenten gemäß:

$$P = \left(\sum_{\text{alle Inhaltsstoffe-1}} p_i \right) \left(1 - \frac{p_{\text{entfernter Stoff}}}{P} \right)^{-1} \quad (4.28)$$

Ein solcher Effekt tritt auf, wenn HAGAR durch eine Wolke fliegt. Die eingesaugten Wolkentröpfchen werden spätestens in der Pumpe des Instrumentes verdunstet und führen so zu einer Erhöhung des Wasserdampfgehaltes und damit zu einer Verdünnung des Probengases. Um diesen Effekt korrigieren zu können, benötigte man Kenntnisse über den Flüssigwassergehalt der Wolken.

Während der Tropenkampagne APE-THESEO waren zwei Hygrometer an Bord, wovon eines Wasserdampf, das andere Gesamtwasser bestimmt. Aus der Differenz ließe sich prinzipiell der Flüssigwassergehalt der Luft bestimmen und die CO₂-Messung gemäß Gleichung (4.28) korrigieren. Dies funktioniert jedoch nur dann, wenn die Wolkentröpfchen vollständig mit der Luft eingesaugt, verdampft und ins LI-COR injiziert werden. Tatsächlich hat aber die Ansaugleitung eine Länge von 1,5 m und vier stärkere Krümmungen, an denen sich die Tröpfchen abscheiden können. Die erste Krümmung liegt noch außerhalb der Flugzeughaut, hier bildet sich möglicherweise eine dünne Eisschicht im Rohr. Tröpfchen, die diese erste Krümmung des Einlassrohres überstehen, werden später abscheiden, wo das Rohr im Flugzeuginneren verläuft. Dort herrschen Temperaturen von ca. -30 °C. Strömt nun wieder trockenere Luft nach, so wird das abgeschiedene Wasser wieder verdampfen, da sich die Wasseroberfläche auf ein Dampfdruckgleichgewicht mit der vorbeiströmenden Luft einstellt. Daraus folgt auch, dass die CO₂-Messung für eine gewisse Zeit nach dem Durchfliegen einer Wolke durch überhöhte Wasserdampfwerte gestört sein könnte. Diese Zeit ist ohne genaue Kenntnisse der Strömungs- und Temperaturverhältnisse im Ansaugrohr nicht zu berechnen. Angesichts der geringen stratosphärischen H₂O-Mischungsverhältnisse könnte als gerechtfertigte Annahme gelten, dass das Wasser in der Ansaugleitung innerhalb weniger Minuten verdampft ist und die CO₂-Messung wieder ungestört ist. Der maximale Wassergehalt wurde während APE-THESEO während den Flugabschnitten gemessen, die durch Cirren führten; die Werte

lagen dabei stets unter 1000 ppm. Würde diese Menge ungestört in das LI-COR eindringen, ergäbe dies eine Verfälschung von etwa 0,1 % oder 0,4 ppm CO₂, was eine signifikante Verfälschung darstellt. Insbesondere die tropischen Daten müssen daher bei der Auswertung geprüft und verglichen werden, um Verfälschungen durch Verdünnung auszuschließen.

4.3.4 Fehlergrenzen der CO₂-Messung

Anders als ein Gaschromatograph, der in festen Zyklen arbeitet, hat ein kontinuierliches Messverfahren neben der eigentlichen Präzision auch eine a priori nicht vorgegebene zeitliche Auflösung, auf die hier zunächst eingegangen wird.

Zeitliche Auflösung

Das LI-COR liefert kontinuierlich ein Signal, das einem Mittel der letzten 100 ms entspricht. Die A-D-Wandlerkarte im Rechner liest dieses Signal mit 10 Hz ein, wobei der Wandler seinerseits eine Integrationszeit von 70 ms hat. Die Elektronik insgesamt hat also eine zeitliche Auflösung > 5 Hz.

Bei einem kontinuierlichem Messverfahren sind zwei Messpunkte unabhängig, wenn ihr zeitlicher Abstand so groß ist, dass die Autokorrelation verschwindet. Diese Definition stimmt exakt mit der Definition der Totzeit aus Abschnitt 4.3.3 auf Seite 83 überein. Für einen minimalen Fluss von 140 ml min⁻¹ kann so die zeitliche Auflösung analog zu Gleichung (4.16) oder (4.17) bestimmt werden:

$$\Delta t_{min} = \frac{1400}{f_{Messzelle}} = \frac{1400}{140} = 10 \text{ s} \quad (4.29)$$

Präzision

Zwischen den beiden Kampagnen APE-THESEO und APE-GAIA wurde die Datenaufzeichnung durch den Einsatz eines neuen A-D-Wandlers erheblich verbessert. Daher ist mit deutlichen Unterschieden bei der erreichten Präzision zu rechnen. Zunächst sollen diese technischen Unterschiede noch einmal dargelegt werden. Am Ende des Abschnitts wird dann festzustellen sein, ob die getroffenen Maßnahmen den erwünschten positiven Effekt erzielten.

Für APE-THESEO betrug die Auflösung des A-D-Wandlers 12 bit bei einem Messbereich von -1,25 V ... +1,25 V. Dieser Bereich entspricht etwa einem dynamischen Bereich des LI-COR von 100 ppm. Die Auflösung des A-D-Wandlers beträgt somit 100 ppm/2¹² $\approx 0,1$ ppm. Der Wandler weist jedoch

nur eine Integrationszeit von 1 ms auf und wurde nur mit 1 Hz ausgelesen. Angesichts der starken elektromagnetischen Störungen innerhalb des Geräts begrenzte dies die erreichbare Präzision.

Einziger Ausweg, die Präzision der Messungen im Nachhinein zu verbessern, ist eine Mittelung über einen größeren Zeitraum. So wurden die Daten durch gleitende Median-Bildung über eine Breite von 23 s geglättet – entsprechend 4 Messpunkten pro Gaschromatographie-Zyklus. Eine solche Mittelung kann natürlich nicht über einen beliebig langen Zeitraum ohne negative Folgen durchgeführt werden. Zwar sollte das statistische Rauschen $\propto n^{-1}$ sein, doch gilt dies nur, wenn das gemessene Mischungsverhältnis zeitlich konstant ist. Dies ist auf einem Flugzeug, das sich mit 200 ms^{-1} bewegt nur für endliche Zeit gegeben; der ausgewählte Zeitraum von 23 s stellt einen subjektiv gewählten Kompromiss dar, der eine akzeptable Präzision zur Folge hat.

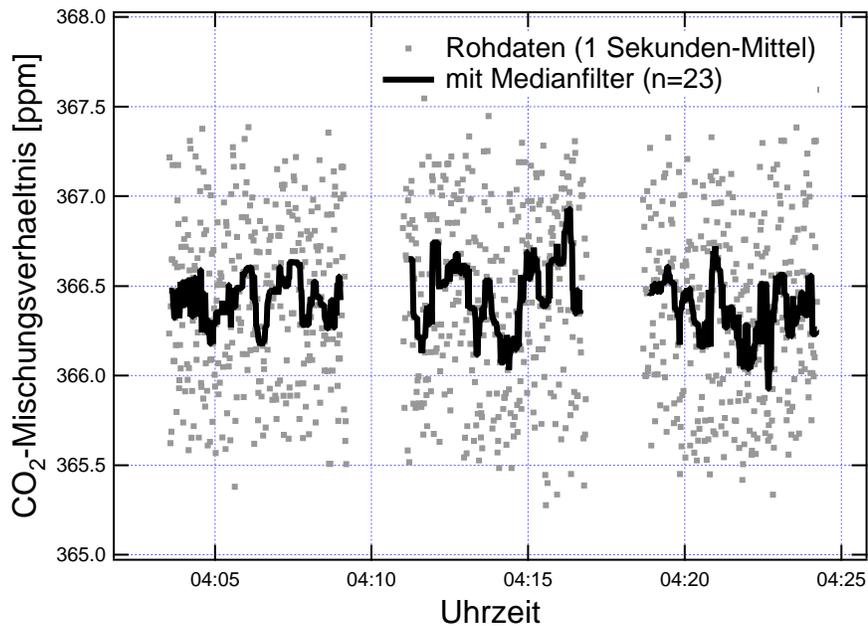


Abbildung 4.9: Typischer Bereich mit konstantem CO_2 -Mischungsverhältnis während APE-THESEO zur Bestimmung des Fehlers durch Rauschen. (Flug vom 27.02.1999)

Der im HAGAR seit APE-GAIA verwendete A-D-Wandler hat eine Auflösung von 16 bit, entsprechend ca. 0,025 ppm. Jeder Wert, der in die Auswertung eingeht, ist ein Sekundenmittel über zehn Werte, die jeweils eine Integrationszeit von 70 ms aufweisen. Insgesamt wird also pro Sekunde über 700 ms lang Daten aufgezeichnet und gemittelt, während es beim alten Wand-

ler nur 1 ms war. Somit kann der neue A-D-Wandler das Messsignal mit ausreichender Präzision aufzeichnen. Anschliessend werden die Daten noch mit einem 11 s breiten Median-Filter geglättet; dieser Zeitraum entspricht der physikalischen zeitlichen Auflösung des Instrumentes.

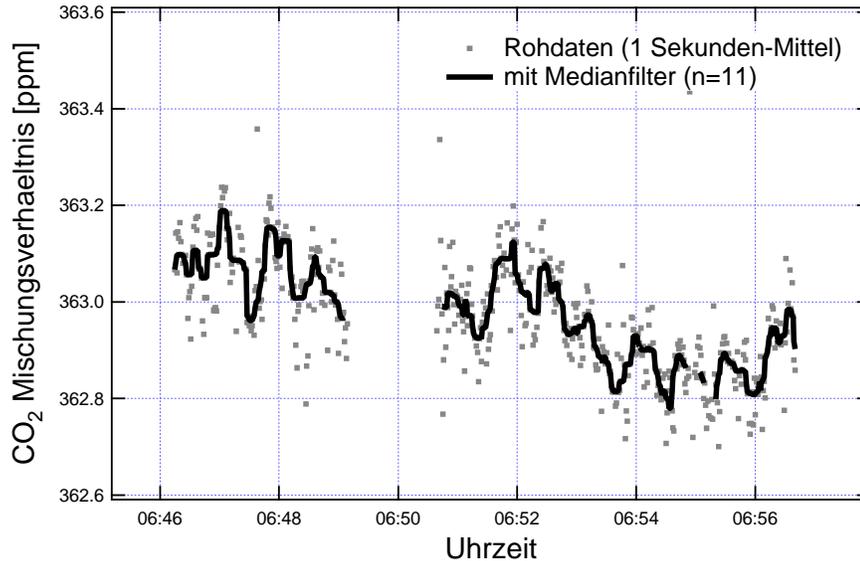


Abbildung 4.10: Typischer Bereich mit konstantem CO_2 -Mischungsverhältnis während APE-THESEO zur Bestimmung des Fehlers durch Rauschen. (Flug vom 02.10.1999)

Als erstes Maß für die Präzision der CO_2 -Messungen könnte das Rauschen der Werte in einem Flugabschnitt mit konstantem CO_2 -Mischungsverhältnis angenommen werden. Solche Abschnitte konnten zum einen mittels der CO_2 -Messung selbst, zum anderen aber auch über die anderen Tracermischungsverhältnisse identifiziert werden. Für solche Abschnitte erhält man für die ungeglätteten Daten während APE-GAIA Werte von $\sigma \approx 0,18$ ppm. Für die geglätteten Daten verringert es sich auf $\sigma \approx 0,06$ ppm. Während APE-THESEO dagegen lagen die Werte bei $\sigma \approx 0,48$ ppm bzw. $\sigma \approx 0,17$ ppm. Bei dieser Abschätzung kommen nur kurzfristige Schwankungen, die vor allem auf elektronische Ursachen zurückzuführen sind, zur Geltung.

Als Maß für langsamere Schwankungen, die fälschlich als Veränderungen im CO_2 -Mischungsverhältnis interpretiert werden könnten, kann der zeitliche Verlauf von P dienen. Wie bereits in Abschnitt 4.3.2 dargelegt, enthält diese Größe die unerklärte Drift des CO_2 -Sensors. Es ist zwar davon auszugehen, dass diese Schwankungen langsamer sind als das eben beschriebene Rauschen, man kann jedoch nicht ausschließen, dass diese Schwankungen auf

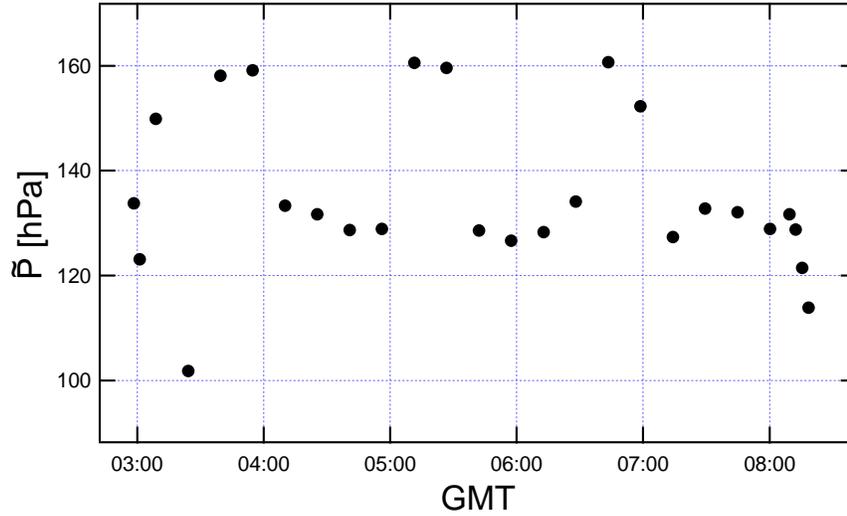


Abbildung 4.11: Exemplarischer Verlauf von \tilde{P} während eines Fluges von APE-THESEO. (Flug vom 27.2.1999)

kürzeren Zeitskalen als dem Abstand zwischen zwei Kalibrationen stattfinden. Die Schwankung von \tilde{P} wurde – wenn nötig befreit von einem Trend über den Flug hinweg – für jeden Flug bestimmt (vgl. Anhang B.2). Ein Fehler in \tilde{P} wirkt sich leicht vereinfacht wie folgt auf das gemessene CO_2 -Mischungsverhältnis aus:

$$\frac{\sigma(\chi_{Probe})}{(\chi_{Referenzgas} - \chi_{Probe})} = \frac{\sigma(\tilde{P})}{(\tilde{P} + P_{gemessen})} = \sigma_{\tilde{P},relativ} \quad (4.30)$$

Anschaulich gesprochen verändert \tilde{P} lediglich die Skala zwischen $\chi_{Referenzgas}$ und $\chi_{Spangas}$ bzw. χ_{Probe} . Die maximale Differenz $\chi_{Referenzgas} - \chi_{Probe}$ betrug 10 ppm. So beträgt der Fehler aus \tilde{P} während APE-GAIA im Mittel $\sigma \approx 0,07\text{ppm}$ und während APE-THESEO $\sigma \approx 0,18\text{ppm}$. Dies ist der entscheidende Vorteil der differentiellen Messung (mit zwei bekannten Kalibriergasen) gegenüber der Absolutmessung; darauf wurde bereits am Ende von Abschnitt 4.3.1 hingewiesen.

Da \tilde{P} und das (verrauschte) LI-COR-Signal multiplikative Größen sind (vgl. Gleichung (4.15)) und für die Fehlerrechnung die LI-COR-Kalibrationsfunktion in sehr guter Näherung als linear angenommen werden kann, kann der Fehler gemäß der vereinfachten Gleichung (D.3) als quadratische Summe der prozentualen Fehler bestimmt werden. Dies wurde in

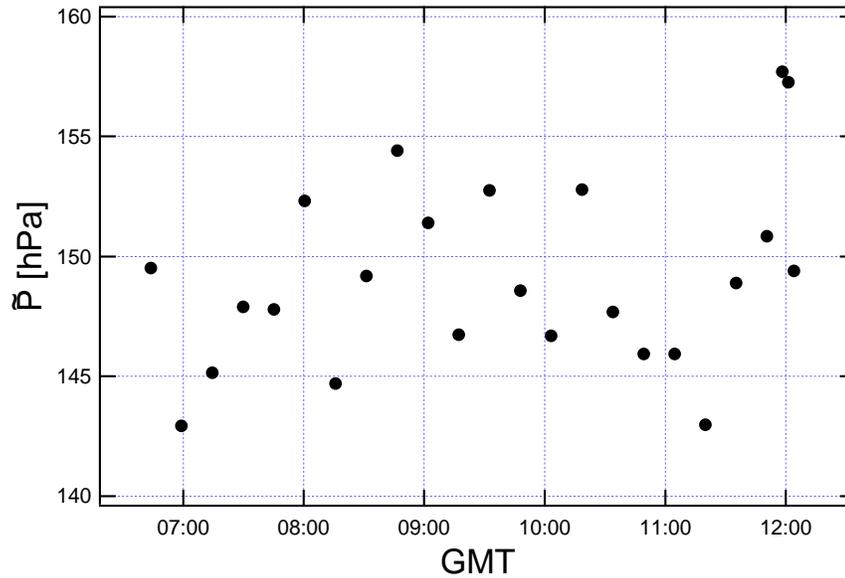


Abbildung 4.12: Exemplarischer Verlauf von \tilde{P} während eines Fluges von APE-GAIA. (Flug vom 8.10.1999)

Anhang B.2 für jeden Flug durchgeführt. Für eine objektive Angabe der Präzision wird im allgemeinen der 2σ -Fehler angegeben, deren Mittelwerte pro Kampagne in Tabelle 4.1 aufgelistet sind.

Tabelle 4.1: Mittlerer Fehler (in ppm) aus Rauschen und P_{Span} (jeweils 1σ) und Gesamtpräzision (2σ) für die CO_2 -Messungen während APE-THESEO und APE-GAIA

	$\sigma_{Rauschen}$ [ppm]	$\sigma_{P_{Span}}$ [ppm]	$2\sigma_{Gesamt}$ [ppm]
APE-THESEO	0,17	0,18	0,48
APE-GAIA	0,06	0,07	0,22

Die Ergebnisse aus Tabelle 4.1 zeigen, dass sowohl während APE-GAIA als auch während APE-THESEO die Fehler aus \tilde{P} und dem Rauschen von der gleichen Größenordnung sind. Dabei ist zu beachten, dass bei APE-THESEO das Signal über die doppelte Zeitspanne gemittelt wurde und somit das Rauschen stärker verringert wurde. Da das Mittelungsintervall während APE-GAIA bereits der realen Zeitaufösung des Instruments entspricht würde hier eine Reduzierung des Rauschens keinen wesentlichen Vorteil mehr erzielen. Weitere Verbesserungen müssten daher mehr von apparativer als von elektronischer Seite her zu erreichen sein. Konkret würde das eine verbesserte Konstanz von Druck und Temperatur innerhalb des LI-COR bedeuten.

In diesem Abschnitt wurde lediglich die Präzision der Messungen bestimmt. Die Genauigkeit beinhaltet zusätzlich die Information, wie gut der wahre Wert, der durch eine internationale Skala repräsentiert wird, reproduziert werden kann. Dies ist insbesondere für die Bestimmung des Alters von großer Bedeutung. Zur Präzision addiert sich dann noch die Unsicherheit im Mischungsverhältnis des verwendeten Kalibriergases (etwa 0,2 ppm für die von HAGAR verwendeten Standards). Diese Gase werden im folgenden Abschnitt vorgestellt.

4.4 Kalibriergase

Für die Messungen mit HAGAR wurden drei verschieden Sorten von Kalibriergasen („Standards“) benutzt:

1. Primäre Standards
2. Sekundäre und Arbeitsstandards
3. Verdünnungsreihe

Primäre Standards stellen die Verbindung der eigenen Messungen an eine international anerkannte Skala dar. Damit ist die Vergleichbarkeit von Messungen auch über große Zeiträume hinweg gesichert. Für die gaschromatographischen Messungen von N_2O , F12, F11, H1211 und SF_6 diente dabei ein Standard von NOAA/CMDL als Primärstandard. Er enthält in Niwot Ridge, Colorado/USA gesammelte, getrocknete Außenluft, die dann im Labor gegen gravimetrische Standards kalibriert wurde. Seine Genauigkeit beträgt ca. 1 % für alle Moleküle, mit Ausnahme von Halon-1211, wo bisher nur ein Wert mit einer Genauigkeit von 5 % vorliegt. Die Werte aller weiteren Standards beziehen sich auf dieses Gas. Für die CO_2 -Messung diente eine Reihe von fünf Sekundärstandards als Referenz. Sie wurden vom Umweltbundesamt auf dem Schauinsland gegen die Skala des Scripps Institution for Oceanography kalibriert.

Als Arbeitsstandards dienten zu Beginn des Projektes der LITES-Standard, später HAGAR-Referenzgas und HAGAR-Spangas. Alle wurden innerhalb der Arbeitsgruppe hergestellt. Dabei wurde bei geeigneter Wetterlage auf dem Schauinsland/Schwarzwald Gasflaschen mit getrockneter Umgebungsluft mittels eines Kompressors befüllt. Die Spurengasmischungsverhältnisse an dieser Station entsprechen dann in etwa den troposphärischen Hintergrundwerten. Das Spangas ist eine Abfüllung des Referenzgases, dass mit ca. 40 % synthetischer Luft ($N_2 + O_2$) verdünnt wurde. Die Genauigkeit

für N_2O , FCKWs und SF_6 ist besser als 2 % absolut. Für Halon-1211 liegt sie noch etwas schlechter (ca. 5 %).

Da das CO_2 -Mischungsverhältnis nur etwa 10 ppm bzw. 3 % gegenüber dem troposphärischen Hintergrundwert absinkt beträgt, wurde das Spangas anschließend wieder mit reinem CO_2 angereichert. Alle drei Gase wurden im Labor gegen die primären Standards kalibriert. Zusätzlich wurde das CO_2 -Mischungsverhältnis vom Institut für Umweltphysik an der Universität Heidelberg gegen Standards von NOAA/CMDL gemessen. Die Genauigkeit der CO_2 -Werte der HAGAR-Standards beträgt danach ca. 0,2 ppm (M. Schmidt, persönliche Mitteilung).

Zur Bestimmung der Nicht-Linearität der ECDs (vgl. Abschnitt 4.2.3) wurde eine sogenannte Verdünnungsreihe benutzt. Dazu wurden am Tau-nus Observatorium auf dem Kleinen Feldberg, das bei geeigneter Wetterlage ebenso wie die Station Schauinsland troposphärische Hintergrundbedingungen liefert, erneut zwei Gasflaschen mittels eines Kompressors mit getrockneter Außenluft befüllt. Vier Abfüllungen wurden mit synthetischer Luft angereichert, so dass sich Verdünnungen von etwa 85 %, 70 %, 50 % und 25 % ergeben. Des Weiteren steht noch eine Flasche mit reiner synthetischer Luft zur Verfügung (0 %). Die Verdünnungsfaktoren wurden bei konstanten thermischen Bedingungen durch Messung des Gleichgewichtsdruckes vor und nach dem Befüllen mit der synthetischen Luft bestimmt.

Die Richtigkeit der Verdünnungsreihe ist von großer Bedeutung für die Qualität der Messungen der gesamten Arbeitsgruppe am IMGF. Daher wurden innerhalb der Gruppe umfangreiche Maßnahmen zur Qualitätssicherung der Messungen durchgeführt, auf die hier aber im Einzelnen nicht eingegangen werden kann:

- Messung der Verdünnungsreihe mit dem Gaschromatographen GhOST, dessen Nicht-Linearität gut dokumentiert ist [vgl. *Nopper*, 1997; *Bujok*, 1998].
- Messung der Verdünnungsreihe auf CO und H_2 mit einem (linearen) RG-Detektor [vgl. *Wetter*, 1998].
- Die Nicht-Linearität der Laborgaschromatographen Si 3 und Si 1-4 kann über eine Variation des Aufgabedruckes bestimmt werden [*Müller*, 1998; *Haase*, 1999]. Durch Messung der Verdünnungsreihe konnten ebenfalls die Verdünnungsfaktoren bestimmt werden.
- Am SI 1, einem dritten Laborgaschromatographen, kann die Aufgabemenge ohne Veränderungen des Drucks variiert werden. Auch hier wurde eine Vergleichsmessung mit der Verdünnungsreihe durchgeführt.

- Bestimmung der CO_2 -Mischungsverhältnisse und der Verdünnungsfaktoren durch Messung mit einem LI-COR 6353 im Absolutmodus.
- Messung von N_2O , CO_2 und CH_4 an einem Gaschromatographen mit Flammenionisationsdetektor (CO_2 und CH_4) und ECD (N_2O) durch das Institut für Umweltphysik an der Universität Heidelberg, Arbeitsgruppe I. Levin (Daten von M. Schmidt, persönliche Mitteilung).

Die Gesamtheit der Messungen zeigten keine systematischen Abweichungen der Verdünnungsreihe von den durch Druckmessung bestimmten Werten. Die Testmessungen mit den geringsten Messfehlern (CH_4 und CO_2 aus Heidelberg, bzw. CO_2 mit LI-COR) ergaben Verdünnungen die innerhalb von 0,5 % mit den Druckmessungen übereinstimmen. Die Ergebnisse der Druckmessungen werden also als reale Verdünnungsfaktoren akzeptiert. Die Mischungsverhältnisse der Flaschen der Verdünnungsreihe wurden durch Messen der 100 %-Flasche und Anwendung dieser Faktoren gewonnen. Die Mischungsverhältnisse der relevanten Moleküle aller benutzten Standards sind im Anhang A aufgelistet.

Teil II

Feldeinsatz und Validierung

Überblick

Im Winter 1998/99 wurde HAGAR erstmals im Rahmen der Testkampagne APE-ETC („Airborne Platform for Earth Observation - Extensive Test Campaign“) an Bord eines Flugzeuges eingesetzt. Bis einschließlich Oktober des Jahres 1999 fanden zwei weitere wissenschaftliche Messkampagnen statt. Die Tropenkampagne APE-THESEO („Airborne Platform for Earth Observation – The Contribution to the Third European Stratospheric Experiment on Ozone“) im Februar und März 1999 war ein von der Europäischen Union gefördertes Projekt. Die zweite Kampagne APE-GAIA („Airborne Polar Experiment - Geophysica Aircraft in Antarctica“) im September und Oktober 1999 stand unter der Koordination des italienischen Programmes für Forschung in der Antarktis (PNRA). Kapitel 5 stellt zunächst den Messträger, das russische Höhenforschungsflugzeug M-55 „Geophysica“ vor. Dabei werden neben dem Flugzeug auch die übrigen an Bord befindlichen Instrumente beschrieben. Ziele und Ablauf der beiden Messkampagnen werden vorgestellt, wobei der Schwerpunkt auf die für die HAGAR-Messungen relevanten Bereich gelegt wurde.

HAGAR ist ein neu entwickeltes Messinstrument. Obwohl bei der Entwicklung mit größter Sorgfalt gearbeitet wurde, um eine bestmögliche Datenqualität zu erhalten, soll im Rahmen dieser Arbeit auch untersucht werden, inwieweit HAGAR die gesetzten Ziele erreichen konnte. In Kapitel 6 werden exemplarisch die Ergebnisse zweier Flüge von APE-THESEO und APE-GAIA vorgestellt. Dabei wird eine qualitative Betrachtung der Daten im Vordergrund stehen.

Kapitel 7 widmet sich dann einem quantitativen Vergleich der HAGAR-Daten mit den Ergebnissen einer Reihe von anderen Instrumenten. Diese Vergleiche liefern letztlich verlässlichere Aussagen als es die reinen Präzisions- und Genauigkeitsangaben aus Kapitel 4 allein leisten können. Nur auf Basis einer wohl dokumentierten Datenqualität wird es möglich sein, belastbare wissenschaftliche Aussagen aus den HAGAR-Messungen zu erhalten.

Kapitel 5

Messkampagnen

5.1 Die Messplattform: M-55 „Geophysica“

5.1.1 Technisches

Das von den USA erstmals 1984 für zivile wissenschaftliche Zwecke eingesetzte Höhenforschungsflugzeug NASA ER-2 wurde während der Zeiten des Kalten Krieges als U-2 für Spionagezwecke entwickelt. Die große Flughöhe ermöglichte ein ungestörtes Überfliegen der interessanten Gebiete, die geringe Geschwindigkeit war notwendig, um Photographien vom Boden machen zu können. Auch die russische M-55 hat eine militärische Geschichte, die jedoch im Westen weniger gut dokumentiert ist. Ihre zivile Version trägt jetzt den Beinamen „Geophysica“. Im Gegensatz zum amerikanischen Pendant, das Ende der 50er-Jahre entwickelt wurde, ist die Geophysica jedoch erst ca. 15 Jahre alt.

Im Winter 1996/97 wurde die Geophysica erstmals im Rahmen der wissenschaftlichen Messkampagne APE-POLECAT („Airborne Polar Experiment – Polar Stratospheric Clouds, Leewaves, Chemistry, Aerosols and Transport“) eingesetzt [z. B. *Stefanutti et al.*, 1998, 1999a,b]. Das Höhenflugzeug gehört nach wie vor dem russischen Militär, wird jedoch von einer Firma, dem Myasishchev Design Bureau (MDB) betrieben. Aufgrund ihrer technischen Daten (vgl. Tabelle 5.1) ist das Flugzeug sehr gut für stratosphärische Messungen geeignet. Die große Gipfelhöhe bei vergleichsweise geringer Reisegeschwindigkeit lassen räumlich hochaufgelöste Messungen über einen breiten Höhenbereich zu. Im Gegensatz zur ER-2 kann die Geophysica konstant auf jeder Flughöhe fliegen. Langsame Steig- und Sinkflüge, sowie sogenannte Tauchflüge¹ erlauben die Aufnahme von hochaufgelösten Vertikalprofilen in

¹Im Englischen wird ein Flugmanöver, bei dem zur Aufnahme von Vertikalprofilen

allen Höhenbereichen. Trotz der großen Tragflächen weist die Geophysica eine nur geringe Seitenwindempfindlichkeit auf. Dies ist wichtig, wenn Messkampagnen in Gegenden mit schwierigen Bodenbedingungen stattfinden, wie sie etwa in Feuerland vorliegen. So konnte die Flugplanung zumeist nach rein wissenschaftlichen Gesichtspunkten, ohne allzu große Berücksichtigung des Bodenwetters gemacht werden.



Abbildung 5.1: Die M-55 „Geophysica“ am 16.9.1999 über Ushuaia/Argentinien. Aus Anlass des Internationalen Tages zur Erhaltung der Ozonschicht, der vom Umweltprogramm der Vereinten Nationen (UNEP) in diesem Jahr offiziell in Ushuaia begangen wurde, fand ein 15-minütiger Showflug statt.

Tabelle 5.1: Technische Daten der M55 „Geophysica“.

Länge	22,9 m
Spannweite	37,5 m
maximale Flughöhe	> 21 km
maximales Startgewicht	24.700 kg
maximale Nutzlast	1.500 kg
maximale operative Flugzeit	~ 6 h
Reisegeschwindigkeit	~ 700 km/h
Reichweite	~ 4000 km

aus großer Höhe ab- und anschließend wieder aufgestiegen wird, als „dive“ bezeichnet. Obwohl es im Deutschen nicht gebräuchlich ist, wird zum einfacheren Verständnis daher im Folgenden die deutsche Übersetzung benutzt.

Für den Einsatz als ziviles Forschungsflugzeug wurde die M-55 umgerüstet. Dies beinhaltet neben dem Einbau meteorologischer Sensoren für Druck, Temperatur und Wind auch die Entwicklung der „Unit for Connection with Scientific Equipment“ (UCSE), die allen Instrumenten neben einer einheitlichen Zeit auch eine ganze Reihe von Flugparametern liefert, die im Anhang in Abschnitt F.7 im Einzelnen aufgelistet sind.

Für den Einbau der Instrumente standen zunächst zwei große Buchten unterhalb der Pilotenkanzel zur Verfügung. Zusätzlich konnten in verschiedenen Nischen des zentralen Flugzeugrumpfes, sowie der Seitenrumpfe kleine bis mittelgroße Instrumente eingebaut werden (s. Abbildung 5.2). Ein Instrument (GASCOD-A) wurde in einem kleinen Aufsatz oben auf dem Flugzeug untergebracht. In einer weiteren Ausbaustufe wurde ein großer Dom (s. Abbildung 5.2) aufgebaut, der einem dritten großen Instrument (MIPAS-STR) Platz bietet. Noch in der Planungsphase befinden sich zusätzliche Unterflügelasten, die Platz für weitere Instrumente schaffen sollen, die unter anderem zur Messung von NO, NO_y, ClO und BrO dienen.

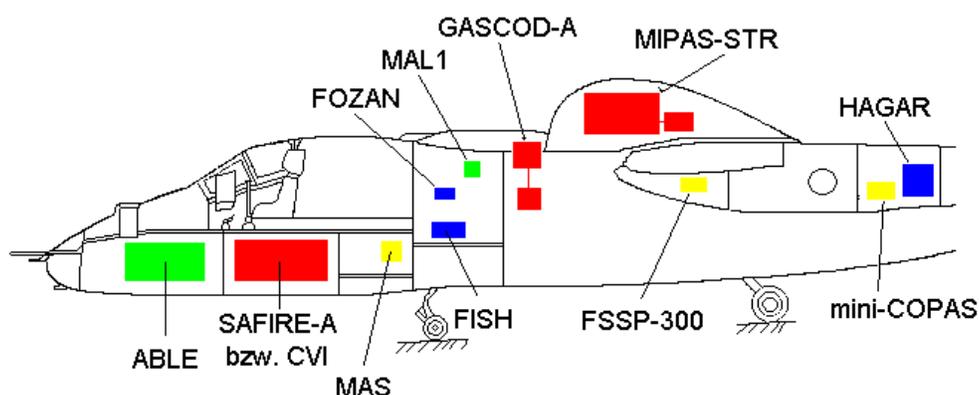


Abbildung 5.2: Schematische Skizze der Geophysica mit den Einbaubuchten für die Instrumente. Im rechten Seitenrumpf – und damit auf der Zeichnung nicht zu sehen – befinden sich noch die Instrumente ACH, FLASH, ECOC und MAL2. Der Dom für MIPAS-STR kann, wenn das Instrument wie während APE-THESEO nicht dabei ist, vollständig entfernt werden.

5.1.2 Instrumentierung

An Bord der Geophysica befinden sich etwa 15 Instrumente, die sehr verschiedene atmosphärische Parameter bestimmen können. Die Nutzlasten während

APE-THESEO und APE-GAIA unterschieden sich zudem entsprechend der wissenschaftlichen Ziele für die beiden Kampagnen. Die Instrumente sollen hier nach Gruppen kurz vorgestellt werden.

Mikrophysik und Aerosole

Zur Standardnutzlast der Geophysica gehören eine Reihe von Instrumenten zur Mikrophysik. ABLE („AirBorne Lidar Experiment“) ist ein Hochleistungslidar, das auf zwei Wellenlängen (532 und 355 nm) das Rückstreu- und Depolarisationsverhältnis der Atmosphäre bestimmt. ABLE kann dabei wahlweise ober- oder unterhalb des Flugzeuges messen. Dazu muss vor dem Flug lediglich der Spiegel im Bug der Geophysica entsprechend ausgerichtet werden. Die vertikale Reichweite beträgt bis zu 20 km, bei einer Vertikalauf- lösung von etwa 100 m [*Fiocco et al.*, 1999].

Von MAL („Microjoule Airborne Lidar“) sind seit APE-GAIA zwei Ver- sionen an Bord. Jeweils eines der kompakten Lidar-Instrumente blickt nach oben bzw. nach unten. Die Reichweite des bei 532 nm arbeitenden Instru- mentes beträgt etwa 2 km [*Matthey et al.*, 2000].

Obwohl MAS („Multi-wavelength Aerosol Spectrometer“) ähnliche Tech- niken wie die eben beschriebenen Fernerkundungsinstrumente verwendet, ist es doch ein in-situ-Instrument. Es untersucht die optischen Eigenschaften (Rückstreuung und Depolarisation) bei verschiedenen Wellenlängen von Teil- chen, die lediglich einige Meter vom Flugzeug entfernt sind [*Adriani et al.*, 1999]. Die drei vorgestellten Instrumente liefern als Ergebnis verschiedene Informationen über Dichte, Form und Größe der Partikel in der Atmosphäre.

Zusätzlich zu diesen Instrumenten waren während APE-THESEO noch drei weitere Aerosolgeräte Teil der Nutzlast. Das FSSP-300 („Forward Scat- tering Spectrometer Probe“) misst die Größenverteilung von Teilchen im Bereich von 0,1 - 10 μm [*Baumgardner et al.*, 1992; *Borrmann et al.*, 2000]. Mini-COPAS („COndensation PARticle System“) zählt Teilchen mit Radien $< 0,4 \mu\text{m}$.

Die Abkürzung CVI („Counterflow Virtual Impactor“) beschreibt zu- nächst nur ein Einlasssystem [*Noone et al.*, 1988]. Dabei wird durch einen definierten Gegenstrom von Gas eine Barriere für Teilchen geschaffen. Diese kann nur von Teilchen mit einer minimalen kinetischen Energie, die bei kon- stanter Fluggeschwindigkeit einer minimalen Größe entspricht, durchdrun- gen werden. Die gesammelten Teilchen werden anschließend verdampft und an zwei Instrumenten analysiert. Ein Lyman- α -Hygrometer bestimmt den Wassergehalt der Teilchen [*Noone et al.*, 1993]. Ein TDL-Instrument („Tuna- ble Diode Laser“) bestimmt den Salpetersäureanteil (HNO_3) im Aerosol über optische Absorption. Zusätzlich kann es auch zur H_2O -Messung konfiguriert

werden [Toci *et al.*, 1999]. Die im Einlass nicht verdampften Teilchen sollten von einem zweiten COPAS-Gerät gezählt werden.

Untersuchung der Chemie der Stratosphäre mit Fernerkundungstechniken

Während APE-GAIA waren zwei große Fernerkundungsinstrumente an Bord. Sowohl MIPAS-STR (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding – STRatospheric aircraft“) als auch SAFIRE-A („Spectroscopy of the Atmosphere using Far-InfraRed Emission – Airborne“) nutzen dabei die Limb-Scan-Technik, bei der Vertikalprofile entlang der gesamten Flugstrecke gewonnen werden können [Piesch *et al.*, 1996; Carli *et al.*, 1999b,a]. Beide Instrumente bestimmen durch spektroskopische Auflösung des Emissionslichtes der Atmosphäre die Konzentrationen einer ganzen Reihe von Spurengasen, die durch verschiedene diskrete Spektrallinien charakterisiert sind. Die Instrumente decken dabei einen unterschiedlichen Frequenzbereich ab, so dass sie sich gut ergänzen. Bei Molekülen mit Emissionslinien in beiden Spektralbereichen ist zusätzlich ein Vergleich der Ergebnisse der Instrumente möglich.

Im Gegensatz zu den eben vorgestellten Instrumenten gewinnt GASCOD-A („Gas Absorption Spectrometer Correlating Optical Differences – Airborne“) die Informationen über verschiedene Spurengaskonzentrationen aus den Absorptionsspektren des Sonnenlichtes (u. a. ClO, O₃) [Petritoli *et al.*, 1999]. Anders als MIPAS-STR oder SAFIRE-A kommt GASCOD-A ohne aktive Steuerung der Sichtlinie aus. Es misst die diffuse Strahlung, wobei in guter Näherung davon ausgegangen wird, dass der Hauptteil des einfallenden Lichtes direkt von der Sonne kommt. Dabei werden zunächst die Säulenhöhen der Spurengase in Blickrichtung zur Sonne („slant columns“) aufgenommen. Wird während eines Sonnenauf- oder -untergangs geflogen, können aus den Säulen bei verschiedenen Sonnenständen Vertikalprofile gewonnen werden.

Untersuchung der Chemie der Stratosphäre mit in-situ-Messinstrumenten

Wasserdampf ist ein wichtiger Tracer für stratosphärische Untersuchungen. Daher sind neben dem CVI, das den Wassergehalt im Aerosol bestimmt, noch drei weitere Instrumente zur Bestimmung von H₂O an Bord der Geophysica. ACH („Airborne Condensation Hygrometer“) misst den Wasserdampf in der Troposphäre bzw. auf Flughöhen unterhalb 8 – 10 km. Als Frostpunkt-Hygrometer funktioniert es nur bei hohen, also troposphärischen Mischungsverhältnissen mit ausreichender Genauigkeit. Oberhalb einer Flughöhe von etwa 8 km wird ACH von FLASH („FLuorescent Aircraft Strato-

spheric Hygrometer“) ergänzt [Yushkov, 1998]. Es bestimmt mit einer Fluoreszenzmethode das H₂O-Mischungsverhältnis in der Gasphase. Um das Bild zu vervollständigen ist mit FISH („Fast In-Situ Hygrometer“) ein Instrument an Bord, das den Gesamtwassergehalt der Atmosphäre (Wasserdampf + Tröpfchen + Eispartikel) mit einer Lyman- α -Technik bestimmt [Zöger *et al.*, 1999].

Das zentrale Spurengas für die Stratosphäre ist Ozon. Daher wird O₃ simultan von zwei verschiedenen Instrumenten gemessen. ECO₃ („Electro-Chemical Ozone Cell“) misst O₃ mit derselben Chemoluminiszenztechnik, welche auch in kommerziellen Ozonsonden zum Einsatz kommt [Kyrö *et al.*, 2000]. Die Zeitauflösung von einigen Sekunden ist damit geringer als bei FOZAN („FAst OZone Analyser“), das jede Sekunde das O₃-Mischungsverhältnis bestimmt [Yushkov *et al.*, 1999].

Das Instrument zur Messung langlebiger Spurengase (HAGAR) ist Hauptthema dieser Arbeit. Folglich wird der Schwerpunkt bei der Darstellung der Messkampagnen auf den für die Tracermessung relevanten Themen liegen.

5.2 Die Testkampagne: APE-ETC

Vom 7.12.1998 bis 5.1.1999 fand in Forlì/Italien die Testkampagne APE-ETC („Extensive Test Campaign“) statt. Dabei wurden sechs Testflüge – jeweils drei mit den Nutzlasten für APE-THESEO bzw. APE-GAIA – durchgeführt. Die Instrumente MIPAS-STR, CVI, Mini-COPAS, FISH und HAGAR) wurden hier erstmals an Bord der Geophysica installiert. Die übrigen Instrumente hatten die Möglichkeit zu überprüfen, ob die technischen Verbesserungen, die seit APE-POLECAT realisiert worden waren, erfolgreich waren. Des Weiteren konnte innerhalb dieser Testphase die Zusammenarbeit der vielen verschiedenen Arbeitsgruppen – insgesamt waren ca. 80 Personen aus zehn Nationen beteiligt – mit der Flugzeugcrew von MDB, sowie den reibungslosen Ablauf von Flugvor- und -nachbereitung geprobt werden.

Für das HAGAR-Team war APE-ETC durch eine Vielzahl zumeist kleinerer technischer Schwierigkeiten gekennzeichnet. Am folgenreichsten war dabei das „Ausbluten“ einer Säule in Kanal 1. Ein Propfen aus Glaswolle, der normalerweise das Packmaterial am Verlassen der Säule hindert, hatte sich durch die Vibrationen im Flugzeug gelöst. Das pulverförmige Material breitete sich nun durch die beiden GSVs über einen Großteil der Verrohrung aus. Die Folge waren Schäden an Flusssensoren und -reglern, sowie den Valco-Ventilen. Daneben bereiteten die Druckregler und verschiedene Leckagen Probleme. Auch am Steuerungsprogramm mussten während der Test-

kampagne noch einige Verbesserungen durchgeführt werden. Vor allem der Empfang der UCSE-Daten erwies sich als schwierig.

Glücklicherweise zeigte die Testkampagne aber auch, dass das Grundkonzept von HAGAR für den Einsatz unter den an Bord der Geophysica herrschenden Bedingungen geeignet war. Trotz der großen Beschleunigungen, Vibrationen und Temperaturänderungen blieb der Kessel dicht und alle tragenden Teile behielten ihre Integrität. Die elektrischen Steckverbindungen und mechanischen Halterungen der im Gerät benutzten Komponenten hielten größtenteils zuverlässig. Das thermische Verhalten, das ja beim LITES-Ballonflug noch die größte Schwachstelle darstellte, erwies sich – dank des neuen aktiven Heiz-/Kühlsystems – als stabil und zuverlässig.

Die Hoffnung, während der Testflüge umfangreiche wissenschaftliche Daten über den mittleren Breiten zu gewinnen, hat sich leider nicht in vollem Umfang erfüllt. Schließlich arbeitete HAGAR während drei Flügen (22.12.1998, 28.12.1998 und 3.1.1999) zumindest für einige Stunden. Die besten Daten konnten dabei während des letzten Fluges aufgezeichnet werden.

5.3 Die tropische Kampagne: APE-THESEO

Eine wissenschaftliche Kampagne der Geophysica fand im Frühjahr 1999 in den Tropen im Rahmen des europäischen THESEO-Projektes statt. Das Akronym APE wurde hier dementsprechend auch von „Airborne Polar Experiment“ zugunsten eines allgemeineren „Airborne Platform for Earth Observation“ verändert.

5.3.1 Wissenschaftliche Fragestellungen

In Kapitel 1.1 wurde bereits auf die besondere Bedeutung der Tropen für die Stratosphäre hingewiesen. Hier findet der Haupteintrag von troposphärischer Luft in die Stratosphäre statt. Grundsätzlich kann man die Frage nach der Rolle der Tropen für den Wasserhaushalt, die Aerosolschicht und die Spurengasverteilung innerhalb der Stratosphäre stellen. Die konkreten Ziele von APE-THESEO wurden wie folgt formuliert²:

1. Auf welche Art und Weise und in welchem Maße dehydrieren überschießende Cumulonimben stratosphärische Luft bzw. Luft die im aufsteigenden Zweig der Hadley-Zirkulation in die Stratosphäre transportiert wird?

²s. dazu <http://ape.iro.e.f.i.cnr.it/thesrat.htm>

2. Wie und in welchem Maße tragen Aerosolteilchen aus dem Bereich der tropischen Tropopause zur Erhaltung der globalen stratosphärischen Aerosolschicht bei?
3. Wie effektiv sind die Mischungsprozesse zwischen tropischer Troposphäre und Stratosphäre bzw. zwischen tropischer und extratropischer Stratosphäre über dem Indischen Ozean im Winter?



Abbildung 5.3: Logo von APE-THESIO.

In Abschnitt 1.1 (s. vor allem Abbildung 1.2) wurden bereits die stratosphärischen Zirkulationsmuster zusammen mit den relevanten, offenen Fragestellungen vorgestellt. Ziel der HAGAR-Messungen war die Untersuchung der in tropischen Breiten auftretenden Mischungsprozesse. Von besonderem Interesse war etwa die horizontale Mischung im Bereich von und oberhalb der tropischen Tropopause. Bei schwacher Mischung könnten sich interhemisphärische Gradienten aus der Troposphäre halten, mit der Folge, dass sich die Luftmassen, die in die nördliche bzw. südliche Stratosphäre transportiert werden, unterscheiden. Aufgrund ihrer guten Manövrierbarkeit auf allen Flughöhen konnte die Geophysica während APE-THESIO den bisher umfangreichsten Tracerdatensatz aus dem Bereich der tropischen Tropopause aufnehmen.

Des Weiteren galt es auch die mögliche Einmischung von Luft aus der untersten Stratosphäre in den Bereich der tropischen Tropopause zu untersuchen und zu quantifizieren. Beide Effekte spielen eine Rolle für die Verteilung von Spurengasen innerhalb der Stratosphäre, da sie die Luft beim Eintritt in die Stratosphäre charakterisieren. Sie sind damit auch wichtig für die Interpretation von Spurengasmessungen hinsichtlich der Transportzeit der Luft innerhalb der Stratosphäre.

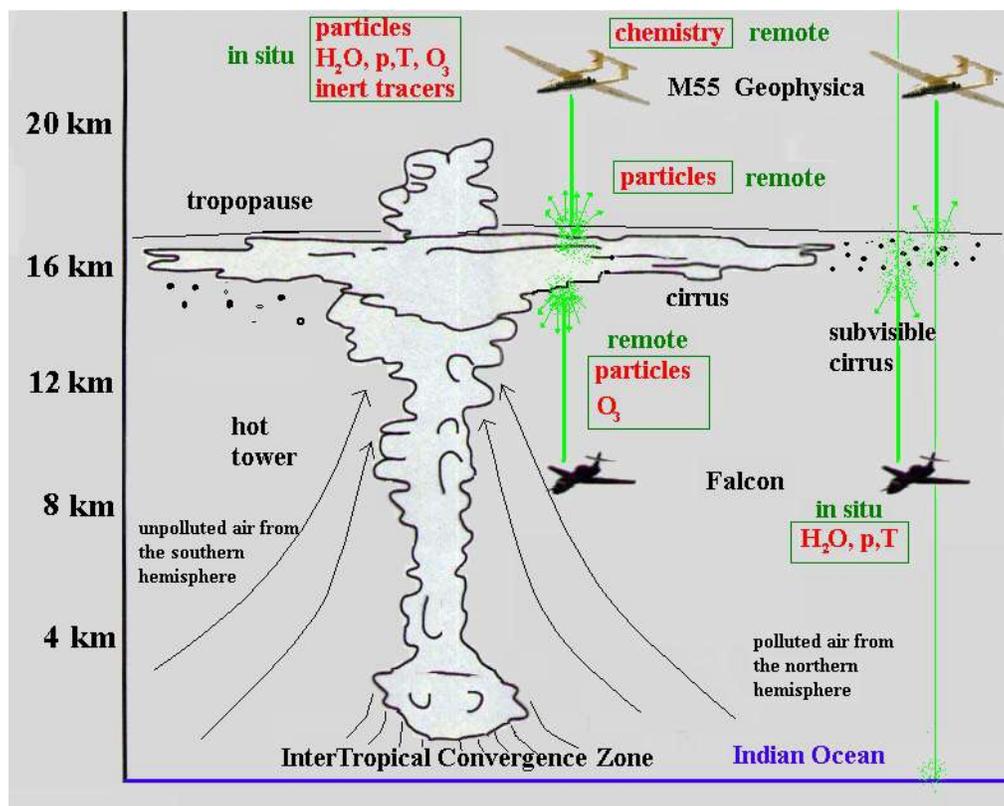


Abbildung 5.4: Flugplanung während APE-THESEO.

5.3.2 Durchführung

APE-THESEO fand vom 15. Februar bis 15. März 1999 auf Mahé/Seychellen statt. Mit einer Position von 4° Süd und 55° Ost liegen die Seychellen nicht nur mitten im Indischen Ozean, sondern zum Zeitpunkt der Kampagne auch im Allgemeinen innerhalb der Innertropische Konvergenzzone (ITZ). Der Inselstaat bietet neben einem modernen internationalen Flughafen auch die weitere Infrastruktur, die zur Durchführung einer solchen Kampagne notwendig ist.

Der Ein- und Ausbau der meisten Instrumente für die Kampagne fand jeweils in Forlì statt. Die Transferflüge sahen dabei auf dem Hin- und Rückflug je zwei Stopps in Amman und Djibouti vor, wo die Geophysica jeweils über Nacht blieb; eine Wartung der Instrumente war nicht vorgesehen. Messungen waren nicht auf allen Etappen erlaubt, da die Regierungen der überflogenen Länder teilweise die Genehmigung dazu versagten.

Neben der Geophysica stand noch ein zweites Flugzeug zur Verfügung. Die Falcon der Flugabteilung des „Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt e. V.“ (DLR) in Oberpfaffenhofen ist ein Business-Jet mit einer maximalen Flughöhe von ca. 13,5 km. Reichweite und Geschwindigkeit liegen jeweils knapp oberhalb der Werte der M-55. Für APE-THESEO war die Falcon neben einer Ausrüstung zur Messung der meteorologischen Parameter vor allem mit dem „Ozone Lidar Experiment“ (OLEX) ausgerüstet [z. B. *Wirth & Renger, 1996; Wirth, 1997*]. Das Lidar arbeitet auf verschiedenen Wellenlängen und kann neben dem Vertikalprofil der optischen Eigenschaften der Aerosole und Wolken mittels der DIAL-Technik auch ein Ozonprofil oberhalb des Flugzeugs messen. Der Vorteil des Instruments ist die Möglichkeit, die Daten mit nur kurzer zeitlicher Verzögerung im Flugzeug zu visualisieren. So können – zusätzlich zu den für sich ja bereits interessanten Resultaten – die während des Fluges gewonnenen Ergebnisse zur Optimierung des Flugablaufs der Geophysica genutzt werden (s. folgender Abschnitt und Abbildung 5.4).

Im übernächsten Abschnitt werden die einzelnen Flüge kurz vorgestellt. Zuvor soll noch ein Eindruck vermittelt werden, welche Fragen es bei der Flugplanung zu berücksichtigen galt.

Flugplanung

Jeder der sieben Messflüge wurde unter dem Gesichtspunkt einer wissenschaftlichen Fragestellung anhand der gegebenen Situation in der Atmosphäre geplant. Zuvor mussten jedoch eine Reihe von technischen und organisatorischen Problemen in Einklang gebracht werden. So gab es technische Einschränkungen einzelner Instrumente: die Lidare arbeiten besser in der Nacht, gar nicht bei Sonnenhöchststand, während GASCOD/A einen Sonnenauf- oder untergang benötigt, um ein Vertikalprofil aufnehmen zu können. Gleichzeitig waren Landungen in der Dunkelheit von Seiten des MDB unerwünscht.

Nicht zuletzt mussten noch allgemeine technische Umstände berücksichtigt werden. Vor dem Start muss die Geophysica ca. zwei Stunden außerhalb des Hangars vorbereitet werden (Treibstoff tanken, etc.). Unter der tropischen Sonne steigt die Innentemperatur des Flugzeuges auf für einige Instrumente kritische Werte an, weshalb ab dem zweiten Flug nur noch vor Sonnenaufgang gestartet wurde. Schließlich brauchte man auch noch eine Überflüge-

nehmung für die Lufträume der anliegenden Staaten. Insbesondere Indien verweigerte das Überfliegen des eigenen Hoheitsgebietes mit einem ehemaligen russischen Spionageflugzeug voller Instrumente.

Auch die Wahl des Flugprofils unterlag verschiedenen Einschränkungen. So bevorzugten die in-situ-Instrumente langsame Tauchflüge, um räumlich hoch aufgelöste Vertikalprofile zu erhalten; das CVI funktioniert wiederum nur bei einer konstanten Flughöhe bzw. einem konstanten Anstellwinkel des Flugzeugs optimal. Die hier aufgeführte Liste der Einflussfaktoren für die Flugplanung ist weder vollständig noch streng nach Prioritäten sortiert. Sie soll lediglich einen Eindruck von der Komplexität der Durchführung eines solchen wissenschaftlichen Projektes vermitteln.

Der ausgearbeitete Flugplan stellte nur ein Gerüst für den tatsächlichen Flug dar. Während des Fluges saß der für die Flugplanung verantwortliche Wissenschaftler („Hauptexperimentator“) in der DLR Falcon, um anhand der aktuellen Situation die Geophysica über Funk in interessante Gebiete zu lenken. Wichtig waren hier vor allem die während des Fluges visualisierbaren Ergebnisse des OLEX, über die die genaue Höhe von sichtbaren und unsichtbaren Cirren detektiert werden können. So war es möglich, dass die Geophysica mikrophysikalische Messungen in Cirrusschichten von nur 300 m Dicke durchführen konnte.

Die Flüge

Mit Ausnahme des vierten Fluges, als auf die Falcon verzichtet werden musste, hoben Geophysica und Falcon an jedem Flugtag kurz nacheinander ab. Aufgrund ihrer höheren Reisegeschwindigkeit, war dabei die Falcon räumlich immer ein Stück voraus, um die Geophysica optimal dirigieren zu können.

In Abbildung 5.5 sind die Routen der Flüge aufgezeigt. Die detaillierten Profile der Flüge sind in Anhang C angefügt. An dieser Stelle sollen nur kurz die Fragestellungen für die einzelnen Flüge vorgestellt werden. Bei der Darstellung der Ergebnisse von HAGAR werden dann weiter notwendige Details aufgeführt werden.

- Der erste Flug vom 19.2.1999 beschrieb einen Nordwest-Südost-Schnitt durch die ITZ mit der Möglichkeit vertikale Tracerprofile am Endpunkt des Schnitts und über Mahé zu messen.
- Der zweite Flug vom 24.2.1999 diente der Untersuchung der Eigenschaften des Ambosses eines großen Cumulonimbus. Die Geophysica durchflog dabei eine Reihe von dünnen Cirrusschichten, drang jedoch nicht deutlich in die Stratosphäre vor.

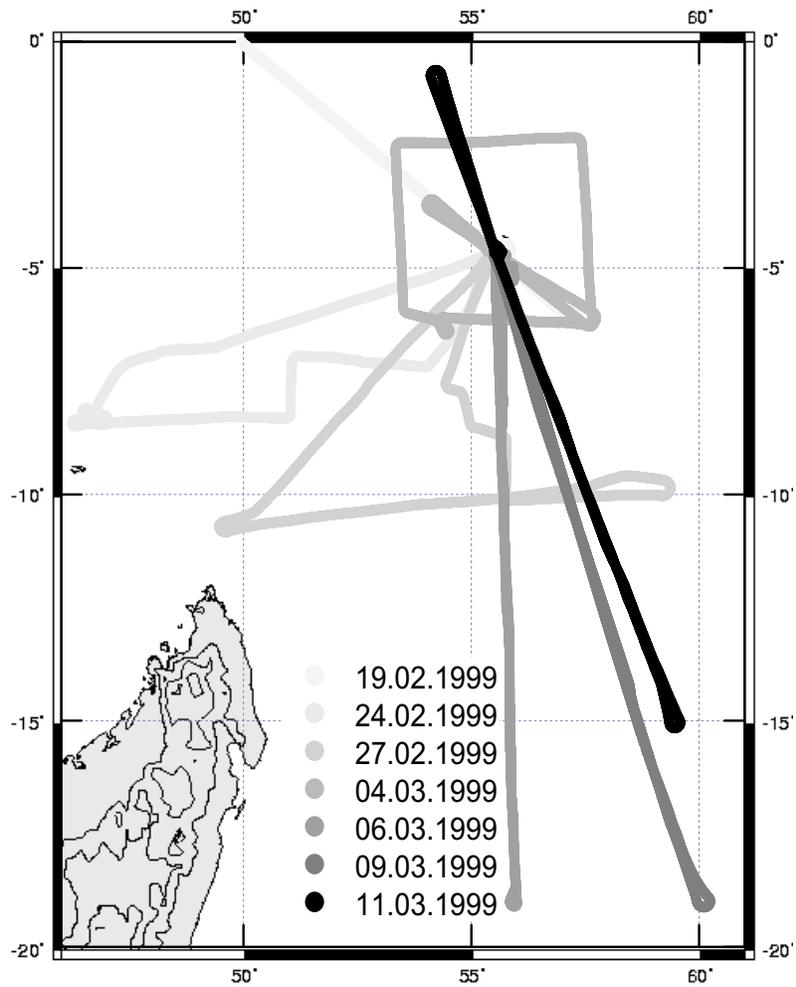


Abbildung 5.5: Flugrouten während APE-THESEO.

- Da zum Zeitpunkt des dritten Fluges (27.2.1999) keine konvektive Aktivität in Flugreichweite war, konzentrierte sich dieser Flug auf die Untersuchung von dünnen Cirrusschichten. Zum Ende des Fluges ging die Geophysica auf Maximalhöhe, um auch ein Vertikalprofil beim Abstieg aus der Stratosphäre aufzunehmen.
- Für den vierten Flug vom 4.3.1999 stand das OLEX-Lidar aufgrund technischer Probleme nicht zur Verfügung. Der Flug fand daher ohne Unterstützung der DLR Falcon statt. Ziel war wiederum die Untersuchung von Cirren in der Tropopausenregion, sowie ein Vergleich mit den von OLEX während des vorangegangenen Fluges beobachteten Strukturen im O₃-Signal.
- Der fünfte Flug vom 6.3.1999 sah die Untersuchung von Tracergradienten in den südlichen Tropen vor. Die Geophysica stieg dabei in südlicher Richtung stufenweise bis 19 km auf, um dann am Wendepunkt einen Tauchflug bis zur Troposphäre zu absolvieren. Der Rückflug fand auf der maximal erreichbaren Flughöhe statt.
- Die Untersuchung der tropischen Zyklone „Davina“ war Ziel des sechsten Fluges vom 9.3.1999. Die Falcon fand einen „Eingang“, um in das Auge des Wirbelsturmes fliegen zu können. Die Geophysica wurde von der Falcon an das obere Ende der Wolken geleitet, um dort die Eigenschaften der ausströmenden Luftmassen zu bestimmen.
- Der siebte und letzte Flug vom 11.3.1999 war der Untersuchung der Verteilung von Tracern gewidmet. Die Geophysica kreuzte die ITZ und sammelte Vertikalprofile nördlich, südlich und innerhalb der ITZ.

5.3.3 Bilanz der HAGAR-Aktivitäten

Es würde den Rahmen und das Ziel dieser Arbeit verfehlen, die Erfolgsbilanz der einzelnen Instrumente und Flüge aufzulisten. Daher wird ab hier allein von HAGAR die Rede sein. Während sechs Flüge der sieben Flüge funktionierte HAGAR ohne größere Schwierigkeiten und zeichnete während über 30 Flugstunden verwertbare Daten auf.

Dennoch gab es einige wenige technische Schwierigkeiten, die Datenverluste vor allem bei den Transferflügen zur Folge hatten.

- Während des Transferfluges auf die Seychellen sorgte ein Problem der Software bei der Datenaufzeichnung für einen Datenverlust nach der ersten Flugstunde. Soweit es abzuschätzen ist, arbeitete das Instrument

aber wahren der drei Etappen ohne groere technische Schwierigkeiten. Die Tests nach der Ankunft in Mahe fielen positiv aus.

- Die hektisch durchgefuhrte Ausbesserung der Software zog einen weiteren Fehler nach sich, der auch beim ersten Flug zu einem totalen Datenverlust fuhrte.
- Es stellte sich heraus, dass die SF₆-Chromatographie, die noch mit 90 s Zeitauflosung arbeitete, keine stabilen Ergebnisse lieferte. Die SF₆-Ergebnisse der Fluge 2 und 3 mussen daher vollstandig verworfen werden. Die Chromatographie wurde dann auf eine Zeitauflosung von 45 s beschleunigt, bei einer gleichzeitig deutlich verbesserten Prazision (s. Kapitel 2.3.4).
- Auf dem Rucktransferflug fiel direkt nach dem Start erneut ein GSV aus, so dass auch hier keinerlei Daten gewonnen werden konnten.

Anzumerken ist, dass HAGAR den fur empfindliche Instrumente widrigen Umweltbedingungen auf den Seychellen standhielt. Das Konzept eines hermetisch abgeschlossenen Kessels erwies sich ein weiteres mal als erfolgreich. So schutzte der Kessel alle sensiblen Teile des Instrumentes vor den groen Mengen an Kondenswasser, die sich nach der Landung im Flugzeug sammelten. Ahnliches galt fur die feuchtwarme und salzige Luft am Boden. Die kurzen Phasen der Reparatur, bei denen das Instrument geoffnet werden musste, fuhrten jedoch zu kleineren, unerwarteten Problemen. So bildete sich eine Oxidschicht auf einigen elektrischen Kontakten, wodurch das Auslesen der Temperatursensoren durch die Heizungselektronik unmoglich wurde; die Stecker mussten durch hochwertigere ersetzt werden.

5.4 Die antarktische Kampagne: APE-GAIA

5.4.1 Fragestellungen

Auch der Planung von APE-GAIA lagen verschiedene wissenschaftliche Ziele zugrunde. Die grote Rolle spielte die Untersuchung der chemischen Zusammensetzung des sudpolaren Vortex wahrend der Phase der maximalen Ozonzerstorung im sudlichen Fruhling. Die beiden Fernerkundungsgerate MIPAS-STR und SAFIRE-A sind in der Lage, entlang der Flugstrecke ein zweidimensionales Bild der an der Chemie des Ozonabbaus beteiligten Molekule und Radikale zu liefern.



Abbildung 5.6: Logo von APE-GAIA.

PSCs spielen eine zentrale Rolle bei der chemischen Aktivierung des stratosphärischen Chlor und bilden die Voraussetzung für den radikalen Ozonabbau im Frühling. Zur Bildung von PSC-Teilchen muss die Temperatur in der Stratosphäre eine Grenztemperatur von -80°C unterschreiten [z. B. *Solomon*, 1999]. Solche Bedingungen können entweder durch die allgemeine meteorologische Situation oder aber lokal durch Leewelleneffekte hervorgerufen werden. Dabei verursachen troposphärische Luftmassen, die auf ein Hindernis wie die Bergkette auf der antarktischen Halbinsel stoßen, eine Anhebung der Luft, die bis in die Stratosphäre reicht. Ein schnelles und daher nahezu adiabatisches Aufsteigen kann zu einer Abkühlung der Luft um einige Grad führen, so dass die Grenztemperatur für PSC-Bildung unterschritten wird. Die Untersuchung der mikrophysikalischen Eigenschaften solcher durch Leewellen induzierten PSCs war ein weiteres Ziel der Mission.

Im Gegensatz zur Stratosphäre der mittleren Breiten, wo der Luftmassenaustausch entlang der Isentropen sehr effektiv ist, ist der winterliche Polarwirbel stark von der restlichen Stratosphäre isoliert. Der Wirbelrand stellt eine Transportbarriere dar (vgl. Abschnitt 1). Neben der Frage nach der Quantifizierung des Transportes durch diese Barriere ist auch die vertikale Struktur von Interesse. Es sollte untersucht werden wie stark die Mischung in verschiedenen Höhen des Wirbelrandes ist.

Filamente können eine wichtige Rolle für den Transport von Luftmassen

aus dem Vortexinneren in die mittleren Breiten spielen. Es ist noch offen, in welchem Maße der Transport solcher, zum Teil ozonarmer Luft die stratosphärische Ozonschicht der mittleren Breiten beeinflussen kann.

Die experimentelle Untersuchung von solchen Filamenten und Austauschprozessen am Wirbelrand ermöglicht auch die Überprüfung von Modellen. Zusammen mit diesen Modellen kann so ein umfassenderes Verständnis für den stratosphärischen Luftmassentransport gewonnen werden.

5.4.2 Durchführung

APE-GAIA fand vom 15.09. - 15.10.1999 in Ushuaia/Argentinien statt. Ushuaia, das auf der Insel Feuerland an der Südspitze Argentiniens gelegen ist, ist mit einer Position von 54°S und 69°W die südlichste Stadt der Erde. Mit einer Entfernung zur antarktischen Halbinsel von weniger als 1000 km ist es ein idealer Ausgangspunkt zur Untersuchung des südlichen Polarwirbels. Der neue Flughafen befindet sich auf einer Halbinsel im Beagle-Kanal, der die südliche Grenze Argentiniens zu Chile darstellt. Der Kanal verläuft ebenso wie die Landebahn in Ost-West-Richtung und ist auf beiden Seiten von hohen Bergen begrenzt, die die natürliche westliche Windströmung noch kanalisieren.

Ausgangs- und Endpunkt der Kampagne war Sevilla/Spanien. Das Ausweichen der Basis von Italien nach Südspanien war notwendig, da Ushuaia von Forlì aus nicht in vier Flugetappen zu erreichen ist. Die Transferflugroute sah drei Stopps auf der Isla do Sal (Kapverdische Inseln), in Recife und in Porto Alegre (beide Brasilien) vor. In Recife blieb die Geophysica einige Nächte, um den Wissenschaftlern die Möglichkeit zur Wartung der Instrumente zu geben. Diese Möglichkeit wurde vom HAGAR-Team jedoch nicht in Anspruch genommen. Die HAGAR-Konfiguration macht es möglich, das Instrument für eine Woche und vier Flugetappen ohne jede Wartung sicher und erfolgreich betreiben zu können.

Flugplanung

Im Gegensatz zu APE-THESEO wurden während APE-GAIA die Flüge vollständig im Voraus geplant. Basis für diese Planung waren vor allem zwei Modelle, die auf den Rechnern der Universität von L'Aquila in Italien laufen. Das erste liefert hochaufgelöste Vorhersagekarten der potenziellen Vorticity (PV) mittels einer Rückwärtstrajektorien-Technik (RDFT)³. Dabei wird über den interessanten Bereich ein Gitter von Punkten gelegt. Für alle Gitterpunkte werden nun mit den Windfeldern des Europäischen Zentrums für

³engl.: Reverse Domain Filling Trajectories, kurz RDFT

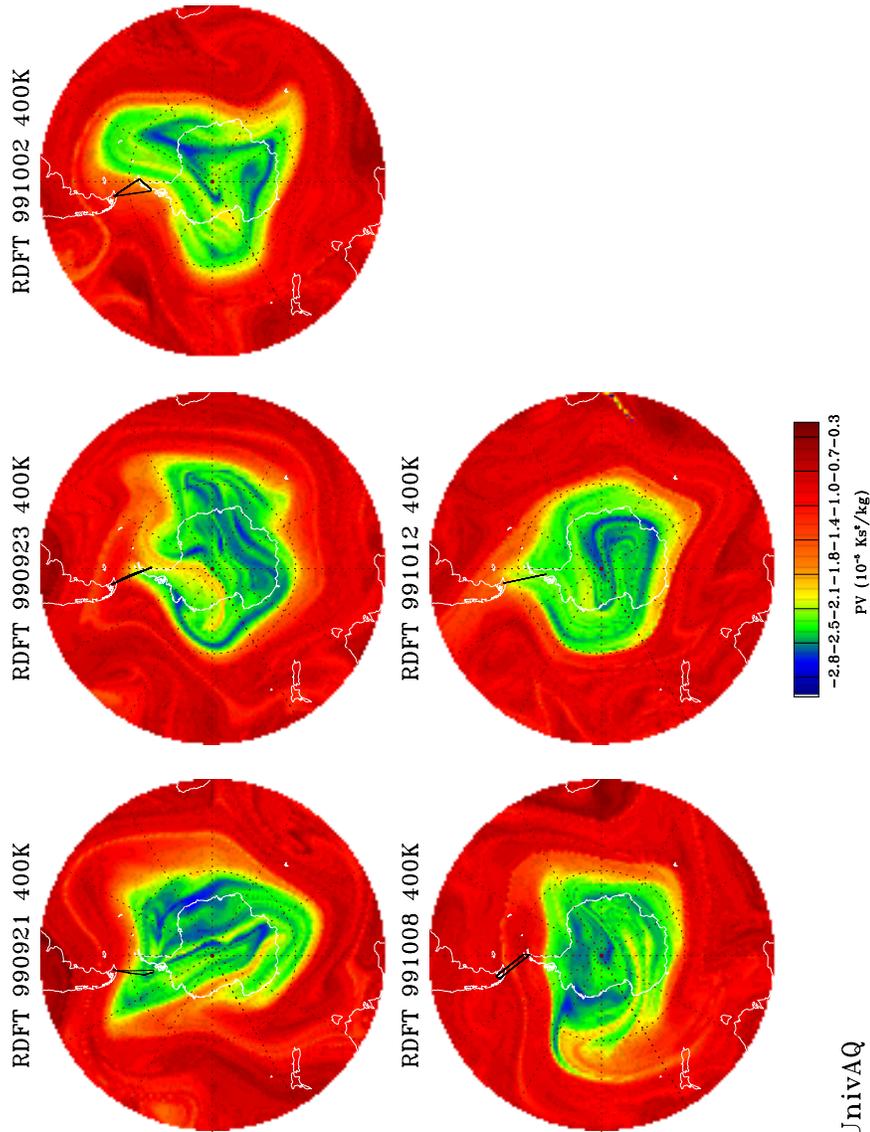


Abbildung 5.7: Hochaufgelöste PV-Analyse-Karten des südlichen Polarwirbels auf der 400 K-Isentrope an den fünf Flugtagen während APE-GAIA. Die Karten sind so gezeichnet, dass die Südspitze Feuerlands oben liegt. Die Flugrouten sind schwarz eingezeichnet

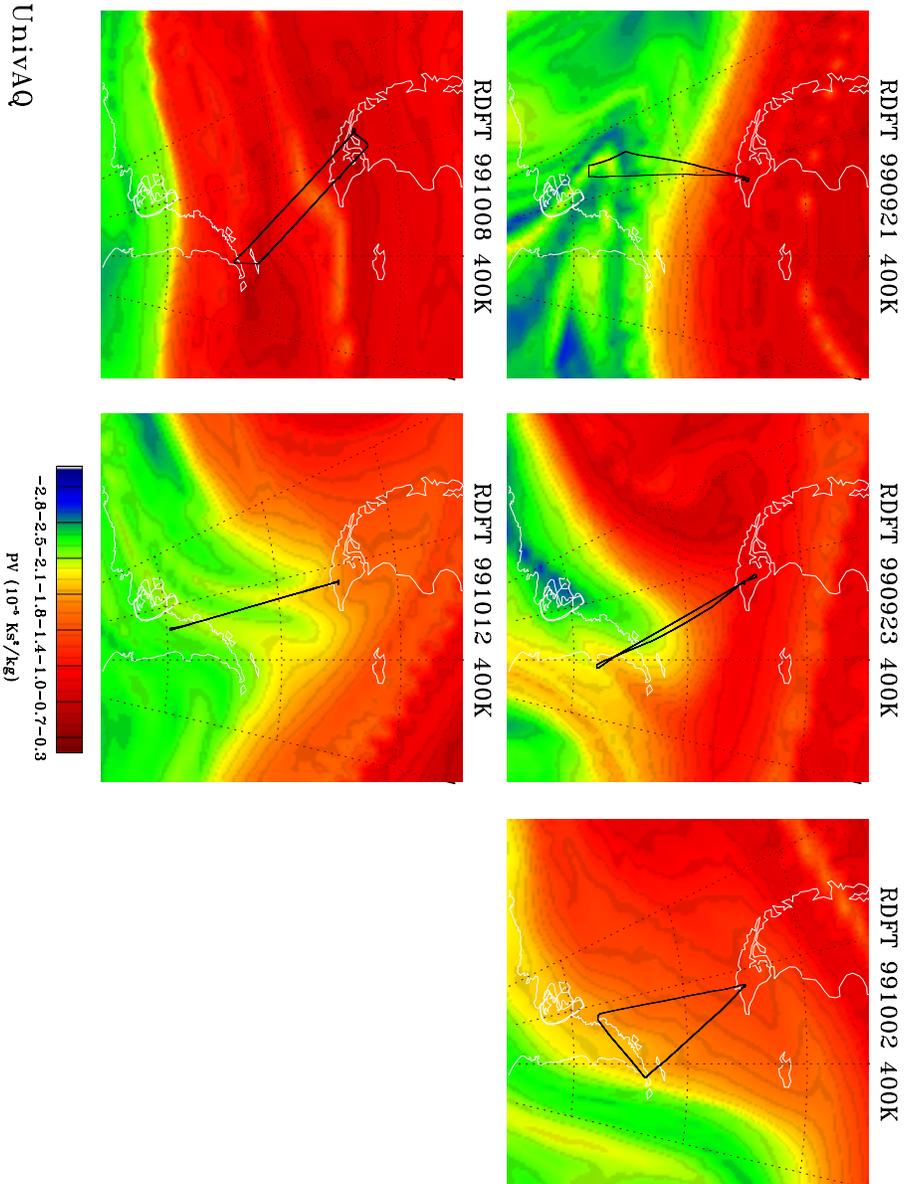


Abbildung 5.8: Zoom der 400 K PV-Karten aus Abbildung 5.7 auf den für die Flüge der Geophysica relevanten Bereich. Die Flugrouten sind wiederum schwarz eingezeichnet.

mittelfristige Wettervorhersage (ECMWF) Rückwärtstrajektorien über einige Tage gerechnet. Dabei wird davon ausgegangen, dass die PV über einige Zeit (Tage) hinweg eine Erhaltungsgröße ist; die Trajektorien sind dann also Wege konstanter PV. Durch die Einbindung der Informationen aus mehreren Tagen können mit dieser Technik Strukturen aufgelöst werden, die deutlich kleiner sind als die Maschenweite des ECMWF-Modells. Kapitel 10 wird sich unter anderem der Frage widmen, inwieweit diese Technik in der Lage ist die Realität abzubilden.

Die RDFT-Technik kann sowohl zur Prognose als auch zur Analyse eingesetzt werden. Bei der Prognose starten die Rückwärtstrajektorien auf Basis der ECMWF-Vorhersagen in der Zukunft und werden von dort aus rückwärts gerechnet. Für die realistischere Analyse werden die Analysen des ECMWF als Eingangsdaten zu Grunde gelegt.

Form und Position des Polarwirbels waren für die Flugplanung von besonderer Bedeutung, da er nicht immer in der Reichweite der Geophysica lag. Gleichzeitig liefert die Analyse der Daten wertvolle Hinweis zur Klassifizierung der Luftmassen, da sie die Grenze des Wirbels nachzeichnet [Sutton *et al.*, 1994]. In Abbildung 5.7 ist die Lage des gesamten Polarwirbels während der fünf Flüge als PV-Karte dargestellt. Abbildung 5.8 zeigt jeweils den für die Kampagne relevanten Teilausschnitt.

Für die Vorhersage von Leewellen ist eine exakte und zuverlässige Vorhersage der meteorologischen Parameter bis in große Höhen notwendig. Während der Kampagne wurde auf den Rechnern an der Universität von L'Aquila ein mesoskaliges Modell (MM5) betrieben, das an der Penn State University/National Center for Atmospheric Research (PSU/NCAR) entwickelt wurde [z. B. *Dudhia*, 1993]. Das Modell ist unter anderem in der Lage, PSC-Vorhersagen bis in eine Höhe von 15 hPa zu machen.

Bodenmessungen

Die Messungen der Geophysica wurden durch eine ganze Reihe von bodengebundenen Messungen ergänzt. Die Messungen umfassen Radiosondenaufstiege, Ozonsondenaufstiege, sowie Säulen bzw. Vertikalprofilmessung diverser Spurengase. Gemessen wurde an verschiedenen Antarktisstationen, in Ushuaia und dem benachbarten Rio Gallegos sowie an einigen Stationen entlang der Transferflüge.

Die Flüge

Vor den wissenschaftlichen Missionen fanden noch zwei zusätzliche Flüge statt. Aus Anlass des internationalen Tages zur Erhaltung der Ozonschicht

fand am 16.9.1999 ein 15-minütiger Showflug statt. Die Geophysica kreiste dabei in sehr geringer Höhe über dem Beagle-Kanal (s. Abbildung 5.1). Für einige Geräte – so auch HAGAR – war dies eine Möglichkeit einige kleinere Tests durchzuführen. Da die meisten Instrumente während des Transferfluges Sevilla - Ushuaia nicht installiert waren bzw. nicht gemessen hatten, wurde den Teams am 19.9.1999 während eines 1,5-stündigen Testfluges die Möglichkeit gegeben, die Funktion ihrer Instrumente an Bord des Flugzeuges zu überprüfen. In den folgenden vier Wochen fanden dann fünf wissenschaftliche Flüge statt:

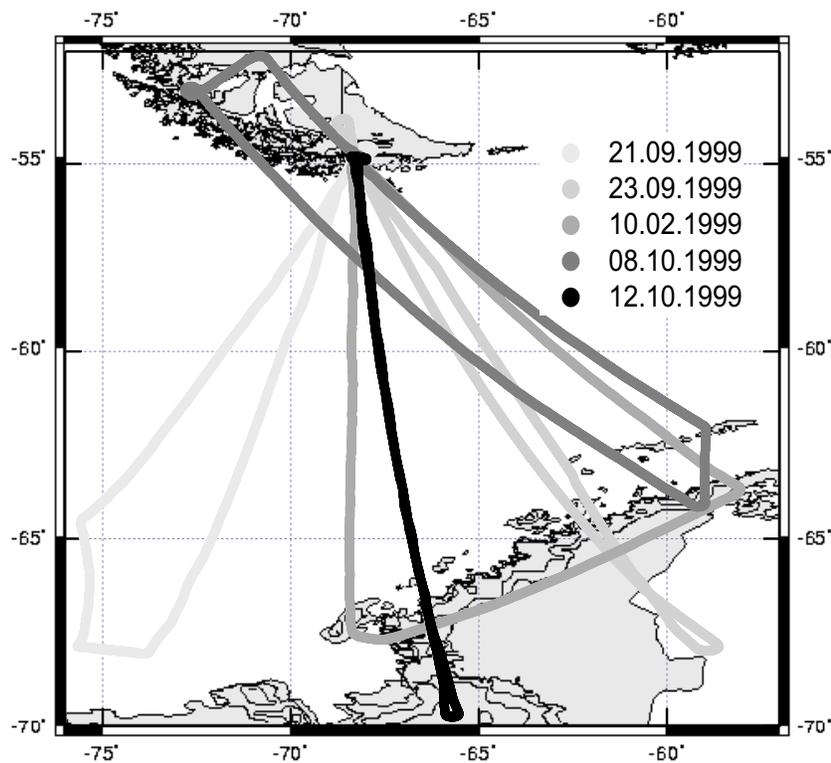


Abbildung 5.9: Routen der fünf wissenschaftlichen Flüge während APE-GAIA.

- Die beiden ersten Flüge vom 21.9. und 23.9.1999 sollten die Chemie des Wirbels in der frühen Phase der Ozonzerstörung charakterisieren. Während beider Flüge wurde der Wirbel erreicht, wobei der Wirbelrand jeweils auf verschiedenen Höhen durchflogen wurde. Beim Flugabschnitt in den Wirbel hinein wurde versucht, die Flughöhe der Geophysica einer

vorhergesagten Isentropen anzupassen, was nicht ganz erreicht wurde. Das Flugprofil sah im Wirbel einen Tauchflug vor, der am 21.9.1999 bis zur Tropopausenregion hinunterreichte, um Vertikalprofile im Wirbel zu erhalten. Damit konnten zum ersten Male hochaufgelöste Vertikalprofile über einen solch großen Höhenbereich aufgenommen werden, denn das amerikanische Höhenforschungsflugzeug ER-2 flog bei keiner der bisherigen Antarktissionen innerhalb des Wirbels unterhalb ca. 14 km.

Da beim ersten Flug MIPAS-STR durch einen Fehler in der Steuerung ernsthaft beschädigt worden war, konnte das Instrument nicht rechtzeitig für den zweiten Flug vorbereitet werden. Die MDB-Crew demontierte daraufhin den MIPAS-Dom. Aufgrund der verbesserten Aerodynamik und des eingesparten Gewichts konnte die Geophysica bei diesem Flug dann ca. 1 km höher steigen und eine maximale Flughöhe von 21 km erreichen. Bei allen weiteren Flügen war MIPAS-STR wieder an Bord.

- Für den 2.10.1999 hatte das MM5 der Universität L'Aquila ein Leewellenereignis mit PSC-Bildung südöstlich der Berge auf der antarktischen Halbinsel vorhergesagt. Die Flugroute beschrieb ein Dreieck, wobei der zweite Schenkel auf der Leeseite parallel zur Bergkette verlief. Die Instrumente an Bord der Geophysica konnten dann in-situ-Messungen in von Leewellen induzierten PSCs machen.
- Zum Zeitpunkt des vierten Fluges vom 8.10.1999 war der Polarwirbel außerhalb der Reichweite der Geophysica. Jedoch zeigte sich in der PV-Vorhersage ein Filament mit Luft, die vom Polarwirbel abgetrennt worden war. Die Flugroute an diesem Tag führte in südöstlicher Richtung, um das Filament in zwei Höhenbereich rechtwinklig zu durchfliegen (s. Kapitel 10).
- Analog zu den ersten beiden Flügen führte der letzte Flug am 12.10.1999 wieder in den Wirbel, um die chemische Zusammensetzung des südlichen Polarwirbels in der späten Phase des maximalen Ozonabbaus zu untersuchen.
- Ein für den 14.10.1999 geplanter sechster Flug musste leider aufgrund äußerst widriger Bodenbedingungen in Ushuaia abgesagt werden.

Bei der Planung von APE-GAIA waren Messungen auf den Rücktransferflügen vorgesehen. Für die Hintransferflüge hatten die meisten Arbeitsgruppen auf den Einbau der Instrumente in Sevilla verzichtet; HAGAR arbeitete

jedoch auch auf diesen Flugetappen. Der lange Flug, der ja auch durch die Tropen führen musste, stellt ein großes Risiko für die Geräte dar, das man vor Beginn der Kampagne nicht eingehen wollte.

5.4.3 Bilanz der HAGAR-Aktivitäten

Im Gegensatz zu den Seychellen, wo die Außentemperaturen stets zwischen 25°C und 30°C pendelten, lag die Hangartemperatur in Ushuaia für gewöhnlich zwischen 0°C und 8°C. Dies machte es möglich, HAGAR im Rumpf der Geophysica im Dauerbetrieb laufen zu lassen. Erfahrungswerte zeigen, dass stets geheizte und gespülte Säulen und Detektoren sich positiv auf die Qualität der Messungen auswirken. So arbeitete das Instrument während der ganzen Kampagne stabil und zufriedenstellend.

Die Verwendung eines neuen A-D-Wandlers zur Aufzeichnung des LICOR-Signals erwies sich als erfolgreich. Die Präzision der CO₂-Messungen verbesserte sich um einen Faktor von mehr als zwei (vgl. Abschnitte 4.3.4 und B.2).

Am Rande dieser erfolgreichen Bilanz sind jedoch noch einige Ausnahmen aufzuführen:

- Die Präzision der SF₆-Messungen war mit ca. 5 % wiederum nicht zufriedenstellend. Da ein Neuabstimmen des Chromatographieablaufs keine Abhilfe schaffen konnte, wurde nach dem dritten Flug die Vorsäule von Kanal 1 durch eine längere ersetzt. Die Tests am Boden verliefen sehr vielversprechend, im Flugzeug jedoch zeigte sich eine am Boden nicht reproduzierbare elektrische Störung im Signal von Detektor 1. Da die SF₆-Signale relativ klein sind, führte dies zu Schwierigkeiten bei der Auswertung, die die Entwicklung der neuen Integrationsmethode mit Gauß-Kurven notwendig machte.
- HAGAR sollte während aller acht Transferflugetappen an Bord der Geophysica messen. Der Flugablauf wurde mittels des Konfigurationseditors so optimiert, dass während der gesamten Strecke Sevilla - Ushuaia ohne Nachfüllen der drei Gasflaschen gemessen werden konnte. Dazu musste allerdings ein Trick angewendet werden. Das im HAGAR verwendete Trägergas (1 % CH₄ in N₂) wird nur in Flaschen mit Maximaldruck von 150 bar ausgeliefert. Für die Transferflüge wurde daher eine Flasche mit 5 % CH₄ und eine 300 bar N₂-Flasche benutzt, um in der Flugflasche ein 1 %-Gemisch mit ca. 270 bar zu erzeugen. Unglücklicherweise war die 5 %-Flasche mit SF₆ in der Größenordnung von einigen Hundert ppt kontaminiert. Folge hiervon war eine stark

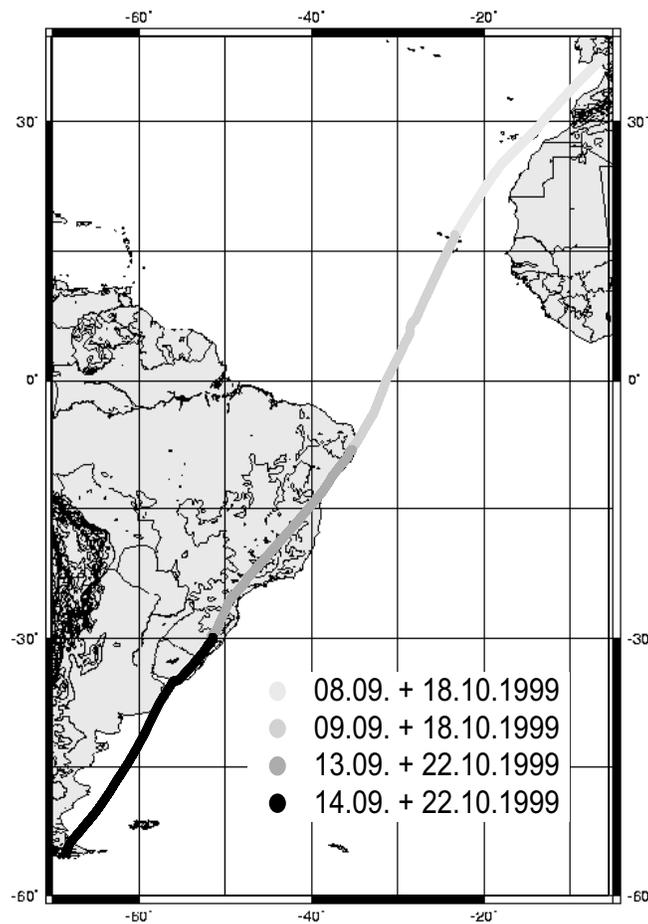


Abbildung 5.10: Routen der jeweils vier Transferfluetappen von Sevilla/Spanien nach Ushuaia/Argentinien.

erhöhte Basislinie und ein kompletter Datenverlust auf Kanal 1 (SF_6). Auf Kanal 2 wurden teilweise verwertbare Daten aufgezeichnet, wobei die größten Datenverluste bei N_2O und Halon-1211 auftraten.

- Während der Hintransferflüge war der Chromatographiezyklus durch ein Versehen so konfiguriert, dass zweimal pro Zyklus Trägergas in das LI-COR eindrang. Dies führte dazu, dass ca. 50 % der Datenpunkte unbrauchbar sind. Doch ließen sich die Daten weiterhin auswerten und pro 90 s-Zyklus vier unabhängige – d.h. über 10 s gemittelte – Werte gewinnen.
- Obwohl kein Öffnen oder Schließen der HAGAR-Gasflaschen durch das

MDB-Team vorgesehen war, wurden diese doch beim Rücktransferflug nach der Landung in Recife geschlossen und nicht wieder geöffnet. Somit existieren keine Daten für die letzten beiden Etappen von Recife nach Sevilla. Zudem war während der Rücktransferflüge durch einen Füllfehler in Frankfurt die Flasche mit Referenzgas um ca. 10 % verdünnt. Dies machte vor allem die Auswertung der CO₂-Daten für diese Flüge schwierig.

Insgesamt konnte HAGAR während APE-GAIA ca. 60 Flugstunden lang Daten aufzeichnen, wobei vor allem die wissenschaftlichen Flüge von Ushuaia aus sehr erfolgreich waren.

Kapitel 6

Qualitative Bewertung der HAGAR-Messungen

Das in Kapitel 1 aufgezeichnete aktuelle Verständnis für den stratosphärischen Spurengastransport basiert zu einem großen Teil auf der Messung von Spurengasen bzw. Modellergebnissen, die mittels Spurengasmessungen getestet wurden. Zielsetzung bei der Entwicklung von HAGAR als neues Instrument war es, dieses Bild noch an einigen Stellen verfeinern oder vervollständigen zu können. Um dies erreichen zu können, mussten konkrete Voraussetzungen in drei Bereichen erfüllt werden.

- geeignete Auswahl der gemessenen Substanzen
- hohe Präzision der Messungen
- genügende räumliche Auflösung der Messungen

Um umfangreiche Informationen über stratosphärischen Transport zu erhalten, ist die Auswahl der gemessenen Substanzen sehr wichtig. Angestrebt wird ein Ensemble von Spurengasen, die eine möglichst heterogene Quellen- und Senkenverteilung haben, sowie ein breites Spektrum an Lebenszeiten abdecken. Die stratosphärische Lebenszeit eines Stoffes wird dabei wie folgt definiert:

$$\tau_{strat.} = \frac{\text{Stoffmenge in der gesamten Atmosphäre}}{\text{Senke in der Stratosphäre}} \quad (6.1)$$

Dabei ist zu beachten, dass sich die stratosphärische Lebenszeit $\tau_{(strat.)}$ im Allgemeinen von der lokalen Lebenszeit an einer Stelle in der Stratosphäre unterscheidet. Alle hier untersuchten Verbindungen haben ihre Quellen

ausschließlich in der Troposphäre, sieht man einmal von der geringen, aber wohldefinierten stratosphärischen CO_2 -Quelle aus der Methanoxidation ab. N_2O , F12, F11 und Halon-1211 werden in der Stratosphäre vor allem durch UV-Licht (Photolyse) zerstört. In der Troposphäre sind sie mit Ausnahme von Halon-1211 stabil, wodurch ihre stratosphärischen Lebenszeiten mit den atmosphärischen identisch sind. Die Lebenszeiten der gemessenen Substanzen reichen von 122 Jahren (N_2O) über 87 Jahre (F12) und 45 Jahre (F11) bis zu 24 Jahren (Halon-1211) [Volk *et al.*, 1997]. Aufgrund der Abbaumechanismen nehmen die Mischungsverhältnisse dieser Spurengase mit zunehmender Höhe ab, wobei die Verbindungen mit den kürzesten Lebenszeiten die größten Vertikalgradienten aufweisen. Für eine direkte Bestimmung der stratosphärischen Transportzeit (Alter) sind diese Verbindungen jedoch ungeeignet. Für eine solche Analyse wären detaillierte Kenntnisse über die lokalen Lebenszeiten der Stoffe notwendig. Des Weiteren unterliegen die troposphärischen Hintergrundmischungsverhältnisse ebenfalls einem signifikanten zeitlichen Trend [z. B. Montzka *et al.*, 1996, 1999], der dem stratosphärischen Abbau überlagert ist.

Für die Altersbestimmung werden Spurengase eingesetzt, deren atmosphärische Lebenszeit so hoch ist, dass die vorhandenen Senken über den relevanten Zeitraum von etwa einer Dekade vernachlässigt werden können. SF_6 ist mit einer Lebenszeit zwischen 800 und 3200 Jahren [Ravishankara *et al.*, 1993; Morris *et al.*, 1995] ebenso geeignet wie CO_2 für das keine stratosphärischen Senken bekannt sind. Die Vertikalprofile dieser beiden Tracer werden allein durch den troposphärischen Trend und den atmosphärischen Transport bestimmt (vgl. Abschnitt 1.2).

Um dynamische Vorgänge anhand von Tracerkorrelationen quantifizieren zu können, sind Messungen hoher Präzision vonnöten. Für die Messung von N_2O , F12 und F11 etwa sollten die Präzisionen und die Reproduzierbarkeit von Flug zu Flug besser als 2 % sein. Moleküle mit kürzerer Lebenszeit (z. B. Halon-1211) bieten größere Gradienten, weshalb auch Messungen geringerer Präzision noch ausreichend Information enthalten.

Die Altersbestimmung mit HAGAR sollte eine Genauigkeit von ca. 2 – 3 Monaten bzw. 0,2 Jahren erreichen. Für SF_6 , das einen Anstieg von ca. 0,25 ppt/Jahr aufweist, bedeutet dies eine Genauigkeit von 0,05 ppt bzw. 1 % des troposphärischen Hintergrundwertes von knapp 5 ppt. CO_2 weist einen jährlichen Anstieg von etwa 1,5 ppm auf. 0,2 Jahre entsprechen hier also etwa 0,3 ppm oder etwas weniger als 0,1 % vom Hintergrundwert. Im Vergleich zu den Tracerkorrelationen ist bei der Altersbestimmung die absolute Genauigkeit von größerer Bedeutung, da das Alter aus dem Vergleich mit einer im Allgemeinen nicht selbst gemessenen troposphärischen Zeitreihe bestimmt wird. Die direkte Anbindung der Messungen an einen international

anerkannten Standard ist daher unumgänglich.

Die räumliche Auflösung ist über die typische Geschwindigkeit des Messträgers eng mit der zeitlichen verbunden. Ein Stratosphärenballon weist typische Steig- bzw. Sinkraten von 5 ms^{-1} auf. Ein 90 s-Zyklus entspricht hier einer vertikalen Auflösung von knapp 450 m.

Die Geophysica hat eine typische Reisegeschwindigkeit von 200 ms^{-1} . Damit beträgt der horizontale Abstand zwischen zwei Messpunkten von HAGAR ca. 18 km, womit Strukturen kleiner als 100 km gut aufgelöst werden können. Die minimalen Vertikalgeschwindigkeiten der Geophysica sind in etwa äquivalent zu denen am Ballon. Die räumliche Auflösung der HAGAR-Messungen wurde hier jeweils für Kanal 2 angegeben, der die geringste Datenaufnahmefrequenz aufweist. Für Kanal 1 (SF_6) liegt sie um einen Faktor zwei, für CO_2 gar um einen Faktor neun besser.

Dieser Abschnitt soll anhand zweier Beispielflüge einen Überblick über den Datensatz vermitteln, den HAGAR während eines Fluges aufzeichnet. Die Analyse wird dabei zunächst qualitativ bleiben und lediglich einen ersten Eindruck davon vermitteln, ob die HAGAR-Messungen den Erwartungen entsprechen können.

6.1 Beispiel I: APE-THESEO, 11.3.1999

Das erste Beispiel zeigt den HAGAR-Datensatz vom 11.3.1999. Dies war der letzte Flug der Geophysica während APE-THESEO. Die Flugroute sah ein Kreuzen der ITZ vor, wobei jeweils nördlich, südlich und innerhalb der ITZ zum Aufnehmen von Vertikalprofilen ein Tauchflug durchgeführt wurde. Zwischen den Vertikalprofilen war die Flughöhe nicht konstant, sondern wurde mit zunehmender Flugzeit erhöht. Der Flug deckte einen Breitenbereich von fast 0° bis ca. 15° S ab, wobei entsprechend zur Lage der ITZ nicht direkt in Nord-Süd-Richtung geflogen wurde (vgl. Abbildung C.1 auf Seite 206).

Stärken und Schwächen der HAGAR-Messungen sind in Abbildung 6.1 gut zu erkennen. Die Tauchflüge sind am Anstieg der Spurengasmischungsverhältnisse auf troposphärisches Niveau zu erkennen. Dabei kann festgehalten werden, dass HAGAR in der Lage ist, die Gradienten von N_2O , F12 und F11 ausreichend aufzulösen. Aufgrund der großen Tropopausenhöhe in den Tropen kann die Geophysica hier nicht sehr tief in die Stratosphäre vordringen. Hier zeigt sich die Bedeutung der Messung von Halon-1211. Die geringe Lebenszeit führt zu starken vertikalen Gradienten, die auch bei einer Präzision von etwa 5 % des Hintergrundwertes ein ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis bieten.

Ein anderes Bild ergibt sich für SF_6 . Die Daten geben zwar die in den

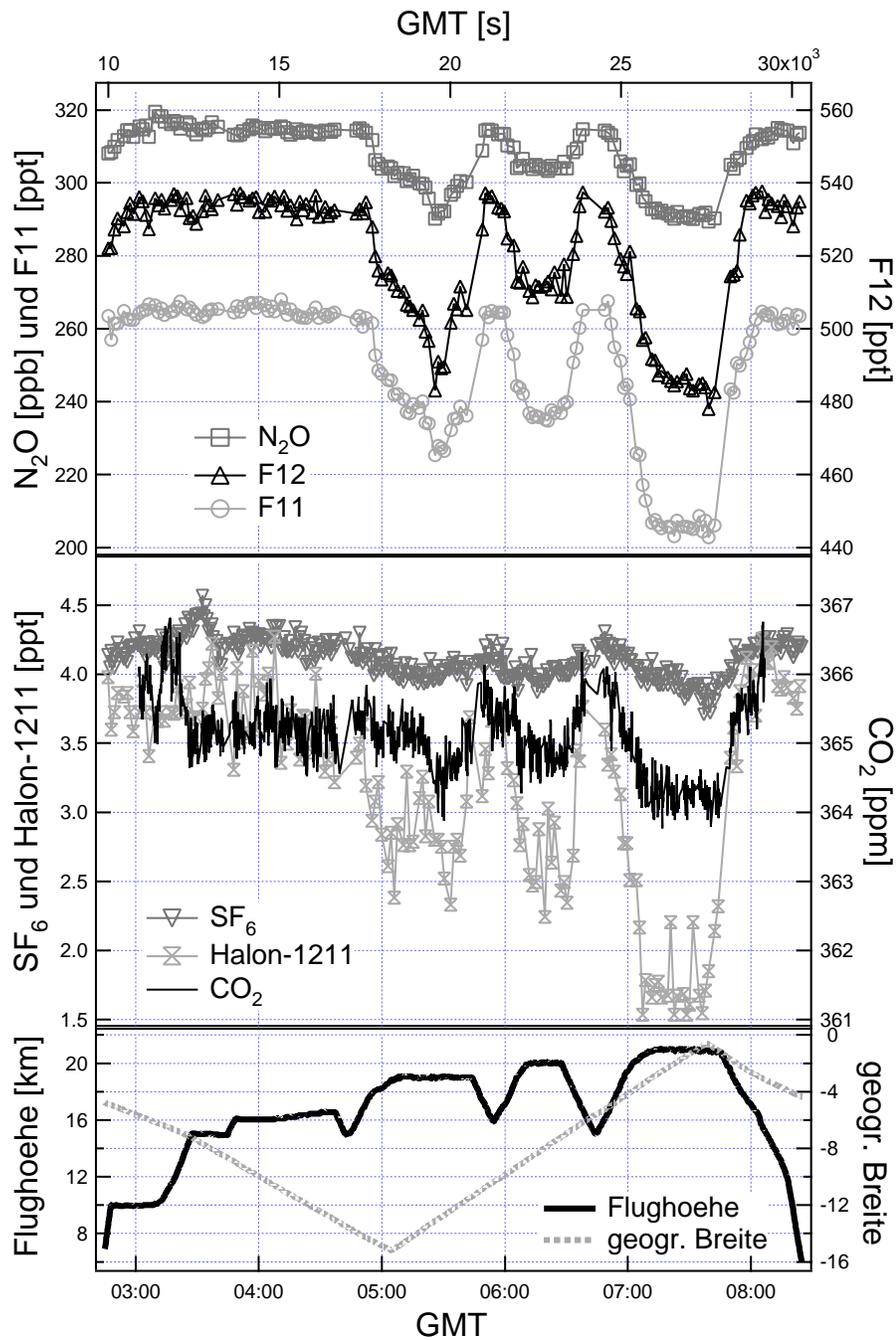


Abbildung 6.1: HAGAR-Datensatz für den letzten Flug der Geophysica von APE-THESEO vom 11.3.1999. SF_6 - und Halon-1211-Daten sind als vorläufig zu betrachten. Der Flug beschrieb ein NNW-SSO-Durchquerung der ITZ. Tauchflüge um 6.00 Uhr, 6.50 Uhr und der abschließende Abstieg erlaubten die Aufnahme von Vertikalprofilen nördlich, südlich und innerhalb der ITZ.

anderen Spurengasmessungen zu beobachtenden Strukturen wieder; die Daten zeigen jedoch eine große Streuung. Obwohl durch die gewählte Skala der y-Achse die SF₆-Daten optisch etwas benachteiligt werden, muss festgehalten werden, dass die Qualität der Daten noch hinter den gestellten Anforderungen zurückbleibt.

Ähnlich ist die Situation bei den CO₂-Daten aus APE-THESEO. Im Gegensatz zu SF₆, wo in Labormessungen gezeigt werden konnte, dass das Instrument apparativ die Anforderungen an die Präzision erfüllen kann, stehen bei CO₂ technische Gründe gegen eine weitere Verbesserung der Präzision durch die Auswertung. Es wurde bereits mehrfach in dieser Arbeit darauf hingewiesen, dass der bis APE-THESEO verwendete A-D-Wandler für die große Streuung der CO₂-Daten während dieser Messkampagne verantwortlich ist.

6.2 Beispiel II: APE-GAIA, 21.9.1999

Der Flug vom 21.9.1999 war der erste wissenschaftliche Flug während APE-GAIA. Die Geophysica flog dabei in südwestlicher Richtung, da so die Entfernung zum Polarwirbel minimal war (s. Abbildung C.9 auf Seite 216 bzw. Abbildung 5.8 auf Seite 120). Die Flugroute sah auf dem Hinweg eine Flughöhe von knapp 16 km vor, während auf dem Rückflug auf drei Flugleveln zwischen 18 und 19 km geflogen wurde. Am südlichsten Punkt absolviert die Geophysica einen Tauchflug bis ca. 10 km Höhe. Während dieses Fluges konnte erstmals ein hochaufgelöstes Vertikalprofil im antarktischen Polarwirbel bis hinab zur Tropopausenregion gewonnen werden.

Die zunächst wichtigsten Ereignisse dieses Fluges waren wohl neben dem Tauchflug (11.30 - 12.10 Uhr) der Eintritt (10.10 - 10.30 Uhr) bzw. Austritt aus dem Polarwirbel (13.10 - 13.20 Uhr) auf 16 km bzw. 18,5 km Höhe. Die dynamische Isolation des Systems in Zusammenwirken mit diabatischem Absinken innerhalb des Wirbels führt zu verringerten Spurengasmischungsverhältnissen, die sich als starke Gradienten entlang der Flugstrecke bemerkbar machen.

Aber auch in den Bereichen konstanter Flughöhe und abseits des Wirbelrandes weist der Plot gegen die Flugzeit Strukturen auf. Auffallend ist, dass die Strukturen in den Daten bei allen Spurengasen gleichermaßen zu beobachten sind. So fallen diese Bereiche auch bei der Analyse von Tracer-Tracer-Korrelationen in den folgenden Kapiteln nicht auf. Sie stellen keine Schwankung des Mischungsverhältnisses eines einzelnen Spurengases dar – soweit dies überhaupt vorstellbar wäre – sondern kennzeichnen eine von der Umgebung abweichende Luftmasse. Kapitel 10 wird sich ausführlich mit die-

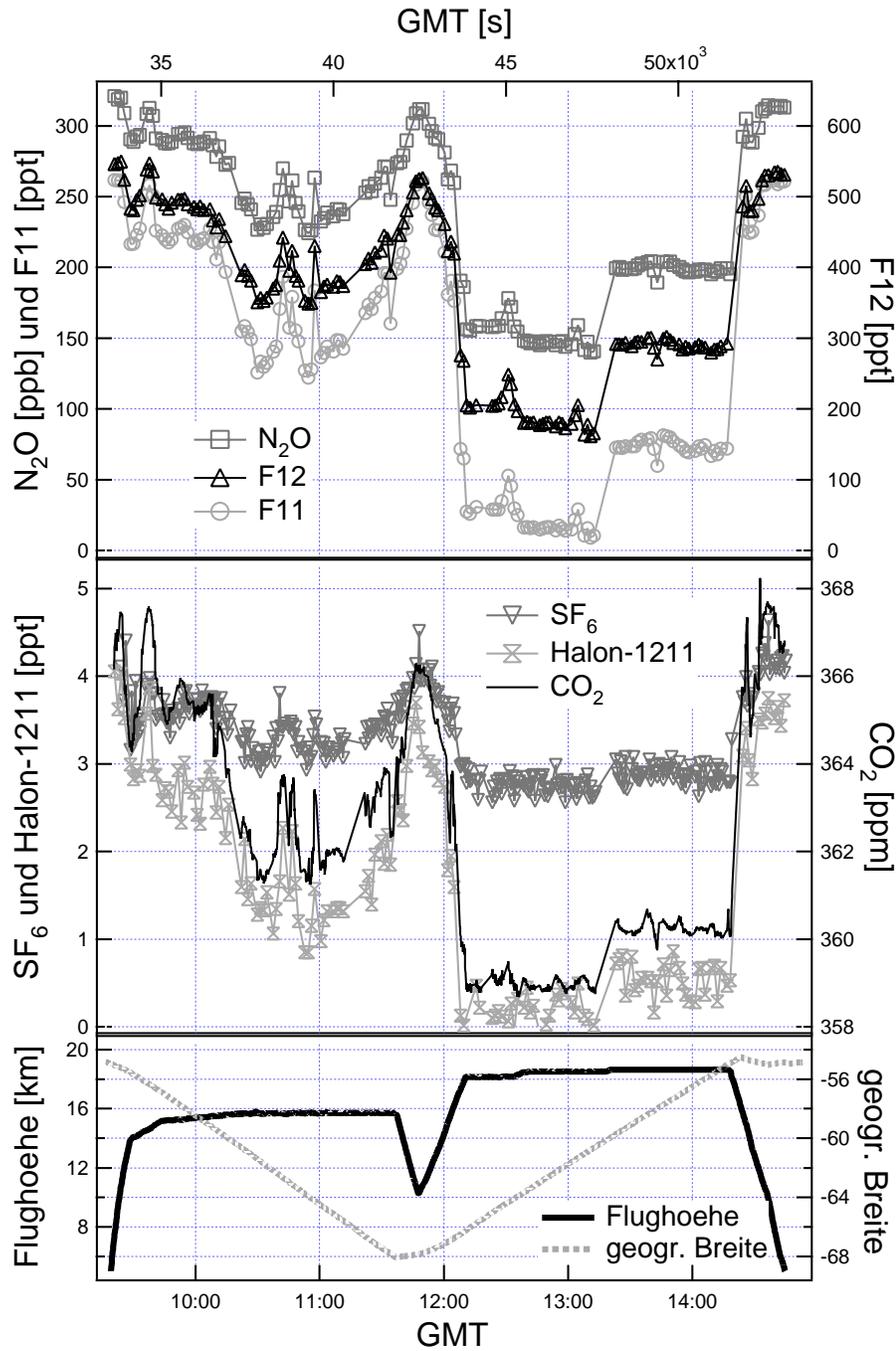


Abbildung 6.2: HAGAR-Datensatz für den ersten wissenschaftlichen Flug von APE-GAIA. SF_6 - und Halon-1211-Daten sind noch als vorläufig zu betrachten. In der Nähe des Umkehrpunktes (kurz vor 12.00 Uhr) erreichte die Geophysica den tiefsten Punkt innerhalb des Polarwirbels. Mit einer Flughöhe von 10 km erreichte sie dort die Tropopausenregion.

sen und ähnlichen Signaturen auseinandersetzen.

In diesem Abschnitt soll lediglich gezeigt werden, dass HAGAR in der Lage ist, Strukturen von bis zu unter 100 km Ausdehnung aufzulösen. Dabei ist zu beachten, dass die Messungen des Gaschromatographen nahezu Punktmessung darstellen. Die Sammelzeit für den Inhalt der Probenschleife beträgt etwa 1 s, während der LI-COR CO₂-Sensor kontinuierlich misst. Ein Messwert alle 10 s entspricht also einem Mittelwert über diesen Zeitraum. Daher kann über die genaue Ausdehnung der Luftmassen für die kürzesten Spikes (z.B. 11.00 Uhr und 11.35 Uhr) letztlich nur eine obere Grenze angegeben werden. Weicht wie hier nur ein Messpunkt vom Hintergrund ab, so entspricht die maximale Ausdehnung einer solchen Signatur dem Abstand vom Messpunkt davor und danach, also 180 s bzw. 36 km. Die Sammelzeit des Gaschromatographen entspricht einer Flugstrecke von weniger als 200 m. Daher ist nicht davon auszugehen, dass das jeweils lokale Minimum bzw. Maximum der Mischungsverhältnisse dieser Luftmassen getroffen wurde.

Ein klareres räumliches Bild kann man für die etwas breiteren Strukturen (13.10 Uhr, 12.35 Uhr, 10.45 Uhr) zeichnen. Sie weisen eine horizontale Ausdehnung von 50 km bis über 150 km auf. Obwohl alle hier präsentierten Messungen von einem Instrument stammen, kann durchaus ausgeschlossen werden, dass diese Strukturen in den Daten Artefakte sind. Denn der Gaschromatograph und der CO₂-Sensor arbeiten unabhängig, sind – unter analytischen Gesichtspunkten – nahezu eigenständige Subsysteme von HAGAR.

Kapitel 7

Tracer-Tracer-Korrelationen: Datenvergleich zwischen HAGAR und anderen Instrumenten

7.1 Vorbemerkung: Troposphärische Trends

Tracer-Tracer-Korrelationen sind ein wertvolles Instrument zur Untersuchung dynamischer Phänomene in der Stratosphäre. Gleichzeitig bieten sie eine ideale Möglichkeit, die Resultate von verschiedenen Instrumenten an unterschiedlichen Orten miteinander zu vergleichen. Dabei soll in diesem Kapitel der Schwerpunkt auf den Spurengasen liegen, die von HAGAR gemessen werden und für die bereits endgültige Daten vorliegen: N_2O , F12, F11 und CO_2 . In vier Abschnitten werden die HAGAR-Messungen von APE-THESEO und APE-GAIA den Ergebnissen von GhOST, ACATS, den kryogenen Luftprobensammlern sowie ATLAS und dem CO_2 -Instrument der Harvard-University gegenübergestellt.

Für eine vollständige Validierung der HAGAR-Daten wäre ein simultaner Einsatz, z. B. mit einem der genannten Geräte notwendig. Dies war bisher nicht möglich. Daher musste auf Daten zurückgegriffen werden, die an anderen Orten, aber auch zu anderen Zeiten als die HAGAR-Daten aufgenommen wurden. Da die Mischungsverhältnisse aller untersuchten Substanzen einem zeitlichen troposphärischen Trend unterliegen ist ein quantitativer Vergleich zunächst nicht möglich.

In den folgenden Abschnitten wurden daher die Daten der anderen Instrumente gemäß der in den Abbildungen 7.1 bzw. 8.2 auf Seite 158 gezeigten troposphärischen Trends auf ein Referenzjahr (1999) korrigiert. Damit sollte in Flugabschnitten, die nahezu troposphärische Verhältnisse aufweisen (nied-

rige Flughöhen) ein quantitativer Vergleich der Messdaten möglich. Da die troposphärischen Trends jedoch nicht parallel verlaufen, sind in der Folge bei größeren Flughöhen unter Umständen ansteigende Differenzen zwischen den Messergebnissen der verschiedenen Instrumente zu erwarten; quantitative Vergleiche sind hier nicht mehr möglich. Dies wird im Einzelnen zu diskutieren sein.

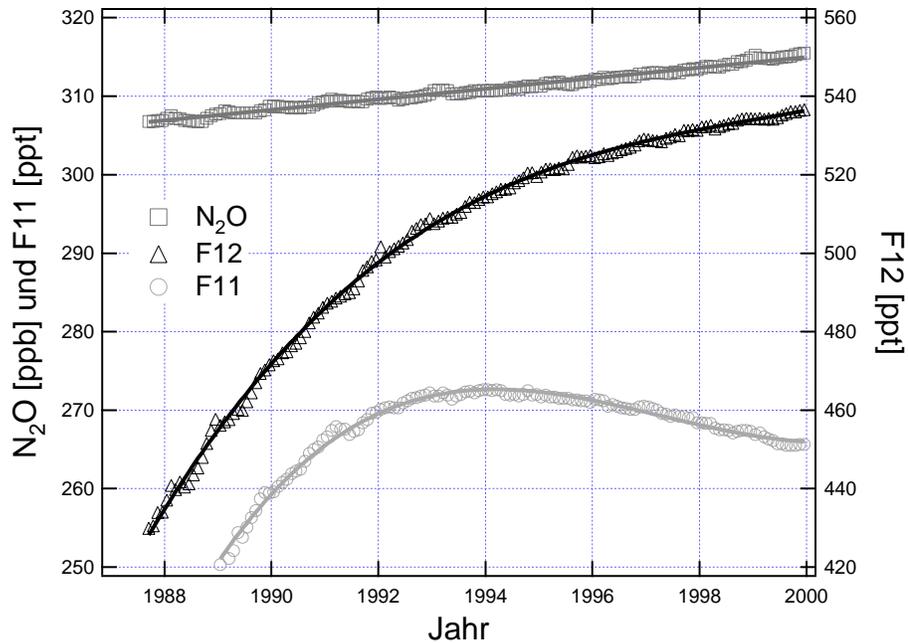


Abbildung 7.1: Monatliche globale Mittelwerte der Mischungsverhältnisse von N₂O, F12 und F11 von Ende der 80er-Jahre bis Ende 1999. Die Trends von F12 und F11 wurden durch ein Polynom 3. Ordnung angenähert, während der N₂O-Trend als linear angenommen wurde. [Daten nach Montzka *et al.*, 1999, bzw. NOAA/CMDL, persönliche Mitteilung]

7.2 GhOST

Seit 1996 wurden mit dem „Gas Chromatograph for the Observation of Stratospheric Tracers“ (GhOST) [Bujok *et al.*, 1996; Bujok, 1998] während insgesamt vier Messkampagnen in-situ Messungen der langlebigen Spurengase N₂O, F12 und F11 in der oberen Troposphäre und der untersten Stratosphäre durchgeführt. Das Instrument wird an Bord einer Cessna Citation II betrieben, einem Business Jet, der eine maximale Flughöhe von ca. 13 km

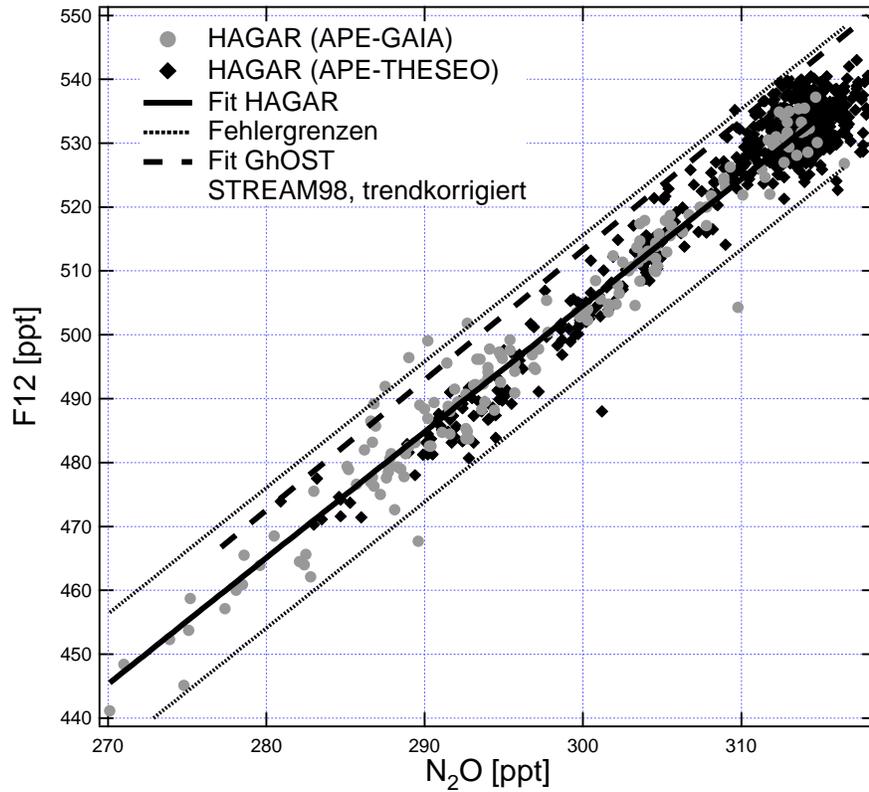


Abbildung 7.2: Tracer-Tracer-Korrelation für F12 und N₂O in der oberen Troposphäre und der untersten Stratosphäre. Vergleich der Korrelation der GhOST-Daten (N₂O/F12-Modus) von STREAM 98 mit den HAGAR-Daten. Die GhOST-Korrelation ist dabei gemäß des troposphärischen Trends aus Abbildung 7.1 auf das Referenzjahr 1999 korrigiert. Da eine lineare Korrelation zu erwarten ist, werden die beiden Datensätze durch einen linearen Fit beschrieben. Die punktierte Linie ist ein Maß für die nach der Kalibrierung noch mögliche Differenz der von den Instrumenten verwendeten Kalibriergase.

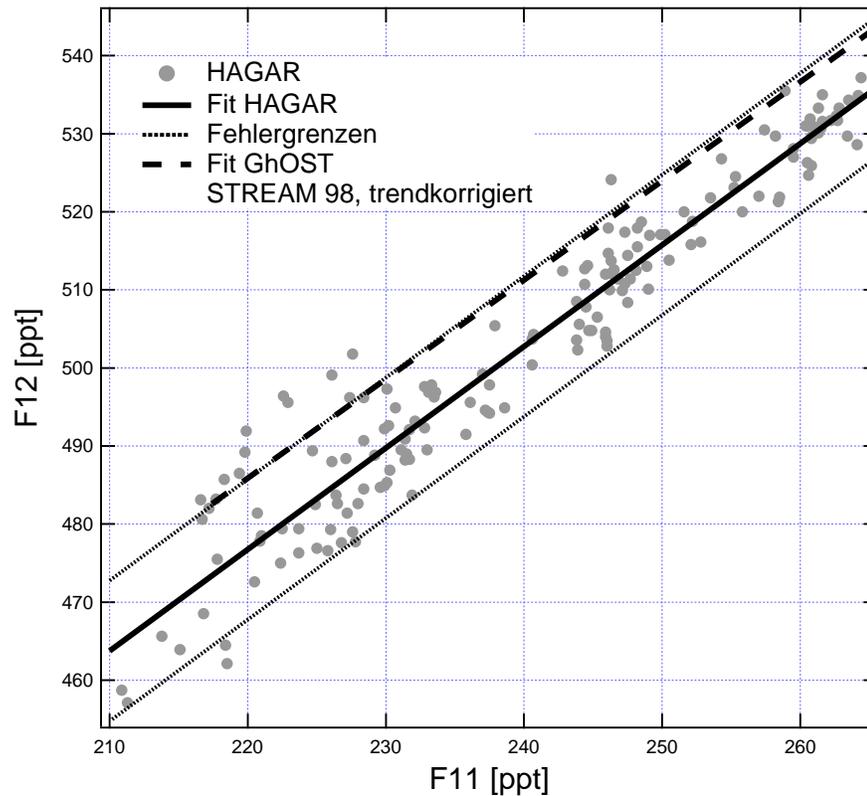


Abbildung 7.3: Tracer-Tracer-Korrelation für F12 und F11 in der oberen Troposphäre und der untersten Stratosphäre. Vergleich der Korrelation der GhOST-Daten (F12/F11-Modus) von STREAM 98 mit den HAGAR-Daten von APE-GAIA. Die GhOST-Korrelation ist dabei gemäß des troposphärischen Trends aus Abbildung 7.1 auf das Referenzjahr 1999 korrigiert. Da eine lineare Korrelation zu erwarten ist, werden die beiden Datensätze durch einen linearen Fit beschrieben. Die punktierte Linie ist ein Maß für die nach der Kalibrierung noch mögliche Differenz der von den Instrumenten verwendeten Kalibrierungsgase.

erreicht. In diesem Abschnitt sollen die HAGAR-Daten aus APE-GAIA mit den Daten der letzten STREAM-Kampagne¹ im Juli 1998 verglichen werden.

GhOST ist in der Lage entweder N₂O und F12 oder F12 und F11 simultan zu messen. Während insgesamt 14 Flügen über dem Nordatlantik und Kanada arbeitete das Instrument im N₂O/F12-Modus. Bei weiteren sieben Flügen über dem Nordatlantik und den Niederlanden lieferte es Daten für F12 und F11. Die Korrelationen sind – abgesehen von dem hohen Anteil an troposphärischen Daten mit entsprechend höherer Variabilität – sehr kompakt. Ihre Variabilität ist in der Stratosphäre signifikant höher als die instrumentelle Präzision von etwa 0,6 % [Wetter *et al.*, 2000].

Sowohl HAGAR als auch GhOST beziehen ihre Messungen auf den selben Primärstandard von NOAA/CMDL. Abweichung in den Messungen der beiden Instrumente sind daher vor allem auf die verschiedenen Sekundär- oder Arbeitsstandards zurückzuführen. Der Messfehler bei der Kalibration dieser Arbeitsstandards erklärt eine Differenz von etwa 1 % für jedes Molekül. Diese Differenz ist als punktierte Linie in den beiden Abbildungen 7.2 und 7.3 eingezeichnet. Damit stimmen die Messungen innerhalb dieser Fehlergrenzen sehr gut überein. Es ist auch zu beachten, dass sich die troposphärischen Trends für Nordhemisphäre (GhOST-Messungen) und Südhemisphäre (HAGAR-Messungen) unterscheiden; die Werte in der Nordhemisphäre sind durchwegs höher. So betrug die Differenz 1999 für F12 ca. 7 ppt, für F11 aber nur 1 ppt und für N₂O etwa 1 ppb. Eine Berücksichtigung dieser Tatsache würde die Differenzen zwischen den beiden Datensätzen noch einmal verringern.

Die Abweichung der Steigungen der Korrelationen in Abbildung 7.2 ist wahrscheinlich auf die große Anzahl an troposphärischen Messpunkten von GhOST zurückzuführen, die mit ihrer erhöhten Variabilität das Bild verzerren.

7.3 ACATS

Seit Anfang der 90er Jahre wurde auf dem amerikanischen Höhenforschungsflugzeug ER-2 ein Gaschromatograph zur in-situ Messung von FCKW eingesetzt. Seit 1994 steht mit dem „Airborne Gas Chromatograph for Atmospheric Trace Species“ (ACATS) ein Instrument zur Verfügung, das zur simultanen Messung von nahezu einem Dutzend verschiedener Spurengase in der Lage ist [Elkins *et al.*, 1996]. Es arbeitet dabei mit vier Kanälen, die ursprünglich eine Zeitauflösung von 180 bzw. 360 s aufwiesen. ACATS wurde seitdem auf

¹Stratosphere Troposphere Experiment by Aircraft Measurements

einer ganzen Reihe von ER-2-Kampagnen wie „Airborne Southern Hemisphere Ozone Experiment/Measurements for Assessing the Effects of Stratospheric Aircraft“ (ASHOE/MAESA 1994), „Stratospheric Tracers of Atmospheric Transport“ (STRAT, 1995/96), „Photochemistry of Ozone loss in the Arctic Region in Summer“ (POLARIS, 1997) und „SAGE II Ozone Loss Validation Experiment“ (SOLVE, 1999/2000) eingesetzt. Die große Zuverlässigkeit des Instrumentes sowie die gute Präzision der Messungen erlaubten eine ganze Reihe von Untersuchungen unter anderem zum stratosphärischen Transport [z. B. Volk *et al.*, 1996, 1997; Romashkin *et al.*, 1999].

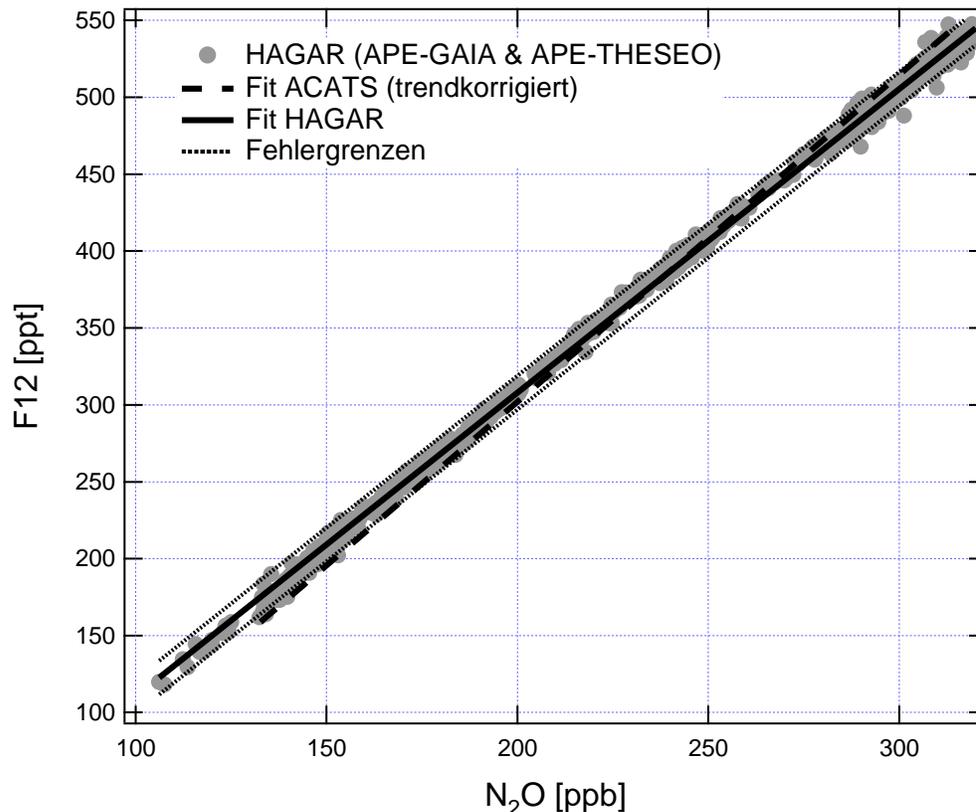


Abbildung 7.4: Vergleich der F12-N₂O-Korrelationen von ACATS und HAGAR. Die ACATS-Korrelation stammt aus neun Flügen zwischen dem 3.10.1994 und dem 11.04.1994 und deckt einen Breitenbereich von 60° N bis 70° S ab. Sie ist gemäß der troposphärischen Trends in Abbildung 7.1 korrigiert. Der HAGAR-Datensatz von APE-THESEO und APE-GAIA reicht vom Äquator bis ebenfalls etwa 70° S.

In diesem Abschnitt sollen die HAGAR-Daten von APE-GAIA Messungen von ACATS gegenübergestellt werden, die das Instrument im Jahre 1994

während ASHOE/MAESA in den Tropen und auf der Südhalbkugel aufnehmen konnte. Um einen quantitativen Vergleich durchführen zu können, wurden die ACATS-Daten wiederum gemäß der troposphärischen Trends korrigiert. Da ACATS von NOAA/CMDL betrieben wird, beziehen sich auch dessen Messungen auf dieselbe Skala wie die HAGAR-Daten. Für die Werte die nahe der Troposphäre gewonnen wurden, sollten die beiden Instrumente also innerhalb von etwa 1 % übereinstimmen.

Bereits in Abschnitt 4.2.3 wurde darauf hingewiesen, dass die Korrelation von F12 und N₂O ein ideales Testfeld für in-situ Messungen ist. Die Korrelation ist über den ganzen von ER-2 und Geophysica erreichbaren Höhenbereich innerhalb der unteren Stratosphäre nahezu linear, da beide Substanzen vergleichbar hohe Lebenszeiten aufweisen. Bereiche verringerter horizontaler Mischung können eine solch lineare Korrelation nicht verändern. Abweichungen von der Korrelation sind also weitgehend auf apparative Ursachen zurückzuführen.

Natürlich ist keine Tracer-Tracer-Korrelation innerhalb der Stratosphäre absolut kompakt. Für F12 und N₂O ist die Streuung der Korrelation innerhalb der unteren Stratosphäre wohl ausschließlich vom statistischen Messfehler bestimmt. Dies ist für die unterste Stratosphäre aufgrund der dortigen dynamischen Prozesse nicht mehr in allen Fällen gegeben, wie die GhOST-Daten aus STREAM zeigen konnten (T. Wetter, persönliche Mitteilung). Signifikante Veränderungen der Korrelation von Flug zu Flug sind jedoch in beiden Fällen nicht zu erwarten.

In Abbildung 7.4 sind die Ergebnisse von HAGAR einer mittleren F12-N₂O-Korrelation gegenübergestellt, die von ACATS während ASHOE/MAESA gewonnen wurde. Die Messungen beider Instrumente ergeben kompakte, lineare Korrelationen. Für die Werte in der Nähe der Troposphäre beträgt die Abweichung nicht mehr als 1 %, was sich durch die Unsicherheit in den Mischungsverhältnissen der verwendeten Standardgase erklären lässt. Die Steigung der Geraden hat sich jedoch innerhalb von fünf Jahren verändert. Dies ist darauf zurückzuführen, dass F12 in den Jahren vor 1994 bedeutend stärker angestiegen ist als in den Jahren vor 1999. Gleichzeitig unterlag das troposphärische N₂O-Mischungsverhältnis einem gleichbleibend linearen Anstieg. Dies muss 1999 zu einer F12-N₂O-Korrelation führen, die im Vergleich zu 1994 eine geringere Steigung aufweist.

Aufgrund der deutlich geringeren atmosphärischen Lebenszeit von F11 – sie beträgt mit ca. 45 Jahren nur etwa ein Drittel von der N₂O-Lebenszeit – zeigt die in Abbildung 7.5 dargestellte F11-N₂O-Korrelation in größeren Höhen keinen linearen Zusammenhang mehr. So geht das F11-Mischungsverhältnis im Polarwirbel auf 21 km Höhe auf Werte von wenigen ppt zurück. Diese Messungen liegen an der Detektionsgrenze von

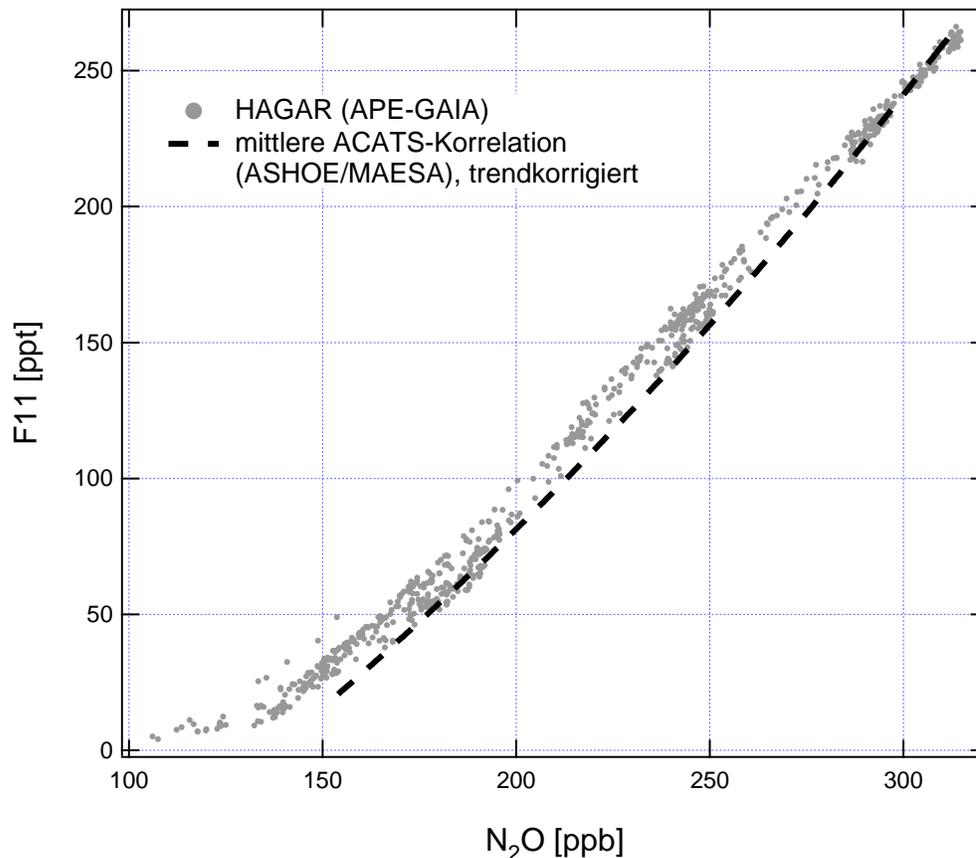


Abbildung 7.5: Vergleich der F11-N₂O-Korrelationen von ACATS und HAGAR. Die mittlere ACATS-Korrelation berücksichtigt alle Daten von ASHOE/MAESA aus der Südhemisphäre, mit Ausnahme einiger Daten oberhalb von 475 K [Volk et al., 1996]. Für HAGAR sind die Daten aus allen fünf APE-GAIA-Flügen gezeigt.

HAGAR. Betrachtet man die mittlere F11-Korrelation von ACATS aus ASHOE/MAESA, die fast alle Südhemisphären Daten dieser Kampagne mit Ausnahme einiger Messpunkte oberhalb 475 K berücksichtigt [Volk et al., 1996], so zeigt sich im Vergleich mit den HAGAR-Daten zunächst ein ähnlicher Effekt wie bei den F12-N₂O-Korrelationen in Abbildung 7.4. Die HAGAR-Korrelation ist flacher, was wiederum mit den troposphärischen Trends konsistent ist. Die Messdaten, die zu der gezeigten mittleren ACATS-Korrelation führten, entsprechen dabei in etwa denen, die die obere Grenze der HAGAR-Punkte bilden. Die Tatsache, dass die HAGAR-Korrelation im Bereich von ca. 150 – 250 ppb N₂O zu geringeren F11-Mischungsverhältnissen hin verbreitert ist, ist Teil der aktuellen Diskussion der Daten.

7.4 Kryosammler

Seit 1981 werden die beiden am Forschungszentrum Jülich entwickelten kryogenen Luftprobensammler² bei Flügen an Stratosphärenballonen bis ca. 30 km Höhe eingesetzt [z. B. *Schmidt et al.*, 1987]. Mittlerweile fanden 37 Flüge statt, wobei seit 1986 auch regelmäßig von Kiruna/Schweden aus Messungen im arktischen Polarwirbel durchgeführt werden. Seit 1996 werden die Sammler vom Institut für Meteorologie und Geophysik betrieben, wobei weiterhin dieselbe Analytik eingesetzt wird. Die Sammler können pro Flug 15 Luftproben mit einem Volumen von bis zu 20 Standardlitern aufnehmen. Die Vorteile der Methode liegen auf der Hand: Im Labor können eine Vielzahl von Untersuchungen durchgeführt werden. So werden die Luftproben regelmäßig auch an der Universität Heidelberg bzw. der University of East Anglia/England auf insgesamt bis zu 30 verschiedene Moleküle analysiert. Die Kryosammlerdaten stellen die längste Messreihe für die Untersuchung von langlebigen Spurengasen in der Stratosphäre dar, was allerdings die Bedeutung und die Möglichkeiten dieser Messungen kaum vollständig beschreibt [z. B. *Schmidt et al.*, 1987, 1991, 1994; *Schmidt & Khedim*, 1991; *Bauer et al.*, 1994; *Lee et al.*, 1995; *Engel et al.*, 1997, 1998; *Kondo et al.*, 1999].

Im Winter 1999/2000 wurden die Kryosammler erneut während zweier Flüge von Kiruna aus gestartet. Der erste Flug (B36) fand am 27.1.2000, der zweite (B37) am 1.3.2000 statt. Insbesondere zu niederen Mischungsverhältnissen hin sind diese Daten jedoch noch als vorläufig anzusehen (M. Müller, persönliche Mitteilung). Obwohl auch diese Daten von der Nordhemisphäre stammen, wurde auf diesen Datenvergleich nicht verzichtet, da sie die größte zeitliche Nähe zu den HAGAR-Messungen aufweisen.

Der Vergleich der HAGAR- mit den Kryosammler-Daten beschränkt sich auf die F11-N₂O-Korrelation (Abbildung 7.6). Vom troposphärischen Hintergrundwert bis hinab zu etwa 150 ppb N₂O ist die Übereinstimmung der Daten zufriedenstellend, obwohl sie einen geringen Offset aufzuweisen scheinen. Darunter weichen die Kryosammlerdaten deutlich zu geringeren F11-Werten hin ab. Die weitere Analyse der Kryosammlerdaten wird zeigen, inwieweit sich diese Abweichungen bestätigen lassen. Die Auswertung der HAGAR-Daten gab bis jetzt noch keinen konkreten Hinweis darauf, dass sie nicht ein realistisches Bild des antarktischen Polarwirbels zeichnen. Dabei könnte ein weiterer Vergleich mit der amerikanischen OMS-Gondel³ hilfreich sein, die drei Tage nach dem zweiten Kryosammlerflug ebenfalls von Kiruna aus gestartet ist. Dies ist jedoch Aufgabe des Kryosammlerteams in unserem Institut.

²Im folgenden wird statt „kryogenem Luftprobensammler“ zumeist die vereinfachte Bezeichnung „Kryosammler“ benutzt.

³Observation of the Middle Stratosphere

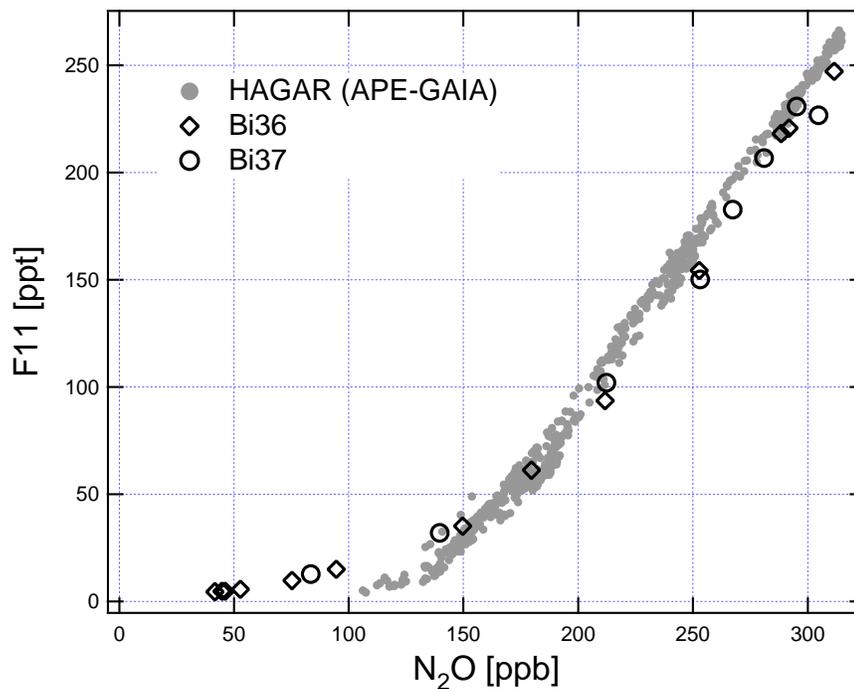


Abbildung 7.6: Vergleich der F11-N₂O-Korrelationen von HAGAR und zwei Kryosammlerflügen (B36 und B37). Die HAGAR-Daten stammen wiederum von APE-GAIA, während die Kryosammlerflüge im Februar und März 2000 im Rahmen von THESEO 2000 in Kiruna/Schweden (68° N) stattfanden. Die Analyse der Kryosammlerflüge auf FCKW und N₂O wird mit Gaschromatographen im Labor des Institutes für Meteorologie und Geophysik durchgeführt [Müller, 1998].

7.5 ER-2-Daten für CO₂ und N₂O

In diesem letzten Vergleich soll die CO₂-N₂O-Korrelation von HAGAR Daten gegenübergestellt werden, die ebenfalls 1994 während ASHOE/MAESA an Bord der ER-2 gewonnen wurden. Das CO₂-Instrument wird von einer Gruppe von der Harvard University betrieben; dabei kommt ebenfalls ein LI-COR zum Einsatz [z. B. Wofsy et al., 1994; Boering et al., 1996; Andrews et al., 1999]. Die N₂O-Daten stammen vom Airborne Tunable Diode Laser Absorption Spectrometer („ATLAS“) [Podolske & Loewenstein, 1993].

Abbildung 7.7 zeigt die CO₂-N₂O-Korrelation von HAGAR und ER-2. Die ER-2-Daten stammen aus sechs Flügen, die im Oktober und November 1994 in mittleren und hohen Breiten in der Südhemisphäre gewonnen wurden. Die N₂O-Daten von ATLAS wurden wiederum entlang des troposphärischen Trends aus Abbildung 7.1 verschoben. Die CO₂-Daten aus Harvard wurden

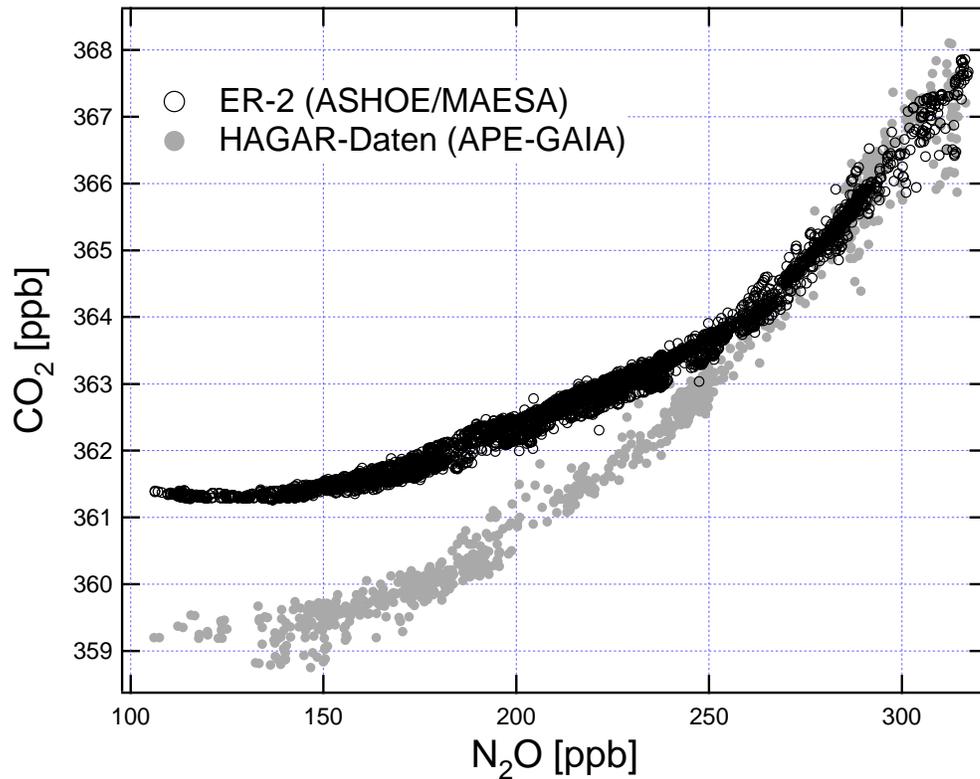


Abbildung 7.7: Vergleich der CO_2 - N_2O -Korrelationen von HAGAR und ER-2. Die ER-2-Daten sind wiederum entlang der troposphärischen Trends um fünf Jahre korrigiert.

gemäß des saisonbefreiten Trends der Mauna Loa-Samoa-Kurve (vgl. 8.2) um fünf Jahre korrigiert. Sowohl Harvard- wie HAGAR-Daten beziehen sich auf die „WMO X93 scale“, so dass die Abweichungen im Mittel nicht größer als 0,2 ppm sein dürften. Für N_2O liegen die „zugelassenen“ Abweichungen wiederum bei etwa 1 %.

Für geringe Flughöhen stimmen die beiden Datensätze hervorragend überein. Mit zunehmender Höhe weisen die Daten jedoch große Differenzen im CO_2 -Mischungsverhältnis vom maximal 2 ppm auf. Dies ist auf den verstärkten Anstieg im troposphärischen CO_2 -Mischungsverhältnis in den letzten 5 Jahren zurückzuführen. Kapitel 8 wird sich ausführlich mit der Frage befassen, welche Folgen unter anderem die in diesem Vergleich präsentierte Differenz für die exakte Bestimmung des mittleren Alters aus CO_2 -Messungen hat.

7.6 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurden die Messungen von HAGAR beispielhaft mit denen von anderen Instrumenten verglichen. GhOST, ACATS, die Kryosammler, ATLAS und das CO₂-Gerät aus Harvard sind „etablierte“ Instrumente für die in-situ-Messung langlebiger Spurengase. Es zeigt sich dabei, dass die Qualität der HAGAR-Messungen den existierenden Instrumenten zumeist ebenbürtig ist.

Werden die gemessenen Mischungsverhältnisse gemäß der troposphärischen Trends für die entsprechende Zeitdifferenz korrigiert, so ergibt sich in allen Fällen auch quantitativ eine gute bis sehr gute Übereinstimmung. Dies gilt im Einzelfall natürlich nur für die Daten, die nahezu troposphärische Mischungsverhältnisse aufweisen. In den höheren Regionen der Stratosphäre divergieren die Korrelationen, wenn die korrelierten Substanzen unterschiedliche troposphärische Trends aufweisen. Eine Korrektur, die eine Vergleichbarkeit der Daten über den gesamten Höhenbereich zuließe, ist nach wie vor problematisch [*Plumb et al.*, 1999].

Teil III

Analyse der Messergebnisse

Überblick

Im dritten Teil dieser Arbeit soll eine erste Analyse der von HAGAR im Jahre 1999 aufgezeichneten Daten vorgestellt werden. Die dargestellten Punkte sollen auch als Ausgangspunkt für eine weitere und umfassendere Diskussion des umfangreichen Datensatzes verstanden werden. Dabei wird auf drei Themengebiete eingegangen werden.

In Kapitel 8 werden die Schwierigkeiten diskutiert, die aktuell bei der Bestimmung des mittleren Alters aus Tracermischungsverhältnissen auftreten. Dabei soll geklärt werden, welche Limitierungen vorliegen und wo die momentan erreichbare Genauigkeitsgrenze liegt.

Kapitel 9 wird Fragen des Transports und der Mischung im Bereich der Tropen diskutieren, wobei Daten sowohl von APE-THESEO als auch von den Transferflügen von Sevilla nach Ushuaia präsentiert werden.

Kapitel 10 widmet sich der Untersuchung des Luftmassentransports, der über den Rand des antarktischen Polarwirbels hinweg abläuft. Dabei wird vor allem die Mischung durch Filamente und anderer Strukturen diskutiert, die von HAGAR während APE-GAIA dokumentiert werden konnten.

Kapitel 8

Bestimmung des mittleren Alters stratosphärischer Luft

Im vorangegangenen Kapitel 7 wurde deutlich gemacht, dass ein quantitativer Vergleich von Tracer-Tracer-Korrelationen, die zu verschiedenen Zeitpunkten aufgenommen wurden problematisch ist. Grund hierfür ist die Tatsache, dass die troposphärischen Hintergrundmischungsverhältnisse dieser Substanzen unterschiedlichen zeitlichen Trends unterliegen. Das mittlere Alter, dessen Konzept bereits in Abschnitt 1.2 eingeführt wurde, ist eine Kenngröße für den stratosphärischen Transport, die prinzipiell ohne diesen Nachteil auskommt. Korrelationen zwischen Alter und einem Tracer wie N_2O , dessen Mischungsverhältnis einen schwach linear ansteigenden und wohlbekannten Trend in der Troposphäre aufweist, sollten, auch wenn sie zu verschiedenen Zeitpunkten aufgenommen wurden, weitgehend identisch sein. Dies gilt nur, wenn sie innerhalb des selben Breitenbereiches aufgenommen wurden; Breitenabhängigkeiten sind nach wie vor möglich.

Das Alterskonzept von *Kida* [1983] wurde zunächst weitgehend empirisch aufgestellt. In den ersten Studien entsprach das Alter einer Luftmasse der „lag time“ des Mischungsverhältnisses, der Zeit also, die vergangen ist, seit das troposphärische Hintergrundmischungsverhältnis dem in der Stratosphäre gemessenen Wert entsprach. Als Basis diente zumeist die Mauna Loa-Kurve für CO_2 , die durch ein gleitendes 12-Monats-Mittel von den saisonalen Schwankungen befreit wurde [z. B. *Bischof et al.*, 1985; *Schmidt & Khedim*, 1991].

Hall & Plumb [1994] stellten erst später die Altersbestimmung auf eine fundierte theoretische Basis. Danach entspricht das Alter nur dann exakt der „lag time“, wenn der verwendete Tracer einen linearen zeitlichen Trend in der Troposphäre aufweist.

Dieses Kapitel soll nun die Probleme beleuchten, die bei der Altersbestim-

mung in der Praxis auftreten. Dabei soll nicht das eigentliche Alterskonzept in Frage gestellt werden. Vielmehr soll gezeigt werden, dass das Ziel, mit dem Alter eine universell vergleichbare Größe stratosphärischen Transports zu haben, in der Realität noch nicht erreicht ist.

In Abschnitt 8.1 werden zunächst die grundsätzlichen Gleichungen vorgestellt, die zur Bestimmung des mittleren Alters Γ verwendet werden. Anschließend soll an Hand der HAGAR-Daten gezeigt werden, welche Schwierigkeiten bei der Altersbestimmung mit CO_2 auftreten und inwieweit die Ergebnisse verschiedener Gruppen vergleichbar sind. Abschnitt 8.3 wird schließlich den aktuellen Stand der Altersbestimmung mit SF_6 aufzeigen.

8.1 Berechnung des mittleren Alters

Die Anforderungen an einen geeigneten Alterstracer wurden von *Hall & Plumb* [1994] klar formuliert. Danach ist nur für einen in der Stratosphäre konservativen Tracer, der einen linearen troposphärischen Trend aufweist, das Alter mit der „lag time“ identisch. Für einen Alterstracer mit einem troposphärischen Mischungsverhältnis $\chi_0(t)$ kann dann das Alter zur Zeit t am Ort x in der Stratosphäre aus folgender Gleichung bestimmt werden:

$$\chi(x, t) = \chi_0(t - (\Gamma + \delta\Gamma)) \quad (8.1)$$

In der Stratosphäre liegt also zum aktuellen Zeitpunkt t ein Mischungsverhältnis vor, das dem troposphärischen Hintergrundwert zu einem früheren Zeitpunkt $(t - (\Gamma + \delta\Gamma))$ entspricht. Γ gibt das Alter an, während $\delta\Gamma$ die Zeitspanne beschreibt, um die der Trend an der tropischen Tropopause dem troposphärischen hinterher hinkt. *Volk et al.* [1997] bestimmten diesen Wert durch SF_6 -Messungen auf 9,6 Monate. *Boering et al.* [1996] bestimmten ihn aus der Phasenverschiebung des CO_2 -Signals (vgl. nächster Abschnitt) auf etwa zwei Monate. Die Ergebnisse weiterer Messungen lieferten für $\delta\Gamma$ Werte zwischen null und einem Jahr (C. M. Volk, persönliche Mitteilung). Dabei ist auch nicht auszuschließen, dass $\delta\Gamma$ zeitlich variabel ist. Es ist daher legitim, $\delta\Gamma = 0$ zu setzen, die Altersberechnung also direkt auf den troposphärischen Trend zu beziehen. Dies ist konsistent mit den bisherigen Arbeiten in der Arbeitsgruppe am IMGF [*Haase, 1999; Strunk et al., 2000*] und erleichtert Vergleiche mit Daten anderer Gruppen.

Dieses im Grunde einfach anzuwendende Konzept stößt in der Realität auf einige Schwierigkeiten. Im Allgemeinen ist der zeitliche Anstieg der verwendeten Alterstracer nicht perfekt linear, so dass der Trend etwa durch ein Polynom besser repräsentiert wird. Nur wenn der zeitliche Verlauf des

Mischungsverhältnisses linear ist, entspricht das mittlere Alter aber der „lag-time“. Grund dafür ist die Tatsache, dass ein Luftpaket gedanklich in ein Ensemble von kleineren Paketen aufgespalten werden kann, die ein unterschiedliches Alter aufweisen („Altersspektrum“), wobei der Schwerpunkt dieses Spektrums dem mittleren Alter entspricht (vgl. Abbildung 1.3 auf Seite 11). Bei einer Messung wird wiederum das mittlere Mischungsverhältnis einer Luftprobe bestimmt. Bei einem nicht-linearen Trend fallen die Ergebnisse dieser beiden Mittelungsprozesse nicht mehr zusammen.

Für den Spezialfall eines Tracers mit quadratisch ansteigendem troposphärischen Mischungsverhältnis konnten *Volk et al.* [1997] eine allgemeine Formel zur korrekten Altersbestimmung angeben. Danach gilt für einen Tracer, dessen troposphärisches Mischungsverhältnis χ_0 durch eine Funktion der Form

$$\chi_0(t) = a (t - t_0)^2 + b (t - t_0) + c \quad (8.2)$$

beschrieben werden kann, folgende Gleichung für das Mischungsverhältnis χ zum Zeitpunkt t am Ort x in der Stratosphäre:

$$\chi(x, t) = \chi_0 (t - \Gamma(x) - \delta\Gamma) + 2 a \Lambda (\gamma + \delta\Gamma) \quad (8.3)$$

Der erste Term ist hier analog zu Gleichung (8.1). Der Faktor a im Korrekturterm ist der quadratische Koeffizient aus Gleichung (8.2). Λ wurde gemäß

$$\Lambda = \frac{\Delta^2}{\Gamma + \delta\Gamma} \quad (8.4)$$

definiert, wobei Δ die Breite des Altersspektrums darstellt, wie es von *Hall & Plumb* [1994] definiert wurde. Aus Modellstudien mit zwei „General Circulation Models“ (GCMs), die auch Aussagen über das typische Altersspektrum zulassen, wurde Λ auf einen innerhalb der unteren Stratosphäre konstanten Wert von 1,25 Jahren bestimmt. Bei der Bestimmung des Alters mit einem quadratisch ansteigenden Tracer ($a > 0$) wird danach das Alter ohne diese Korrektur systematisch unterschätzt. Für SF_6 verursacht diese Korrektur auf Maximalhöhe der Geophysica eine Alterskorrektur von etwa einem halben Jahr.

8.2 CO₂

CO₂ erfüllt in verschiedenen Aspekten die strengen Anforderungen, die *Hall & Plumb* [1994] an einen idealen Alterstracer stellen, nur näherungsweise. Bevor nun die eigentlichen HAGAR-Daten vorgestellt werden, sollen diese Aspekte zunächst diskutiert werden.

8.2.1 Methankorrektur

In Abschnitt 1.2.3 wurde bereits erwähnt, dass CO₂ zwar in der Stratosphäre keine Senken hat, jedoch mit der Methanoxidation eine schwache Quelle besitzt. Dabei werden pro oxidiertem CH₄-Molekül über eine längere Reaktionskette letztlich ein CO₂- und zwei H₂O-Moleküle gebildet. Damit ist CO₂ kein idealer konservativer Tracer. Bevor das Alter Γ berechnet werden kann, müssen die CO₂-Werte um das oxidierte Methan nach unten korrigiert werden. An Bord der *Geophysica* wird jedoch kein CH₄ gemessen, weshalb das CH₄-Mischungsverhältnis aus einer N₂O-CH₄-Korrelation bestimmt werden muss. Dabei wurden ER-2-Daten von der ASHOE/MAESA-Kampagne aus dem Jahre 1994 herangezogen (s. Abbildung 8.1 auf der nächsten Seite). Für das korrigierte CO₂-Mischungsverhältnis gilt dann:

$$\chi_{\text{CO}_2, \text{korr.}} = \chi_{\text{CO}_2, \text{gem.}} - (1,7 - \chi_{\text{CH}_4}) \quad (8.5)$$

bzw.

$$\chi_{\text{CO}_2, \text{korr.}} = \chi_{\text{CO}_2, \text{gem.}} - \left(1,7 - \frac{0,00643 \cdot \chi_{\text{N}_2\text{O}}^2 + 0,92 \cdot \chi_{\text{N}_2\text{O}} + 813}{1000} \right) \quad (8.6)$$

Der Fehler in der CH₄-Bestimmung liegt hier bei etwa 5 – 10 %. Die N₂O-Messungen von HAGAR weisen auch eine geringere Zeitaufösung auf als die CO₂-Messungen auf. Daher mussten die fehlenden Messpunkte durch Interpolation gewonnen werden. Insgesamt macht die maximale Methankorrektur (ca. 1,5 ppm) in der Altersbestimmung weniger als ein Jahr aus. Damit ist der Fehler, den die Unsicherheit in der CH₄-Messung bei der Altersbestimmung verursacht, in der Größenordnung von maximal einem Monat.

8.2.2 CO₂-Alter in den Tropen

Die wohl auffälligste Abweichung, die CO₂ gegenüber einem idealen Alterstracer aufweist, ist der starke saisonale Zyklus. Dessen Amplitude weist eine

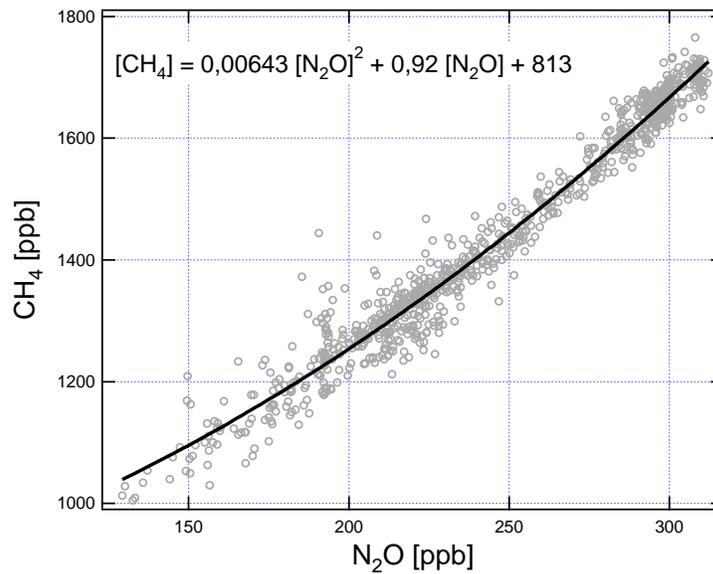


Abbildung 8.1: Für die Methankorrektur von CO₂ benutzte CH₄-N₂O-Korrelation. Die Messdaten stammen aus zehn Flügen der ER-2, die im Rahmen von ASHOE/MAESA im Oktober/November des Jahres 1994 stattfanden. Die CH₄-Daten stammen vom Airborne Laser Infrared Absorption Spectrometer (ALIAS) [Webster *et al.*, 1993]. Die N₂O-Daten wurden von dem Airborne Tunable Laser Absorption Spectrometer (ATLAS) aufgezeichnet [Podolske & Loewenstein, 1993].

starke Breitenabhängigkeit auf. Ursache für den jahreszeitlichen Zyklus ist die Biosphäre. Während sie durch Pflanzenatmung und Bodenatmung CO₂ freisetzt, verbrauchen Pflanzen in der Wachstumsphase CO₂ durch Photosynthese. Der saisonale Zyklus ist daher in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre am ausgeprägtesten, da hier die Jahreszeiten für einen starken saisonalen Unterschied in der Biosphärenaktivität sorgen. In der Südhemisphäre ist dieser Effekt schwächer, da sowohl die Landmassen als auch die jahreszeitlichen Temperaturunterschiede geringer sind. Die geringere Amplitude wird zudem von Einmischungen aus der Nordhemisphäre überlagert. Während die Amplitude in Bodennähe bis zu 10 ppm betragen kann, ist sie in der freien Troposphäre (z. B. auf dem Mauna Loa) bereits auf ca. 3 ppm gedämpft [Roedel, 1992; Conway *et al.*, 1994]. Die Mauna Loa-Samoa-Kurve, die sich als repräsentativ für die tropische Troposphäre erwiesen hat, weist noch eine jahreszeitliche Amplitude im CO₂-Mischungsverhältnis von etwa 1,5 ppm auf, was einer Altersdifferenz in der Größenordnung von einem Jahr entspricht (s. Abbildung 8.2 auf Seite 158).

In allen Bereichen der Stratosphäre, die eine direkte und schnelle Ein-

mischung aus dem Bereich der tropischen Tropopause oder Troposphäre erfahren, ist daher eine Altersbestimmung über die „lag time“ von CO_2 nicht möglich. Das Altersspektrum ist hier noch nicht breit genug, so dass die saisonalen Schwankungen von CO_2 noch nicht durch Dämpfung verschwunden sind (s. dazu auch Kapitel 9). Nach *Andrews* [1999] sind von diesem Effekt die tropische Stratosphäre sowie die mittleren Breiten bis zu einem N_2O -Level von ca. 275 ppb betroffen (entsprechend einer Höhe von ca. 16 km bzw. einer potenziellen Temperatur von etwa 440 K).

Dieses saisonale Signal kann jedoch ebenfalls zur Quantifizierung von stratosphärischem Transport verwendet werden [*Strahan et al.*, 1998]. Neben einem ansteigenden mittleren Trend steht auch noch die Phase des Jahresgangs als Information zur Verfügung, so dass sogar die empirische Bestimmung von Altersspektren möglich ist [*Andrews et al.*, 1999; *Andrews*, 1999]. Dieser Punkt wird später noch einmal zu diskutieren sein.

In ihrer Dissertation korreliert A. Andrews die aus diesen Analysen gewonnenen Altersdaten mit dem simultan von ATLAS gemessenen N_2O -Mischungsverhältnis [*Podolske & Loewenstein*, 1993]. Über den gesamten Messbereich existiert eine kompakte Korrelation. Für N_2O -Werte > 275 ppb kann diese kompakte Korrelation zur Altersbestimmung herangezogen werden. Dabei ist zu beachten, dass auch das troposphärische N_2O -Mischungsverhältnis einen jährlichen Anstieg von etwa 0,65 ppm aufweist (vgl. Abschnitt 7.1). Im Gegensatz zum aus der „lag time“ bestimmten Alter Γ_L , soll das aus der Analyse der Alterspektren gewonnene Alter (in Jahren) mit Γ_S bezeichnet werden [*Andrews*, 1999]:

$$\Gamma_S = 0,064 \cdot (310 - \chi_{\text{N}_2\text{O}}) - 0,0003 \cdot (310 - \chi_{\text{N}_2\text{O}})^2 \quad (8.7)$$

Es muss darauf hingewiesen werden, dass dieser Gleichung eine um zwei Monate gegen die Mauna Loa-Samoa-Kurve verschobene Eingangsfunktion für die tropische Tropopause zu Grunde liegt $\delta\Gamma = 0,167$ Jahre. Wenn in dieser Arbeit also die Gleichung benutzt wird, so werden die Ergebnisse stets noch um diesen Wert nach oben korrigiert. Des Weiteren gilt Gleichung (8.7) streng genommen nur im Jahre 1997. Für andere Jahre müssen die verwendeten N_2O -Daten gemäß dem troposphärischen Trend auf das Jahr 1997 normiert werden.

Um einen stetigen Übergang zwischen den beiden Methoden zur Altersbestimmung zu gewährleisten, wird für $235 \text{ ppb} < \chi_{\text{N}_2\text{O}} < 275 \text{ ppb}$ eine empirische Gleichung angewendet, die beide Ergebnisse (Γ_S und Γ_L) berücksichtigt [*Andrews*, 1999]:

$$\Gamma = 0,025 \cdot (275 - \chi_{\text{N}_2\text{O}}) \cdot \Gamma_L + (1 - 0,0025 \cdot (275 - \chi_{\text{N}_2\text{O}})) \cdot \Gamma_S \quad (8.8)$$

Obwohl auf der Geophysica kein zeitlich hochauflösendes N₂O-Messinstrument zur Verfügung steht, wird die Altersbestimmung aus den HAGAR-Daten für Bereiche mit hohen N₂O-Mischungsverhältnissen ebenfalls mit der Kombination von N₂O- und CO₂-Daten durchgeführt. (Gleichungen (8.7) und (8.8), sowie eine weitere Gleichung zur Bestimmung von Γ_L , siehe folgender Abschnitt).

8.2.3 Troposphärischer Trend von CO₂

In diesem Abschnitt soll die Frage nach einer geeigneten troposphärischen CO₂-Referenzkurve zur Bestimmung des Alters in der Stratosphäre außerhalb der Tropen und der unteren mittleren Breiten diskutiert werden. Der zeitliche Verlauf des troposphärischen Hintergrundmischungsverhältnisses von CO₂ ist durch die Mauna Loa-Samoa-Kurve von NOAA/CMDL hervorragend dokumentiert. Sie hat sich auch bezüglich ihrer Amplitude als repräsentativ für die tropische Tropopausenregion erwiesen und eignet sich daher als Basis zur stratosphärischen Altersbestimmung [z. B. *Boering et al.*, 1996; *Nakazawa et al.*, 1991]. In Abbildung 8.2 ist diese Kurve für den Zeitraum von Ende 1989 bis Anfang 2000 zusammen mit einem 12-Monats-Mittel aufgezeigt.

Wie gewinnt man nun eine troposphärische Referenzfunktion, die zur Altersberechnung geeignet ist? Augenscheinlich ist ein gleitender Mittelwert über zwölf Monate, wie er von *Schmidt & Khedim* [1991] aber auch von *Strunk et al.* [2000] eingesetzt wurde, nur dann für eine exakte Altersbestimmung geeignet, wenn die Kurve sehr geringe Schwankungen aufweist; dies ist insbesondere in den letzten 5 – 10 Jahren nicht gegeben. Denn wenn die saisonalen Schwankungen mit zunehmendem Alter verschwinden, so kann nicht angenommen werden, dass Schwankungen im jährlichen Anstieg mit Zeitskalen von 2 – 3 Jahren in der Stratosphäre sich weiterhin mit derselben Intensität wiederfinden lassen (vgl. Abbildung 8.3); auch diese Schwankungen werden in irgend einer Form gedämpft, jedoch auch nicht notwendigerweise verschwunden sein.

Man wird also versuchen, den Trend durch eine geeignete Funktion anzunähern. Angesichts der Tatsache, dass bisher im von der Geophysica erreichbaren Höhenbereich bis 21 km keine größeren Alter als ca. sechs Jahre gefunden wurden, erscheint die Annahme, dass das stratosphärische Gedächtnis über einen Zeitraum von zehn Jahren hinausreicht, als nicht gerechtfertigt. Als erster Versuch wurde ein linearer Fit über den Zeitraum von Anfang 1990 bis Ende 1999 durchgeführt. Daraus berechnet sich das Alter gemäß:

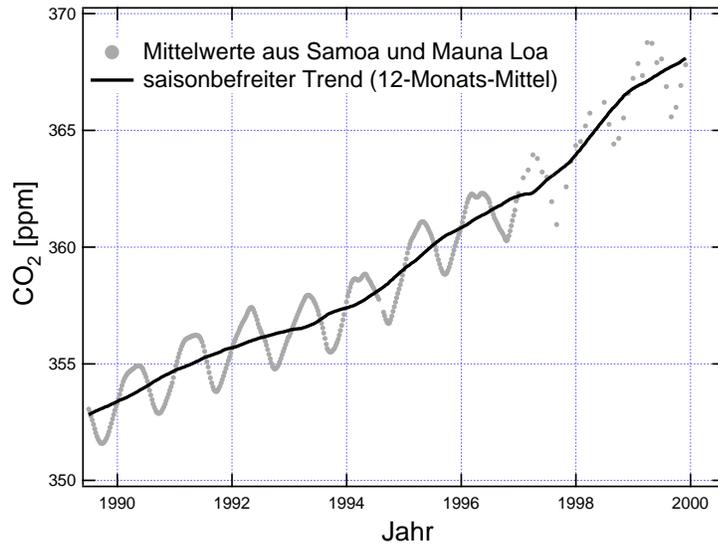


Abbildung 8.2: Mauna Loa-Samoa-Kurve seit 1990. Zusätzlich zu den Messdaten ist das gleitende 12-Monats-Mittel eingezeichnet (Daten von P. Tans, NOAA/CMDL).

$$\Gamma_{LL} = t - (1749,7726 + 0,68163 \cdot \chi_{CO_2}) \quad (8.9)$$

Alternativ wurde auch ein quadratischer Fit durch die Mauna Loa-Samoa-Daten des selben Zeitraums gelegt. Damit berechnet sich das Alter gemäß

$$\Gamma_{LQ} = t - \frac{-b + \sqrt{b^2 - 4 \cdot a \cdot (c - \chi_{CO_2})}}{2 \cdot a} \quad (8.10)$$

mit

$$\begin{aligned} a &= 0,089473 \\ b &= -355,52473 \\ c &= 353524,11 \end{aligned}$$

Unter Berücksichtigung der Nicht-Linearitätskorrektur von Volk *et al.* [1997] ergibt sich:

$$\Gamma_{LQK} = t - \frac{-b' - \sqrt{b'^2 - 4 \cdot a' \cdot (c' - \chi_{CO_2})}}{2 \cdot a'} \quad (8.11)$$

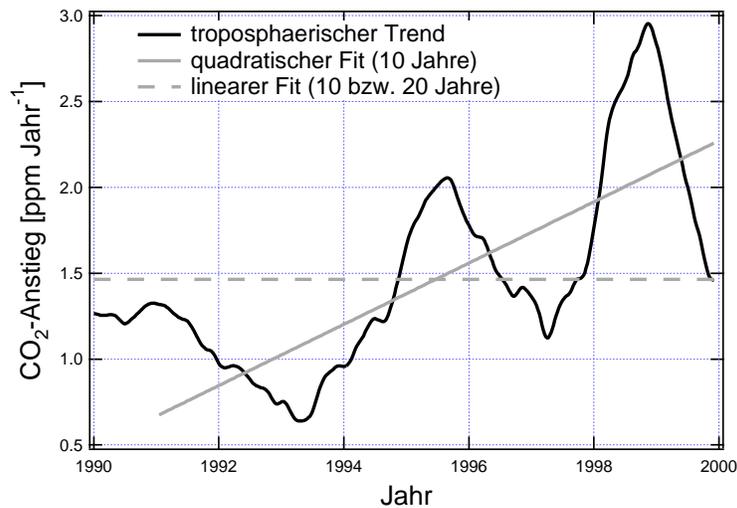


Abbildung 8.3: Jährlicher Anstieg des troposphärischen CO₂-Mischungsverhältnisses im Zeitraum von 1990 bis 2000. Der von Harvard vorgeschlagene lineare Trend über 20 Jahre bis 1997 unterscheidet sich in dieser Auftragung nicht sichtbar von einem linearen Fit über den Zeitraum von 1990-2000. Zusätzlich ist ein quadratischer Fit über die letzten 10 Jahre eingezeichnet.

mit

$$\begin{aligned}
 a' &= a \\
 b' &= 2a \cdot (\Lambda - t) - b \\
 c' &= (a \cdot t^2) + (b \cdot t) + c \\
 \Lambda &= 1,25
 \end{aligned}$$

Dabei werden die Faktoren a , b und c aus Gleichung 8.11 verwendet. Zur besseren Darstellung wurden die Steigungen der beiden Fitfunktionen dem jährlichen Anstieg des CO₂-Mischungsverhältnisses in der geglätteten Mauna Loa-Kurve gegenübergestellt (Abbildung 8.3).

Der lineare Fit aus Gleichung (8.10) ergibt eine nahezu gleiche Steigung, wie sie die Funktion hat, die von der Gruppe aus Harvard zur Altersberechnung eingesetzt wird; die Funktionen unterscheiden sich jedoch im Achsenabschnitt. In Harvard werden seit 1992 erfolgreich in-situ-Messungen von CO₂ auf der ER-2 und an Stratosphärenballonen (OMS) durchgeführt. Zur Altersberechnung wird ein linearer Fit über die letzten 20 Jahre verwendet, der ebenfalls einen Anstieg von etwa 1,46 ppm/Jahr aufweist. Das Alter bestimmt sich damit gemäß [Andrews, 1999]:

$$\Gamma_{LH} = t - (1749,99 + 0,68241 \cdot \chi_{CO_2}) + 0,167 \quad (8.12)$$

Andrews [1999] konnte die Konsistenz ihrer Methode der Altersbestimmung an Hand einer Korrelation von Alter und N₂O-Mischungsverhältnis über einen Zeitraum von 1992 bis 1997 nachweisen. Daten von späteren Messkampagnen (z. B. SOLVE, Winter 1999/2000) wurden noch nicht ausgewertet (A. Andrews, persönliche Mitteilung). Auch der von *Strunk et al.* [2000] verwendete Datensatz endet im Jahre 1997.

Es erscheint jedoch so, dass der Anstieg des troposphärischen CO₂-Mischungsverhältnisses sich in den letzten fünf Jahren im Mittel beschleunigt hat. Der Trend wird durch einen quadratischen Fit (Polynom 2. Ordnung) deutlich besser repräsentiert (8.3).

8.2.4 Ergebnisse

Zu Beginn dieses Kapitels wurde darauf hingewiesen, dass die Korrelation von Alter und N₂O-Mischungsverhältnis in einem bestimmten Breitenbereich weitgehend zeitlich konstant sein sollte, da die stratosphärischen N₂O-Werte aufgrund des schwachen linearen Anstiegs in der Troposphäre mit minimalen systematischen Fehlern auf ein Referenzjahr normiert werden können.

In einem ersten Schritt wurden die Alterswerte aus HAGAR-Daten mit der von Harvard benutzten Methode gemäß Gleichung (8.12) bestimmt (Γ_{LH}). Für Bereiche mit hohem N₂O-Mischungsverhältnis wurden jedoch die N₂O-Daten unter Verwendung der Gleichungen (8.7) und (8.8) berücksichtigt. Diese Ergebnisse der Flüge von APE-GAIA wurden in Abbildung 8.4 den ER-2-Daten gegenübergestellt, die von zwölf Messflügen stammen, die im Oktober und November 1994 im Rahmen von ASHOE/MAESA statt fanden.

Alle N₂O-Daten in Abbildung 8.4 sind gemäß des troposphärischen Trends auf das Jahr 1997 normiert. Bei der Altersberechnung wurde stets $\delta\Gamma = 0$ gesetzt. Die kompakte Korrelation zwischen Alter und N₂O bis zu einem Mischungsverhältnis von ca. 275 ppb ist eine Trivialität – hier wird das Alter schließlich auf Basis der N₂O-Messungen bestimmt.

Im Bereich des maximalen Alters zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen den HAGAR- und den ER-2-Ergebnissen. So ergibt sich im antarktischen Polarwirbel in 20 – 21 km Höhe ein Alter von etwa 5,1 – 5,5 Jahren. Angesichts der enormen Abweichung, die in Abbildung 7.7 auf Seite 145 zwischen den CO₂-Messungen von HAGAR und von Harvard liegen, mag dies zunächst überraschen. Grund dafür ist die Tatsache, dass die von Harvard benutzte Eingangsfunktion für troposphärisches CO₂ den realen Verlauf bis

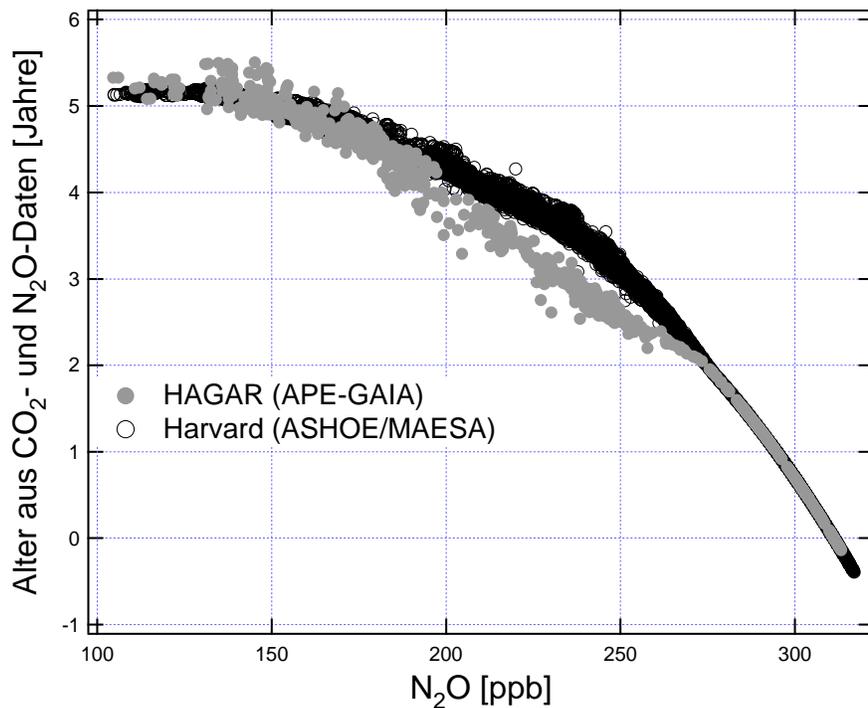


Abbildung 8.4: Korrelation des aus CO₂- und N₂O-Messungen bestimmten Alters mit dem N₂O-Mischungsverhältnis. Gezeigt sind ER-2 Daten aus zwölf Flügen vom Oktober/November 1994. Die HAGAR-Daten umfassen die fünf wissenschaftlichen Flüge, sowie den Testflug von APE-GAIA. Die Alterswerte aus den ER-2- sowie den HAGAR-Daten wurden mit der von Harvard benutzten Methode berechnet (Gleichung (8.12)). N₂O-Werte sind auf 1997 normiert, $\delta\Gamma = 0$ gesetzt.

Mitte der 90er Jahre hinein zufriedenstellend beschreibt. Für Messdaten, die ein Alter von etwa fünf Jahren aufweisen, erhält man 1999 also noch weitgehend korrekte Resultate.

Im Bereich von Alterswerten zwischen zwei und vier Jahren liegen die HAGAR-Werte durchgehend bis zu 0,7 Jahre niedriger als die Werte der ER-2. Es muss jedoch darauf hingewiesen werden, dass die Daten aus Harvard nicht für alle Messdaten von 1992 – 1997 identische Korrelationen liefern. Die in Abbildung 8.4 dargestellten Daten sind innerhalb eines Monats des Jahres 1994 gewonnen worden. Über den gesamten Datensatz hinweg sind vielmehr systematische Abweichungen von 0,3 – 0,5 Jahren zu beobachten, die auf Schwankungen im troposphärischen Trend zurückzuführen sind [Andrews, 1999]. Aber auch innerhalb dieser Fehlergrenzen stimmen die Daten nicht

mehr überein.

Nun ist es nicht Ziel dieses Kapitels, die HAGAR-Daten in optimale Übereinstimmung zu den Daten aus Harvard zu bringen. Es soll vielmehr die Frage diskutiert werden, inwieweit die Altersbestimmung mit CO_2 auf einfachem Wege eine unabhängige Größe für den stratosphärischen Transport liefert.

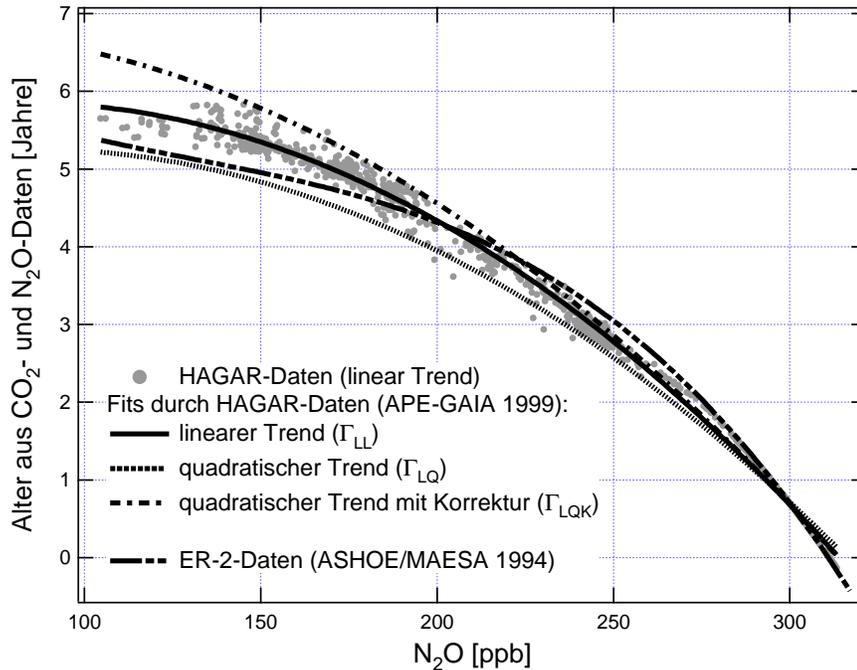


Abbildung 8.5: Vergleich verschiedener Methoden zur Altersberechnung. Die Datenpunkte sind mit einem Trendfunktion berechnet, die auf einem linearen troposphärischen CO_2 -Trend beruhen (Gleichung (8.9)). Die durchgezogene Linie ist ein quadratischer Fit durch diese Punkte (Polynom 2. Ordnung). Die beiden anderen Fits repräsentieren die Altersdaten, die auf Basis eines quadratischen CO_2 -Trends berechnet wurden (gestrichelt: Gleichung (8.10), strichpunktiert: Gleichung (8.11)). Zusätzlich ist noch ein Fit durch die ER-2-Daten eingezeichnet.

In Abbildung 8.5 wird daher untersucht, welchen Einfluss die verschiedenen Methoden zur Altersberechnung auf die Ergebnisse haben. Zur besseren Übersicht werden die verschiedenen Resultate durch einen quadratischen Fit (Polynom 2. Ordnung) repräsentiert. Diese Fitkurven geben die Daten nicht optimal wieder. Insbesondere für geringe N_2O -Mischungsverhältnisse (< 140 ppb) können sie dem flachen Verlauf der Korrelation nicht folgen. Dieser Effekt tritt jedoch bei allen drei Kurven im gleichen Maße auf und ist

daher für diese Betrachtung nicht kritisch. Polynome höherer Ordnung als drei neigen jedoch dazu, deutlich größere Artefakte im Verlauf der Korrelation zu erzeugen.

Bei der Altersberechnung mittels eines linearen Fits über zehn Jahre (Gleichung (8.9) Γ_{LL}) ist der Übergang oberhalb von 275 ppb N₂O besser als bei der Harvard-Methode. Die zu geringe Steigung dieses Fits führt jedoch zu einem um etwa ein halbes Jahr überhöhten maximalen Alter.

Obwohl die quadratische Kurve den troposphärischen Trend deutlich besser beschreibt als ein linearer Trend, führt die Verwendung von Gleichung (8.10) (Γ_{LQ}) in Bereichen mittlerer Alterswerte noch zu zu kleinen Werten. Die von *Volk et al.* [1997] eingeführte Korrektur (Gleichung (8.11), Γ_{LQK}) verbessert die Lage für Alterswerte von 2 – 4,5 Jahren. Für große Alter beträgt die Korrektur jedoch ein Jahr und liegt damit im Vergleich signifikant zu hoch.

Die Korrektur für quadratische Trends wurde aus den Ergebnissen zweier stratosphärischer Transportmodelle gewonnen. In jüngster Zeit konnte in einem Vergleich von 27 Modellen gezeigt werden, dass alle Modelle immer noch das Alter der Luft systematisch unterschätzen [*Li & Waugh*, 1999]. Dies muss nicht notwendigerweise heißen, dass der für die Korrektur relevante Parameter Λ , der ja der Quotient aus dem Quadrat der Halbwertsbreite des Alterspektrums und dem Alter ist, auch falsch wiedergegeben wird.

In einer neueren Studie war es auch möglich, mittels eines großen Datensatzes von CO₂-Messungen auf empirischem Wege Alterspektren in den Tropen [*Andrews et al.*, 1999] bzw. dem unteren Bereich der unteren Stratosphäre in mittleren Breiten zu bestimmen [*Andrews*, 1999]. Dabei zeigte sich, dass das Altersspektrum in den mittleren Breiten eine bimodale Form aufweist. Es unterscheidet sich daher markant von der von *Kida* [1983] angenommenen Form, die optisch in etwa einer Poisson-Verteilung entspricht (vgl. Abbildung 1.3). In der logischen Folge bedeutet dies, dass so etwas wie bevorzugte Transportwege innerhalb der Stratosphäre existieren. Ein Teil der Luftmassen durchläuft die großräumige Brewer-Dobson-Zirkulation und erreicht mit einem Alter von etwa sechs Jahren die mittleren Breiten. Andere Luftmassen werden aus den Tropen isentrop innerhalb weniger Monate in die mittleren Breiten eingemischt. Welchen Einfluss ein derartiges Altersspektrum auf den Wert bzw. die Konstanz von Λ hat ist momentan noch unklar. Bei einem weitgehend perfekten quadratischen Trend weist die Korrektur weiterhin in die richtige Richtung, lediglich der Betrag ist fraglich. Für einen Tracer, der jedoch einen stark schwankenden troposphärischen Trend wie CO₂ aufweist, können die Folgen eines bimodalen Spektrums schwer eingeschätzt werden. Dies sind weitere offene Fragen, die aktuell im Zusammenhang mit der Bestimmung des Alters diskutiert werden müssen.

Angesichts der systematischen Unsicherheiten bei der Altersbestimmung rückt die Bedeutung der von HAGAR erreichten Präzision ein wenig in den Hintergrund. Zieht man den Messfehler aus der CO_2 -Messung und den Fehler bei der CH_4 -Bestimmung zusammen in Betracht, so ergibt sich eine Unsicherheit von maximal 2 – 3 Monaten. Hinzu kommt eine weitere Unsicherheit in der Absolutgenauigkeit, die auf die verwendeten Kalibriergase zurückzuführen ist. Für CO_2 liegt diese bei ca. 1,5 Monaten.

8.3 SF_6

Nachdem für CO_2 und SF_6 vergleichbare Alterswerte zu erwarten sind [s. *Andrews, 1999; Strunk et al., 2000*] wäre es prinzipiell möglich, einen direkten Vergleich der HAGAR-Messungen durchzuführen. In diesem Abschnitt werden nun die Gründe diskutiert, die dafür verantwortlich sind, dass die offenen Fragen aus der CO_2 -Altersbestimmung (noch) nicht durch die SF_6 -Daten von HAGAR geklärt werden können. Denn auch die Altersbestimmung mit SF_6 ist momentan schwierig.

8.3.1 Troposphärischer Trend

Auch für SF_6 steht im Moment die Frage nach einem „gültigen“ troposphärischen Trend im Vordergrund. Die bisherigen Arbeiten zu diesem Thema beziehen sich auf Daten, die nicht später als 1997 aufgenommen wurden [z. B. *Volk et al., 1997; Strunk et al., 2000*]. Für diesen Zeitraum liegen zwei verschiedene troposphärische Trends für SF_6 von *Maiss & Brenninkmeijer [1998]* bzw. *Geller et al. [1997]* vor. Auch diese Trends können nur durch eine quadratische Ausgleichsfunktion zufriedenstellend beschrieben werden¹. Obwohl beide Kurven im Rahmen des Fehlers für den Zeitraum bis 1997 in Einklang zu bringen sind, divergieren sie doch mit fortschreitender Zeit. Ist der Unterschied in den Kurven im Messzeitraum noch durch die unterschiedliche Auswahl an Bodenstationen zu erklären, so kann dies kaum für eine größere Differenz als Erklärung ausreichen.

Nun gibt es bereits Hinweise darauf, dass sich der Anstieg im troposphärischen Hintergrundmischungsverhältnis von SF_6 verlangsamt [*Maiss & Brenninkmeijer, 2000*]. Dieser Effekt war zu erwarten, da SF_6 im Protokoll des Weltklimagipfels von Kyoto im Jahre 1998 in die Liste der Treibhausgase aufgenommen wurde. Levin schlägt bereits einen linearen Fit durch die troposphärischen SF_6 -Daten vor (I. Levin, persönliche Mitteilung).

¹Tatsächlich war es diese Tatsache, die zur Entwicklung der Korrekturformel für quadratische Trends durch *Volk et al. [1997]* führte.

Dennoch soll in dieser Arbeit noch einmal die Kurve von Geller benutzt werden. So beinhaltet sie auch Daten der Stationen vom Mauna Loa und von Amerikanisch Samoa, deren Messungen auch die Referenzkurve für CO₂ bilden. Neben den von *Geller et al.* [1997] veröffentlichten Daten, deren Zeitreihe bis einschließlich 1996 reicht, wird die Kurve auch noch durch vorläufige Daten gestützt, die bis Mitte 1998 reichen (persönliche Mitteilung von NOAA/CMDL, hier zitiert nach *Haase* [1999]). Des Weiteren soll auch Konsistenz mit anderen Arbeiten innerhalb der Arbeitsgruppe erreicht werden [z. B. *Strunk et al.*, 2000; *Haase*, 1999], die sich bisher ebenfalls auf die globale „Geller-Kurve“ bezogen [*Geller et al.*, 1997]:

$$\chi_{\text{SF}_6} = 3,4361 + 0,2367 \cdot (t - 1996) + 0,0049 \cdot (t - 1996)^2 \quad (8.13)$$

8.3.2 Ergebnisse

In diesem Abschnitt sollen die Altersdaten aus den SF₆-Messungen denjenigen aus CO₂-Messungen gegenübergestellt werden. Dieser Vergleich kann jedoch zu diesem Zeitpunkt nur qualitativ ausfallen, da die Auswertung der SF₆-Daten noch nicht beendet ist. Grund hierfür ist die Tatsache, dass innerhalb der Arbeitsgruppe eine neue Auswertungsmethode für die SF₆-Chromatogramme entwickelt wurde. Es ist zu erwarten, dass durch die neue Technik die Präzision der Daten verbessert wird. Sie ist jedoch noch nicht vollständig operationell, daher konnten die Messungen, die zur Kalibration der von HAGAR verwendeten Arbeitsstandards durchgeführt wurden, ebenfalls noch nicht endgültig ausgewertet werden. Somit besteht auch ein hier nicht weiter zu quantifizierendes Problem bei der Interkalibration mit den Referenzkurven von [*Geller et al.*, 1997].

Noch deutlicher als bisher stellt sich nach dem vorangegangenen Kapitel die Frage, inwieweit mit einem nicht linear ansteigenden Tracer eine exakte Altersbestimmung überhaupt möglich ist.

Die hier vorgestellten SF₆-Daten basieren auf der alten Auswertemethode (Peakhöhe), den vorläufigen Werten für das Referenzgas und einer linearen Ein-Punkt-Kalibration. Angesichts der aktuellen Unsicherheiten in der CO₂-Altersbestimmung fällt der in Abbildung 8.6 dargestellte Vergleich der Resultate sehr zufriedenstellend aus. Trotz der großen statistischen Schwankungen im SF₆ muss festgehalten werden, dass das SF₆-Alter systematisch höher liegt als das CO₂-Alter. Dabei liegt sowohl ein Offset von etwa 0,2 Jahren als auch ein Unterschied in der Steigung vor. Auf diesen Daten kann jedoch noch keine seriöse Diskussion über Altersberechnung aufgebaut werden.

Abschließend muss noch der Hoffnung Ausdruck verliehen werden, dass

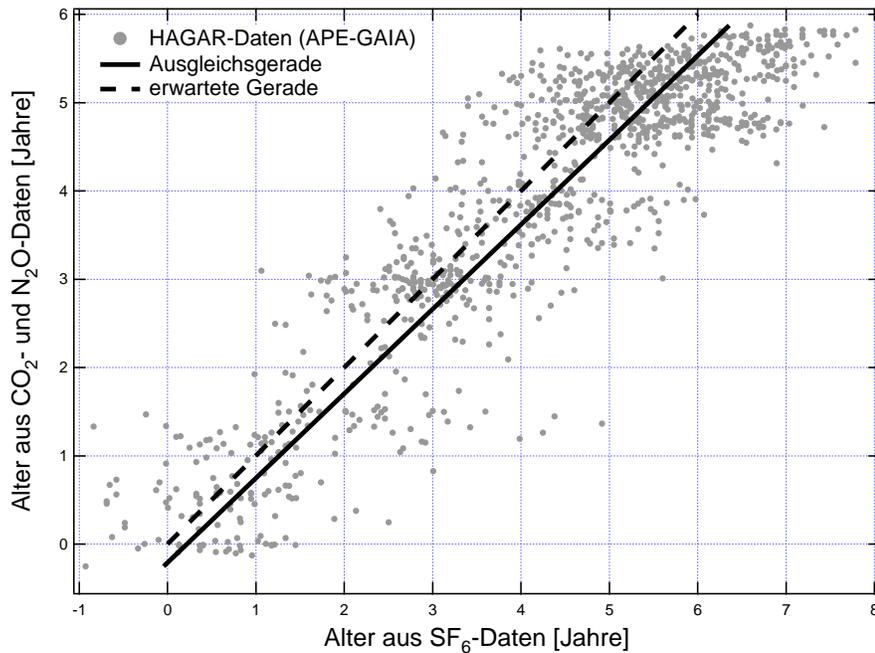


Abbildung 8.6: Vergleich zwischen den Alterswerten aus CO_2 - bzw. SF_6 -Messungen aus APE-GAIA.

bis zur endgültigen Auswertung der SF_6 -Daten neuere Daten aus dem NOAA/CMDL-Netzwerk zur Verfügung stehen. In diesem Fall könnte die Altersberechnung mit einer neuen, möglicherweise veränderten Kurve erneut durchgeführt werden, um damit „belastbarere“ Altersdaten zu erhalten. Angesichts der Probleme, zu denen das unstete Verhalten des troposphärischen CO_2 -Trends bei der Altersberechnung führt, wäre eine weitere Überprüfung durch SF_6 -Daten wünschenswert.

Zudem ist es möglich, dass die HAGAR-Daten aus APE-THESEO, wo die bisher umfangreichsten Messungen im tropischen Tropopausenbereich durchgeführt werden konnten, bessere Informationen über die Zeitdifferenz zwischen dem troposphärischen Trend und dem Trend an der tropischen Tropopause ($\delta\Gamma$) liefern werden.

8.4 Zusammenfassung

Das mittlere Alter der Luft ist unbestritten ein wertvolles Werkzeug zur Untersuchung stratosphärischer Dynamik. In der Praxis zeigt sich jedoch, dass es mit den bisher verwendeten Alterstracern SF_6 und CO_2 trotz ausreichender Messgenauigkeit nicht einfach ist, ein unabhängiges Maß für den

Transport zu erhalten. Grund dafür ist die Abweichung der troposphärischen Trends der beiden Spurengase von der von *Hall & Plumb* [1994] geforderten linearen Form. Veränderungen im Trend, sei es etwa durch 2 – 3 jährige Schwankungen (CO_2) oder durch ein Abflachen des Anstiegs (SF_6), führen zwangsläufig zu einer Neuinterpretation des Trends, die unter Umständen zu Ergebnissen führen, die mit früheren Daten nicht konsistent sind. Die systematische Unsicherheit bei der Altersbestimmung auf Basis von CO_2 -Messungen betragen momentan mehr als 0,7 Jahre, obwohl die Genauigkeit der HAGAR-Messungen nur einen Fehler von maximal 2 – 3 Monaten erklären kann.

Der Vergleich verschiedener Methoden zur Altersbestimmung aus CO_2 -Daten lässt auch Zweifel an der Anwendbarkeit der von *Volk et al.* [1997] eingeführten Korrektur für einen quadratischen Trend aufkommen. Auch wenn sie das richtige Vorzeichen aufweist, setzt eine Bestimmung des Betrages doch zuverlässigere Informationen über das Alterspektrum voraus. Dieses scheint sich jedoch in den mittleren Breiten erheblich von der seit *Kida* [1983] angenommenen Form zu unterscheiden [*Andrews*, 1999].

Um verlässlichere Altersdaten zu erhalten, müssten Untersuchungen mit anderen Tracern durchgeführt werden. So weist C_2F_6 einen linearen troposphärischen Trend auf. Des Weiteren wurden bereits einige Flüge der kryogenen Luftprobensammler auf C_2F_6 analysiert [*Sturges et al.*, 2000]. Es ist jedoch noch offen, ob die Genauigkeit dieser Daten ausreichend ist, um eine Auflösung im Bereich von zwei Monaten zu erhalten. Eine Untersuchung dieses Datensatzes im Vergleich zu den bisherigen Methoden zur Altersbestimmung könnte zumindest weitere Anhaltspunkte liefern.

Kapitel 9

Transport in den Tropen

9.1 Vertikalprofile von CO₂

9.1.1 Motivation

In den Tropen ist CO₂ aufgrund seiner saisonalen Schwankungen zunächst kein geeigneter Alterstracer. Grund hierfür ist die Tatsache, dass die tropische Stratosphäre von den mittleren Breiten isoliert ist. Die meisten Luftpakete bewegen sich entlang der vertikalen Grundströmung [Plumb, 1996]. Das Altersspektrum wird hauptsächlich durch die schwache Einmischung von Luft aus mittleren Breiten verändert. Innerhalb dieser „tropical pipe“ erwartet man daher, dass sich das saisonale Signal eines Tracers wie CO₂ oder Wasserdampf vertikal verfolgen lässt [Boering et al., 1996; Mote et al., 1996, 1998; Andrews et al., 1999]. Dieser Effekt der Aufzeichnung eines zeitlichen Signals durch die Atmosphäre wurde auch als „atmospheric tape recorder“ bezeichnet [Mote et al., 1996].

Innerhalb der Tropen ist die Annahme gerechtfertigt, dass das Altersspektrum der Luft – also auch insbesondere seine Breite Δ – vollständig durch das mittlere Alter Γ sowie das wahrscheinlichste Alter τ_M bestimmt ist. Messungen von CO₂ bieten nun die Möglichkeit innerhalb der Tropen beide Größen zu bestimmen, da der zeitliche CO₂-Trend zwei unabhängige Informationen beinhaltet. Einem weitgehend konstant ansteigenden mittleren Trend ist ein nahezu sinusförmiges, saisonales Signal aufmoduliert (vgl. Abbildung 8.2 auf Seite 158). Ein Messpunkt eines tropischen Vertikalprofils beinhaltet somit neben dem Mischungsverhältnis auch noch eine Information zur Phasenlage relativ zur Troposphäre. Das mittlere Alter auf den Isentropen unterliegt deutlichen saisonalen Schwankungen. Dies ist auf eine jahreszeitliche Variabilität der mittleren Vertikalgeschwindigkeit innerhalb der Tropen zurückzuführen. Zusätzlich ist diese Geschwindigkeit auch nicht über den gesamten

Höhenbereich der unteren Stratosphäre konstant [*Andrews et al.*, 1999].

Wenn sich ein Alterspektrum so verbreitert, dass sich mittleres und wahrscheinlichstes Alter unterscheiden, muss ältere Luft eingemischt worden sein (vgl. Abschnitt 1.2.1). Das Alterspektrum in den Tropen liefert also wertvolle Informationen über die Einmischung von Luft aus mittleren Breiten. Diese Einmischung ist für die globale Verteilung von Spurengasen ebenso wie für deren mittlere Verweilzeit von Bedeutung. Diese erhöht sich beträchtlich, wenn ein wesentlicher Anteil der stratosphärischen Luft die großräumige Brewer-Dobson-Zirkulation ein zweites Mal durchläuft.

9.1.2 Messungen

Die Geophysica flog im Jahre 1999 dreimal in den Tropen. Der erste Datensatz stammt von der APE-THESEO Kampagne im Februar und März, wo HAGAR während sechs Flügen in den Tropen Daten aufnehmen konnte. Wie bereits erläutert ist jedoch die Qualität dieser Daten noch nicht zufriedenstellend. Die Streuung ist bei einer halbierten Zeitauflösung von ca. 25 s mit ca. 0,3 ppm immer noch um mindestens einen Faktor zwei schlechter als während APE-GAIA. Dennoch reicht die Qualität aus, zumindest ein grobes Bild zu erhalten.

Die weiteren Gelegenheiten für Messungen in den Tropen ergaben sich während der Transferflüge von Sevilla nach Ushuaia. Die Geophysica machte jeweils einen Zwischenstopp in Recife/Brasilien (8° S), was die Aufnahme eines Vertikalprofils während An- und Abflug ermöglichte. Während des Hinfluges (8.9. bis 14.9.1999) funktionierte HAGAR. Leider konnten vom Rückfluge (18.10. und 22.10.1999) keine Daten verwendet werden. Die Referenzgasflasche war aufgrund eines Füllfehlers um ca. 10 % verdünnt, was eine brauchbare Auswertung der CO_2 -Daten unmöglich macht.

Abbildung 9.1 zeigt die Daten aus den sechs Flügen während APE-THESEO aus dem Zeitraum zwischen dem 24.2.1999 und dem 11.3.1999. Es wurden jedoch nur stratosphärische Messdaten ($\theta > 380$ K) aus dem Bereich zwischen 8° N und 8° S berücksichtigt. Abbildung 9.2 zeigt Daten von den Transferflügen nach Ushuaia, vor allem von der Etappe Isla do Sal – Recife (9.9.1999). Auch hier wurde auf eine aufwändige Identifizierung der tropischen Messdaten etwa mittels äquivalenter Breite verzichtet. Da die Geophysica während der Transferflüge nahezu konstant auf ca. 19 km Höhe flog, konnte das Vertikalprofil nur beim An- und Abflug von Recife (8° S) aufgenommen werden.

In beiden Abbildungen sind zum Vergleich die Daten der Gruppe der Harvard-University eingezeichnet [*Andrews et al.*, 1999]. Da diese Daten aus den Jahren 1994 bzw. 1997 stammen, wurden sie entsprechend des saisonbe-

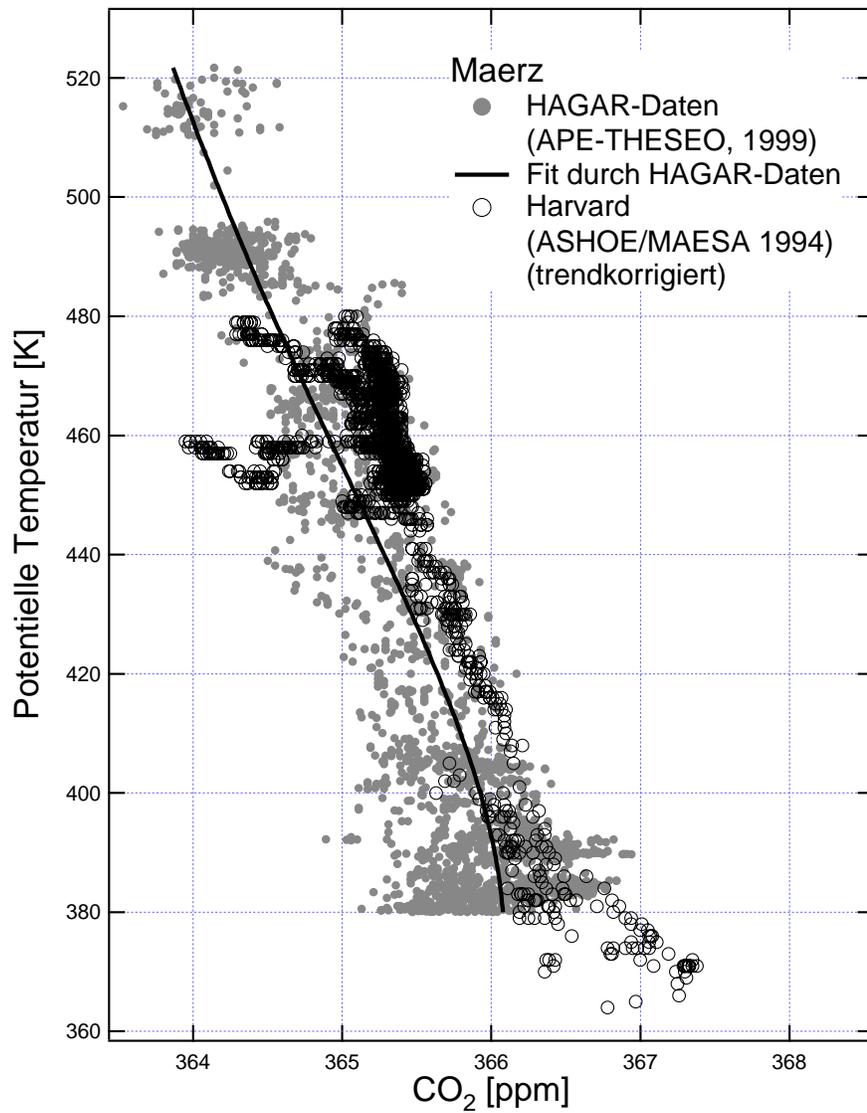


Abbildung 9.1: HAGAR CO_2 -Daten während APE-THESEO oberhalb 380 K und zwischen 8°N und 8°S . Die HAGAR-Daten wurden zwischen Ende Februar und Mitte März 1999 aufgezeichnet. Zum Vergleich sind trendkorrigierte Daten von Harvard aus derselben Jahreszeit in 1994 eingezeichnet [Daten aus *Andrews et al.*, 1999]. Die HAGAR-Datensätze sind zur Verdeutlichung zusätzlich durch einen Fit dargestellt.

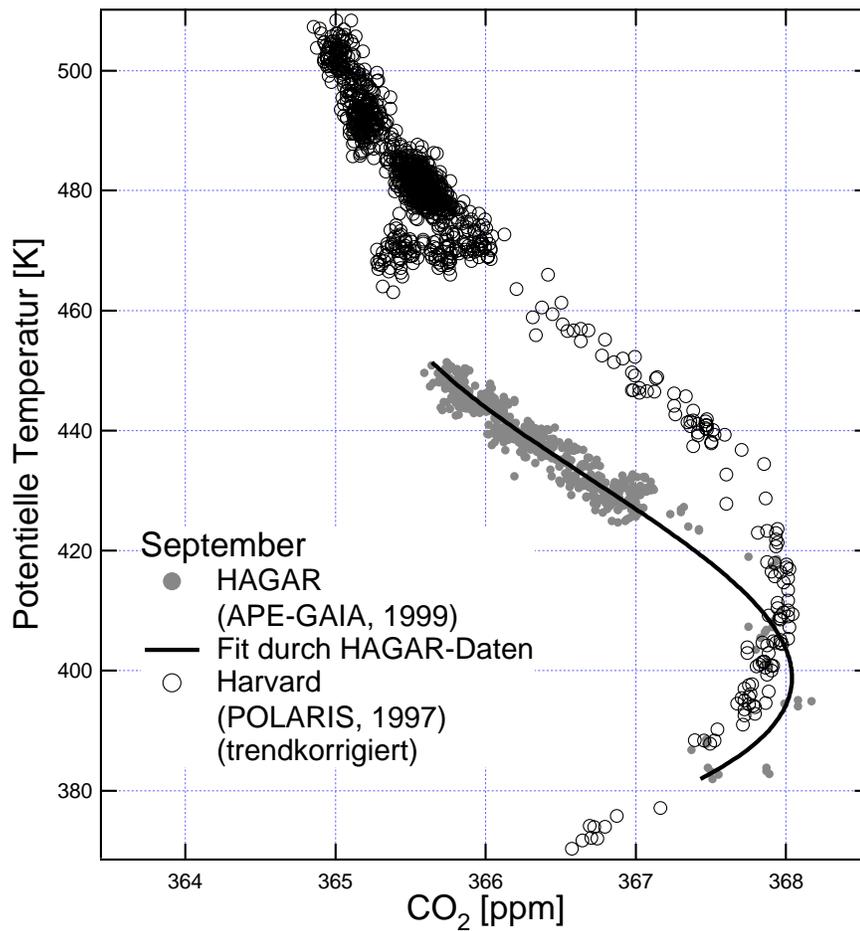


Abbildung 9.2: HAGAR CO₂-Daten während der APE-GAIA-Transferflüge oberhalb 380 K und zwischen 8° N und 10° S. Die HAGAR-Daten wurden Mitte September 1999 aufgezeichnet. Zum Vergleich sind trendkorrigierte Daten von Harvard aus derselben Jahreszeit in 1997 eingezeichnet [Daten aus *Andrews et al.*, 1999]. Die HAGAR-Daten sind zur Verdeutlichung zusätzlich durch einen Fit dargestellt.

freiten troposphärischen Trends aus Abbildung 8.2 auf Seite 158 verschoben. Die direkte Vergleichbarkeit setzt eine konstante Amplitude der jahreszeitlichen Schwankungen voraus, die jedoch in guter Näherung gegeben ist.

Die Messungen vom März weisen eine im Rahmen des Fehlers gute Übereinstimmung auf. Hier umfassen die Daten von HAGAR einen weit größeren Höhenbereich als die Daten von Harvard. Unter der Annahme, dass die HAGAR-Daten gut durch ihren Mittelwert repräsentiert werden, erscheint es jedoch, als lägen die Profile ca. 20 K niedriger als die von der Gruppe aus Harvard an Bord der ER-2 gemessenen.

Im September kann dieser Unterschied deutlicher beobachtet werden. Während die Differenz während APE-THESEO auch durch einen Unterschied im CO₂-Mischungsverhältnis von ca. 0,3 ppm zu erklären gewesen wäre, ist dies bei den September-Daten nicht möglich. Das beobachtete CO₂-Maximum liegt bei den HAGAR-Daten ca. 20 K niedriger. Zudem wirkt die ganze Kurve im Vergleich zu den Daten der Gruppe aus Harvard vertikal gestaucht. Nun ist sicher nicht zu erwarten, dass die Vertikalprofile aus verschiedenen Jahren von verschiedenen Orten vollends vergleichbar sind. Eine solche Abweichung stellt jedoch ein Überraschung dar. Der Einfluss von Fehlern bei der Temperaturmessung an Bord der Geophysica kann zwar nicht vollkommen ausgeschlossen werden, doch zeigt sich der Effekt in vergleichbarer Weise auch bei der Verwendung von Druck oder Höhe als Vertikalkoordinate. Das Maximum im CO₂-Jahresgang bei ca. 400 K entspricht dem Maximum der Mauna Loa-Samoa-Kurve vom März 1999. Das CO₂-Mischungsverhältnis auf der 400 K-Isentrope in den Tropen im September 1999 ist also etwa sechs Monate gegenüber dem troposphärischen Hintergrundwert verzögert.

Natürlich ist der Umfang des HAGAR-Datensatzes noch nicht ausreichend für eine umfassende Analyse. Grund hierfür ist vor allem die geringe Präzision der CO₂-Messungen während APE-THESEO.

9.2 Tracer-Tracer-Korrelationen

Tracer-Tracer-Korrelationen sind ein wichtiges Mittel zur Untersuchung von Transportprozessen im Bereich der in der Stratosphäre existierenden Transportbarrieren am Rande der Tropen. So sind Korrelationen von Tracern mit unterschiedlicher Lebensdauer innerhalb und außerhalb der Tropen signifikant verschieden [z. B. *Volk et al.*, 1996].

So ergibt sich im Gegensatz zur F12-N₂O-Korrelation für die F11-N₂O-Korrelation in den Tropen ein deutlich von den mittleren Breiten abweichendes Bild. Aufgrund der geringeren lokalen Lebenszeit von F11 in den Tropen weist die Korrelation eine bedeutend größere Steigung auf. In Ab-

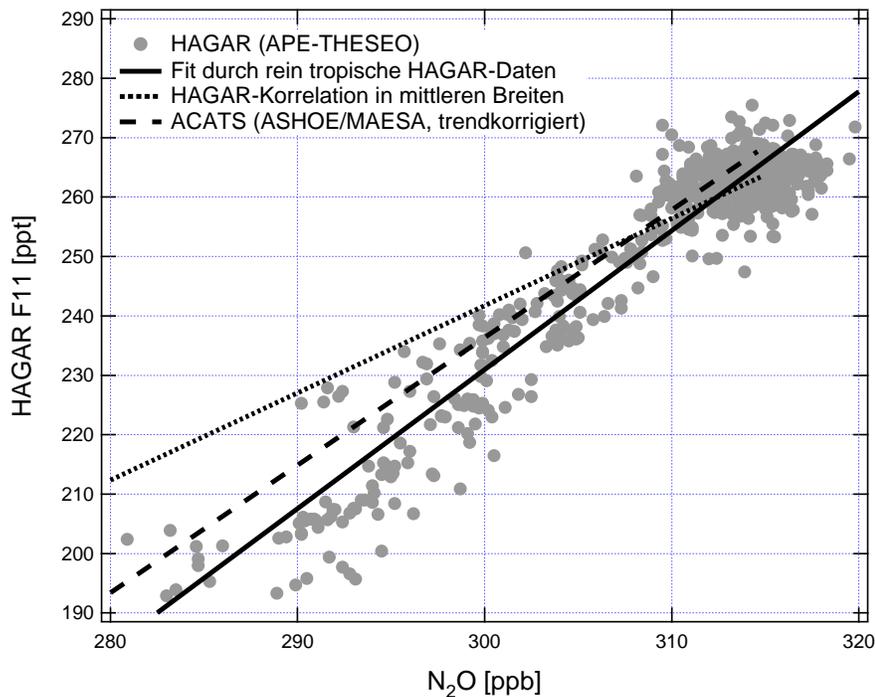


Abbildung 9.3: F11-N₂O-Korrelation in den Tropen. Zum Vergleich sind die HAGAR-Korrelation aus mittleren Breiten, sowie die tropische, trendkorrigierte ACATS-Korrelation von ASHOE/MAESA eingezeichnet [Volk *et al.*, 1996]. Die HAGAR-Daten aus APE-THESEO wurden zwischen dem Äquator und 18° S aufgezeichnet. Die Korrelation aus den mittleren Breiten wurde aus den APE-GAIA-Daten gewonnen.

bildung 9.3 sind die HAGAR-Daten aus APE-THESEO dargestellt. Zum Vergleich wurde auch die tropische Korrelation eingezeichnet, die ACATS während ASHOE/MAESA 1994 gewinnen konnte. Die Daten stimmen nach der Normierung auf das Jahr 1999 sehr gut überein.

Interessant ist jedoch, dass ein Teil der HAGAR-Datenpunkte entlang der Korrelation für mittlere Breiten liegt. Daher wurden für den Fit durch die tropischen Daten nur Werte zwischen dem Äquator und 10° S berücksichtigt. Für Halon-1211, dessen Lebenszeit deutlich kürzer ist als die von F11 sollte der Effekt noch ebenfalls zu beobachten sein. Für eine qualitative Betrachtung ist der bisherige Stand der Datenauswertung für Halon-1211 zunächst ausreichend (Abbildung 9.3).

Die Messungen der abweichenden Luftmassen stammen vom letzten Messflug von APE-THESEO (11.3.1999). Die Daten lassen darauf schließen, dass

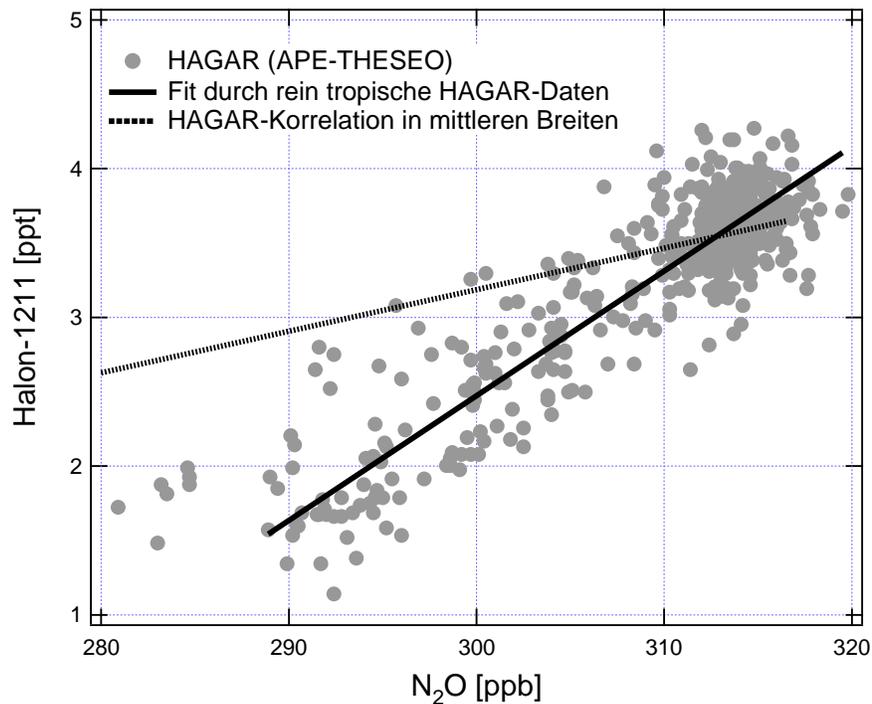


Abbildung 9.4: H1211-N₂O-Korrelation in den Tropen. Analog zu Abbildung 9.3 ist zusätzlich zu den Messergebnissen ein Fit durch die rein tropischen HAGAR-Daten sowie eine mittlere Korrelation aus mittleren Breiten (APE-GAIA) eingezeichnet.

die Luftmassen den mittleren Breiten entstammen. Dies ist insofern überraschend, als dass die Geophysica während zweier Messflüge, die unmittelbar zuvor (zwei bzw. fünf Tage) stattgefunden hatten, 500 km südlicher geflogen war, ohne jedoch diesen Effekt beobachten zu können. Es wird zu untersuchen sein, ob diese Daten auf ein „Einmischungsereignis“ von Luft aus mittleren Breiten in die Tropen zurückzuführen ist oder ob lediglich der Rand der Tropen erreicht worden war. Die verbesserte Auswertung der Halon-1211-Daten sowie eine Analyse der Ozondaten könnten hier detailliertere Aussagen möglich machen.

Kapitel 10

Dynamische Mischungsprozesse am Wirbelrand

Im vorangegangenen Kapitel wurden Transport und Mischungsprozesse im Bereich der Tropen diskutiert. Ebenso wie der Rand der Tropen, die in der Stratosphäre von einem Bereich stark verminderter Horizontalmischung begrenzt werden, stellt auch der Rand des winterlichen Polarwirbels eine effektive Barriere für den Transport entlang von Isentropen dar.

Die Charakterisierung der Transportbarriere am Rande des Polarwirbels ist von großer Bedeutung für die chemische Zusammensetzung der Stratosphäre in mittleren Breiten. Eine wichtige Fragestellung ist, in welchem Maße chemisch prozessierte und damit ozonarme Luft aus dem Inneren des Wirbels den Randbereich überwinden und in mittlere Breiten vordringen kann [Prather & Jaffe, 1990]. Aber auch der umgekehrte Prozess, also das Einmischen von Luft mittlerer Breiten in den Bereich des Wirbels ist von Interesse. Eine nicht zu vernachlässigende Einmischung von nicht prozessierter Luft in den Wirbel könnte die chemischen Prozesse in der vom Wirbel eingeschlossenen Luftmasse.

Zur Untersuchung und Charakterisierung von dynamischen Mischungsprozessen in mittleren und hohen Breiten ist die potenzielle Vorticity (PV) ein geeignetes Werkzeug. Im Gegensatz zu den Tracerdaten kann sie allein aus meteorologischen Datenfeldern gewonnen werden. Abschnitt 10.1 wird diese Größe einführen und ihre Nützlichkeit kurz darstellen.

Ein zweite Möglichkeit, Luftmassen aus dem Bereich des Wirbels zu charakterisieren sind in-situ-Messungen der Mischungsverhältnisse langlebiger Tracer. Innerhalb des isolierten Polarwirbels unterliegt die Luft aufgrund der fehlenden Sonneneinstrahlung starken diabatischen Absinkprozessen. Die IsoPLETEN führen daher im Wirbelrandbereich steil nach unten. Die Mischungsverhältnisse von Tracern auf einer Höhe (oder einer Isentropen) weisen daher

im Wirbelrand starke Gradienten auf. Luftmassen aus dem Wirbel lassen sich folglich durch verringerte Spurengasmischungsverhältnisse identifizieren.

Wirklich umfangreiche Daten zu den Mischungsprozessen sind nur aus Modellen zu erhalten, die vor allem auf meteorologischen Datensätzen beruhen. In den Abschnitten 10.2 und 10.3 soll und untersucht werden, inwieweit die vorliegenden, von G. Redaelli an der Universität von l'Aquila berechneten hochaufgelösten PV-Daten in der Lage sind, die realen Mischungsprozesse zu reproduzieren. Dabei ist nicht an einen statistischen Vergleich zwischen PV- und Tracer-Daten gedacht, wie er etwa von *Fairlie et al.* [1997] für ASHOE/MAESA durchgeführt wurde. Ziel ist es vielmehr herauszufinden, wie klein Strukturen mit signifikant von der Umgebung abweichenden Tracermischungsverhältnissen sein können.

Abschnitt 10.2 wird sich vor allem einem großen Filament mit Luft aus dem antarktischen Polarwirbel widmen, das die Instrumente an Bord der Geophysica in ihrem vierten Flug während APE-GAIA untersucht hatten. Für die Mischung über die Wirbelgrenze hinweg sind jedoch auch Strukturen von Bedeutung, die von weitaus geringerer räumlicher Ausdehnung sind als das Filament vom 8.10.1999. Abschnitt 10.3 wird sich daher exemplarisch mit einer Reihe von weiteren Ereignissen befassen, die HAGAR während der übrigen Flüge dokumentieren konnte.

10.1 Potenzielle Vorticity

Die potenzielle Vorticity – im Folgenden häufig kurz mit PV bezeichnet – ist ein Maß für die Wirbelstärke einer Luftmasse. Ähnlich wie der Drehimpuls ist auch sie – unter gewissen Annahmen über die Atmosphäre – eine Erhaltungsgröße. Für die potenzielle Vorticity Z , existieren zwei Definitionen, wobei hier die auf *Ertel* [1942] zurückgehende verwendet werden soll. Dabei wird nur die vertikale z -Komponente des Rotationsvektors berücksichtigt [hier zitiert nach *Roedel*, 1992]:

$$Z = \frac{\zeta + f}{\rho} \cdot \frac{d\theta}{dz} = \text{const.} \quad (10.1)$$

mit

$\zeta = \text{rot}_z \vec{v}$:	Wirbelstärke relativ zur Erdoberfläche
\vec{v}	:	Windfeld
$f = 2 \cdot \Omega \cdot \sin \varphi$:	Coriolis-Parameter
Ω	:	Frequenz der Erdrotation
φ	:	geographische Breite
θ	:	potenzielle Temperatur
ρ	:	Dichte
z	:	Höhe

Im SI-System ergibt sich dann als Einheit für die potenzielle Vorticity $\text{K m}^2 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-1}$. Diese Ertel'sche Definition der potenziellen Vorticity ist jedoch nur dann eine Erhaltungsgröße, wenn die Atmosphäre thermisch stabil geschichtet ist und nur adiabatische Prozesse ablaufen [Roedel, 1992].

Die potenzielle Vorticity ist eine gut geeignete Größe, um Luftmassen unter Verwendung von meteorologischen Datenfeldern zu charakterisieren. So ist etwa die Grenze des Polarwirbels durch einen starken PV-Gradienten gekennzeichnet (vgl. Abbildung 10.2). Da die potenzielle Vorticity über einige Tage entlang einer Trajektorie erhalten bleibt, deutet etwa eine lokal erhöhte PV außerhalb des Polarwirbels darauf hin, dass die Luftmassen aus dem Bereich des Wirbels stammen.

Für stratosphärische Transportprozesse gilt die Annahme von rein adiabatischen Prozessen entlang einer Trajektorie in der Regel für einen Zeitraum von einer Woche bis zu zehn Tagen. Damit kann die potenzielle Vorticity über einige Tage hinweg als konservativer Tracer betrachtet und verwendet werden. Dieser Umstand eröffnet eine Möglichkeit, die in den Polarregionen zumeist sehr grobe Auflösung der meteorologischen Analysen durch Modellrechnungen zu verfeinern. Im Ort des Interesses werden dafür eine Schar von Rückwärtstrajektorien gestartet, die auf den meteorologische Datenfeldern der letzten Tage z. B. vom ECMWF aufbauen. Der Wert der PV im Endpunkt¹ der Trajektorie wird nun aus der ECMWF-Analyse entnommen und für den Anfangspunkt eingesetzt. Die Trajektorienschar weitet sich dabei im Allgemeinen über die Zeit räumlich auf, so dass die groben Strukturen der ECMWF-Analyse nun auf ein kleineres Gebiet projiziert werden.

Diese Technik wird als „Domain Filling Trajectories“-Technik (kurz DFT)

¹Der Endpunkt einer Rückwärtstrajektorie entspricht im realen physikalischen Zusammenhang ihrem Anfangspunkt, also dem Ort wo die Luftmassen herkommen.

bezeichnet² und erstmals von *Sutton et al.* [1994] demonstriert. Für APE-GAIA wurden mit dieser Technik an der Universität von l'Aquila/Italien hochaufgelöste PV-Felder für jeden Flugtag berechnet. Neben PV-Karten für verschiedene Isentropen zu einem Zeitpunkt während des Fluges, liegen auch Daten vor, die die potenzielle Vorticity entlang der Flugstrecke der Geophysica angeben. Die zeitliche Auflösung der vorliegenden Daten beträgt 180 s, entsprechend knapp 40 km. Die im Folgenden gezeigten Karten und Graphen basieren allesamt auf diesen hochaufgelösten PV-Werten, die mittels der DFT-Technik aus den meteorologischen Analysen des ECMWF an der Universität von l'Aquila gewonnen wurden.

Die Tatsache, dass die DFT-Daten mit einer Auflösung von 40 km vorliegen steht zunächst in keinem Zusammenhang zur physikalischen Auflösung der Technik. So können die Startpunkte der Trajektorien – ausreichende Rechnerkapazitäten vorausgesetzt – im Prinzip beliebig dicht gesetzt werden. Abhängig von der jeweiligen meteorologischen Situation, kann die ideale Länge der Rückwärtstrajektorien unterschiedlich sein. *Bujok* [1998] fand in einer Fallstudie über Irland eine ideale Länge von 44 Stunden für die untersuchte Situation. Zu lange Trajektorien neigen zur Erzeugung von Artefakten; zu kurze Trajektorien wiederum divergieren nicht genug, um ausreichend strukturierte Verhältnisse an ihren Endpunkten aufzuweisen. Letztlich bestimmt jedoch auch die Qualität der Eingangsdaten, also der meteorologischen Datenfelder des ECMWF die erreichbare Auflösung. Diese ist wiederum durch die in hohen südlichen Breiten nur sehr spärlich vorhandenen Eingangsdaten limitiert. Die hier vorgestellten DFT-Daten sind weder bezüglich Auflösung noch Trajektorienlänge optimiert. Sie sollen lediglich einen Eindruck von der Leistungsfähigkeit dieser Technik vermitteln

Aufgrund der mathematischen Definition der potenziellen Vorticity Z aus Gleichung (10.1) hat sie im Bereich des antarktischen Polarwirbels stets ein negatives Vorzeichen. Da Verwechslungsmöglichkeiten durch Vorzeichenwechsel in den folgenden Abschnitten ausgeschlossen werden können, beziehen sich verbale PV-Vergleiche („größer“, „kleiner“, ...) immer auf den Absolutbetrag $|Z|$, also der tatsächlichen „Wirbelstärke“. Folgerichtig sind auch die Achsen der Graphen so gewählt, dass $|Z|$ nach oben bzw. rechts zunimmt.

Die räumliche Verteilung der potenziellen Vorticity ist von ähnlichen Gradienten geprägt wie die Verteilung der Mischungsverhältnisse langlebiger Spurengase. Lediglich das Vorzeichen der Gradienten unterscheidet sich. So nimmt die PV mit zunehmender Höhe und beim Eintritt in den Wirbel zu, während die Mischungsverhältnisse hier jeweils abnehmen. Dementsprechend zeigt auch ein Graph, in dem N_2O -Mischungsverhältnis gegen PV aufgetragen

²Neben „DFT“ existiert auch noch die Abkürzung RDF für „Reverse Domain Filling“.

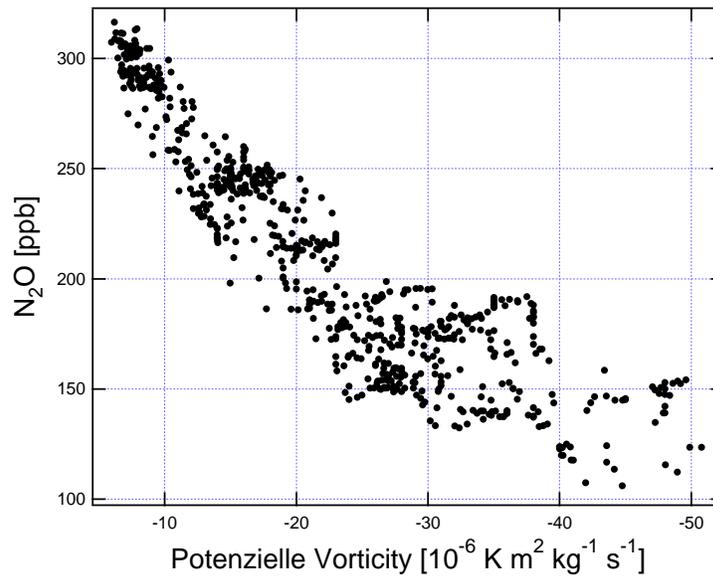


Abbildung 10.1: Korrelationsplot zwischen dem N_2O -Mischungsverhältnis und der mittels DFT-Technik bestimmten hochauflösenden potenziellen Vorticity für alle fünf wissenschaftlichen Flüge von APE-GAIA.

wird, eine Korrelation, deren Kompaktheit jedoch nicht mit einer Korrelation zwischen zwei langlebigen Tracern zu vergleichen ist (Abbildung 10.1).

Um die vertikale Abhängigkeit der potenziellen Vorticity zu verringern wurde von *Lait* [1994] die sogenannte modifizierte potenzielle Vorticity (MPV) eingeführt:

$$Z_{mod.} = Z \cdot \left(\frac{\theta}{\theta_0} \right)^{-\frac{9}{2}} \quad (10.2)$$

Die potenzielle Vorticity wird dabei auf eine Referenzentropie mit der potenziellen Temperatur $\theta = \theta_0$ normiert. Die MPV bietet keine zusätzlichen Informationen gegenüber der PV, stellt jedoch bei gewissen Anwendungen eine deutlich anschaulichere Größe zur Interpretation von Daten – insbesondere beim Vergleich von verschiedenen Höhenbereichen – dar. Dies wird im folgenden Abschnitt deutlich werden.

10.2 Der Filament-Flug vom 8.10.1999

Filamente sind räumlich begrenzte Luftmassen, die sich in ihrer Herkunft von der umgebenden Luft unterscheiden; so können etwa durch Brechung

planetarer Wellen Luftmassen vom Polarwirbel aber auch aus den Tropen abgetrennt werden, die sich dann in der „Surfzone“ der winterlichen mittleren Breiten weiterbewegen. Die Filamente werden nun durch chaotische Advektion immer länger und dünner gezogen, bis sie schließlich durch Diffusion völlig aufgelöst werden [Waugh & Plumb, 1994; Strahan *et al.*, 1999].

Durch Messungen können solche Filamente anhand ihrer von der Umgebung abweichenden Mischungsverhältnisse identifiziert werden. Bedingt durch die diabatischen Absinkprozesse im Wirbel sind dort die Mischungsverhältnisse langlebiger Tracer auf einer Isentropen geringer als außerhalb des Wirbels. Filamente mit Luftmassen, die aus dem Wirbelbereich stammen sind daher durch niedrige Mischungsverhältnisse bzw. erhöhte PV-Werte gekennzeichnet.

Um die Bedeutung dieser Filamente auf die chemische Zusammensetzung der Stratosphäre der mittleren Breiten besser quantifizieren zu können, müssen die ablaufenden Mischungsprozesse ausreichend verstanden werden. Dazu können hochaufgelöste Tracermessungen dienen, die es möglich machen, Filamente räumlich zu charakterisieren. Sehr hilfreich für eine solche Analyse sind hochaufgelöste Felder der potenziellen Vorticity, mit deren Hilfe sich Luftmassen aus dem Wirbel identifizieren lassen [z. B. Schoeberl & Newman, 1995].

Abbildung 10.2 (oben) zeigt die Situation des antarktischen Polarwirbels auf der 450 K-Isentrope am 8.10.1999. Der näherungsweise elliptisch geformte Wirbel liegt an diesem Tag zu weit südlich, um ihn mit der Geophysica von Ushuaia aus erreichen zu können. Dafür zeigte sich bereits in der Vorhersage ein Filament mit Luftmassen, die sich vor einigen Tagen aus dem Wirbelrandbereich gelöst hatten. Auf dem 450 K-Level lag dieses Filament etwa auf halbem Wege zwischen Feuerland und der antarktischen Halbinsel. Für den 380 K-Level war die Position etwas weiter nördlicher vorhergesagt.

Daher wurde ein Flugplan entwickelt, der ein Kreuzen des Filamentes in zwei Höhen (380 K und 450 K) vorsah. Die Geophysica flog dazu in südwestlicher Richtung auf etwa 16 km Höhe bis zur Spitze der antarktischen Halbinsel. Der Rückflug auf 18 – 19 km Höhe war gegenüber dem Hinflug leicht nach Westen versetzt und führte in nordwestlicher Richtung etwas über Ushuaia hinaus (s. auch Abbildung 10.2 unten).

Abbildung 10.3 zeigt eine Analyse des Fluges vom 8.10.1999. Aus dem Set der von HAGAR gemessenen Tracer wurde N_2O ausgewählt, da es im Gegensatz etwa zum mittleren Alter über den gesamten Höhenbereich ausreichende Gradienten bietet. Sinkende N_2O -Mischungsverhältnisse sind bei zunehmender Flughöhe oder beim Durchfliegen von Luftmassen aus dem Bereich des Wirbels zu erwarten.

Neben den Tracermessungen dient die aus den meteorologischen Daten

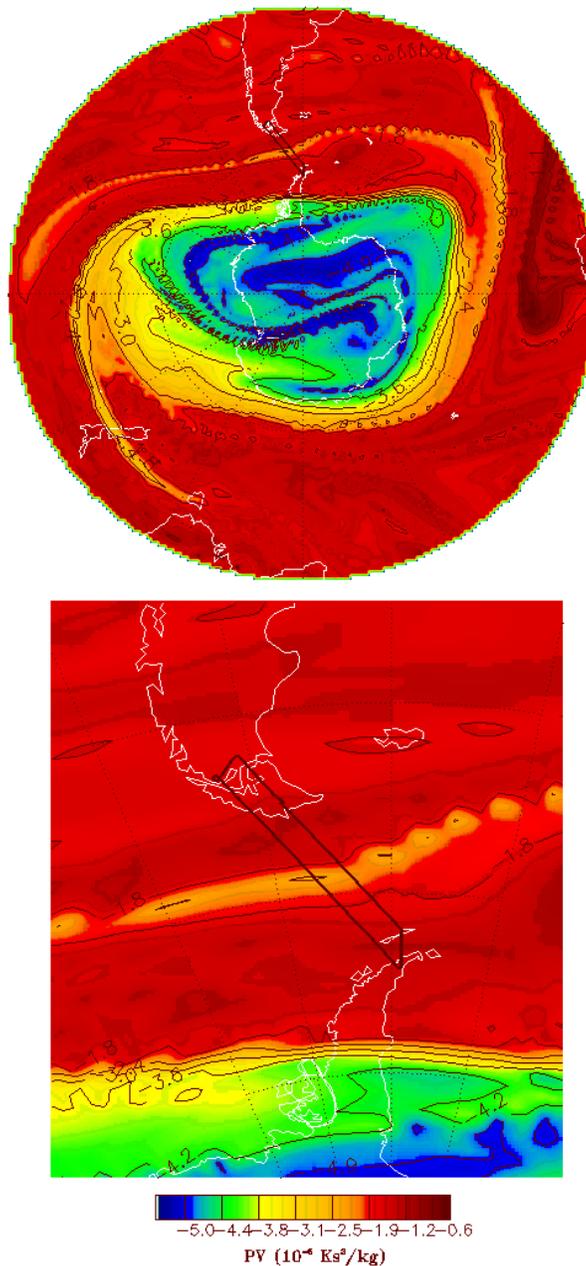


Abbildung 10.2: Mittels DFT-Technik erstellte, hochaufgelöste PV-Karte vom 8.10.1999. Die gezeigte 450 K-Isentrope entspricht in etwa der Flughöhe, bei der die Geophysica das Filament vollständig kreuzte. Das untere Teilbild zeigt eine Ausschnittvergrößerung auf den für den Flug relevanten Bereich. (Analyse von G. Redaelli, Universität von l'Aquila/Italien)

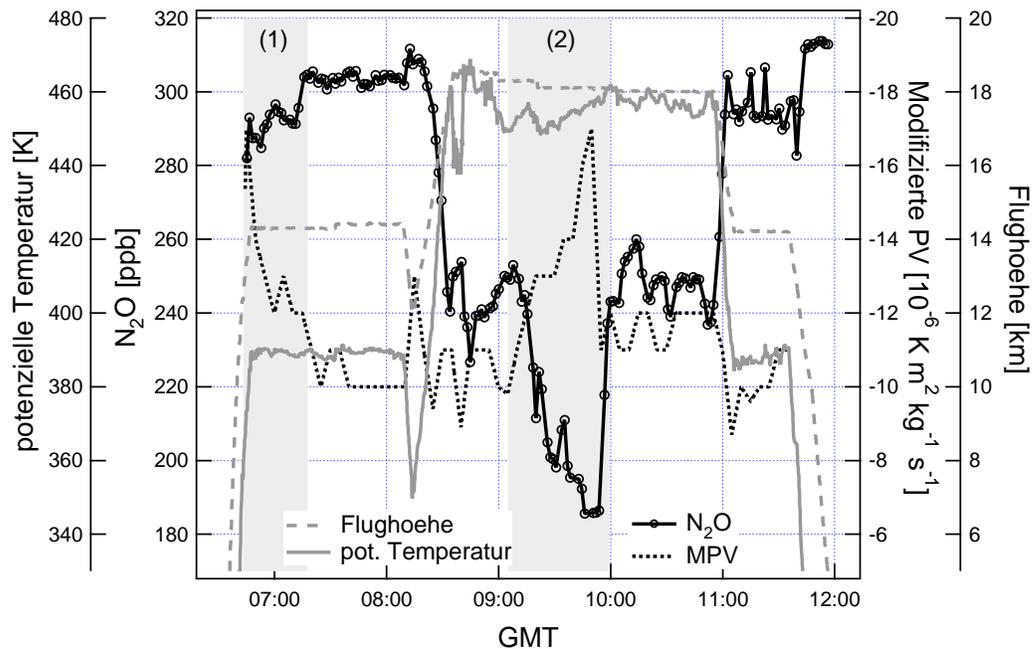


Abbildung 10.3: Analyse des Filamentfluges vom 8.10.1999.

gewonnene und mittels DFT-Technik hochaufgelöste modifizierte potenzielle Vorticity als Indikator für die Herkunft der Luftmassen. Da die Breitenabhängigkeit der PV abseits des Wirbelrandbereiches gering ist, sollte der Hintergrundwert der MPV, die ja nur eine geringe Höhenabhängigkeit zeigt, während der ganzen Flugzeit weitgehend konstant sein. Bereiche erhöhter MPV zeigen damit direkt eine veränderte Herkunft der Luftmasse an. Als weitere Information über den Flug sind die Flughöhe und die ebenfalls als Vertikalcoordinate dienende potenzielle Temperatur aufgetragen. Die MPV-Daten liegen in einer Auflösung vor, die nominell um einen Faktor zwei geringer als die des Gaschromatographen ist.

Der in der PV-Karte aus Abbildung 10.2 deutlich als Filament erkennbare Bereich wurde auf dem Rückflug zwischen 9.00 und 10.00 Uhr GMT durchflogen. Er ist in Abbildung 10.3 hellgrau unterlegt (2). In diesem Bereich sinkt das N_2O -Mischungsverhältnis, das außerhalb des Polarwirbels auf einer Flughöhe näherungsweise konstant sein sollte, erheblich ab und erreicht dabei Werte, die deutlich auf eine Herkunft aus dem Wirbel- oder Wirbelrandbereich schließen lassen. Die Werte sind dabei etwas höher, als bei anderen Flügen von APE-GAIA, als die Geophysica in vergleichbarer Höhe innerhalb des Wirbels flog. Interessanterweise zeigte sich, dass das Ozonmischungsverhältnis des Filaments ebenfalls erhöht war. Dies passt zu der Vorstellung von

absinkenden Luftmassen innerhalb des Wirbels. Es zeigt jedoch auch, dass der zu dieser Zeit sehr starke Ozonabbau nicht bis in den Wirbelrand hin ausgedehnt ist. Luftmassen aus diesem Bereich des Wirbels können durchaus noch weitgehend chemisch ungestört sein.

Unglücklicherweise hatte die Vorhersage die Lage des Filaments auf dem 380 K-Level nicht perfekt getroffen. Das Filament befand sich hier direkt über Ushuaia, so dass die Geophysica nach dem Start von unten hineintauchte, um dann noch etwa 20 – 25 Minuten im Bereich des Filaments zu fliegen. Dieser Zeitraum rund um 7.00 Uhr GMT ist in Abbildung 10.3 ebenfalls grau unterlegt (1). Auch hier stehen die Tracerdaten und die Ergebnisse der modifizierten potenziellen Vorticity in hervorragender Übereinstimmung.

Es zeigt sich also, dass die DFT-Technik hochaufgelöste PV-Feldern liefert, die Ereignisse wie das vom 8.10.1999 von der Geophysica durchflogene Filament sehr gut reproduzieren können. Mit einer horizontalen Ausdehnung von etwa 600 km war das Filament jedoch auch sehr groß. Im folgenden Abschnitt werden Strukturen entlang der Flüge untersucht werden, deren horizontale Ausdehnung weit geringer als die des hier gezeigten Filaments ist.

Zuvor soll jedoch noch auf ein anderes Phänomen hingewiesen werden, das HAGAR während des Flugs vom 8.10.1999 dokumentieren konnte. Die Geophysica erreichte ihren südlichsten Punkt bei diesem Flug über der antarktischen Halbinsel um kurz nach 8.30 Uhr GMT. Gleichzeitig beendete sie ihren Steigflug und erreichte ihre für diesen Flug maximale Höhe. Kurz vor dieser Maximalhöhe sinkt die potenzielle Temperatur innerhalb einer Minute bzw. ca. 13 km um etwa 20 K ab. Nach weiteren etwa 4,5 Minuten (bzw. 50 km) steigt die potenzielle Temperatur ebenso steil wieder an.

Das N_2O -Mischungsverhältnis, für das im Allgemeinen eine Antikorrelation zur potenziellen Temperatur erwartet wird, kann diesen Effekt ebenfalls nachzeichnen. Alles weist also darauf hin, dass Luft adiabatisch und damit relativ schnell aus tieferen Regionen angehoben wurde. Eine Änderung von θ um 20 K entspricht dabei einer Höhenänderung von etwa 2 km. Dieser Effekt ist möglicherweise auf Leewellen zurückzuführen. Solche Wellen können sich über und östlich der Berge bilden, die sich an der Westküste der antarktischen Halbinsel befinden.

Im Flug zuvor vom 2.10.1999 hatte die Geophysica gezielt ein solches Phänomen angefliegen, um die Bildung durch Leewellen induzierter polarer stratosphärischer Wolken (PSCs) zu untersuchen.

10.3 Ereignisse während anderer Flüge

In diesem Abschnitt soll anhand von einigen Beispielen von dynamischen Phänomenen mit verschiedener horizontaler Ausdehnung untersucht werden, bis zu welcher minimalen Ausdehnung Luftmassen mit deutlich von der Umgebung abweichenden Tracer-Mischungsverhältnissen existieren können, bevor sie sich vollständig mit der Umgebung vermischen. Auch hier wird zum Vergleich beobachtet, inwieweit die vorliegenden hochaufgelösten MPV-Daten die durch Tracermessungen beschriebenen Gegebenheiten reproduzieren können. Die Beispiele stammen aus den ersten beiden Flügen von APE-GAIA. Beide Flüge führten in südlicher Richtung in den Polarwirbel hinein. Am Umkehrpunkt absolvierte die Geophysica jeweils einen Tauchflug. Die Route für Hin- und Rückflug in den Wirbel war dabei jeweils identisch, auf dem Rückweg wurde jedoch stets auf größerer Höhe geflogen.

Obwohl bei Flügen, deren Route innerhalb und außerhalb des Wirbels lag, die MPV auf einer Flughöhe nicht mehr konstant ist, wird auch in diesem Abschnitt diese Form der PV als Vergleichsgröße herangezogen.

10.3.1 Wirbelrand

Der Rand des Polarwirbels stellt zunächst die auffälligste Luftmassengrenze dar. Dieser Randbereich ist jedoch nicht immer gleich deutlich definiert; die Breite kann sich erheblich unterscheiden.

In Abbildung 5.8 auf Seite 120 ist die Lage des Polarwirbels am 23.9.1999 dargestellt. Anders als es aufgrund der Vorhersagen geplant war, flog die Geophysica nicht direkt in den Wirbel, sondern blieb im Bereich des Wirbelrands, der zu dieser Zeit faltenartige Strukturen aufwies. Abbildung 10.4 zeigt einen knapp zweistündigen Ausschnitt dieses Fluges. Die Geophysica befand sich hier bereits wieder auf dem Rückweg nach Ushuaia. Um ca. 17.20 Uhr GMT erreicht die Geophysica einen Bereich mit hohen Gradienten in PV und den Tracermischungsverhältnissen. Innerhalb von weniger als 15 Minuten steigt das N_2O -Mischungsverhältnis um mehr als 40 ppb an (Bereich (1) in Abbildung 10.4). Dieser Bereich kann als eigentlicher Wirbelrand angesehen werden und weist eine horizontale Ausdehnung von etwa 170 km auf.

Abbildung 10.5 zeigt eine Analyse des ersten wissenschaftlichen Fluges vom 21.9.1999. Die Bereiche, in denen die Geophysica die Grenze des Wirbels durchflog sind grau unterlegt. Auf dem Hinweg wurde versucht, die Geophysica auf einer Isentropen von knapp 380 K (15 – 16 km Höhe) zu fliegen. Der Wirbelrandbereich war hier mit etwa 260 km sehr ausgedehnt; in diesem Bereich nahm das Mischungsverhältnis um über 60 ppb ab (1).

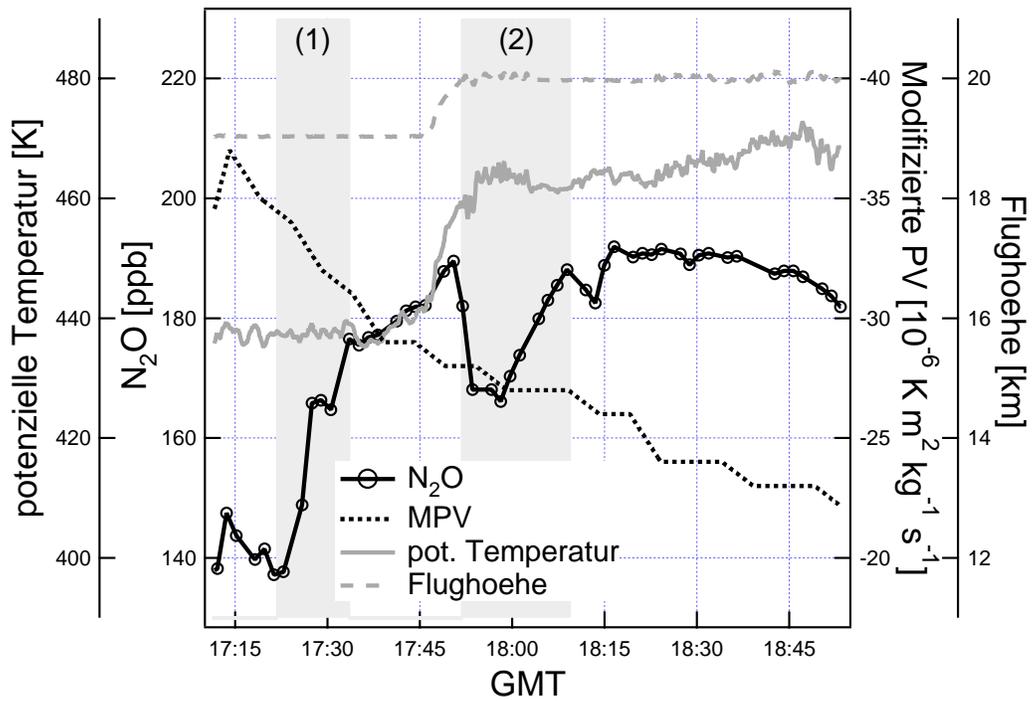


Abbildung 10.4: Analyse eines Abschnitts des zweiten Fluges vom 23.9.1999.

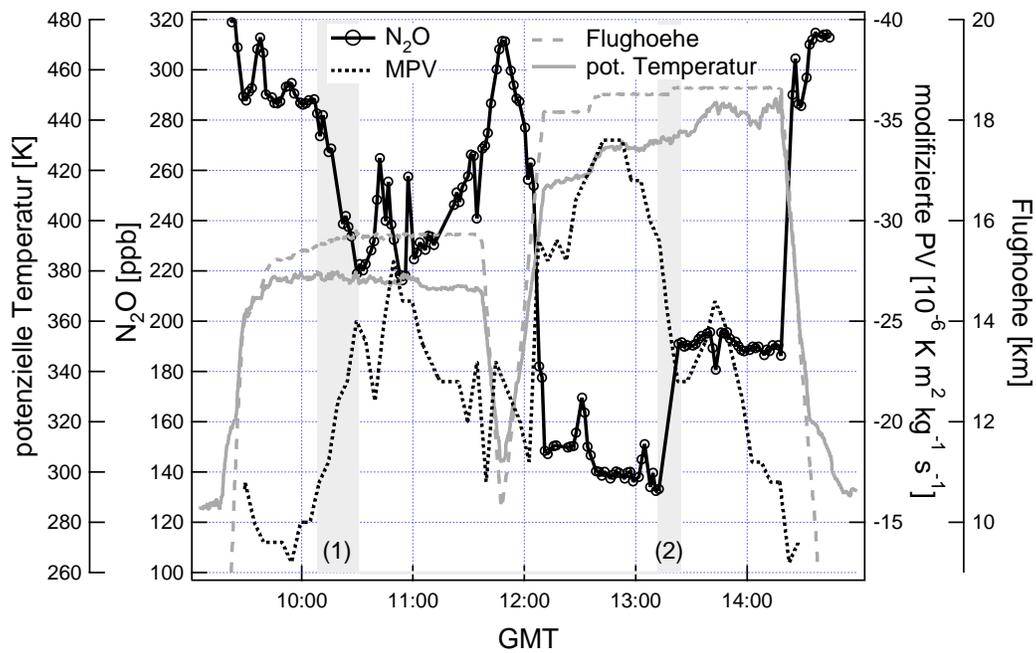


Abbildung 10.5: Der Flug vom 21.9.1999: Wirbelrand.

Auf dem Rückweg durchflog die Geophysica den Wirbelrand bei etwa 430 K bzw. 18,5 km. Unglücklicherweise fällt dieser Zeitraum mit einer Kalibrations- und Diagnosephase des HAGAR zusammen, die zweimal pro Flug automatisch abläuft (2). Zudem wurde im Wirbelrandbereich auch noch die Flughöhe erhöht. Daher kann nur eine Obergrenze von etwa 140 km für die horizontale Ausdehnung der Wirbelgrenze auf dieser Flughöhe angegeben werden. Die Differenz im Mischungsverhältnis beträgt mindestens 55 ppb.

Es sei darauf hingewiesen, dass die Wirbelgrenze in den Fällen, wo die Geophysica sie durchflogen hat, verhältnismäßig breit war. So konnte die ER-2 1994 ebenfalls auf der Basis von N₂O-Messungen in einem Fall einen Übergang in den antarktischen Wirbel beobachten, der eine Ausdehnung von nur etwa 36 km hatte [Strahan *et al.*, 1999].

10.3.2 Filamentartige Strukturen

Dieser Abschnitt widmet sich der Diskussion von insgesamt acht filamentartigen Strukturen die während zweier Messflüge während APE-GAIA beobachtet wurden (23.9.1999, s. Abbildung 10.4 auf der vorherigen Seite und 21.9.1999, s. Abbildung 10.6). Die Strukturen sind als exemplarisch für die Beobachtungen während der übrigen Flüge anzusehen. Sie wurden so ausgewählt, dass ein breites Größenspektrum abgedeckt wurde.

- Nachdem die Geophysica am 23.9.1999 ihre für diesen Flug maximale Flughöhe von 20 km erreicht hatte, steigt das N₂O-Mischungsverhältnis noch einmal steil an (Bereich (2) in Abbildung 10.4 auf der vorherigen Seite). Die MPV-Daten zeigen wiederum in diesem Bereich eine nahezu konstanten Verlauf. Es ist unklar, ob die Geophysica hier noch einmal den Wirbel selbst streifte oder ob dies Luftmassen sind, die vom Wirbel abgetrennt wurden. Die vorliegenden DFT-PV-Daten (s. Abbildung 5.8 auf Seite 120) zeichnen ein sehr komplexes Bild der Situation im Wirbelrandbereich.
- In Abbildung 10.6 sind eine Reihe interessanter Bereiche des ersten APE-GAIA-Messfluges vom 21.9.1999 grau unterlegt. Zu Beginn und Ende des Fluges ist jeweils ein Bereich mit niedrigem N₂O-Mischungsverhältnis zu erkennen. Die Geophysica befindet sich hier in einem relativ schnellen Steig- (1) bzw. Sinkflug (7). Dies macht es schwierig, die genaue Ausdehnung zu bestimmen, sie liegt jedoch etwa bei 120 – 180 km. Das Minimum liegt jeweils auf etwa 14 km Höhe. Es muss davon ausgegangen werden, dass die Geophysica mit einer Zeitdifferenz von mehr als 5 Stunden zweimal die gleichen Luftmassen

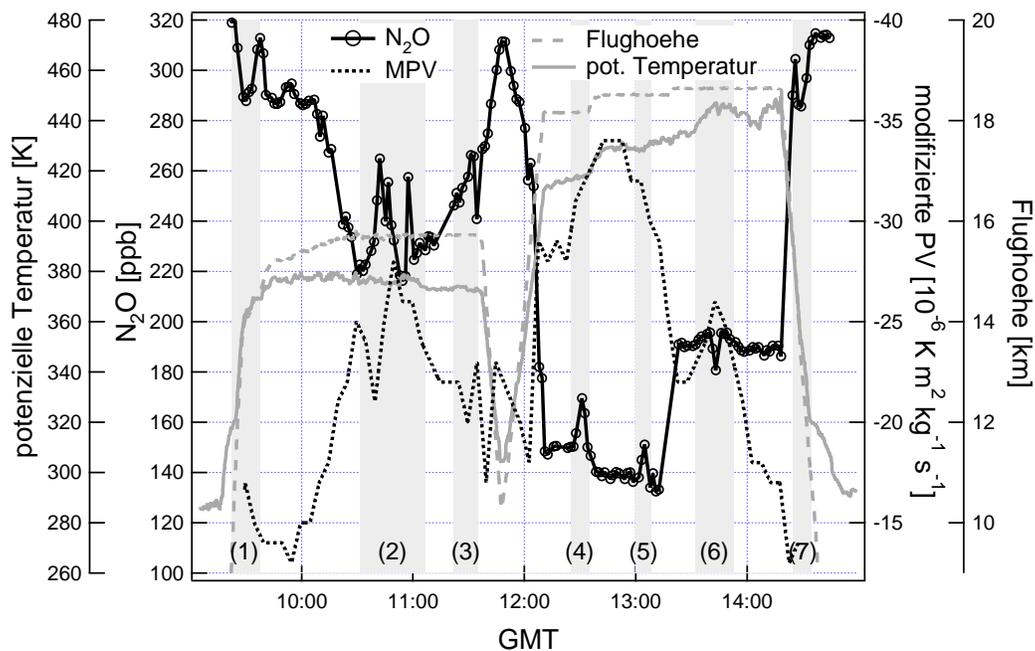


Abbildung 10.6: Der Flug vom 21.9.1999: Mischungsprozesse.

südwestlich von Ushuaia durchflogen hat. Für diesen Zeitraum liegen jeweils keine MPV-Daten vor.

- Nach dem Eintritt in den Wirbel durchflog die Geophysica verschiedene lokale Maxima des N_2O -Mischungsverhältnisses (2). Dies lässt darauf schließen, dass in diesem Bereich von über 400 km Länge immer wieder Luft eingemischt wird, die von außerhalb des Wirbels stammt. Die horizontale Auflösung dieser Strukturen ist jedoch zu gering, um von den DFT-PV-Daten erfasst zu werden. Einzig die Tatsache, dass das PV-Signal ebenfalls „unruhig“ ist, deutet hier auf dynamische Prozesse hin.
- Vor Beginn des Tauchfluges – und damit ziemlich genau im Umkehrpunkt – steigt das N_2O -Mischungsverhältnis steil an, um dann unmittelbar vor dem Tauchflug noch einmal unvermittelt und kurz zurück zu gehen (3). Diese etwa 130 km breite Struktur kann ebenfalls – jedoch weniger deutlich – in der MPV gefunden werden.
- Zuletzt sei noch auf drei weitere Beispiele für Mischungsvorgänge verwiesen. (4) und (5) sind Strukturen, die Einmischung von Luft in das Wirbelinnere zeigen (erhöhte N_2O -Mischungsverhältnisse). Bei (6) befand sich die Geophysica bereits außerhalb des Wirbels und konnte

hier noch einmal eine Luftmasse aus dem Wirbel durchfliegen. Mit etwa 50 km waren dies die schmalsten Strukturen mit deutlich von der Umgebung abweichendem N_2O -Mischungsverhältnis (15 – 20 ppb), die von HAGAR während APE-GAIA aufgezeichnet werden konnten. Auch in den höher aufgelösten CO_2 -Messungen konnten keine feineren Strukturen gefunden werden. Nur die letzte dieser Strukturen kann auch von den PV-Daten reproduziert werden.

10.4 Zusammenfassung

Hochaufgelöste Messungen langlebiger Tracer stellen eine geeignete Möglichkeit dar, Luftmassen auf einer Isentropen nach ihrer Herkunft (innerhalb des Wirbels – außerhalb des Wirbels) zu charakterisieren. Grund hierfür ist die Tatsache, dass durch die diabatischen Absinkprozesse in den hohen Breiten und die dynamische Isolation des Polarwirbels sich am – während APE-GAIA etwa 140 – 250 km breiten Wirbelrand – scharfe Gradienten im Tracermischungsverhältnis ausbilden.

Der möglicherweise wichtigste Mischungsprozess sind sogenannte Filamente, die sich vom Wirbel ablösen und in die mittleren Breiten fortschreiten. Aber auch der umgekehrte Prozess, also das Eindringen von Luft aus mittleren Breiten in den Wirbel ist so möglich und konnte auch beobachtet werden. Filamente werden in der Zeit ihrer Existenz immer länger und dünner gezogen. Ab welcher Ausdehnung verschwinden nun Filamente auf Grund von Vermischung mit der Umgebung? Die HAGAR-Messungen konnten keine Luftmassen mit deutlich von der Umgebung abweichenden Tracermischungsverhältnissen mit einer horizontalen Ausdehnung von weniger als 50 km detektieren. Dies gilt sowohl für die N_2O -Daten, die instrumentell bedingt keine Strukturen kleiner 36 km darstellen können, als auch für die CO_2 -Daten, deren räumliche Auflösung um einen Faktor neun besser ist (= 4 km).

Die vorliegenden MPV-Daten, die auf Basis der DFT-Technik berechnet wurden, sind in der Regel in der Lage, die Wirbelgrenze sowie grobe Strukturen ab etwa 200 km horizontaler Ausdehnung gut wiederzugeben. Bei kleineren Strukturen erscheint der Datensatz noch relativ unzuverlässig. Auf Basis der HAGAR-Daten ließe sich jedoch sicher die Trajektorienlänge so optimieren, dass sich (unter Verwendung auch einer erhöhten räumlichen Auflösung) eine deutlich verbesserte Übereinstimmung ergäbe [vgl. *Bujok*, 1998]. Mit dieser auf Basis von Messungen optimierten DFT-Berechnung ließe sich dann ein umfassendes dreidimensionales Bild auch abseits der Flugroute der Geophysica erstellen.

Kapitel 11

Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit liefert einen Beitrag zum besseren Verständnis des stratosphärischen Transports. Dieser ist ein wichtiger Parameter im komplexen gekoppelten System der Stratosphäre, das neben dem Transport vor allem von Chemie und Strahlungshaushalt geprägt wird. Neben verschiedenen Modellieretechniken bietet die Messung langlebiger Spurengase das effektivste Werkzeug für Untersuchungen von stratosphärischen Transportprozessen.

Daher wurde am Institut für Meteorologie und Geophysik an der Universität Frankfurt ein Instrument zur in-situ-Messung von Spurengasen entwickelt, das sowohl an Stratosphärenballonen als auch auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 „Geophysica“ Echtzeitmessungen von Spurengasmischungsverhältnissen durchführen kann. Der „High Altitude Gas Analyser“ (HAGAR) ist in der Lage, mit einem Zwei-Kanal-Gaschromatographen die Mischungsverhältnisse von N_2O , F12, F11 und Halon-1211 mit einer Zeitaufösung von 90 s und das von SF_6 alle 45 s zu bestimmen. Ein an die speziellen Gegebenheiten von Stratosphärenmessungen angepasster CO_2 -Sensor der Firma LI-COR erreicht eine Zeitaufösung von ca. 10 s.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden entscheidende Beiträge zur Entwicklung von HAGAR geleistet. Für die Steuerung des Instruments auf Basis eines Industrie-PCs wurde ein umfangreiches Softwarepaket entwickelt, das die zuverlässige vollautomatische Steuerung des Instruments, sowie eine komfortable Konfigurationsmöglichkeit bietet.

Nach einem ersten Ballontestflug am 13.5.1998 wurde das Instrument vollständig neu aufgebaut, um einen Sensor zur Messung von CO_2 zu integrieren. Des Weiteren wurden eine Reihe von Verbesserungen und Anpassungen durchgeführt, die für den Betrieb an Bord der Geophysica notwendig waren.

Im Zeitraum von Dezember 1998 bis Oktober 1999 nahm HAGAR an drei Messkampagnen teil. Im Rahmen von APE-ETC („Airborne Platform for Earth Observation – Extensive Test Campaign“) wurde das Instrument

erstmalig an Bord der Geophysica montiert und eingesetzt. Trotz einer Reihe von kleineren Schwierigkeiten erwies sich das HAGAR-Konzept als gut geeignet für den Einsatz an Bord eines Höhenforschungsflugzeugs. So konnten zumindest während drei von sechs Testflügen Daten aufgezeichnet werden.

Im Februar/März 1999 war HAGAR Teil der Geophysica-Nutzlast während der Messkampagne APE-THESEO („Airborne Platform for Earth Observation – The Contribution to the Third European Stratospheric Experiment on Ozone“), die Mahè/Seychellen als Basis nutzte. HAGAR konnte hier während ca. 30 Flugstunden Daten aufnehmen. Dabei konnte ein umfangreicher Datensatz vor allem im Bereich der tropischen Tropopausenregion gewonnen werden. Die Tropen sind von besonderer Bedeutung für den stratosphärischen Transport, unter anderem da hier der Haupteintrag von troposphärischer Luft in die Stratosphäre stattfindet.

Der Untersuchung des antarktischen Polarwirbels in der Phase des maximalen Ozonabbaus war die Messkampagne APE-GAIA („Airborne Polar Experiment – Geophysica Aircraft in Antarctica“) gewidmet, die im September und Oktober in Ushuaia/Argentinien stattfand. Als südlichste Stadt der Erde bietet Ushuaia die beste geographische Lage, um den stratosphärischen Polarwirbel mittels Flugzeugmessungen zu untersuchen. HAGAR arbeitete zuverlässig während aller wissenschaftlichen Flüge und einem Testflug in Ushuaia. Zusätzlich konnte während sechs Transferflugetappen zwischen Sevilla und Ushuaia zumindest für einen Teil der Substanzen Daten aufgezeichnet werden. Insgesamt liegen für etwa 60 Flugstunden Daten vor, darunter auch erstmals ein hochaufgelöstes Vertikalprofil im Polarwirbel, das von über 20 km Höhe bis hinunter zur Tropopausenregion reicht.

Für ein neu entwickeltes Messinstrument wie HAGAR ist eine Validierung der Daten sehr wichtig. Da eine direkte Validierung durch parallele Messungen nicht möglich war, musste auf ältere, vergleichbare Datensätze zurückgegriffen werden, die anhand des troposphärischen Trends korrigiert wurden. Als Vergleich dienten Datensätze der in-situ-Gaschromatographen GhOST und ACATS, der kryogenen Luftprobensammler und des CO₂-Instrumentes der Harvard University. Dabei zeigte sich stets eine gute bis sehr gute quantitative Übereinstimmung der Daten.

Auch die Präzision der Messungen, die bereits endgültig ausgewertet wurden, sind sehr zufriedenstellend und zumindest vergleichbar mit denen von „etablierten“ Instrumenten. So war die Präzision für N₂O, F12 und F11 zumeist deutlich besser als 1 %. Für CO₂ konnte die Präzision für APE-GAIA auf 0,15 ppm bzw. 0,05 % verbessert werden. Die Präzision der vorläufigen Daten von Halon-1211 und SF₆ beträgt bisher etwa 5 %.

Der im Jahre 1999 von HAGAR aufgenommene Datensatz bietet umfangreiche Möglichkeiten zur wissenschaftlichen Analyse. Nur exemplarisch sind

daher die Punkte zu sehen, die in dieser Arbeit diskutiert werden.

Das mittlere Alter der Luft kann als die Zeit beschrieben werden, die die Bestandteile eines Luftpakets im Mittel benötigten, um von der tropischen Tropopausenregion an seine aktuelle Position in der Stratosphäre zu gelangen. Zur Bestimmung des mittleren Alters der Luft werden Messungen von Spurengasen verwendet, die in der Stratosphäre konservativ sind und deren troposphärisches Hintergrundmischungsverhältnis einen zeitlich linear ansteigenden Trend aufweist („Alterstracer“). HAGAR ist in der Lage, die Mischungsverhältnisse der beiden gebräuchlichsten Alterstracer CO_2 und SF_6 zu messen.

Das Alterskonzept bietet eine einfach zu bestimmende Kenngröße für den stratosphärischen Transport, die im Gegensatz zu Mischungsverhältnissen direkt mit Messungen, die zu anderen Zeitpunkten gewonnen wurden, vergleichbar ist. Es konnte gezeigt werden, dass die erreichbare Genauigkeit der Altersbestimmung nicht von der Messgenauigkeit von CO_2 und SF_6 limitiert ist, sondern von der Abweichung der troposphärischen Trends vom (zeitlich linear ansteigenden) Ideal. Insbesondere im Fall von CO_2 wird dies deutlich, wobei die von HAGAR erreichte Messgenauigkeit für eine maximale Unsicherheit in der Altersbestimmung von ca. zwei Monaten ausreichen würde. Neben den saisonalen Schwankungen, die in mittleren Breiten ab ca. 16 km Höhe keine Rolle mehr spielen, sorgen vor allem die jährlichen Schwankungen dafür, dass die Altersbestimmung mit CO_2 momentan kaum besser als mit einem Fehler von etwa 0,7 Jahren durchgeführt werden kann.

In den Tropen kann die Messung des CO_2 -Mischungsverhältnisses nicht direkt zur Altersbestimmung herangezogen werden. Durch die starke Vertikalbewegung in den Tropen kann das saisonale CO_2 -Signal im Vertikalprofil beobachtet werden. HAGAR konnte solche Profile während zweier Jahreszeiten (Februar/März bzw. Mitte September) aufzeichnen.

Die Tropen sind in der Stratosphäre durch sogenannte Mischbarrieren für den horizontalen Transport gegenüber den mittleren Breiten abgegrenzt. Dies zeigt sich unter anderem in veränderten Tracer-Tracer-Korrelationen. Gealterte Luft aus den mittleren Breiten, die großteils bereits einmal die großräumige Brewer-Dobson-Zirkulation durchlaufen hat, wird jedoch zu einem geringen Maße erneut in den Bereich der tropischen Aufwärtsströmung eingemischt. Für die Gesamtverweilzeit von langlebigen Spurengasen in der Stratosphäre ist diese Einmischung von besonderer Bedeutung. Während nahezu aller Flüge von APE-THESEO ($1^\circ\text{N} - 19^\circ\text{S}$) ergaben die HAGAR-Daten eine kompakte $\text{F11-N}_2\text{O}$ -Korrelation; beim letzten Flug, der nur bis 15°S führte, ergaben sich jedoch Datenpunkte, die eher zu einer Korrelation passen, die aus mittleren Breiten bekannt ist. Es ist noch im Detail zu klären, ob hier möglicherweise direkt ein Einmischungsereignis beobachtet wurde.

Auch der Polarwirbel ist im Winter von einer effektiven Transportbarriere umgeben. Hier ist eine wichtige Frage, inwieweit Luft aus dem Wirbel in die mittleren Breiten vordringen und dort die chemische Zusammensetzung der Stratosphäre verändern kann. Dieser Luftmassenaustausch findet häufig in Form von sogenannten Filamenten statt, Luftmassen also, die vom Wirbel abgetrennt wurden und sich nun immer länger gezogen vom Wirbelrand wegbewegen. Hochaufgelöste Tracermessungen, wie sie mit HAGAR durchgeführt werden, stellen eine ideales Werkzeug zur Untersuchung und Charakterisierung solcher Abläufe dar. So konnten zahlreiche Strukturen innerhalb und außerhalb des Wirbels untersucht werden, deren Tracermischungsverhältnis darauf hinwies, dass sie jeweils von der anderen Seite des Wirbelrandes stammten. Dabei konnten keine signifikanten Strukturen beobachtet werden, die eine geringere horizontale Ausdehnung als 50 km hatten.

Mit dem Ende der vorliegenden Arbeit ist weder die Entwicklung des Instrumentes noch die Interpretation des 1999 gewonnenen Datensatzes abgeschlossen. So ist neben einer neuen Datenerfassung für Temperaturen auch eine Erweiterung von Kanal 1 des Gaschromatographen in Planung. Neben SF_6 soll in Zukunft auch noch CH_4 mit einer Zeitauflösung von etwa 90 s gemessen werden. Zudem soll mit einer verbesserten Druckregelung für den Kessel die Präzision insbesondere der CO_2 -Messungen optimiert werden.

Die Präzision der Daten von Halon-1211 sowie SF_6 sind mit 5 % bisher nicht zufriedenstellend. Grund hierfür ist letztlich die Tatsache, dass das Signal-Rausch-Verhältnis für diese beiden Substanzen aufgrund ihrer geringen Mischungsverhältnisse von nur einigen ppt in der Stratosphäre sehr schlecht ist. Aus diesem Grunde wurde eine neue Auswertemethode entwickelt und innerhalb des Softwarepakets zur Datenauswertung (NOAH-Chrom) realisiert. Bei dieser Methode werden die Peaks durch Gauß-Funktionen angenähert. Erste Tests verliefen vielversprechend, zeigen jedoch, dass der Einsatz der Methode noch eine Menge Detailarbeit erfordert. Aus diesem Grunde steht eine vollständige Auswertung des HAGAR-Datensatzes für diese beide Substanzen noch aus; die Methodik ist jedoch im Anhang erläutert.

Die in dieser Arbeit dargestellten Analysen sollten als Wegweiser für weitere Untersuchungen und Diskussionen dienen können. So wird insbesondere die Diskussion um die Altersbestimmung wieder aufgenommen werden müssen, wenn sowohl endgültige SF_6 -Daten von HAGAR als auch neue Daten über den aktuellen troposphärischen Trend von SF_6 aus dem NOAA/CMDL-Netzwerk vorliegen.

Einen weiteren Schwerpunkt wird die Untersuchung der Mischung über den Rand des Polarwirbels hinweg bilden, wobei sich insbesondere die Frage nach der Höhenabhängigkeit der Mischung stellt. Hier sind insbesondere auch

Modellstudien möglich, denen mit den HAGAR-Daten eine weit präzisere und vor allem höher aufgelöste Eingangsdatenbasis zur Verfügung steht, als sie etwa aus Satellitendaten gewonnen werden kann.

Von besonderem Interesse ist dabei ein Phänomen, das in den HAGAR-Daten, aber auch bereits in einem Datensatz der ER-2 von 1994 zu beobachten ist: So weicht die F11-N₂O-Korrelation im Bereich des Polarwirbels für F11-Mischungsverhältnisse zwischen 40 ppb und 170 ppb nach unten von der normalen, aus mittleren Breiten bekannten Korrelation ab (vgl. Abbildung 7.5 auf Seite 142). Dies ist möglicherweise auf noch nicht vollständig verstandene Mischungsprozesse zurückzuführen.

In jedem Falle ist damit zu rechnen, dass der im Jahre 1999 von HAGAR an Bord der Geophysica aufgezeichnete umfangreiche Datensatz weitere Schritte hin zu einem differenzierteren Verständnis des stratosphärischen Transportes einleiten wird.

Teil IV
Anhang

Anhang A

Kalibriergase

Die CO₂-Mischungsverhältnisse der HAGAR-Standards wurden auf zwei Wegen bestimmt. Zum einen wurden sie mit HAGAR gegen fünf CO₂-Standards am Institut kalibriert („IMGF“). Diese wurden wiederum vor einigen Jahren von Herrn Graul am Umweltbundesamt auf dem Schauinsland gegen die Scala der Scripps Institution for Oceanography (SIO) kalibriert („UBA“). Die zweite Messung wurde von M. Schmidt am Institut für Umweltphysik an der Universität Heidelberg durchgeführt („HD“). Dort stehen Standards zur Verfügung, die von NOAA/CMDL kalibriert wurden und auf der offiziellen „WMO X93 scale“ liegen. Die beobachtete Differenz von ca. 0,2 ppm korrespondiert mit Beobachtungen von anderen Gruppen (*Andrews* [1999], M. Schmidt, persönliche Mitteilung). Da die Referenzkurve für die Altersberechnung von NOAA/CMDL gestellt wird, werden die Ergebnisse der Universität Heidelberg als Grundlage für die Auswertung der CO₂-Daten verwendet.

Tabelle A.1: CO₂-Mischungsverhältnisse der für die Messungen in dieser Arbeit benutzten Kalibriergase.

Name	CO ₂ [ppm]
1546 (UBA)	389,51 ± 0,015
1541 (UBA)	376,58 ± 0,015
1528 (UBA)	362,20 ± 0,015
1540 (UBA)	348,23 ± 0,015
1514 (UBA)	330,48 ± 0,015
HAGAR Referenz (40 l) (IMGF)	368,88 ± 0,1
HAGAR Referenz (10 l) (IMGF)	368,94 ± 0,1
HAGAR Span (IMGF)	347,10 ± 0,1
HAGAR Referenz (40 l) (HD)	368,62 ± 0,1
HAGAR Span (HD)	346,89 ± 0,1

Tabelle A.2: Spurengasgemischungsverhältnisse der für die Messungen in dieser Arbeit benutzten Kalibriergase. Die mit * markierten Werte basieren einzig auf den HAGAR-Kalibrationsmessungen vom 30.8.1999 bzw. 18.1.2000 und stellen möglicherweise noch nicht das bestmögliche Ergebnis dar. Die SF₆-Werte beziehen sich auf den CNIDL-Standard.

Name	Verdünnung f	N ₂ O [ppb]	SF ₆ [ppt]	F12 [ppt]	F11 [ppt]	Halon-1211 [ppt]
CNIDL ALM 39767	-	311,60	3,31	524,20	271,30 ± 1%	3,2 ± 0,1
Verdünnung (100 %)	1	315,0*	4,66*	542,2*	287,9*	3,89*
Verdünnung (85 %)	0,8528 ± 0,005	268,6*	3,96*	461,7*	245,4*	3,32*
Verdünnung (70 %)	0,6902 ± 0,005	217,7*	3,22*	374,0*	198,6*	2,67*
Verdünnung (50 %)	0,497 ± 0,005	156,4*	2,32*	270,5*	143,5*	1,95*
Verdünnung (25 %)	0,2519 ± 0,005	79,4*	1,17*	136,3*	72,5*	0,97*
Verdünnung (0 %)	0	-	-	-	-	-
LITES	-	318,8 ± 3,8	8,189 ± 0,016	551,20	277,00	3,51
HAGAR Referenz (40 l)	-	312,2 ± 3,5	4,47	534 ± 5,5	265 ± 3,5	3,67* ± 0,15
HAGAR Referenz (10 l)	-	312,3 ± 4,2	4,47	534,6 ± 6	265,3 ± 3,2	3,67* ± 0,15
HAGAR Span	-	190 ± 3,5	2,73	326 ± 8	162,5 ± 4	2,24* ± 0,15

Anhang B

Präzision der Messungen

In diesem Abschnitt werden die Präzisionen für alle Moleküle für alle Flüge von APE-THESEO und APE-GAIA angegeben, soweit sie bei Abschluss dieser Arbeit vorliegen. Für die absolute Genauigkeit ist zusätzlich der Fehler der Kalibriergase zu berücksichtigen, die in Anhang A aufgelistet sind. Alle Fehler werden als 1σ -Fehler angegeben.

B.1 Gaschromatograph

In Abschnitt 4.2.4 wurde erläutert, dass die Präzision für den Gaschromatograph aus der Präzision der Messungen des Spangases bestimmt wurde. Die Resultate für SF₆ und Halon-1211 sind noch nicht endgültig, weshalb auf die detaillierte Angabe von Präzisionen verzichtet wird. Für SF₆ liegt sie im Bereich von 3 % bis 5 %, für Halon-1211 bei etwa 5 %.

Tabelle B.1: 1σ -Präzision der Messungen mit dem Gaschromatographen während APE-THESEO. Die Fehler sind in Prozent vom troposphärischen Hintergrundwert angegeben.

Flugdatum	N ₂ O	F12	F11
24.02.1999	0,4 %	0,5 %	1,1 %
27.02.1999	0,5 %	0,5 %	0,6 %
04.03.1999	0,4 %	0,6 %	1,6 %
06.03.1999	0,5 %	0,4 %	0,7 %
09.03.1999	0,5 %	0,5 %	0,7 %
11.03.1999	0,5 %	0,4 %	0,8 %

Tabelle B.2: 1σ -Präzision der Messungen mit dem Gaschromatographen während APE-GAIA. Die Fehler sind in Prozent vom troposphärischen Hintergrundwert angegeben.

Flugdatum	N ₂ O	F12	F11
08.09.1999	0,3 %	0,6 %	0,7 %
09.09.1999	0,4 %	1,0 %	0,9 %
13.09.1999	–	0,7 %	0,7 %
14.09.1999	–	0,7 %	0,8 %
19.09.1999	0,3 %	0,5 %	0,5 %
21.09.1999	0,3 %	0,5 %	0,5 %
23.09.1999	0,3 %	0,4 %	0,4 %
02.10.1999	0,3 %	0,4 %	0,5 %
08.10.1999	0,4 %	0,5 %	0,5 %
12.10.1999	0,3 %	0,3 %	0,4 %

B.2 LI-COR

Wie in Abschnitt 4.3.4 bereits dargelegt, setzt sich der Messfehler aus dem „hochfrequenten“ Rauschen und dem langsamen Schwankungen, repräsentiert durch \tilde{P} , zusammen. Für jeden Flug wurden diese beiden Fehlerquellen bestimmt. Dabei ist der Fehler aus dem Rauschen aus den mit Median-Filter geglätteten Daten berechnet. Um eine bessere Vergleichbarkeit zu erreichen werden die Fehler hier als absolute Fehler (also in ppm) aufgelistet. Die Gesamtpräzision berechnet sich dann gemäß Gleichung (D.3), wobei zur Berechnung des relativen Fehlers ein troposphärischer Hintergrundwert von 368 ppm angenommen wurde.

Tabelle B.3: 1σ -Präzision der CO₂-Messungen während APE-THESEO.

Flugdatum	σ (Rauschen) [ppm]	σ (\tilde{P}) [ppm]	σ (Gesamt) [ppm]
24.02.1999	0,16	0,23	0,28
27.02.1999	0,18	0,19	0,26
04.03.1999	0,19	0,19	0,27
06.03.1999	0,20	0,25	0,32
09.03.1999	0,20	0,15	0,25
11.03.1999	0,22	0,14	0,26

Tabelle B.4: 1σ -Prazision der CO₂-Messungen wahrend APE-GAIA.

Flugdatum	σ (Rauschen) [ppm]	σ (\tilde{P}) [ppm]	σ (Gesamt) [ppm]
08.09.1999	0,05	0,06	0,08
09.09.1999	0,07	0,08	0,10
13.09.1999	0,07	0,06	0,09
14.09.1999	0,09	0,07	0,12
19.09.1999	0,03	0,12	0,13
21.09.1999	0,05	0,09	0,10
23.09.1999	0,11	0,03	0,11
02.10.1999	0,05	0,10	0,11
08.10.1999	0,05	0,05	0,07
12.10.1999	0,06	0,15	0,16

Anhang C

Übersicht über die Daten der beiden Messkampagnen

In diesem Kapitel werden für jeden der elf wissenschaftlichen Flüge sowie für die Transferflüge die Flugdaten in einem Plot gegen die Flugzeit dargestellt. Die Daten für SF₆- und Halon-1211 sind dabei noch vorläufig. Neben den Mischungsverhältnissen ist auch noch die Flughöhe und die geographische Breite aufgezeichnet. Zur Übersicht sind die Graphiken mit den Flugrouten, die bereits in Abschnitt 5 gezeigt wurden, vorangestellt. Für jede Kampagne wird der Erfolg der Messungen noch einmal tabellarisch dargestellt.

C.1 APE-THESEO

Für den ersten wissenschaftlichen Flug sowie für sechs Transferflugetappen von Forlì nach Mahè und zurück liegen keinerlei HAGAR-Daten vor. In Tabelle C.1 ist die Erfolgsbilanz für alle gemessenen Substanzen und alle Flüge aufgezeichnet. Dies stellt nicht den Stand der Auswertung dar – die für SF₆ und Halon-1211 noch vorläufig ist – sondern beschreibt die Datenqualität, die aus der bisherigen Integration der Peaks eingeschätzt werden kann.

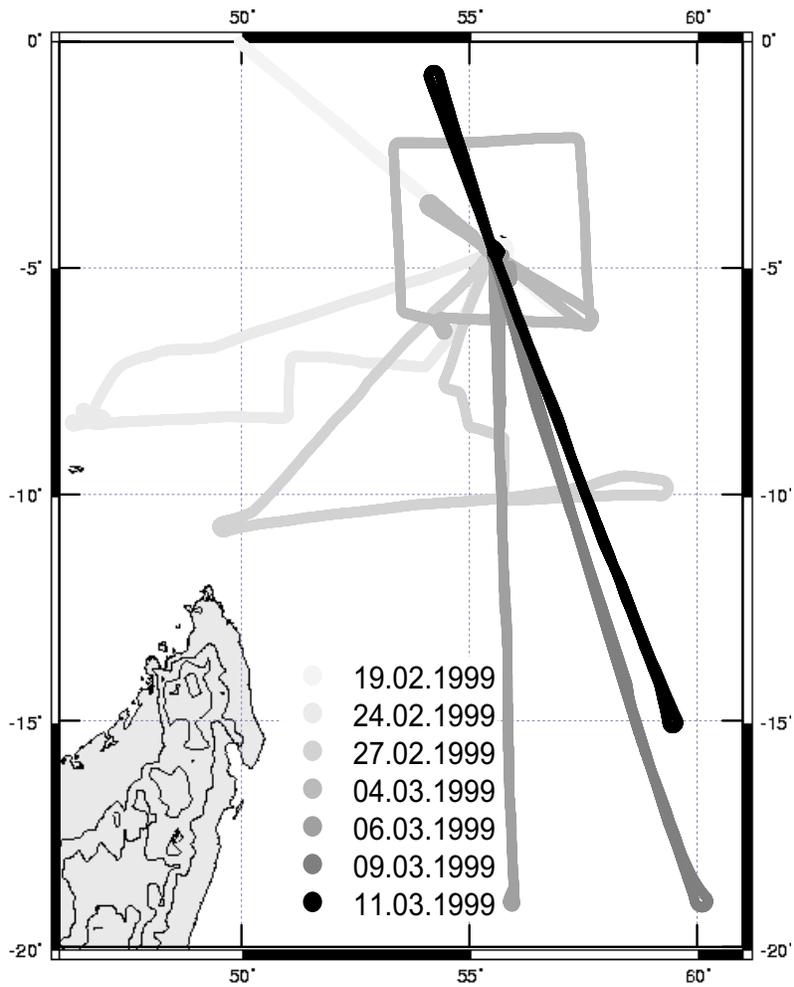


Abbildung C.1: Flugrouten während APE-THESEO.

Tabelle C.1: Detaillierte Erfolgsbilanz der HAGAR-Messungen während APE-THESEO.

Flugdatum	N ₂ O	F11	Halon-1211	SF ₆	CO ₂
Transfer Mahé – Forlh	keine Daten	keine Daten	keine Daten	keine Daten	keine Daten
19.03.1999	keine Daten	keine Daten	keine Daten	keine Daten	keine Daten
24.02.1999	in Ordnung	vereinzelte Rauschen, Kontamination?	in Ordnung	Daten brauchbar, Peak abgeschnitten? (90 s)	unbrauchbar, Peak abgeschnitten?
27.02.1999	in Ordnung	sehr vereinzelte Rauschen, Kontamination?	in Ordnung	Daten brauchbar, Peak abgeschnitten? (90 s)	in Ordnung
04.03.1999	in Ordnung	ca. 60 % verwechselt, Kontamination?	in Ordnung	erstmalig 45 s, in Ordnung	in Ordnung
06.03.1999	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung
09.03.1999	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung
11.03.1999	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung	in Ordnung
Transfer Mahé – Forlh	keine Daten	keine Daten	keine Daten	keine Daten	keine Daten

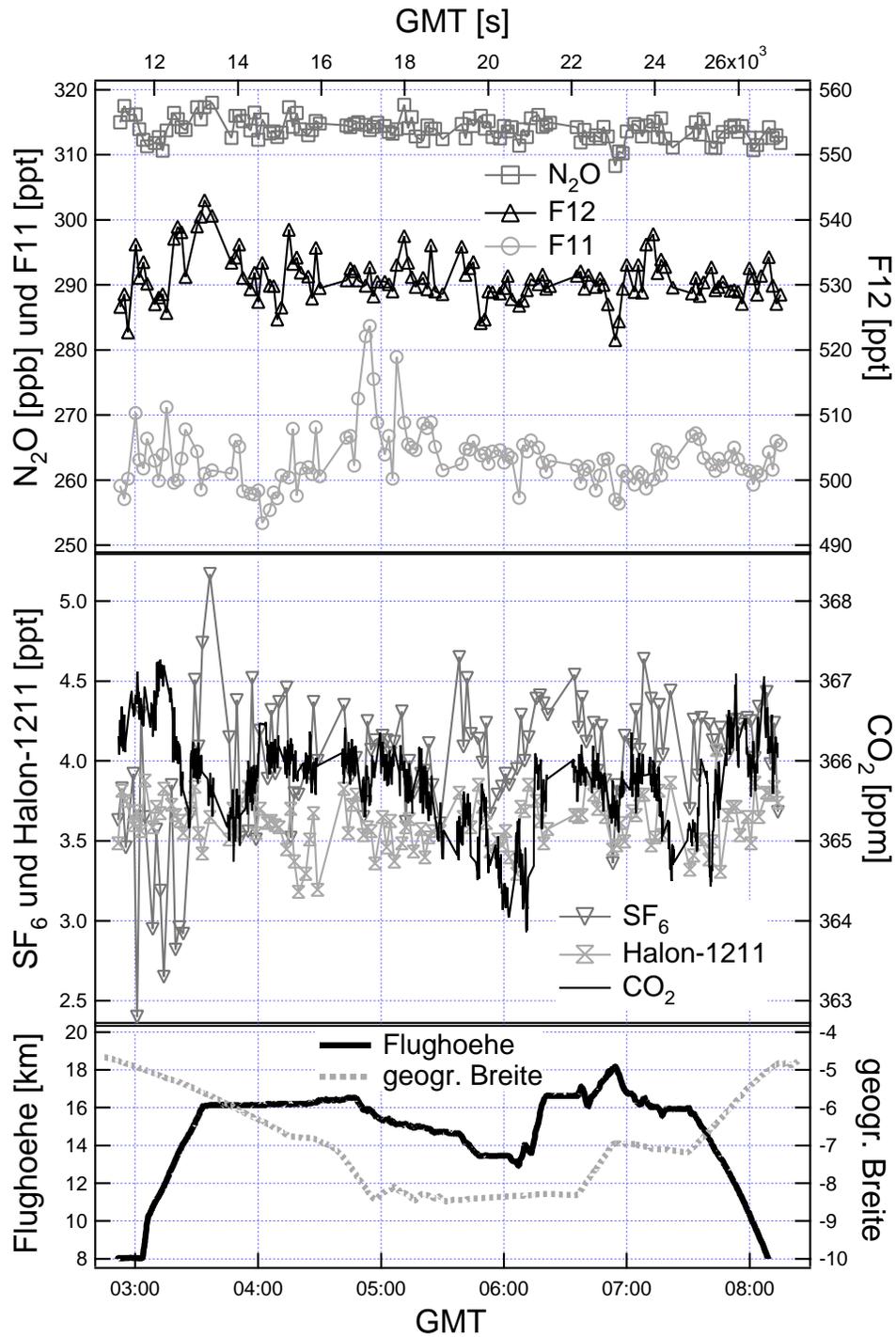


Abbildung C.2: HAGAR-Daten vom zweiten wissenschaftlichen Flug am 24.2.1999.

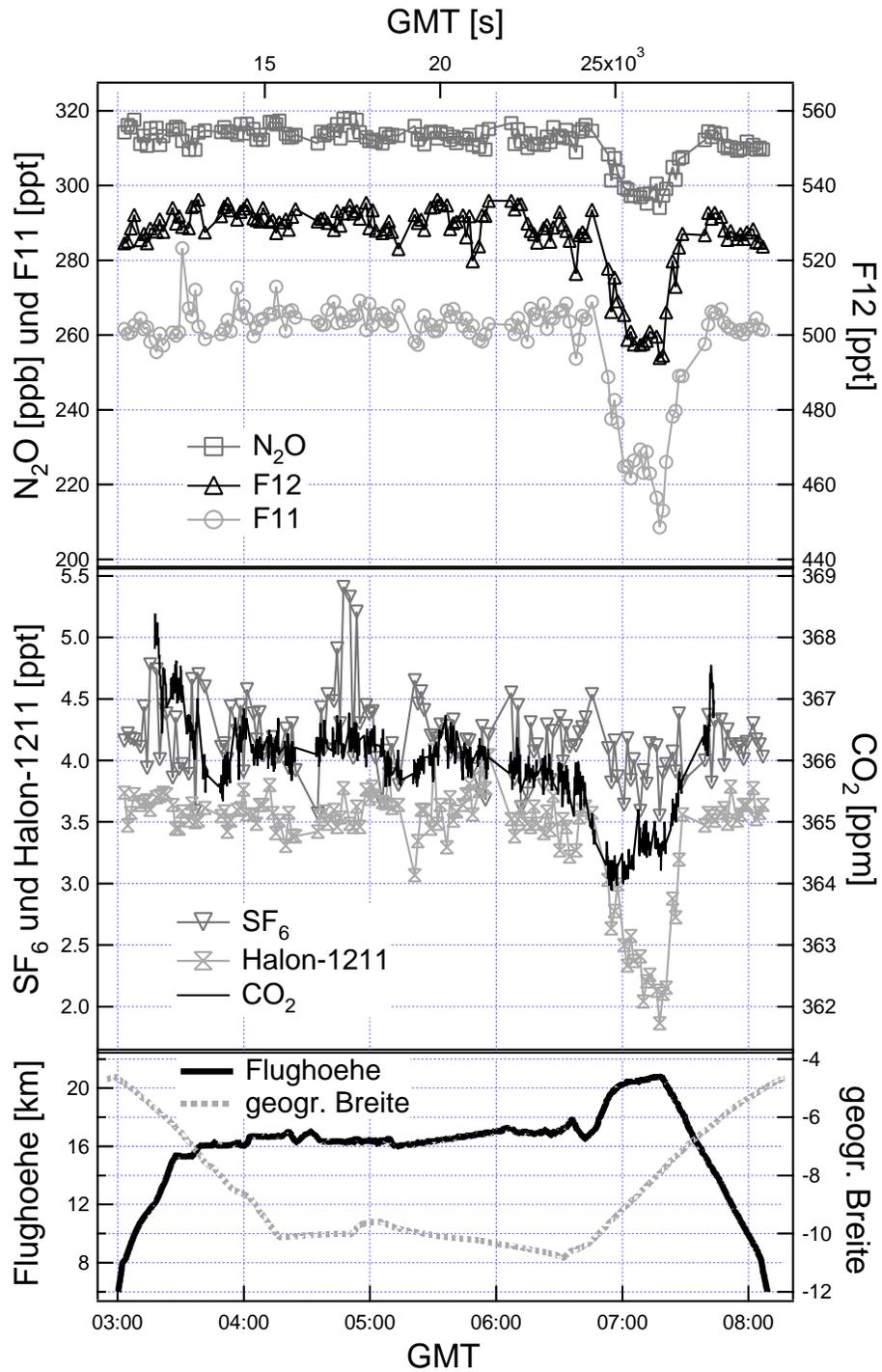


Abbildung C.3: HAGAR-Daten vom dritten wissenschaftlichen Flug am 27.2.1999.

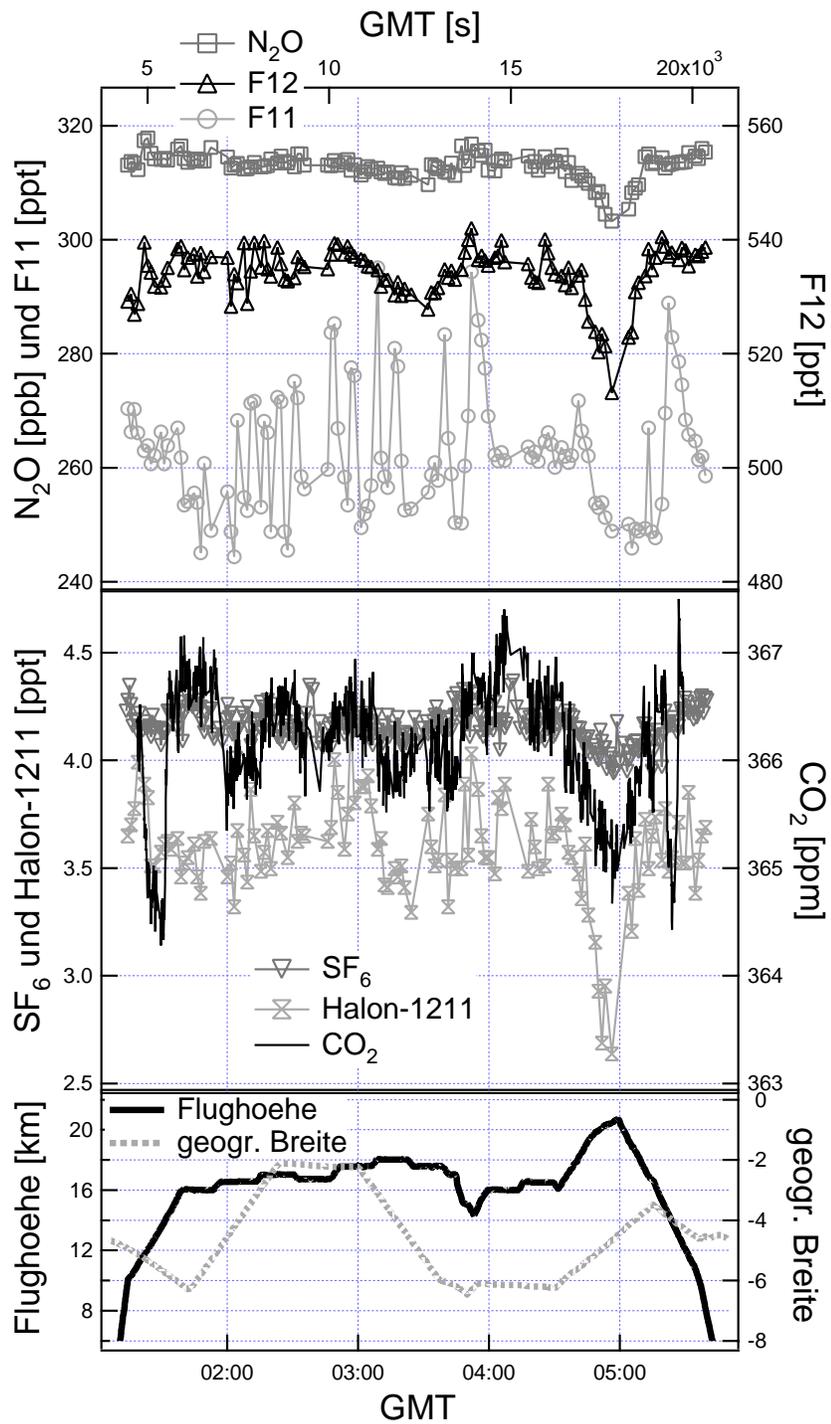


Abbildung C.4: HAGAR-Daten vom vierten wissenschaftlichen Flug am 4.3.1999.

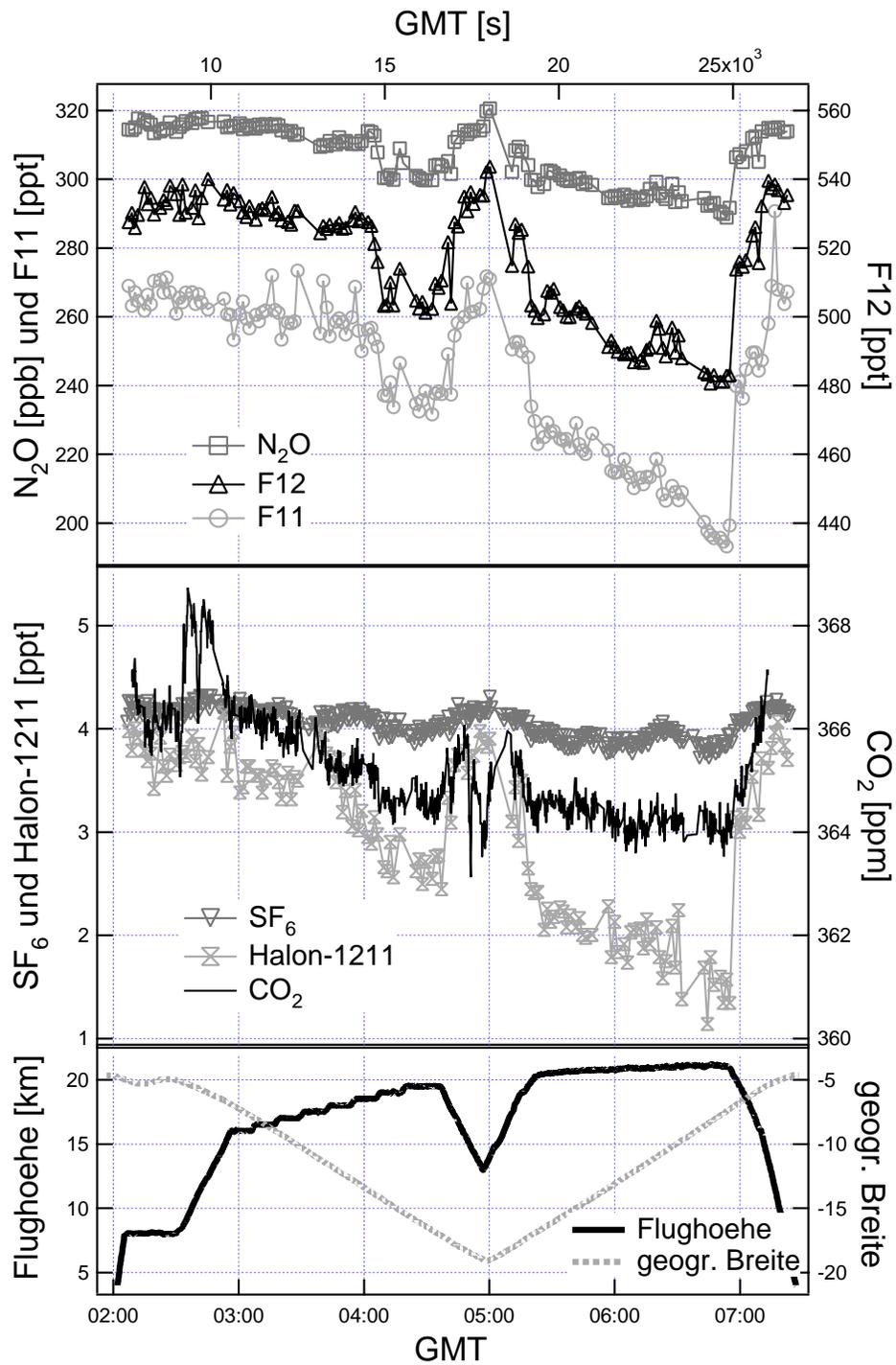


Abbildung C.5: HAGAR-Daten vom fünften wissenschaftlichen Flug am 6.3.1999.

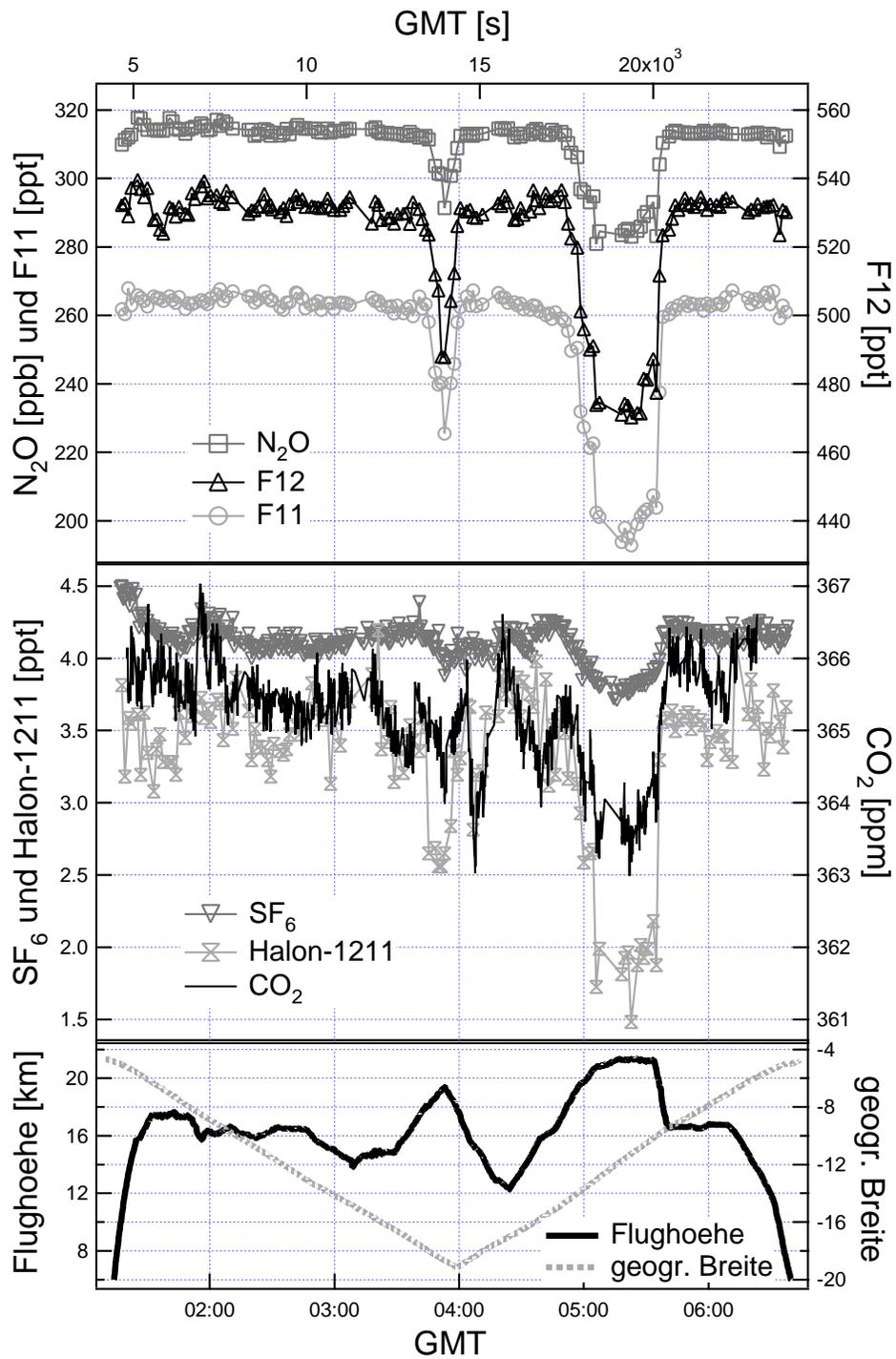


Abbildung C.6: HAGAR-Daten vom sechsten wissenschaftlichen Flug am 9.3.1999.

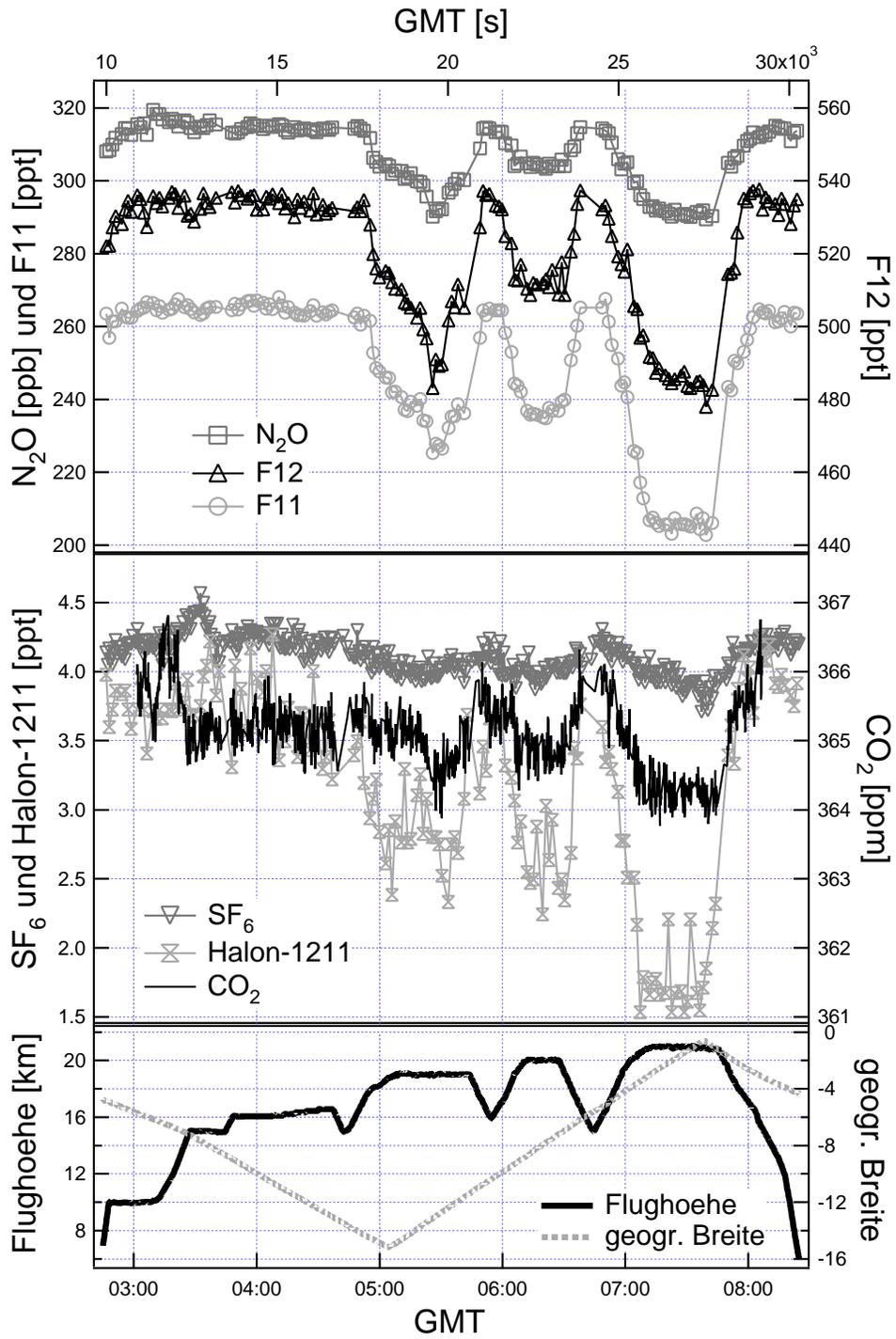


Abbildung C.7: HAGAR-Daten vom siebten wissenschaftlichen Flug am 11.3.1999.



Abbildung C.8: Gruppenbild des APE-THESEO-Teams und den beiden Flugzeugen auf dem Rollfeld des Flughafens von Mahé/Seychellen.

C.2 APE-GAIA

Während APE-GAIA arbeitete HAGAR in den den fünf wissenschaftlichen Flüge und dem Testflug weitgehend problemlos. Auf Kanal 1 wurde während einiger Flüge ein elektrisches Rauschen detektiert ($\nu = 3$ Hz). Durch den Einbau einer neuen Vorsäule in Kanal 1 zwischen Flug 4 und 5, konnte die Präzision während der Flüge nicht verbessert werden. Auf eine tabellarische Auflistung der Datenqualität nach Fügen und Substanzen konnte hier verzichtet werden.

Der Erfolg der Transferflüge (Sevilla-Ushuaia) wurde durch mehrere Faktoren beeinträchtigt:

- Das während aller Transferfluegetappen als Trägergas verwendete Gasgemisch war mit mehreren hundert ppt SF_6 kontaminiert. Dies machte eine Auswertung von SF_6 , Halon-1211 und zum Teil auch N_2O unmöglich. Durch die stark erhöhte Basislinie gerieten die N_2O -Peaks in die Sättigung.
- Auf den vier Etappen von Sevilla nach Ushuaia konnte aufgrund einer fehlerhaften Software-Konfiguration zweimal pro Zyklus Trägergas in das LI-COR eindringen. In der Folge konnten nur während etwa der halben Zykluszeit verlässliche Daten aufgenommen werden. Damit liegen für jeden Zyklus vier unabhängige Datenpunkte für CO_2 vor.
- Auf dem Rückflug war durch eine Füllfehler die Konzentration des Referenzgases um ca. 15 – 20 % verdünnt. Die Kalibration dieser Flasche muss noch ausgewertet bzw. für CO_2 noch durchgeführt werden. Insbesondere für die CO_2 -Messungen wird dies einen Verlust an Präzision und Absolutgenauigkeit zur Folge haben. Die Daten dieser Flüge liegen noch nicht vor.
- Durch einen Fehler der MDB-Crew blieben auf den letzten beiden Etappen des Rücktransfers (Recife – Sevilla) die HAGAR-Gasflaschen geschlossen. Aus diesem Grunde gibt es keinerlei Daten von diesen beiden Flügen.

Die Qualität der Messungen auf den Transferflügen ist in Tabelle C.2 auf Seite 224 aufgelistet.

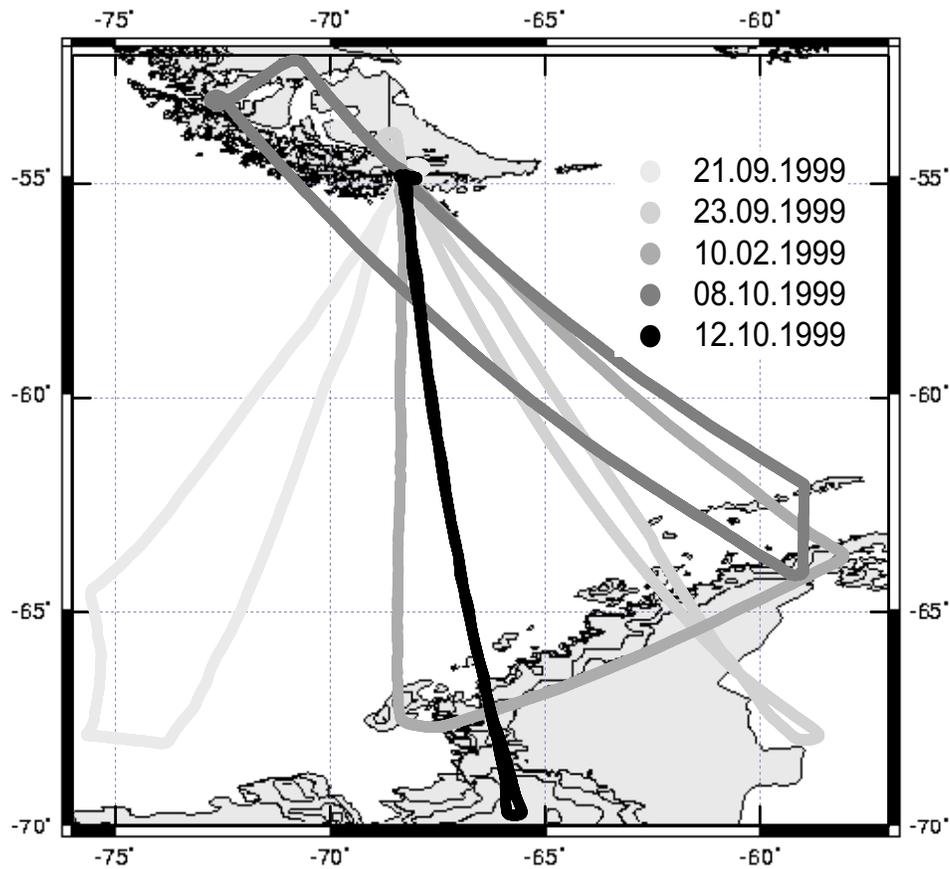


Abbildung C.9: Flugrouten während APE-GAIA.

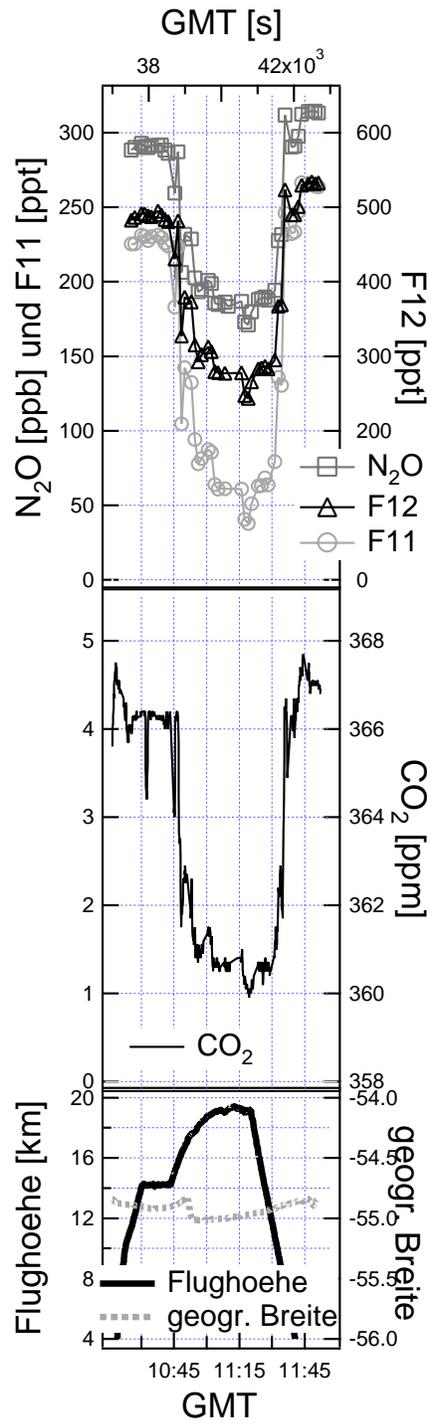


Abbildung C.10: HAGAR-Daten des Testfluges am 19.9.1999.

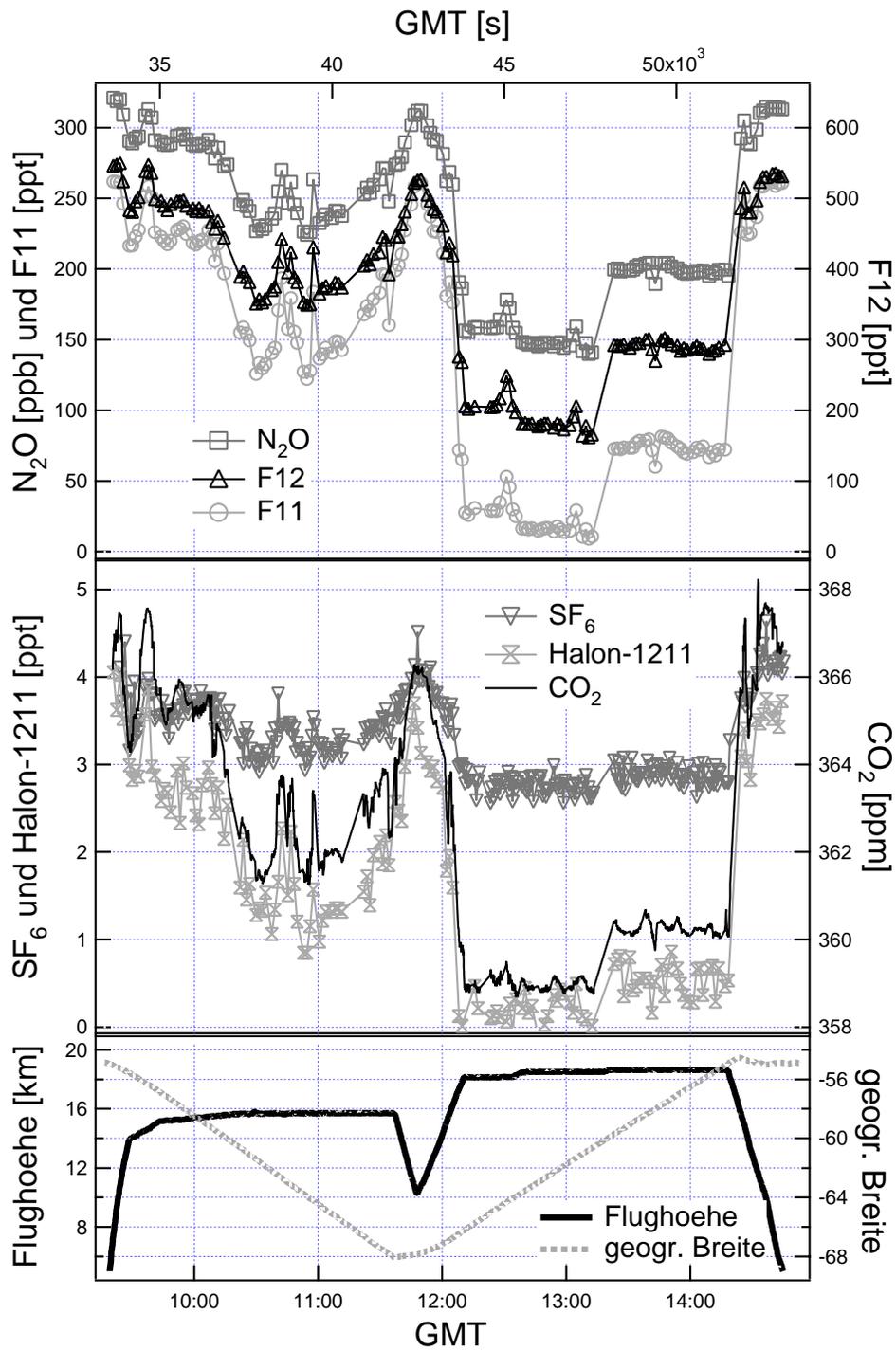


Abbildung C.11: HAGAR-Daten vom ersten wissenschaftlichen Flug am 21.9.1999.

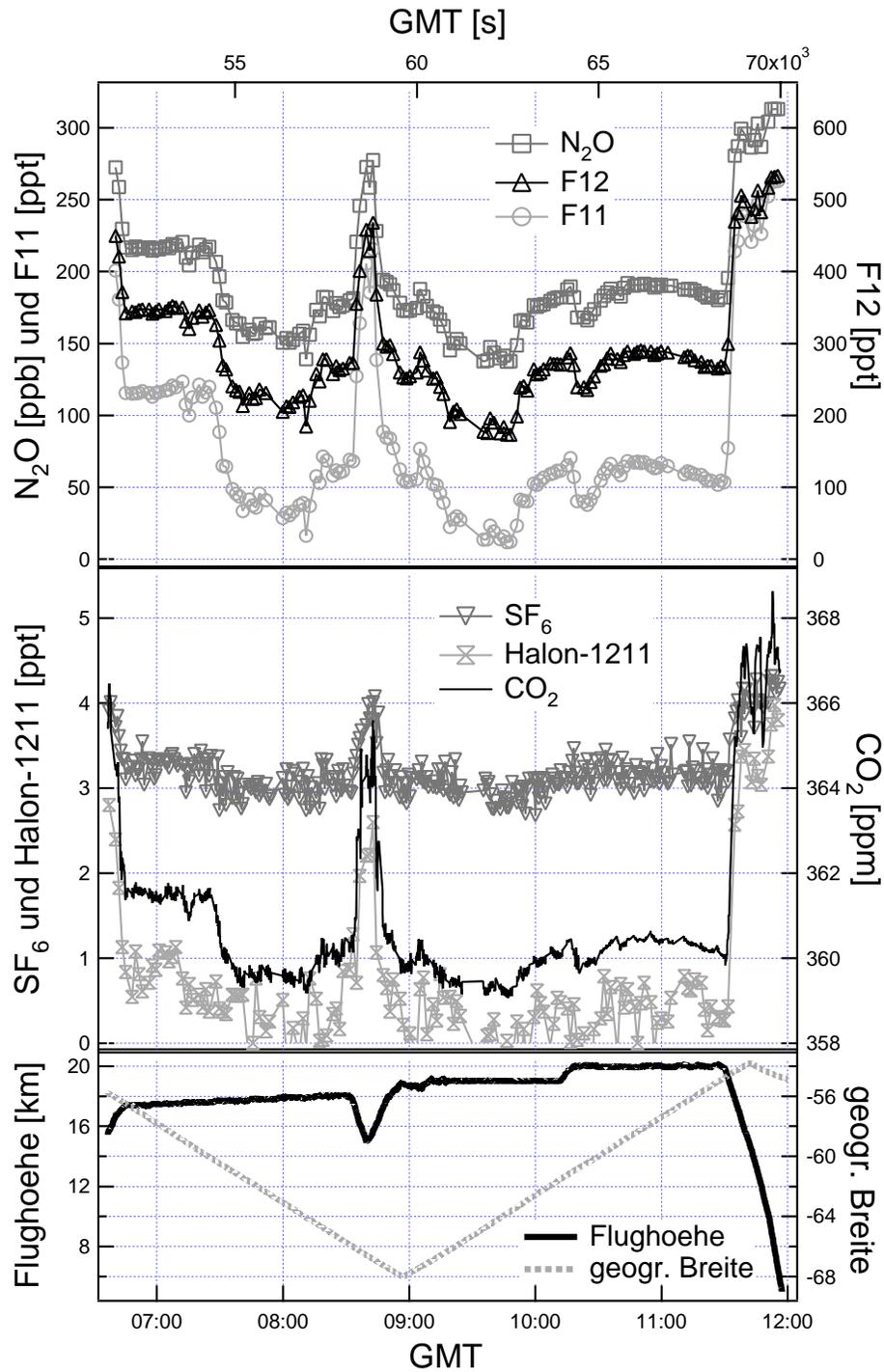


Abbildung C.12: HAGAR-Daten vom zweiten wissenschaftlichen Flug am 23.9.1999.

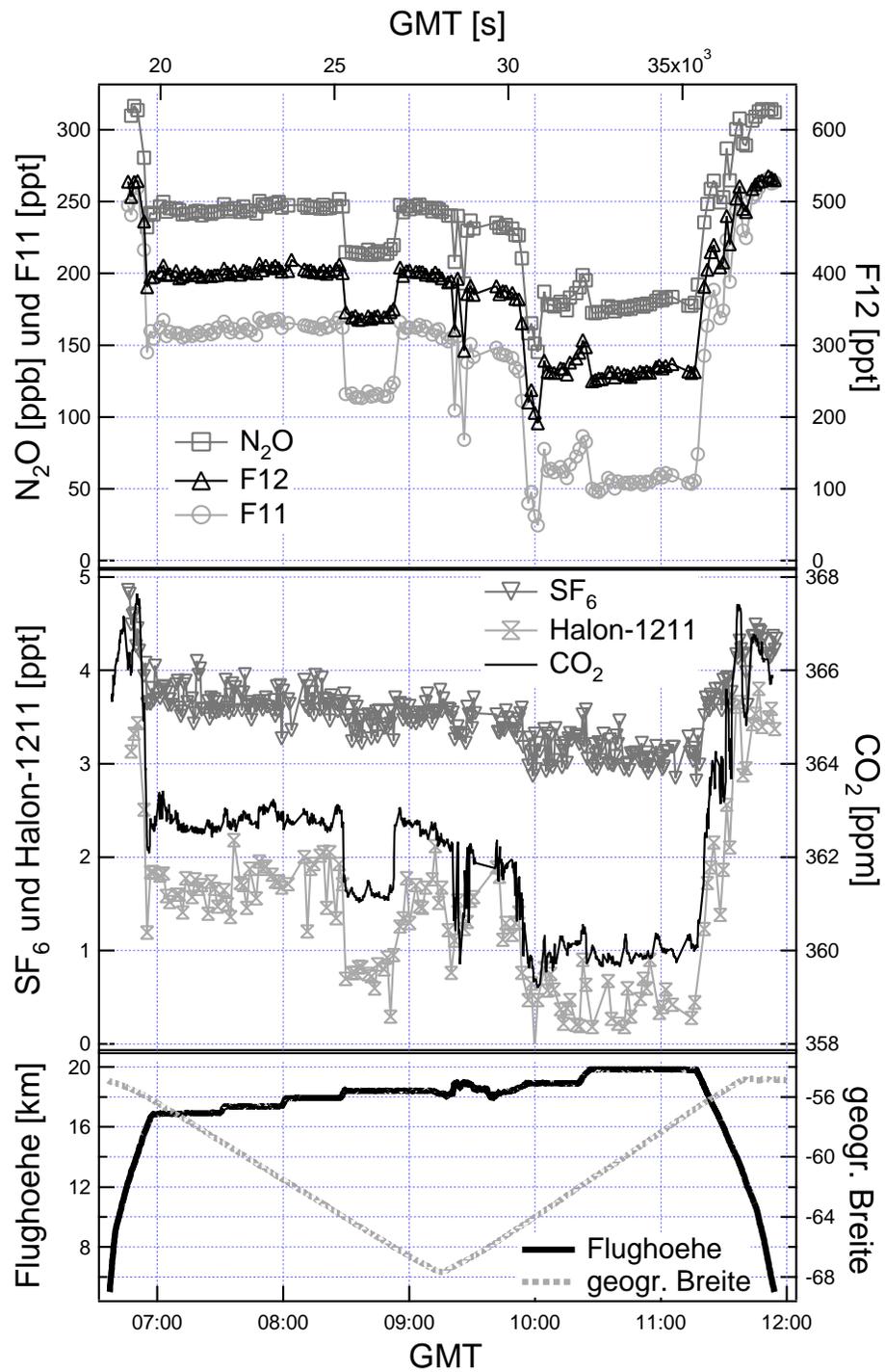


Abbildung C.13: HAGAR-Daten vom dritten wissenschaftlichen Flug am 2.10.1999.

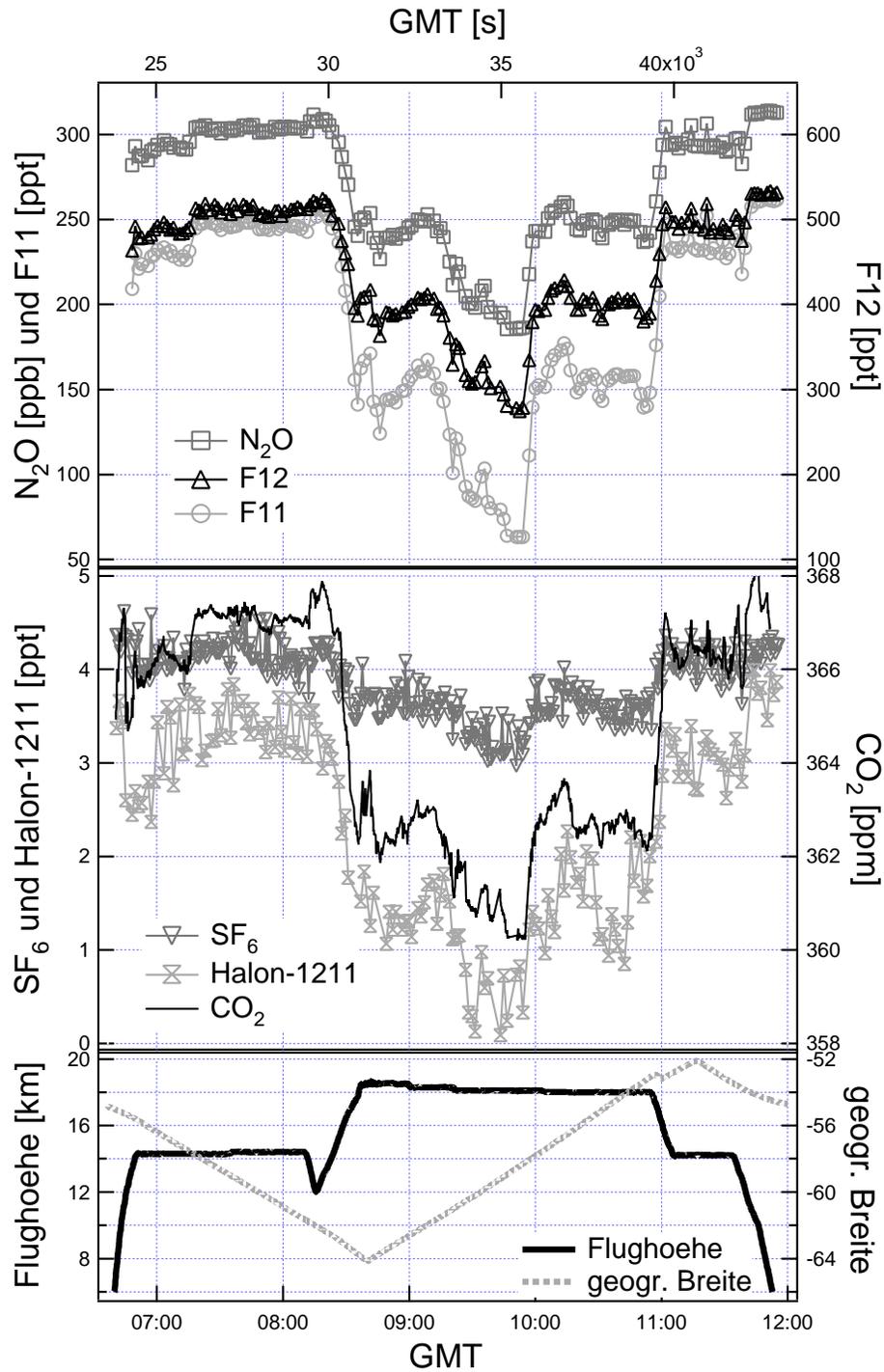


Abbildung C.14: HAGAR-Daten vom vierten wissenschaftlichen Flug am 8.10.1999.

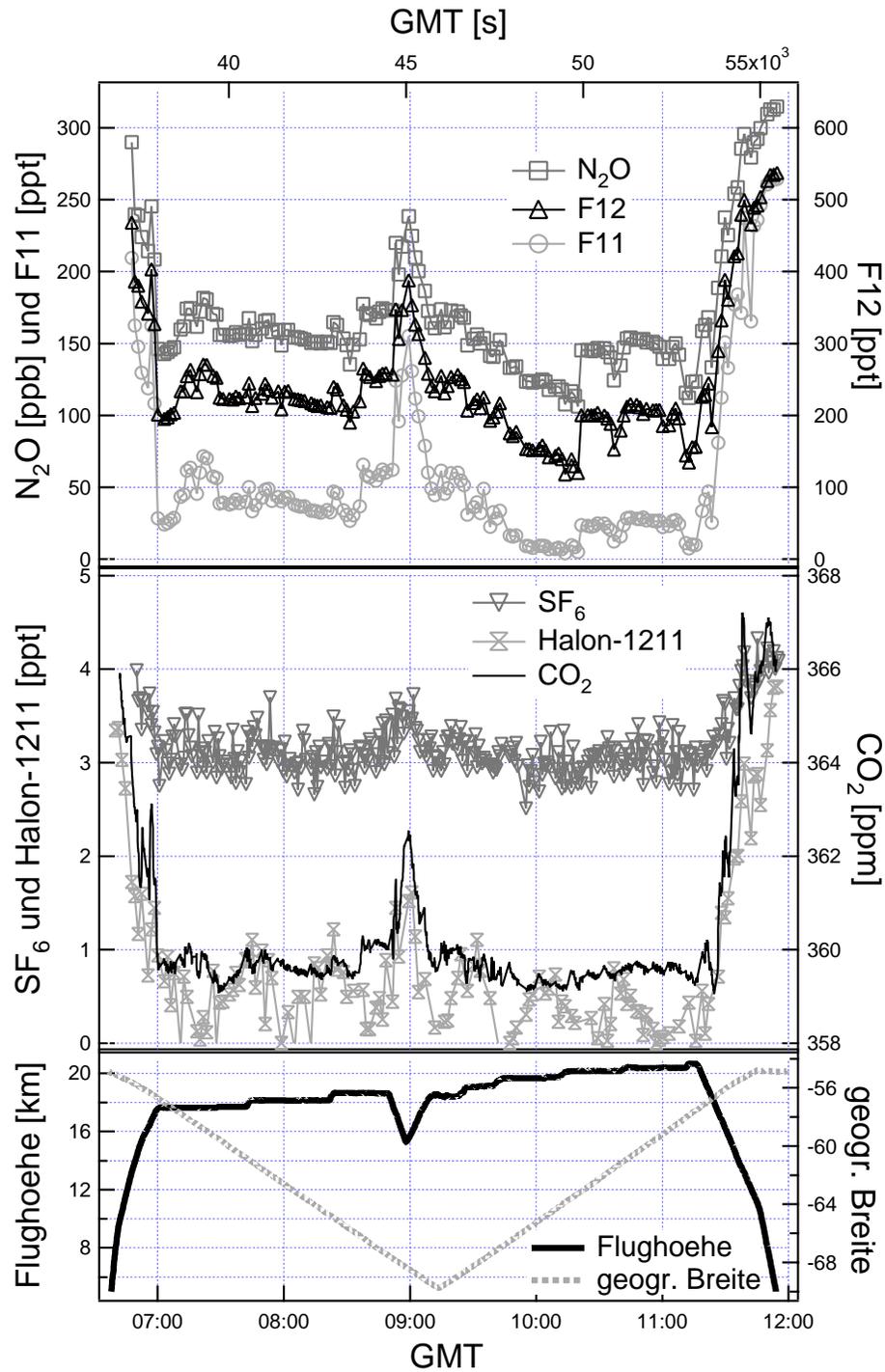


Abbildung C.15: HAGAR-Daten vom fünften wissenschaftlichen Flug am 12.10.1999.

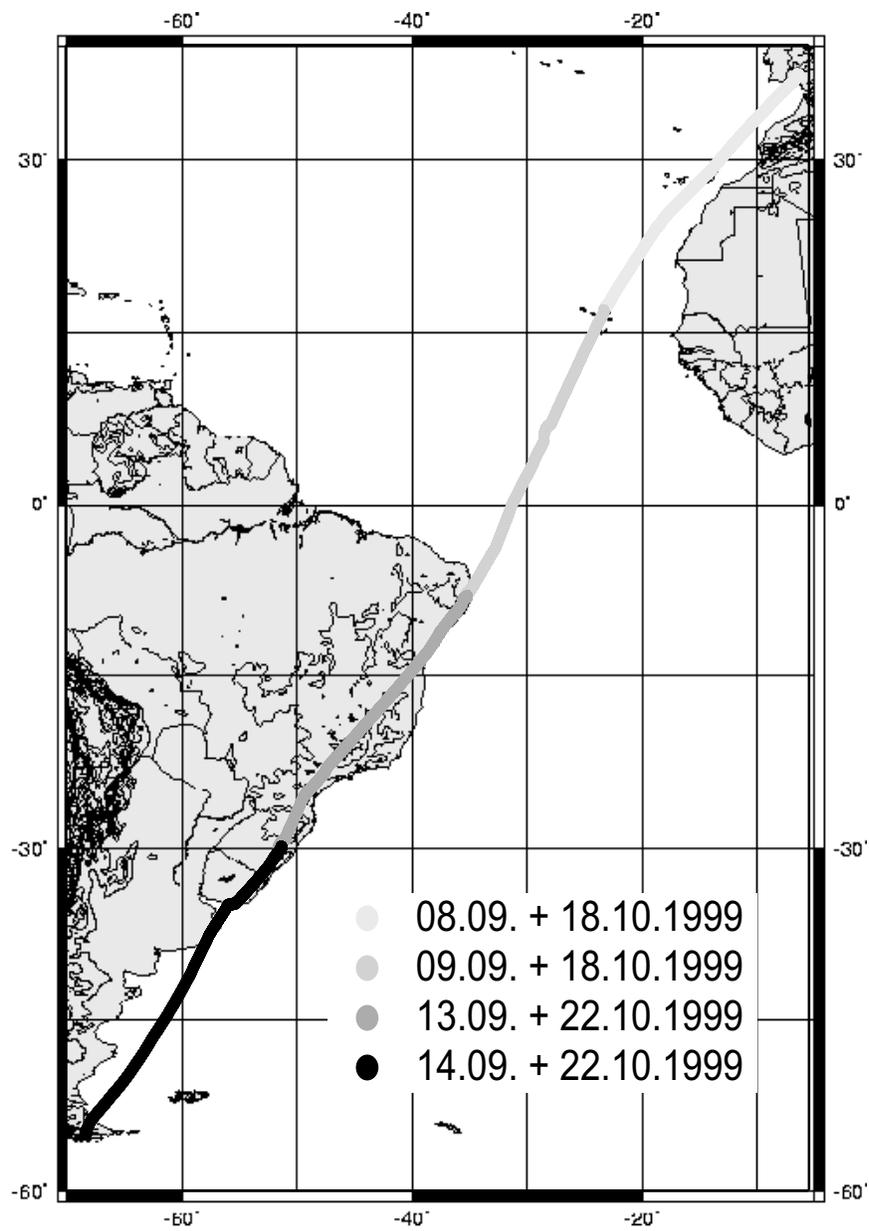


Abbildung C.16: Routen der Transferflüge von Sevilla/Spanien nach Ushuaia/Argentinien

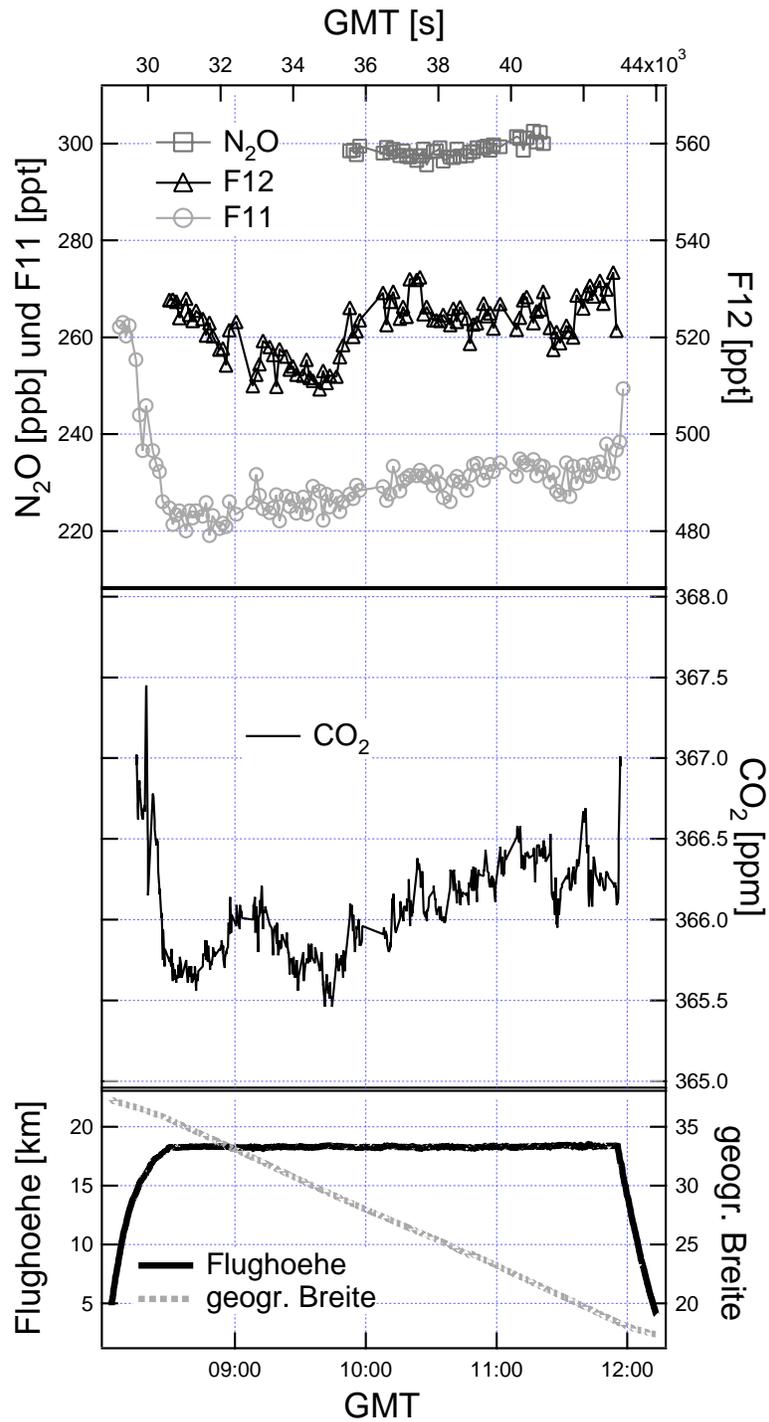


Abbildung C.17: HAGAR-Daten der ersten Transferfluges von Sevilla nach Isla do Sal am 8.9.1999.

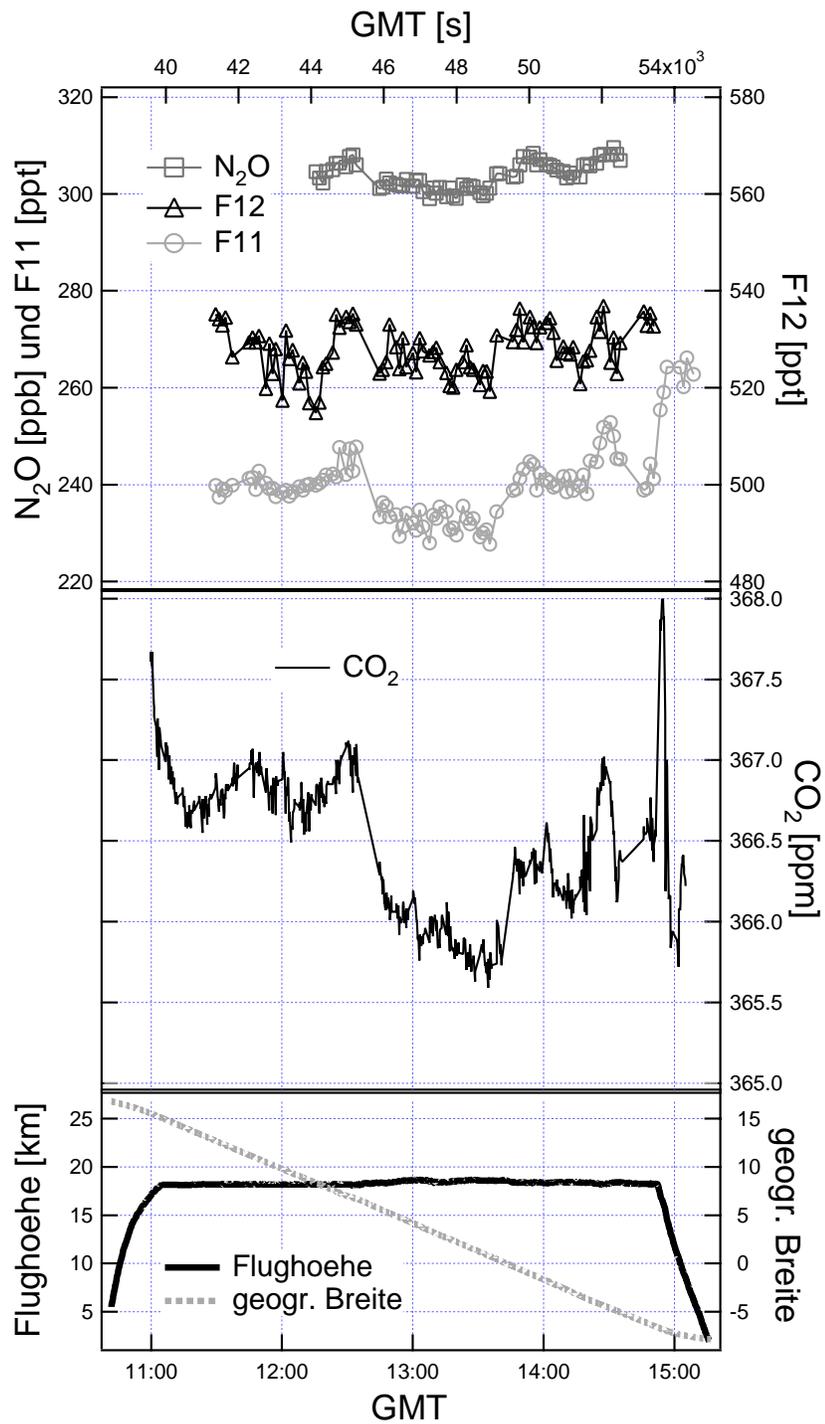


Abbildung C.18: HAGAR-Daten der ersten Transferflugtappe von Isla do Sal nach Recife am 9.9.1999.

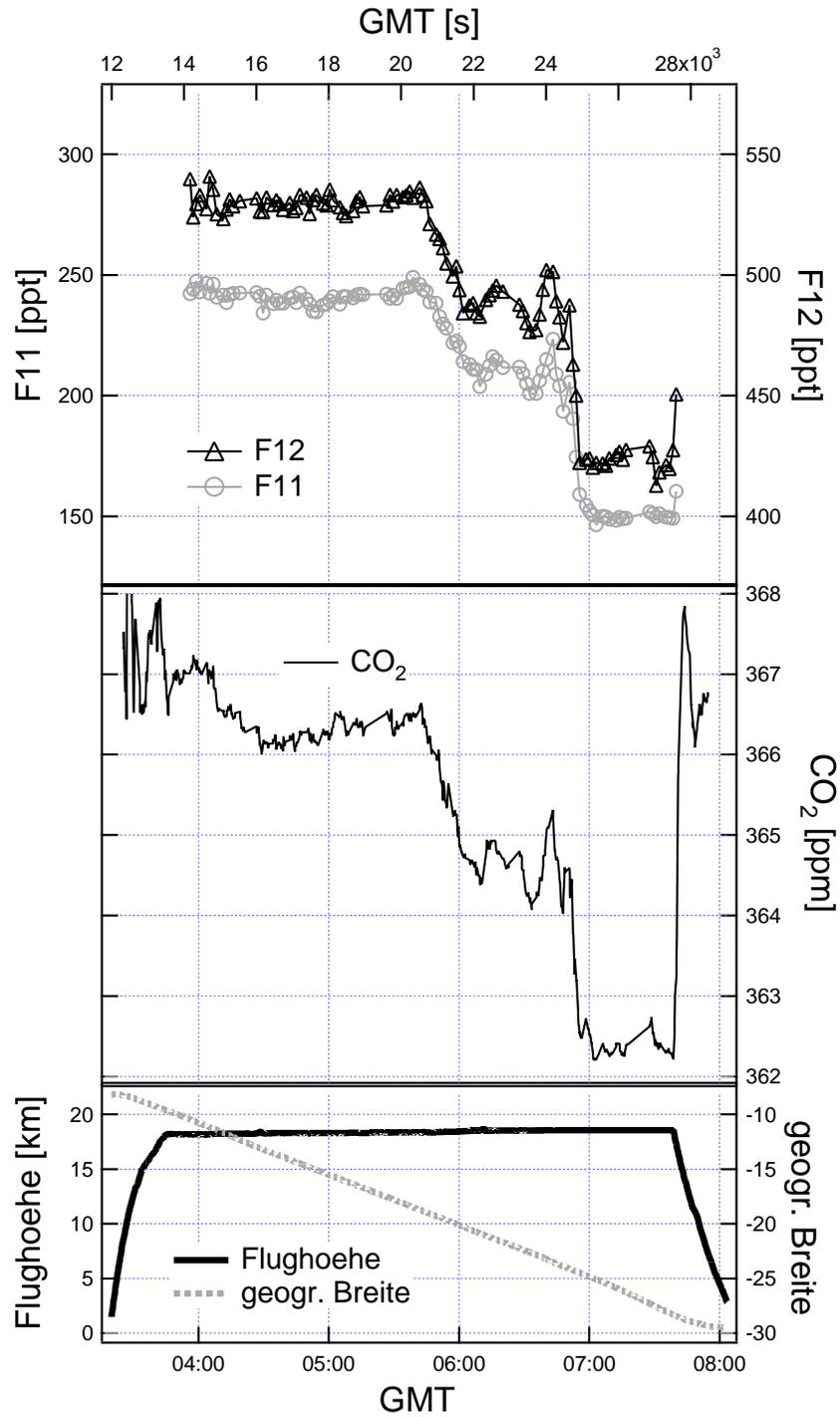


Abbildung C.19: HAGAR-Daten der ersten Transferflugtappe von Recife nach Porto Alegre am 13.9.1999.

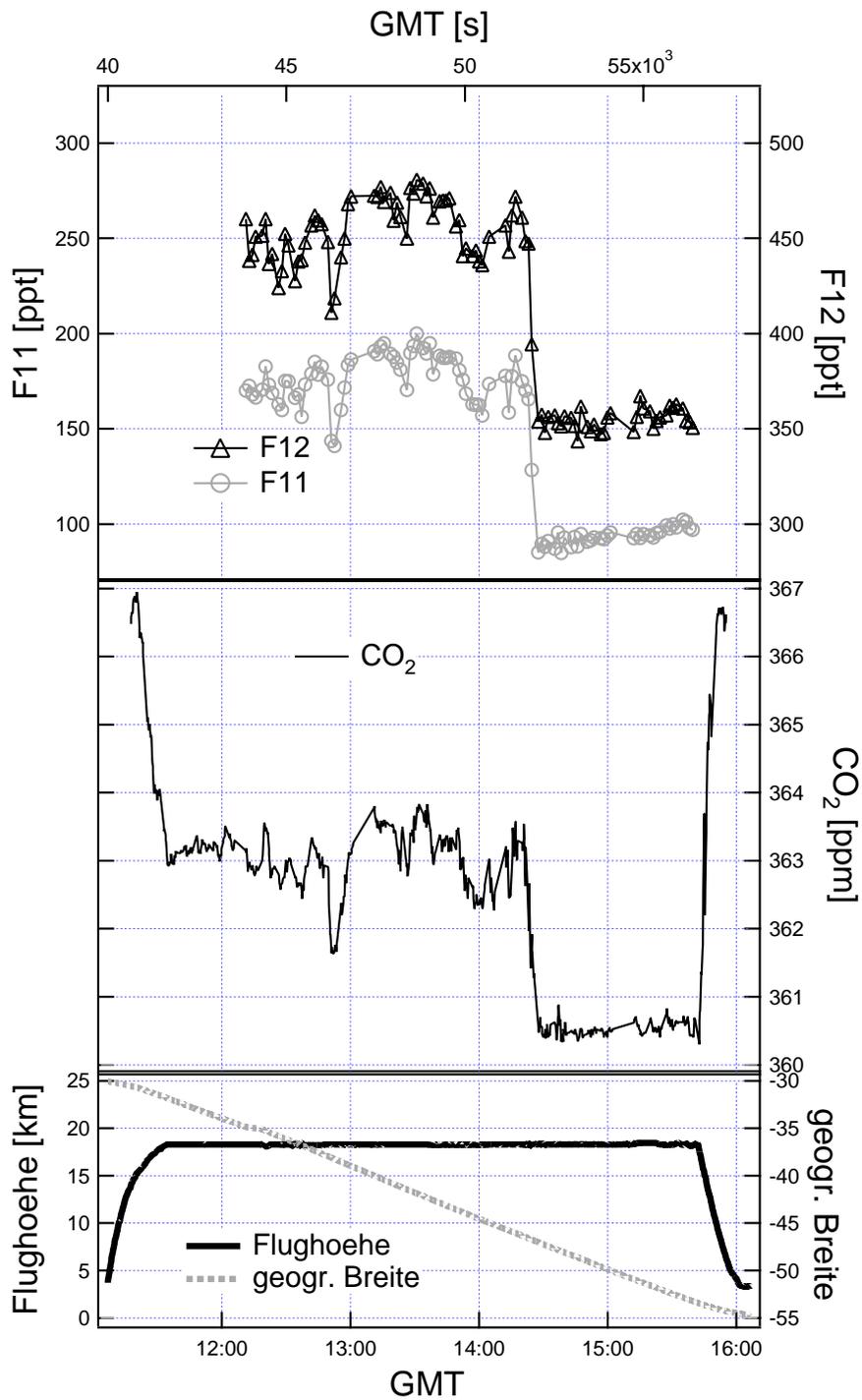


Abbildung C.20: HAGAR-Daten der ersten Transferfluges von Porto Alegre nach Ushuaia am 14.9.1999.



Abbildung C.21: Gruppenbild des APE-GAIA-Teams im neuen Hangar des Flughafens von Ushuaia/Argentinien.

Anhang D

Mathematische Methoden

D.1 Fehlerfortpflanzung nach Gauß

Für den Fehler einer Größe f , die aus den n fehlerbehafteten Messgrößen x_1, \dots, x_n bestimmt wird gilt [z. B. *Boas*, 1983]:

$$\sigma_{f(x_1, \dots, x_n)} = \sqrt{\sum_{i=0}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)_{x_i = \text{Messergebnis}}^2 \sigma_{x_i}^2} \quad (\text{D.1})$$

wobei mit σ jeweils der absolute Messfehler bezeichnet wird. Für zwei Spezialfälle lassen sich noch vereinfachte Gleichungen aufstellen. Ist $f(x_1, \dots, x_n) = c + \sum_{i=0}^n x_i$ so gilt für die absoluten Fehler (mit der Einheit der Messgröße):

$$\sigma = \sqrt{\sum_{i=0}^n \sigma_{x_i}^2} \quad (\text{D.2})$$

Ist $f(x_1, \dots, x_n) = c \cdot \prod_{i=0}^n x_i$ so gilt für die relativen Fehler (in %):

$$\sigma_{\text{relativ}} = \frac{\sigma}{f(x_1, \dots, x_n)} = \sqrt{\sum_{i=0}^n \left(\frac{\sigma_{x_i}}{x_i} \right)^2} = \sqrt{\sum_{i=0}^n \sigma_{x_i, \text{relativ}}^2} \quad (\text{D.3})$$

D.2 Numerische Bestimmung von Nullstellen

Zur numerischen Bestimmung von Nullstellen einer Funktion $f(x)$ kann das Newton'sche Tangentenverfahren verwendet werden [z. B. *Gellert et al.*,

1982]). Dabei wird die Funktion iterativ durch eine Tangente angenähert, deren Nullstelle den nächsten Startpunkt ergibt:

$$x_{i+1} = x_i - \left(\frac{f(x)}{f'(x)} \right) \quad (\text{D.4})$$

Die Reihe wird abgebrochen, wenn die Differenz der Ergebnisse zweier Schritte eine vorgegebene Schranke unterschreitet: $|x_{i+1} - x_i| < \varepsilon$

D.3 Glättung von Zeitreihen

Gleitender Mittelwert

Bei der Filterung einer Zeitreihe x_i mit einem gleitenden Mittelwert der Breite n (n ungerade) wird der Wert an der Stelle i durch den Mittelwert der $(n-1)/2$ linken und $(n-1)/2$ rechten Nachbarn sowie des Wertes selbst ersetzt:

$$\bar{x}_i = \left(\frac{1}{n} \right) \sum_{i-\frac{n-1}{2} < i < i+\frac{n-1}{2}} x_i \quad (\text{D.5})$$

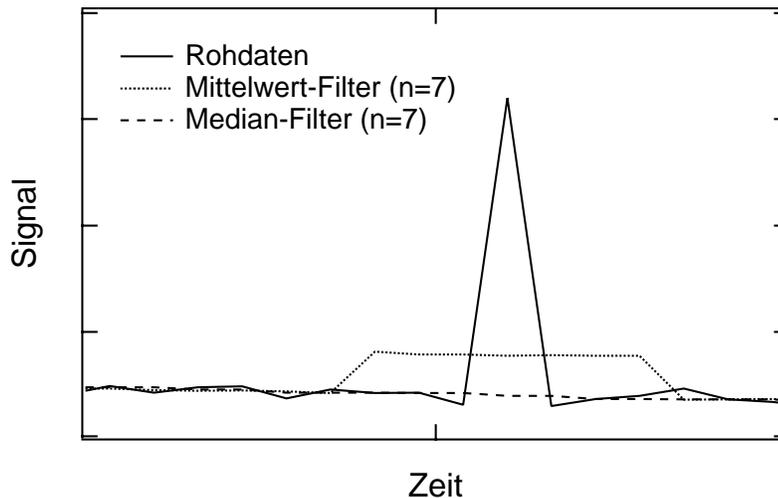


Abbildung D.1: Vergleich der Wirkungsweise von Mittelwert- bzw. Median-Filter der Breite $n = 7$ auf einen „Ausreißer“.

Median-Filter

Zur Bildung des Median oder Zentralwertes einer Reihe von n Datenpunkten x_i , ordnet man die Datenpunkte nach der Größe. Für eine ungerade Anzahl n – wie sie in dieser Arbeit stets gewählt wurde – entspricht der Median dann dem Wert an der Stelle $i = (n + 1)/2$ [z. B. *Cramer*, 1988]. Die Bildung des Median ist immer dann zu bevorzugen, wenn einzelne Werte („Ausreißer“) das Mittel zu stark beeinflussen. Abbildung D.1 zeigt die unterschiedliche Wirkungsweise von gleitendem Mittelwert und Median-Filter eine Datenreihe. Da die CO₂-Daten des HAGAR immer wieder solche Ausreißer aufweisen, wurde zur Glättung der Zeitreihe der Daten die Bildung des gleitenden Medians gewählt.

Savitzky-Golay-Filter

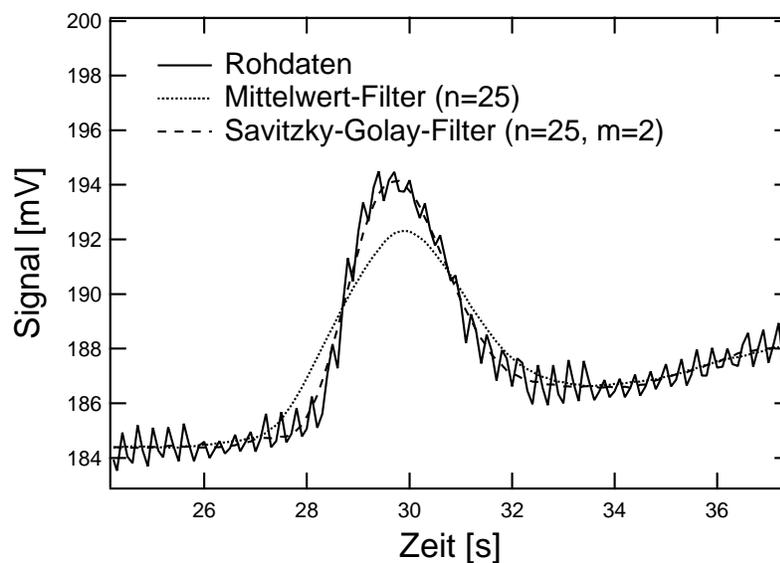


Abbildung D.2: Vergleich der Wirkungsweise von Mittelwert- bzw. Savitzky-Golay-Filter auf einen SF₆-Peak.

Für die Chromatographiedaten stellt sich ein anderes Problem. Dem eigentlichen Signal, das in etwa die Form einer Gauss-Kurve hat, ist ein Rauschen aufmoduliert. Die Bildung des gleitenden Mittelwertes entspricht etwa einer linearen Interpolation zwischen den Messwerten. Dies verringert nicht nur das Rauschen, sondern glättet auch die eigentliche Signalkurve. Für die Chromatographie bedeutet dies eine Verbreiterung des Peaks. In diesem Fall ist ein Savitzky-Golay-Filter zu bevorzugen, der die Form der Peaks besser

erhält. Hier wird an die Datenpunkte $i - \frac{n-1}{2} < i < i + \frac{n-1}{2}$ ein Polynom P vom Grad m gefittet:

$$P = \sum_{j=0}^m a_j x^j \quad (\text{D.6})$$

Der Wert x_i wird nun aus dieser Fitfunktion bestimmt. Für die Auswertung von N_2O , F12 und F11 wurden die Chromatogramme mit einem Savitzky-Golay-Filter vom Grad $m = 2$ und der Breite $n = 15$ geglättet. Für die übrigen Moleküle wurden die Chromatogramme zum Teil mit gleitendem Mittelwert bearbeitet oder aber durch Anfitten einer Gauß-Kurve ausgewertet (vgl Abschnitt 4.2.2).

Anhang E

Integration von Peaks mittels Gauß-Funktionen

Bevor die Peaks eines Chromatogramms integriert werden können, muss die Datenreihe zuvor meist geglättet werden. Dazu kann eine der in Anhang D.3 beschriebenen Methoden eingesetzt werden. Für Peaks mit geringem Signal-Rausch-Verhältnis oder sehr schmale Peaks (30 – 50 Messpunkte), kann diese Methode problematisch sein. Eine zu schwache Glättung hinterlässt eine zu „unruhige“ Kurve, die es schwierig macht, die Basislinie zu definieren. Eine zu starke Glättung wäscht die Ränder des Peaks so weit aus, dass sich die Peakränder – zumal auf einer nicht flachen Basislinie wie sie im HAGA-Rimmer wieder auftritt – nur mit großer Unsicherheit festlegen lassen. Beide Probleme limitieren die Präzision der gewonnenen Daten.

In diesem Abschnitt soll eine Integrationsmethode vorgestellt werden, die einen anderen Ansatz verfolgt. Indem die zu erwartende Form des Peaks in die Auswertung eingebracht wird, können die ungeglätteten Daten durch Fitfunktionen angenähert werden.

In einem einfachen Modell der gaschromatographischen Trennung kann die theoretisch zu erwartende Form eines Peaks bestimmt werden [z. B. *Leibnitz & Struppe*, 1984]. Die Säule wird dabei in eine endliche Anzahl von Trennstufen eingeteilt. Die Annahme ist nun, dass in jeder dieser Stufen ein Gleichgewicht des Anteils der zu analysierenden Substanz in der stationären Phase (Säulenmaterial) und in der mobilen Phase (Trägergas) herrscht. Eine solche Annahme ergibt eine Binomialverteilung für den Anteil an Substanz in der mobilen Phase. Beim Übergang zu infinitesimal kleinen Trennstufen ergibt dies eine Gauß-Verteilung.

Diese Modellvorstellung ist nicht in der Lage, alle bei einem realen Gaschromatographen auftretenden Effekte zu beschreiben. Gerade bei auf Geschwindigkeit optimierten Gaschromatographen wie HAGA ist nicht zu

erwarten, dass die Zeit stets ausreicht, um das Verteilungsgleichgewicht zu erreichen. Dennoch kann es eine vernünftige Vorgehensweise sein, die Peakform bei der Auswertung vorzugeben. Daher wurde für die Auswertung der HAGAR-Daten in NOAH-Chrom die Möglichkeit implementiert, an die Peaks eine Gauß-Funktion anzufitten, die auf einem Polynom 3. Ordnung (als Basislinie) aufsetzt. Insgesamt ergibt dies sieben freie Parameter:

$$y = a_0 + a_1(x - a_5) + a_2(x - a_5)^2 + a_3(x - a_5)^3 + a_4 \cdot e^{-\left(\frac{x-a_5}{a_6}\right)^2} \quad (\text{E.1})$$

Um den Fit besser beurteilen zu können ist die Funktion so konstruiert, dass die Parameter a_0 , a_1 , a_2 und a_3 die Basislinie (Offset, Steigung, Krümmung) an der Stelle der Retentionszeit a_5 beschreiben. In der Praxis ist es zumeist nicht sinnvoll, alle sieben Parameter frei zu variieren. Man versucht etwa den kubischen Parameter a_3 , Breite a_6 und/oder die Retentionszeit a_5 aus einem oder mehreren repräsentativen Chromatogrammen zu bestimmen, um sie dann konstant zu halten. Insbesondere bei festgehaltener Breite ergeben Höhe a_4 und Fläche ($\propto (a_4 \cdot a_6)$) dieselbe Information. Sonst hat man die Wahl, welcher Parameter die bessere Präzision liefert.

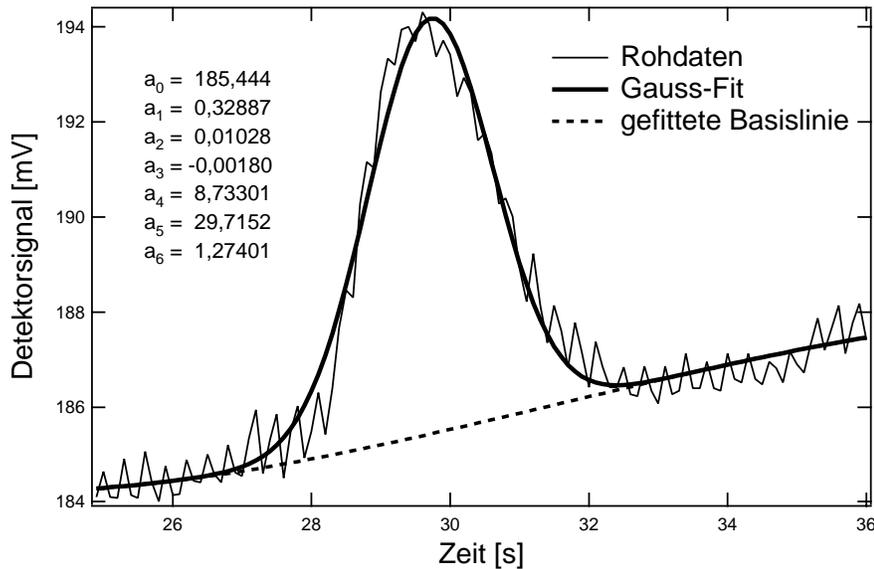


Abbildung E.1: Gauß-Fit durch einen typischen, verrauschten SF_6 -Peak während APE-GAIA (12.10.1999). Die gestrichelte Linie zeigt die aus dem Fit gewonnene Basislinie.

Es steht zu hoffen, dass diese Auswertemethode die Präzision der SF_6 - und Halon-1211-Daten von HAGAR verbessern kann. Sie ist neben der Stan-

dardintegration inzwischen gleichberechtigt innerhalb von NOAH-Chrom realisiert. So ist es möglich die Peaks nach beiden Methoden auszuwerten und die Resultate anschließend zu vergleichen. Erste Versuche mit SF₆ zeigten bereits eine Verbesserung um 1 – 2 %. Noch fehlen jedoch ausreichend Erfahrungswerte, welche Fitparameter festzuhalten sind, denn mit sieben freien Parametern hat der Fit zumeist zu viele Freiheitsgrade und konvergiert daher nicht sehr gut.

Anhang F

Erläuterungen zur Software

In diesem Abschnitt sollen verschiedene technische Details zu der für HAGAR entwickelten Software aufgelistet werden. Zuvor werden aber noch einige Namenskonventionen eingeführt, die für verschiedene Abschnitte von Bedeutung sind. Die Ein- und Ausgänge auf den ADC2- und ADC4-Karten sind – wie zum Programmieren sinnvoll – von 0 bis x nummeriert. Von jeder dieser Karten befanden sich zunächst zwei im Steuerrechner. Für die Software wurde eine weitestgehende Unabhängigkeit von der Hardware angestrebt, so dass die Nummerierungen der jeweils zweiten Karte an der der ersten Karte anschließen. Die insgesamt acht analogen Ausgänge der ADC2-Karten werden also als AOUT0 bis AOUT7 bezeichnet. Für die 15 digitalen Ausgänge gelten folglich die Namen DOUT0 bis DOUT15 und für die analogen Eingänge AIN0 bis AIN31. Um eine dritte ADC3-Karte unterzubringen wurde eine ADC4 eingespart. Mit einem 2×8 -Relaismultiplexer können jedoch weiterhin 16 Temperatursensoren ausgelesen werden. Der umgeschaltete Multiplexer wird analog zu einer zweiten Messkarte behandelt. Die Sensoren werden mit T0 bis T15 bezeichnet.

Die Abschnitte F.1 und F.2 erläutern die Verzeichnisstruktur auf dem Flugrechner und dem Entwicklungsrechner. Dies ist zum Teil auch für die Erläuterungen der weiteren Programme in den darauffolgenden Abschnitten F.3 bis F.6 von Bedeutung. Für alle für HAGAR neu entwickelten Programme werden die verwendeten Quellcode-Dateien aufgezählt und ihr Inhalt kurz vorgestellt.

F.1 Verzeichnisstruktur für Daten und Konfiguration (Flugrechner)

Software und Betriebssystem sind auf dem HAGAR-Rechner möglichst kompakt konfiguriert, so dass maximaler Speicherplatz für Messdaten zur Verfügung steht. In Zeiten stets fallender Preise für Flash-Speicherkarten verliert dies sicher an Bedeutung. Eine kompakte Betriebssysteminstallation erlaubt jedoch auch maximalen freien Arbeitsspeicher, dessen Limitierung unter DOS technischer und nicht finanzieller Natur ist, und minimalen Konflikt zwischen Steuerprogramm und Betriebssystem. Im Wesentlichen befinden sich sechs Verzeichnisse auf der Festplatte:

C:\DOS Das Betriebssystem MS-DOS 6.22 ist auf die notwendigen Funktionen reduziert, so dass es weniger als 1 MB an Plattenplatz benötigt. Für das Steuerprogramm ist eine RAM-Disk notwendig. Da im Entwicklungsrechner Laufwerk D: eine Flashdisk ist, das Programm aber auf beiden Rechnern laufen muss, greift `hagar020.exe` auf Laufwerk E: zu. Da `ramdrive.sys` wiederum keine Auswahl an Laufwerksbuchstaben erlaubt, existieren auf dem Entwicklungsrechner zwei RAM-Disks, wobei nur eines genutzt wird. Ein DOS-Bootmenü erlaubt die Auswahl verschiedener Systemkonfigurationen, wobei standardmäßig das Messprogramm gestartet wird.

Zudem befinden sich die unter GNU-Lizenz frei erhältlichen Kompressionsprogramme `pkzip.exe` und `pkunzip.exe` im DOS-Verzeichnis. Sie werden von `tfpacker.exe` ebenso wie von den beiden Batch-Programmen `packdata.bat` bzw. `movedata.bat` verwendet.

C:\HAGAR In diesem Verzeichnis befindet sich die eigentliche HAGAR-Software, also `hagar020.exe`, `helga.exe` und `tfpacker.exe`. Das Verzeichnis ist in der Systemvariablen `PATH` eingetragen.

C:\CONFIG Die aktuell gültigen Konfigurationsdateien für das Messprogramm liegen in diesem Verzeichnis: `chrom.dat`, `flug.dat`, `hardware.dat`, `calibrat.dat` und `zaehler.log`.

C:\DATA Für die Messdaten stehen im Idealfall ca. 37 MB Speicherplatz auf dem 40 MB fassenden Datenträger zur Verfügung. Für jedes Flugdatum werden fünf Unterverzeichnisse angelegt. Im Verzeichnis `JJJJMMTT.cfg` legt `helga.exe` eine Kopie der Konfigurationsdateien an. `JJJJMMTT.t`, `JJJJMMTT.hk`, `JJJJMMTT.gc` und `JJJJMMTT.ucs` beherbergen die Dateien

für Zeitmessung, Prozessdaten, Chromatographie- bzw. LI-COR-Daten und UCSE-Daten.

Auf Transferflügen (mehrere Flüge ohne Wartungsmöglichkeit während Zwischenstopps) haben zunächst alle Etappen das gleiche Datum. Hier wird für jede Etappe unter `c:\data\` ein Unterverzeichnis der Form `JJJJMMTT.00x` an, wobei `x` die Nummer der Etappe darstellt. Erst darunter werden dann die fünf eben beschriebenen Datenverzeichnisse angelegt.

`C:\TOOLS\` Auf einige essentielle Werkzeuge kann nicht verzichtet werden. `hexedit.exe` kann beliebige Dateien hexadezimal editieren. Dies ermöglicht die Integrität der HAGAR-Daten zu testen bzw. bei sehr fragwürdigen Abstürzen während des Fluges den letzten Systemzustand von HAGAR aus der Datei `zaehler.log` zu bestimmen. `ped.exe` ist ein kompakter Texteditor, der vor allem zur Änderung der `autoexec.bat` vor den Flügen eingesetzt werden kann. `term90.exe` ist ein Terminalprogramm, das vor allem zur Konfiguration der an COM2 angeschlossenen Valco-Ventile dient. Zudem kann aber auch die Übertragung der UCSE-Daten überprüft werden. Wurde im Bootmenü nicht der Messmodus gewählt, so ist auch dieses Verzeichnis in der PATH-Variablen eingetragen.

`C:\NETZ\` Die Netzwerkanbindung ist mit einem zur Netzwerkkarte passenden Packet-Treiber realisiert. Das Programm `nupop.exe` liefert dann den eigentlichen TCP/IP-Socket. Das Programm beinhaltet zudem alle wichtigen Dienste wie `ping`, `telnet`, `FTP`; sogar ein Email-Client ist enthalten. Im Allgemeinen ist der benutzte FTP-Server (z. B. das Kampagnennotebook) voreingestellt.

Die Netzwerkfunktionen können über das Batch-Programm `netz.bat` gestartet bzw. beendet werden. Dazu muss es mit den Parametern `on` bzw. `off` aufgerufen werden. Es ist zu beachten, dass ein mehrmaliges Starten, mehrere Instanzen bestimmter Treiber aufruft. Um Ressourcen zu sparen und Konflikte zu vermeiden müssen sie dann nach und nach wieder aus dem Speicher entfernt werden bzw. muss der Rechner neu gestartet werden.

Die Fernsteuerung des Rechners über Carbon Copy 6.0 benutzt das Novell-Protokoll IPX/SPX. Auch hier existiert mit `cclan.bat` eine Batch-Datei, die einen Start bzw. ein Beenden der für die Fernsteuerung notwendigen Treiber ermöglicht.

F.2 Verzeichnisstruktur für die Programmierung (Entwicklungsrechner)

Soweit es das Messprogramm und die Netzwerkanbindung betrifft, ist der Entwicklungsrechner identisch zum PC im HAGAR konfiguriert. Lediglich die Konfiguration von Carbon Copy unterscheidet sich, da der Flugrechner („host“) mit dem Entwicklungsrechner („remote“) ferngesteuert wird. Zusätzlich ist vor allem MS Windows for Workgroups 3.11 installiert, um auch unter Windows am Netzwerk teilnehmen zu können. Mit Microcal Origin steht auch ein Datenauswertungsprogramm zur Verfügung. Als Arbeitserleichterung unter DOS ist ausserdem der Norton Commander (C:\NC\) installiert. Im Verzeichnis C:\BC31\ residiert die verwendete C-Entwicklungsumgebung (Borland C/C++ 3.1). Im folgenden werden die wichtigsten, nicht durch kommerzielle Software standardisierten Verzeichnisse erläutert.

C:\TOOLS\BAT\ Um die Arbeit unter DOS zu rationalisieren wurden eine Reihe einfacher Batch-Dateien geschrieben. Aus diesem Grunde ist dieses Verzeichnis auch in der PATH-Variablen aufgenommen. Durch die Verwendung des Real-Time-Kernel muss das HAGAR-Steuerprogramm auch für Testzwecke außerhalb der Borland-Entwicklungsumgebung gestartet werden. Ein einfacher Neustart der Entwicklungsumgebung mit anschließendem Öffnen des Steuerprogramm-Projektes kann über eine lange Kommandozeilenanweisung oder eine kurze Batch-Datei erledigt werden (z. B. bc020.bat anstatt bc c:\program\proj\hagar020.prj) für das Steuerprogramm hagar020.exe). Analog aufgebaute Dateien existieren für die übrigen Programme.

C:\PROGRAM\ Aller für HAGAR entwickelter Code ist in diesem Verzeichnis gespeichert. Es existieren Unterverzeichnisse für den Quellcode (... \CODE\), die Header-Dateien, (... \HEADER\), und die Projekt-Dateien der Entwicklungsumgebung (... \PROJ\). Die an die Bedürfnisse des Projektes angepassten Treiber für ADC2 und ADC4 befinden sich in ... \ADCDRIVE\. Für die letzte Version der ADC3-Karte wurden neue, sehr kompakte Treiber entwickelt, die in einem eigenen Unterverzeichnis gespeichert wurden (... \ADC3_DRV\). Eine zukünftige Aufgabe wäre, die Treiber für ADC2 ebenfalls auf dieses kompaktere Konzept umzustellen, um die Programmierung kompakter, übersichtlicher und schneller zu gestalten. Die ADC4-Karten werden mittelfristig durch eine Neuentwicklung ersetzt werden.

Historisch bedingt existieren noch zwei Verzeichnisse, die für die Programmierung von Bedeutung sind. Unter C:\KARTEN\ sind die ursprünglich von Exxact gelieferten Treiberdateien als Sicherheitskopie abgelegt. Sie werden –

zumindest an dieser Stelle – nicht mehr benutzt. Das Verzeichnis `C:\PROJ\` ist eine Kopie des Entwicklungsverzeichnis für die GhOST-Software, wie es von Vicheith Tan vom FZJ benutzt wurde. Darunter sind auch die Real-Time-Kernel-Dateien gespeichert.

F.3 Das Steuerprogramm *hagar020.exe*



Tastatursteuerung

In Abbildung F.1 sind die Tastaturbefehle zum Steuerprogramm als Abbild einer PC-Tastatur dargestellt. Hierzu sind noch einige Erläuterungen aufgelistet.

- Die Tasten 1 bis 8 dienen zum Schalten der digitalen Ausgänge DOUT0 bis DOUT7 (Zahlen) bzw. DOUT8 bis DOUT15 (Sonderzeichen, **UMSCHLALT**-Taste gedrückt). Die Steuerungslogik ist dabei als Flip-Flop ausgelegt, d.h. durch einen Tastendruck geht der digitale Ausgang in die jeweils andere Position über.
- Die Spannungen der analogen Ausgänge AOUT0 bis AOUT7 werden über die Tasten Q bis I erhöht und entsprechend über A bis K verringert. Dabei verändert ein einfacher Tastendruck die Ausgangsspannung um 0,1 V und bei gedrückter **UMSCHALT**-Taste um 0,01 V. Bei gedrückter **STRG**-Taste wird der analoge Ausgang auf sein Minimum (0 V) bzw. sein Maximum (5 V) gesetzt.
- Die Schaltung der beiden GSVs ist ebenfalls als Flip-Flop ausgelegt.
- Obwohl das als SSV eingesetzte Mehrpositionsventil nur 4 Positionen hat, können zwei weitere Sonderpositionen in der Software angefahren

F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8	F9	F10	F11	F12
Screen #1	Screen #2	Screen #3	Reset y-Achse	Max ↑	Max ↓	Min ↑	Min ↓	Manuelle Steuerung	Standby Modus	Ende Heizer an	Ende

1 /	2 / "	3 / §	4 / \$	5 / %	6 / &	7 / /	8 / (9	0	ß
DOU0 DOU8	DOU1 DOU9	DOU2 DOU10	DOU3 DOU11	DOU4 DOU12	DOU5 DOU13	DOU6 DOU14	DOU7 DOU15	-	-	-

q / Q	w / W	e / E	r / R	t / T	z / Z	u / U	i / I	o	p	ü	+
AOUT0 ↑	AOUT1 ↑	AOUT2 ↑	AOUT3 ↑	AOUT4 ↑	AOUT5 ↑	AOUT6 ↑	AOUT7 ↑	-	-	-	-

a / A	s / S	d / D	f / F	g / G	h / H	j / J	K / K	l	ö	ä	#
AOUT0 ↓	AOUT1 ↓	AOUT2 ↓	AOUT3 ↓	AOUT4 ↓	AOUT5 ↓	AOUT6 ↓	AOUT7 ↓	-	-	-	-

<	y	x	c	v	b	n	m	,	.	-
	GSV1	GSV2	SSV → 1	SSV → 2	SSV → 3	SSV → 4	SSV → 5	SSV → 6	-	-

Abbildung F.1: Tastatursteuerung der HAGAR-Software.

werden. In den Positionen 5 und 6 geht das SSV in eine definierte Position und zusätzlich wird ein digitaler Ausgang gesetzt, um beispielsweise ein Ventil vor der Pumpe zu öffnen. Dies ist im Editor konfigurierbar; für das Steuerprogramm hat das SSV einfach sechs Positionen.

- Es gibt zwei Wege das Programm zu beenden. Mit **F12** wird das Programm beendet, wobei zuvor das SSV in eine definierte Position gefahren wird und alle Ausgänge auf 0 V gesetzt werden. Beendet man das Programm mit **F11**, so bleiben die Heizungen der Öfen und Detektoren an, wodurch ein Abkühlen verhindert wird. Dies ist dazu geeignet Änderungen im Editor vorzunehmen (z.B. bei der Optimierung der Chromatographie). Das Gerät darf jedoch in diesem Modus nicht (!) unbeaufsichtigt gelassen werden, da kein zusätzlicher Überhitzungsschutz mehr aktiv ist.
- Mit den Tasten **F1**, **F2** und **F3** kann zwischen den verschiedenen Benutzbildschirmen gewechselt werden.
- Die Tasten **F5** bis **F8** können zur Auswahl eines beliebigen vertikalen Ausschnitts des aktiven Chromatogrammfensters verwendet werden. Ober- und Untergrenze des Ausschnitts können in Schritten von 0,1 V bzw. 0,01 V (+ **UMSCHALT**-Taste) verändert werden. Die Taste **F4** setzt den Ausschnitt des aktiven Bildschirms wieder auf den Standardwert von 0 bis 1,3 V zurück.

Notwendige Dateien

In diesem Abschnitt werden die notwendigen Quellcode-Dateien (*.c), Header-Dateien (*.h) und sonstige verwendete Treiber aufgelistet. Durch die modulare Programmierweise werden einige Dateien in verschiedenen für HAGAR entwickelten Programmen verwendet. In diesem Falle werden sie nur beim ersten Auftreten erläutert. Grundsätzlich bietet der Quellcode weitere und detailliertere Kommentare.

Tabelle F.1: Für `hagar020.exe` verwendete Quellcode-Dateien. Sofern direkt assoziierte Header-Dateien existieren, werden sie hier aufgeführt.

Datei	Beschreibung
<code>hagar020.c</code>	Hauptprogramm: Funktionen zur Initialisierung und
<code>hagar020.h</code>	zum Beenden des Programmes; Variablendeklarationen, Tasks für CPU-Last und Zeitmessung.

wird fortgesetzt

Fortsetzung Tabelle F.3

Datei	Beschreibung
ctrl020.c ctrl020.h	Zentrale Steuerrouinen für den Ablauf: Chromatographiezyklus, Start-, Standby- und Shutdown-Sequenzen; Überprüfung des Außendruckes; Überwachen von Flaschendruck und GC-Temperaturen; Datenspeicherung am Zyklusende.
srial020.c srial020.h	Konfiguration der seriellen Schnittstellen COM1 und COM2; Funktionen zur Ansteuerung der Valco-Ventile; Senden von Telemetriedaten (Ballon); Empfang von UCSE-Daten (Geophysica).
manu020.c manu020.h	Task zur manuellen Steuerung von Peripherie und Bildschirm; Initialisieren des Graphikmodus; Definition der verschiedenen Bildschirme (Graphikmodus); Echtzeitdarstellung von Prozessdaten und Chromatogrammen.
adcx020.c adcx020.h	Task, der allein mit den ADC2- und ADC4-Karten kommuniziert: Befehle an die Karten müssen an diesen Task gerichtet werden. Task zur Speicherung der Prozessdaten in der RAM-Disk.
conv020.c conv020.h	Funktionen, die die Prozessdaten, Detektorsignale und UCSE-Daten von reinen INTEGER-Werten in physikalisch sinnvolle Werte übersetzen. Dabei wird auf die in <code>calibrat.cfg</code> gespeicherten Kalibrationsparameter zurückgegriffen.
com020.c com020.h	Funktionen zum Versenden und Empfangen von verschiedenen Datentypen (z. B. <code>FLOAT</code> , <code>INT</code> , <code>LONGINT</code> , etc.) über eine serielle Schnittstelle. Wird vom UCSE-Empfang, sowie dem Telemetriemodul verwendet.
adc3_020.c adc3_020.h	Task zur Initialisierung und Steuerung der ADC3-Karten, sowie zum Auslesen der Daten am Zyklusende. Die Daten zur Echtzeitdarstellung am Bildschirm werden mit einer Funktion aus <code>manu020.c</code> ausgelesen. Die ADC3 ist dafür mit einer Ressource-Semaphore geschützt.
adc3drv.c adc3drv.h	Funktionen zum Initialisieren, Konfigurieren und Auslesen einer ADC3-Karte.
reg.c	Funktionen zum Lesen von Daten aus bzw. Schreiben von Kommandos in die Register einer ADC3-Karte. Diese Funktionen werden von <code>adc3drv.c</code> benötigt.

wird fortgesetzt

<i>Fortsetzung Tabelle F.3</i>	
Datei	Beschreibung
adc4drv.c adc4drv.h	Funktionen zum Initialisieren, Konfigurieren und Auslesen einer ADC4-Karte.
adc2ai.c adc2ai.h	Funktionen zum Initialisieren, Konfigurieren und Auslesen des AIN-Bereichs einer ADC2-Karte.
adc2ao.c adc2ao.h	Ansteuerung der AOUT einer ADC2-Karte.
adc2do.c adc2do.h	Ansteuerung der DOUT einer ADC2-Karte.
adc2sys.c adc2sys.h	Systemfunktionen für ADC2-Karte: Reset, Systemtest, etc.
s1_array.c	Auslesen von Datenarrays aus ADC2- oder ADC4-Karten.
s1_get.c	Lesen von Daten aus ADC2- oder ADC4-Karte, verbunden mit Senden eines Kommandos.
s1_io.c	Basisfunktionen zum Lesen und Schreiben in die Register von ADC2- und ADC4-Karte.
s1_put.c	Senden eines Kommandos bzw. eines Kommandos und Daten an eine ADC2- oder ADC4-Karte.
s1_rw.c	Komplexere Lese- und Schreibfunktionen für ADC2- und ADC4-Karten, die großteils unbenutzt sind.
s1_util.c	Systemwerkzeuge für die ADC2- und ADC4-Karten: Test der Basisadresse, Auslesen der Karten-Information.

Tabelle F.2: Für *hagar020.exe* verwendete Header-Dateien, soweit sie nicht in Tabelle F.1 bereits aufgelistet sind.

Datei	Beschreibung
globl020.h	Deklaration globaler Variablen. Definition von Makros.
strct.h	Definition neuer Datentypen (Strukturen).
fenst.h	Position der Fenster im Textmodus (Startphase und automatischer Messbetrieb).
s1drv202.h	Definition von Konstanten für die Benutzung der ADC2- und ADC4-Karten über Makros. Prototypen aller Funktionen in den <i>s1_*.c</i> -Dateien.
adc2drv.h	Prototypen aller Funktionen in den <i>adc2*.c</i> -Dateien.

wird fortgesetzt

Fortsetzung Tabelle F.2

Datei	Beschreibung
<code>adc2_cta.h</code>	Definition der Kommandos für ADC2-Karten über Makros.
<code>adc4_cta.h</code>	Definition der Kommandos für ADC4-Karten über Makros.
<code>iprocdrv.h</code>	Konstanten für die ADC3-Treiber. Prototypen der Funktionen in <code>reg.c</code> .
<code>iproccata.h</code>	Definition der Kommandos für ADC3-Karten über Makros.
<code>rtkernel.h</code>	Basisfunktionen des Real-Time-Kernel (insbesondere Taskmanagement, Inter-Task-Kommunikation, etc).
<code>itimer.h</code>	Funktionen zur interruptgesteuerten Zeitmessung.
<code>rtkeybrd.h</code>	Funktionen zum Auslesen der Tastatur über einen interruptgesteuerten Tastaturhandler.
<code>rttextio.h</code>	Verwaltung von Bildschirmfenstern im Textmodus.
<code>cpumoni.h</code>	Funktionen zum Messen der CPU-Auslastung.
<code>rtcom.h</code>	Funktionen zur einfachen, interruptgesteuerten Kommunikation über serielle Schnittstellen.
<code>killkey.h</code>	Ermöglicht es, gewisse Tastatureingaben zu sperren (z. B. STRG + ALT + ENTF).

Tabelle F.3: Für `hagar020.exe` verwendete Bibliotheken und Treiber.

Datei	Beschreibung
<code>rtkstl.lib</code>	Bibliotheken des Real-Time-Kernel für den richtigen
<code>rktl.lib</code>	Compiler (Borland) und das gewählte Speichermodell.
<code>egavga.obj</code>	universeller VGA Graphiktreiber.
<code>graphics.lib</code>	Bibliothek mit Graphikfunktionen für C/C++.

F.4 Der Konfigurationseditor `helga.exe`

Bedienung

Das Konzept der HAGAR-Steuersoftware sah vor, dass Hardware und Flugablauf verändert werden können, ohne die Notwendigkeit einer Rekompilierung zu schaffen. Es wurde bereits darauf hingewiesen, dass Konfigurationsdateien im ASCII-Format aus mehreren Gründen Nachteile aufweisen. Daher werden zur Konfiguration fünf binäre Konfigurationsdateien benutzt, deren

Aufgaben in Tabelle F.4 aufgelistet ist.

Der Konfigurationseditor *helga.exe* dient dazu diese Dateien zu bearbeiten. Beim Programmstart, werden sie aus `C:\CONFIG\` eingelesen. Beim Beenden des Editors werden Sie dort wieder abgespeichert, zudem wird eine Kopie in dem Datenpfad abgelegt, der dem eingestellten Flugdatum entspricht.

Das Programm ist menügesteuert, wobei ein Untermenü bzw. ein zu editierender Punkt über den farblich unterlegten Buchstaben bzw. die Zahl am Anfang der entsprechenden Zeile angesprochen wird. Eine Bestätigung mit der **EINGABETASTE** ist nicht notwendig. Das Programm unterscheidet hier nicht nach Groß- und Kleinschreibung. Mit **ESC** kann das übergeordnete Menü wieder erreicht werden, lediglich das Programmende muss mit **B** eingeleitet werden.



Die meisten Punkte sind – zumindest nach Lektüre von Kapitel 3 – weitgehend selbst erklärend und werden daher hier nicht im Detail behandelt. Der Editor versucht – soweit dies prinzipiell möglich ist – falsche Eingaben zu verhindern. Dies gilt insbesondere für Eingaben, die die Systemstabilität von HAGAR gefährden könnten. Es soll nicht verschwiegen werden, dass diese Testroutine in seltenen Fällen in eine Endlosschleife verfällt. Unter diesen Umständen bleibt nur noch ein Neustart des Rechners. Die bis dahin gemachten Änderungen gehen dabei verloren.

Es sei darauf hingewiesen, dass die Routinen, die numerische Werte oder Strings aus der Tastatur einlesen, noch sehr einfach programmiert sind. Dies bedeutet insbesondere, dass im Allgemeinen weder die Benutzung der **BACKSPACE**- noch der **Cursor**-Tasten zum gewünschten Ergebnis führt. Bei einer Fehleingabe muss der Punkt erneut begonnen werden. Mit `get_val.c` existiert ein Projekt, das diese Situation verbessern soll und in `sven020.exe` bereits eingesetzt wird. Ein Einsatz im Konfigurationseditor könnte hier mittelfristig den Bedienungskomfort deutlich erhöhen. Dies ist Teil des Arbeits-

pakets, das für die Anpassung der HAGAR-Software für den im Umbau befindlichen GhOST II geplant ist.

Tabelle F.4: Aufgaben der von `helga.exe` für `hagar020.exe` erzeugten Konfigurationsdateien.

Datei	Beschreibung
<code>hardware.cfg</code>	Namen aller Hardwarekomponenten (Sensoren, Ventile, Regler, etc.); Stellungen des SSV; überwachte Sensoren; Nummern der Kontrolllampen; etc.
<code>flug.cfg</code>	Flugdatum, Zeitlicher Ablauf der SSV-Stellungen (Flugplan).
<code>chrom.cfg</code>	Chromatographiezyklus, Start-, Standby- und Shutdown-Sequenz; Informationen über Stellung des SSV bei Programmende; Grenzen für Ein- und Ausschalten der Pumpe während des Fluges.
<code>calibrat.cfg</code>	Kalibrationsfunktionen für die AIN und AOUT.
<code>zaehler.log</code>	Chromatogramm- und Flugetappenzähler; Speicherung des Systemzustandes und des Status der ADCx-Karten über Statusbits.

Notwendige Dateien

Neben den in Tabelle F.5 aufgelisteten Dateien werden zum Erstellen von `helga.exe` auch Quellcode- und Header-Dateien verwendet, die bereits in Abschnitt F.3 vorgestellt wurden.

Tabelle F.5: Für `helga.exe` notwendige Quellcode- und Header-Dateien.

Datei	Beschreibung
<code>helga.c</code>	Beinhaltet das gesamte Programm, Schreib- und Leseroutinen, Tastatureingabe, etc.
<code>helga.h</code>	
<code>blue020.c</code>	Bildschirmdarstellung des Programmes. Die Datei enthält im wesentlichen eine Funktion, die die verschiedenen Menüs darstellt.
<code>blue020.h</code>	
<code>xlogo.c</code>	Einfache HAGAR-Animation :-).



SVEN GLÜCKSPILZ

F.5 Datenaufbereitung: `sven020.exe`

Funktionsweise

Das HAGAR-Steuerprogramm speichert pro Programmzyklusnummer `xxx` vier Dateien – jeweils eines für Zeitmessung (`timexxx.dat`), Prozessdaten (`hskpxxx.dat`), Detektorsignale (`chromxxx.dat`) und UCSE-Daten (`ucsexxx.dat`). `sven020.exe` hat nun die Aufgabe, die vielen binären Dateien (bis zu 1200 pro Flug) zu wenigen Dateien im ASCII-Format zusammenzuführen. Dazu müssen die Rohdaten der Messkarten mit den in `calibrat.cfg` gespeicherten Kalibrationen in physikalisch sinnvolle Werte übersetzt werden. Das Programm erzeugt dabei drei ASCII-Dateien für einen Flug: Chromatographiedaten (`JJJJMMTT.itx`), CO₂-Daten (`JJJJMMTT.co2`), Prozess- und UCSE-Daten (`JJJJMMTT.eng`). Die Chromatographiedaten sind dabei bereits ins „Igor Text Format“ gewandelt, das auf die Einleseroutine von NOAH-Chrom optimiert ist.

`sven020.exe` kann auf zwei Arten gestartet werden. Beim Aufruf von der Kommandozeile werden Flugdatum, Quell- und Zielverzeichnis abgefragt. Für die Rechner auf denen die Auswertungen durchgeführt werden, wurde die Konvention getroffen, alle relevanten Dateien – also auch die Rohdatenverzeichnisse `JJJJMMTT.*` – in einem Verzeichnis der Form `JJMMTT (!)` abzulegen. Unter MS Windows kann nun `sven020.exe` mit einem solchen Verzeichnis per „Drag and Drop“ gestartet werden. Das Programm liest das Flugdatum aus dem Verzeichnisnamen; Quell und Zielordner sind nun identisch. `sven020.exe` verhält sich dabei wie die gesamte HAGAR-Software Jahr 2000 kompatibel. Erst in ca. 30 Jahren werden – bedingt durch den verwendeten Compiler – Schwierigkeiten auftreten :-).

Notwendige Dateien

`sven020.exe` ist im Grunde vollständig in `sven020.c` bzw. `sven020.h` enthalten. Zusätzlich benutzt es lediglich die Konvertierungsroutinen aus Abschnitt F.3 und das bereits erwähnte Projekt `get_val.h`, das das Einlesen von Variablen aus der Tastatur komfortabler macht.

F.6 Datenkomprimierung

`tfpacker.exe`

Der Speicherplatz von aktuell 40 MB ist nicht ausreichend für mehr als drei aufeinanderfolgende Flüge. Gleichzeitig bieten die Rohdaten trotz ihrer binären Speicherung ein enormes Potential für Datenkomprimierung. Für Transferflüge kann `tfpacker.exe` vor dem eigentlichen Messprogramm in der `autoexec.bat` aufgerufen werden.

Es liest die Konfigurationsdateien ein und bestimmt Flugdatum und die Nummer der neuen Etappe. Steht der Etappenzähler auf null, so bricht das Programm ab. Andernfalls erstellt es eine Kopie der Konfigurationsfiles im Verzeichnisbaum der neuen Etappe und setzt die Chromatographiezähler auf null zurück. Die Daten des vorangegangenen Fluges werden in fünf Dateien komprimiert. Dabei greift `tfpacker.exe` auf das Programm `pkzip.exe` zurück, das in einem Verzeichnis stehen muss, das in der Systemvariablen `PATH` aufgeführt ist. Zum Compilieren werden lediglich `tfpacker.c`, sowie diverse Header-Dateien des Steuerprogrammes benötigt.

`packdata.bat`, `movedata.bat` und `unpack.exe`

Zum Transport der Daten per FTP ist es oftmals zweckmäßig die Rohdaten in Form von wenigen kompakten Dateien vorliegen zu haben. Die Batch-Dateien `packdata.bat` und `movedata.bat` leisten dies, wobei sie ebenfalls auf `pkzip.exe` zurückgreifen. `movedata.bat` löscht zusätzlich die Daten, um Plattenplatz zu sparen. Beide Programme benötigen einen Kommandozeilenparameter der Form `JJJJMMTT`.

Das Programm `unpack.exe` kann auf dem Zielrechner die von `packdata.bat` oder `movedata.bat` komprimierten Daten wieder gemäß allen Konventionen entpacken. Ähnlich wie `sven020.exe` arbeitet es dabei auch per „Drag and Drop“. Auch dieses Programm hat den ZIP-Datenkompressions-Algorithmus nicht integriert, sondern stützt sich auf `pkunzip.exe`, das unter MS Windows 9x am besten unter `c:\windows\command\` residiert.

F.7 Empfang der Avionik-Daten (UCSE)

Die „Unit for Connection with Scientific Equipment“ (UCSE) stellt über eine RS422-Schnittstelle Avionikdaten zur Verfügung. Wahlweise kann auch eine der beiden signalführenden Leitungen gegen Masse benutzt werden. Die Signale sind dann kompatibel zu RS232, sind jedoch gleichzeitig bedeutend störanfälliger.

Die Daten werden dabei in zwei verschiedenen Frames A und B übertragen, wobei Frame A mit $\nu = 1$ Hz und Frame B mit $\nu = 5$ Hz übertragen wird. Die Daten werden zum Teil als Zahlen im ASCII-Format, größtenteils jedoch als 16 bit-Datenwort übertragen. Der Integer-Wert muss dann in einen physikalischen Wert umgerechnet werden. Neben den Daten wird zudem der Status der Sensoren übertragen. Zur Synchronisation des Datenstroms sind Steuerzeichen eingefügt, auf die hier aber nicht näher eingegangen werden soll. Die genauen technischen Details sind in den technischen Spezifikationen erläutert [Sokolov & Lepouchov, 1998].

Tabelle F.6: Daten in dem einmal pro Sekunde übertragenen Frame A des UCSE-Datenstroms.

	übertragene Daten	Format / Einheit
Zeit (GMT)	9 ASCII-Zeichen	hh(.)mm(.)ss,xx
geographische Breite	10 ASCII-Zeichen	N/S xx(°)yy.zzzz'
geographische Länge	11 ASCII-Zeichen	W/O xxx° mm,yyyy'
Geschwindigkeit über Grund	5 ASCII-Zeichen	xxx(,)y km h ⁻¹
Flugrichtung	3 ASCII-Zeichen	xxx(°)
Flughöhe aus GPS	16 bit-Datenwort	m

Tabelle F.7: Daten in dem fünfmal pro Sekunde übertragenen Frame B des UCSE-Datenstroms.

	übertragene Daten	Format / Einheit
Lufttemperatur	16 bit-Datenwort	°C
statischer Luftdruck	16 bit-Datenwort	hPa
Flughöhe aus Luftdruck	16 bit-Datenwort	m
Driftwinkel	16 bit-Datenwort	°
Rollwinkel	16 bit-Datenwort	°
Flugrichtung	16 bit-Datenwort	°
Steigwinkel	16 bit-Datenwort	°
absolute Windgeschwindigkeit	16 bit-Datenwort	ms ⁻¹
Windrichtung	16 bit-Datenwort	°

Anhang G

Elektrisches Schema

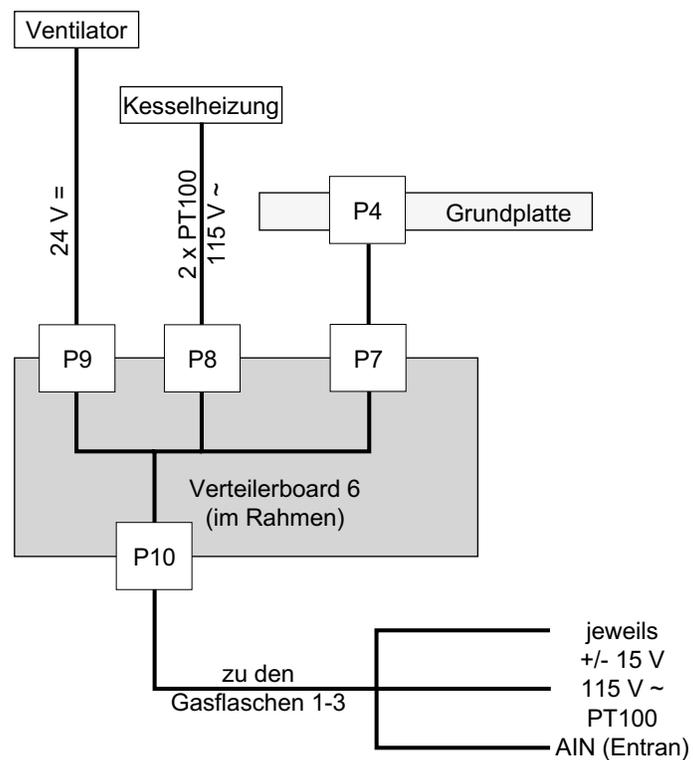


Abbildung G.1: Verkabelungsplan außerhalb des HAGAR-Kessels.

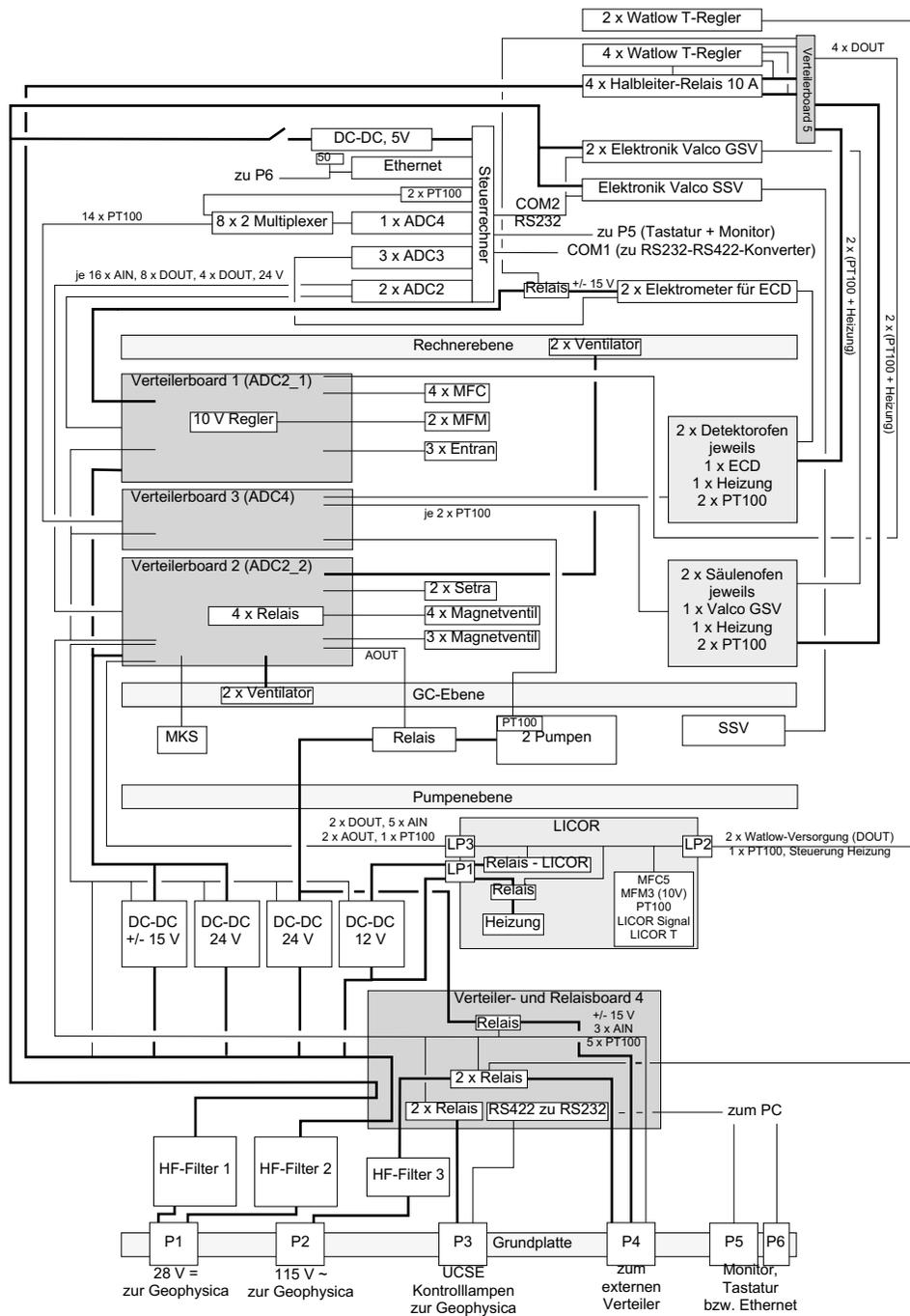


Abbildung G.2: Vereinfachtes Verkabelungs- und Stromlaufschema innerhalb des HAGAR-Kessels. Breite Linien bezeichnen Kabelstränge zur Stromversorgung mit zumeist höheren Strömen. Dünne Linien stehen für Signal- bzw. Steuerleitungen. In einigen Fällen sind in einem Leitungsstrang verschiedene Arten vereint.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Schema der atmosphärischen Zirkulation.	6
1.2	Schema des atmosphärischen Transports.	8
1.3	Alterskonzept nach Kida.	11
1.4	SF ₆ -Trend nach <i>Geller et al.</i> [1997].	13
1.5	CO ₂ -Trend auf dem Mauna Loa nach Scripps.	15
2.1	Funktionsschema des HAGAR.	29
2.2	Schematischer Aufbau des HAGAR.	30
2.3	Temperaturverlauf im HAGAR während eines Messfluges.	31
2.4	Konstruktionszeichnung des HAGAR-Rahmens.	32
2.5	Beispielergbnis des ersten EMV-Tests.	34
2.6	Beispielergbnis des zweiten EMV-Tests.	35
2.7	Typische Chromatogramme für beide Kanäle des HAGAR.	37
2.8	Schematische Darstellung des LI-COR 6251 CO ₂ -Sensors.	39
2.9	Kesseldruck und LI-COR-Temperatur.	41
2.10	Verrohrungsdiagramm des HAGAR.	43
3.1	Blockschaltbild der HAGAR-Steuereinheit.	50
4.1	Einfluss von Fehlern in der Basislinie.	69
4.2	Peak-Diagnose in NOAH-Chrom.	70
4.3	Nicht-Linearität für N ₂ O, F12 und F11.	72
4.4	Ergebnisse mit korrigierter Detektorkennlinie.	75
4.5	Einfluss der Zero- und Spanregler.	80
4.6	Störeinfluss des Ventilators auf die LI-COR-Rohdaten.	84
4.7	Einfluss des LI-COR-Flusses auf das Ausgangssignal.	85
4.8	Korrektur der Druckverbreiterung	88
4.9	LI-COR-Rauschen während APE-THESEO.	91
4.10	LI-COR-Rauschen während APE-GAIA.	92
4.11	\tilde{P} während eines Fluges von APE-THESEO.	93
4.12	\tilde{P} während eines Fluges von APE-GAIA.	94

5.1	Die M-55 „Geophysica“	104
5.2	Schematische Skizze der Geophysica.	105
5.3	Logo von APE-THESEO.	110
5.4	Flugplanung während APE-THESEO.	111
5.5	Flugrouten während APE-THESEO.	114
5.6	Logo von APE-GAIA.	117
5.7	PV-Analyse-Karten des südlichen Polarwirbels.	119
5.8	Zoom in die PV-Karten aus Abbildung 5.7.	120
5.9	Flugrouten während APE-GAIA.	122
5.10	Transferflugrouten von Sevilla nach Ushuaia.	125
6.1	Beispiel I: HAGAR-Daten vom 11.3.1999.	130
6.2	Beispiel II: HAGAR-Daten vom 21.9.1999.	132
7.1	Troposphärische Trends von N ₂ O, F12 und F11.	136
7.2	Korrelation von F12 und N ₂ O in der untersten Stratosphäre.	137
7.3	Korrelation von F12 und F11 in der untersten Stratosphäre.	138
7.4	Vergleich mit ACATS-Daten I.	140
7.5	Vergleich mit ACATS-Daten II.	142
7.6	Vergleich mit den Kryosammlern.	144
7.7	Vergleich der CO ₂ -N ₂ O-Korrelationen von HAGAR und ER-2.	145
8.1	CH ₄ -N ₂ O-Korrelation aus ER-2 Daten.	155
8.2	Mauna Loa-Samoa-Kurve seit 1990.	158
8.3	Jährlicher Anstieg von CO ₂	159
8.4	Korrelation Alter – N ₂ O I.	161
8.5	Korrelation Alter – N ₂ O II.	162
8.6	Vergleich zwischen SF ₆ - und CO ₂ -Alter.	166
9.1	Tropisches Vertikalprofil für CO ₂ während APE-THESEO.	171
9.2	Tropisches Vertikalprofil für CO ₂ während APE-GAIA.	172
9.3	F11-N ₂ O-Korrelation in den Tropen.	174
9.4	H1211-N ₂ O-Korrelation in den Tropen.	175
10.1	Korrelation zwischen N ₂ O und PV.	181
10.2	DFT-PV-Analyse vom 8.10.1999.	183
10.3	Der Filamentflug vom 8.10.1999.	184
10.4	Der zweite Flug vom 23.9.1999.	187
10.5	Der Flug vom 21.9.1999: Wirbelrand.	187
10.6	Der Flug vom 21.9.1999: Mischungsprozesse.	189
C.1	Flugrouten während APE-THESEO.	206

C.2	HAGAR-Daten vom 24.2.1999.	208
C.3	HAGAR-Daten vom 27.2.1999.	209
C.4	HAGAR-Daten vom 4.3.1999.	210
C.5	HAGAR-Daten vom 6.3.1999.	211
C.6	HAGAR-Daten vom 9.3.1999.	212
C.7	HAGAR-Daten vom 11.3.1999.	213
C.8	Gruppenbild des APE-THESEO-Teams.	214
C.9	Flugrouten während APE-GAIA.	216
C.10	HAGAR-Daten vom 19.9.1999.	217
C.11	HAGAR-Daten vom 21.9.1999.	218
C.12	HAGAR-Daten vom 23.9.1999.	219
C.13	HAGAR-Daten vom 2.10.1999.	220
C.14	HAGAR-Daten vom 8.10.1999.	221
C.15	HAGAR-Daten vom 12.10.1999.	222
C.16	Routen der Transferflüge für APE-GAIA.	223
C.17	HAGAR-Daten vom 8.9.1999.	225
C.18	HAGAR-Daten vom 9.9.1999.	226
C.19	HAGAR-Daten vom 13.9.1999.	227
C.20	HAGAR-Daten vom 14.9.1999.	228
C.21	Gruppenbild des APE-GAIA-Teams.	229
D.1	Wirkungsweise von Mittelwert- bzw. Median-Filter.	232
D.2	Wirkungsweise von Mittelwert- bzw. Savitzky-Golay-Filter.	233
E.1	Gauß-Fit durch einen SF ₆ -Peak.	236
F.1	Tastatursteuerung der HAGAR-Software.	244
G.1	Schaltplan des HAGAR (außen).	255
G.2	Schaltplan des HAGAR (innen).	256

Tabellenverzeichnis

2.1	Beschleunigungswerte für den Belastungstest.	33
2.2	Konfiguration des Gaschromatographen.	38
3.1	Funktionsumfang der ADC2-Karte von Exxact.	51
4.1	CO ₂ -Fehler während APE-THESEO und APE-GAIA.	94
5.1	Technische Daten der M55 „Geophysica“.	104
A.1	CO ₂ -Mischungsverhältnisse der Kalibriergase.	199
A.2	Spurengasmischungsverhältnisse der Kalibriergase.	200
B.1	1 σ -Präzision des Gaschromatographen während APE-THESEO.	201
B.2	1 σ -Präzision des Gaschromatographen während APE-GAIA.	202
B.3	1 σ -Präzision der CO ₂ -Messungen während APE-THESEO.	202
B.4	1 σ -Präzision der CO ₂ -Messungen während APE-GAIA.	203
C.1	Erfolgsbilanz während APE-THESEO.	207
C.2	Erfolgsbilanz während der Transferflüge von APE-GAIA.	224
F.1	Für <code>hagar020.exe</code> verwendete Quellcode-Dateien.	245
F.2	Für <code>hagar020.exe</code> verwendete Header-Dateien.	247
F.3	Für <code>hagar020.exe</code> verwendete Bibliotheken und Treiber.	248
F.4	Aufgaben der Konfigurationsdateien.	250
F.5	Für <code>helga.exe</code> notwendige Quellcode- und Header-Dateien.	250
F.6	UCSE Frame A.	253
F.7	UCSE Frame B.	253

Abkürzungsverzeichnis

A-D-Wandler	Analog-Digital-Wandler
ABLE	Airborne Lidar Experiment
ACATS	Airborne Gas Chromatograph for Atmospheric Trace Species
ACH	Airborne Condensation Hygrometer
ADC2-4	PC-Interfacekarten zur Messdatenerfassung der Fa. Exxact
APE-GAIA	Airborne Polar Experiment – Geophysica Aircraft in Antarctica
APE-POLECAT	Airborne Polar Experiment – Polar Stratospheric Clouds, Leewaves, Chemistry, Aerosols and Transport
APE-THESEO	Airborne Platform for Earth Observation – The Contribution to the Third European Stratospheric Experiment on Ozone
ATLAS	Airborne Tunable Diode Laser Absorption Spectrometer
ALIAS	Aircraft Laser Infrared Absorption Spectrometer
BrO	Brommonoxid
CaO	Kalziummonoxid
CF ₄	Tetrafluormethan
CH ₄	Methan
ClO	Chlormonoxid
CMDL	Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory
CNES	Centre National d'Etudes Spatiale
CO ₂	Kohlendioxid
COPAS	Condensation Particle System
CPU	Hauptprozessor eines Computers (engl.: Central Processing Unit)
CVI	Counterflow Virtual Impactor

DC-DC-Wandler	Gleichspannungswandler
DFT	Domain Filling Trajectories
DIAL	Differential Absorption Lidar
DIRAC	Determination In-situ by Rapid Analytical Chromatography
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e. V.
ECD	Elektroneneinfangdetektor (engl.: Electron Capture Detector)
ECMWF	Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage (engl. European Center for Medium Range Weather Forecast)
ECOC	Electro Chemical Ozone Cell
EMV	elektromagnetische Verträglichkeit
EU	Europäische Union
F11	FCKW-11 (CCl_3F)
F113	FCKW-113 ($\text{C}_2\text{Cl}_3\text{F}_3$)
F115	FCKW-115 ($\text{CF}_3\text{CF}_2\text{Cl}$)
F12	FCKW-12 (CCl_2F_2)
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoff
FISH	Fast In-situ Hygrometer
FLASH	Fluorescent Aircraft Stratospheric Hygrometer
FMI	Finnisches Meteorologisches Institut
FOZAN	Fast Ozone Analyzer
FSSP-300	Forward Scattering Spectrometer Probe
FZJ	Forschungszentrum Jülich GmbH
GAIA	Geophysica Aircraft in Antarctica
GASCOD-A	Gas Adsorption Spectrometer Correlating Optical Differences - Airborne
GhOST	Gas Chromatograph for the Observation of Stratospheric Tracers
GC	Gaschromatograph
GCM	Global Circulation Model
GMT	Greenwich Mean Time
GSV	Zwei-Positionsventil im Gaschromatographen (engl.: Gas Sampling Valve)
H1211	Halon 1211 (CBrClF_2)
H_2	molekularer Wasserstoff
H_2O	Wasser
HAGAR	High Altitude Gas Analyser
HNO_3	Salpetersäure

IMGF	Institut für Meteorologie und Geophysik der Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt
IR	Infrarot
ITZ	Innertropische Konvergenzzone
kB	kilobyte (= 2^8 Byte)
LACE	Lightweight Airborne Chromatograph Experiment
LITES	Lightweight In-situ Tracer Experiment in the Stratosphere
MAL	Microjoule Airborne Lidar
MAS	Multi-Wavelength Aerosol Spectrometer
MM5	Penn State-NCAR Mesoscale Model
MB	Megabyte (= 2^{16} Byte)
MDB	Myasishchev Design Bureau
MIPAS-STR	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding - Stratospheric Aircraft
MPV	Modifizierte potenzielle Vorticity
NaOH	Natriumhydroxid
N ₂	molekularer Stickstoff
N ₂ O	Distickstoffoxid, „Lachgas“
NCAR	National Centre for Atmospheric Research
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NOAH	Halocarbon Group bei NOAA
O ₂	molekularer Sauerstoff
O ₃	Ozon
OLEX	Ozone Lidar Experiment
PNRA	Nationales italienisches Programm für Forschung in der Antarktis (ital.: Programma Spaziale Nazionale Ricerca in Antartide)
ppb	Einheit des Mischungsverhältnisses, 1 ppb entspricht 1 Teilchen pro 10^9 Luftmoleküle (engl.: parts per billion, SI: nmol mol^{-1})
ppm	Einheit des Mischungsverhältnisses, 1 ppm entspricht 1 Teilchen pro 10^6 Luftmoleküle (engl.: parts per million, SI: $\mu\text{mol mol}^{-1}$)
ppt	Einheit des Mischungsverhältnisses, 1 ppt entspricht 1 Teilchen pro 10^{12} Luftmoleküle (engl.: parts per trillion, SI: pmol mol^{-1})
PSC	Polare Stratosphärische Wolke (engl.: Polar Stratospheric Cloud)
PSU	Penn State University

PV	Potentielle Vorticity
RDFT	Reverse Domain Filling Trajectory
RTK	Real-Time-Kernel
SAFIRE-A	Spectroscopy of the Atmosphere using Far-Infrared Emission
Scripps	Scripps Institution for Oceanography
SF ₆	Schwefelhexafluorid
SSV	Multipositionsventil im Gaschromatographen (engl.: Stream Selection Valve)
STREAM	Stratosphere Troposphere Experiment by Aircraft Measurements
THESEO	Third European Stratospheric Experiment on Ozone
UCSE	Unit for Connection with Scientific Equipment
UNEP	Umweltprogramm der Vereinten Nationen (engl.: United Nations Environmental Programme)

Literaturverzeichnis

- Adriani, A., F. Cairo, M. Viterbini, S. Mandolini, L. Pulvirenti & G. Di Donfrancesco. Multiwavelength Aerosol Scatterometer for Airborne Experiments to Study the Optical Properties of Stratospheric Aerosol. *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, *16*, 1329–1336, 1999.
- Andrews, A. E. *Stratospheric Age Spectra and Mean Ages Inferred from In Situ Observations of Carbon Dioxide – Implications for Stratospheric Transport*. Ph.D. Thesis, Harvard University, Cambridge, Massachusetts, 1999.
- Andrews, A. E., K. A. Boering, B. C. Daube, S. C. Wofsy, E. J. Hints, E. M. Weinstock & T. P. Bui. Empirical age spectra for the lower tropical stratosphere from in situ observations of CO₂: Implications for stratospheric transport. *J. Geophys. Res.*, *104*, 26 581–26 595, 1999.
- Bauer, R., A. Engel, H. Franken, E. Klein, G. Kulesa, C. Schiller, U. Schmidt, R. Borchers & J. Lee. Monitoring the vertical structure of the Arctic polar vortex over northern Scandinavia during EASOE: Regular N₂O profile observations. *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1211–1214, 1994.
- Baumgardner, D., J. E. Dye, B. W. Gandrud & R. G. Knollenberg. Interpretation of measurements made by the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-300) during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition. *J. Geophys. Res.*, *97*, 8035–8046, 1992.
- Bischof, W., R. Borchers, P. Fabian & B. C. Krueger. Increased concentration and vertical distribution of carbon dioxide in the stratosphere. *Nature*, *316*, 708–710, 1985.
- Boas, M. L. *Mathematical Methods in the Physical Sciences*. John Wiley & Sons, New York, 2. Aufl., 1983.
- Boering, K. A., B. C. Daube Jr., S. C. Wofsy, M. Loewenstein, J. R. Podolske & E. R. Keim. Tracer-tracer relationships and lower stratospheric

- dynamics: CO₂ and N₂O correlations during SPADE. *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 2567–2570, 1994.
- Boering, K. A., S. C. Wofsy, B. C. Daube, H. R. Schneider, M. Loewenstein, J. R. Podolske & T. J. Conway. Stratospheric Mean Ages and Transport Rates from Observations of Carbon Dioxide and Nitrous Oxide. *Science*, *274*, 1340–1343, 1996.
- Borrmann, S., B. Luo & M. Mishchenko. Application of the T-matrix method to the measurement of aspherical (ellipsoidal) particles. *J. Aerosol. Sci.*, 2000. in press.
- Brewer, A. W. Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *75*, 351–363, 1949.
- Bujok, O. *In-situ-Messung langlebiger Spurengase in der untersten Stratosphäre: Entwicklung und Anwendung einer flugzeuggestützten gaschromatographischen Nachweismethode*. Dissertation, Rheinische Friedrich Wilhelms-Universität Bonn, 1998.
- Bujok, O., V. Tan, E. Klein, R. Bauer, A. Engel & U. Schmidt. In-situ measurements of long-lived tracers in the tropopause region: a novel automated airborne gas chromatograph. *Proceedings of the 1996 Quadrennial Ozone Symposium L'Aquila, Italy*, 1996.
- Carli, B., P. Ade, M. Carlotti, U. Cortesi, A. Gignoli, P. Hamilton, M. Lanfranchi, C. Lee, R. MacKenzie & A. Phillips. Minor Constituent Concentrations Measured from a High Altitude Aircraft using High Resolution Far-Infrared Fourier Transform Spectroscopy. *J. Atmos. Chem., JOCH* *1363*, 1–21, 1999a.
- Carli, B., P. A. R. Ade, U. Cortesi, P. Dickinson, M. Epifani, F. C. Gannaway, A. Gignoli, C. Keim, C. Lee, J. Leotin, C. Meny, F. Mencaraglia, A. G. Murray, I. G. Nolt & M. Ridolfi. SAFIRE-A: Spectroscopy of the Atmosphere Using Far-Infrared Emission/Airborne. *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, *16*, 1313–1328, 1999b.
- Conway, T. J., P. P. Tans, L. S. Waterman, K. W. Thoning, D. R. Kitzis, K. A. Masarie & N. Zhang. Evidence for interannual variability of the carbon cycle from the National Oceanic and Atmospheric Administration/Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory Global Air Sampling Network. *J. Geophys. Res.*, *99*, 22831–22855, 1994.

- Cramer, U. *Deskriptive Statistik*, Bd. 1 von *Statistik für Sie*. Hueber-Holzmann Verlag, München, 2. Aufl., 1988.
- Dudhia, J. A non hydrostatic version of the Penn state-NCAR mesoscale model: Validation tests and simulation of Atlantic cyclone and cold front. *Mon. Wea. Rev.*, *121*, 1493–1513, 1993.
- Ehhalt, D. H., L. E. Heidt, R. H. Lueb & E. A. Martell. Concentrations of CH₄, CO, CO₂, H₂, H₂O, and N₂O in the upper stratosphere. *J. Atmos. Sci.*, *32*, 163–169, 1975.
- Elkins, J. W., D. W. Fahey, J. M. Gilligan, G. S. Dutton, T. J. Baring, C. M. Volk, R. E. Dunn, R. C. Myers, S. A. Montzka, P. R. Wamsley, A. H. Hayden, J. H. Butler, T. M. Thompson, T. H. Swanson, E. J. Dlugokencky, P. C. Novelli, D. F. Hurst, J. M. Lobert, S. J. Ciciora, R. J. McLaughlin, T. L. Thompson, R. H. Winkler, P. J. Fraser, L. P. Steele & M. P. Lucarelli. Airborne gas chromatograph for in-situ measurements of long-lived species in the upper troposphere and lower stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 347–350, 1996.
- Engel, A., U. Schmidt & D. McKenna. Stratospheric trends of CFC-12 over the past two decades: Recent observational evidence of declining growth rates. *Geophys. Res. Lett.*, *25*, 3319–3322, 1998.
- Engel, A., U. Schmidt & R. A. Stachnik. Partitioning Between Chlorine Reservoir Species Deduced from Observations in the Arctic Winter Stratosphere. *J. Atmos. Chem.*, *27*, 107–126, 1997.
- Ertel, H. Ein neuer hydrodynamischer Wirbelsatz. *Meteor. Z.*, *59*, 277–281, 1942.
- Exxact. *ADC2: Universelle Interfacekarte zur Messdatenerfassung, Steuerung und Automatisierung*. Exxact, Gesellschaft für elektronische Präzisionsmesstechnik mbH, 1995.
- Exxact. *ADC4: Universelles Prozessinterface zur Verarbeitung von PT100, PT500, PT1000, NI100 und NI1000 Sensorsignalen*. Exxact, Gesellschaft für elektronische Präzisionsmesstechnik mbH, 1996.
- Exxact. *ADC3: Universelles Prozessinterface für die Verarbeitung von Spannungs- und Stromsignalen*. Exxact, Gesellschaft für elektronische Präzisionsmesstechnik mbH, 1998.

- Fairlie, T. D., R. B. Pierce, W. L. Grose, G. Lingenfelter, M. Loewenstein & J. R. Podolske. Lagrangian forecasting during ASHOE/MAESA: Analysis of predictive skill for analyzed and reverse-domain-filled potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, *102*, 13 169–13 182, 1997.
- Farman, J., B. G. Gardiner & J. D. Shankin. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction. *Nature*, *315*, 207–210, 1985.
- Fiocco, G., P. G. Calisse, M. Cacciani, S. Casadio, G. Pace & D. Fua. ABLE: Development of an Airborne Lidar. *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, *16*, 1337–1344, 1999.
- Geller, L. S., J. W. Elkins, J. M. Lobert, A. D. Clarke, J. H. Butler & R. C. Myers. Tropospheric SF_6 : Observed latitudinal distribution and trends, derived from emissions and interhemispheric exchange time. *Geophys. Res. Lett.*, *24*, 675–678, 1997.
- Gellert, W., H. Küstner, M. Hellwich & H. Kästner (Hg.). *Kleine Enzyklopädie Mathematik*. Verlag Harri Deutsch, Leipzig, 2. Aufl., 1982.
- Goldan, P. D., W. C. Kuster, D. L. Albritton & A. L. Schmeltekopf. Stratospheric CCl_3F , CCl_2F_2 und N_2O height profile measurements at several latitudes. *J. Geophys. Res.*, *85*, 413–423, 1980.
- Haase, H.-P. *Untersuchungen zur Verteilung von SF_6 in der Troposphäre und der untersten Stratosphäre*. Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1999.
- Hall, T. M. & R. A. Plumb. Age as a diagnostic of stratospheric transport. *J. Geophys. Res.*, *99*, 1059–1070, 1994.
- Hall, T. M. & M. J. Prather. Simulations of the trend and annual cycle in stratospheric CO_2 . *J. Geophys. Res.*, *98*, 10 573–10 581, 1993.
- Hall, T. M. & D. W. Waugh. Timescales for the stratospheric circulation derived from tracers. *J. Geophys. Res.*, *102*, 8991–9001, 1997.
- Hall, T. M., D. W. Waugh, K. A. Boering & P. R. Alan. Evaluation of transport in stratospheric models. *J. Geophys. Res.*, *104*, 18 815–18 839, 1999.
- Harnisch, J., R. Borchers, P. Fabian & M. Maiss. CF_4 and the age of mesospheric and polar vortex air. *Geophys. Res. Lett.*, *26*, 295–298, 1999.

- Harris, N. R. P., M. Guirlet & G. T. Amanatidis (Hg.). *Stratospheric ozone 1999, Proceedings of the fifth European symposium*, Air pollution research report 73. European Commission, 2000.
- Herman, R. L., D. C. Scott, C. R. Webster, R. D. May, E. J. Moyer, R. J. Salawitch, Y. L. Yung, G. C. Toon, B. Sen, J. J. Margitan, K. H. Rosenlof, H. A. Michelsen & J. W. Elkins. Tropical entrainment time scales inferred from stratospheric N₂O and CH₄ observations. *Geophys. Res. Lett.*, *25*, 2781–2784, 1998.
- Holton, J. R. On the global exchange of mass between the stratosphere and the troposphere. *J. Atmos. Sci.*, *47*, 392–395, 1990.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood & L. Pfister. Stratosphere-Troposphere Exchange. *Reviews of Geophysics*, *33*, 403–439, 1995.
- IPCC. *Intergovernmental Panel on Climate Change: Climate change: the IPCC scientific assesment*. Cambridge University Press, New York, 1990. Edited by J. T. Houghton, G. J. Jenkins, and J. Ephraums.
- IPCC. *Intergovernmental Panel on Climate Change: Climate Change in 1994: Radiative Forcing of Climate Change and an Evaluation of the IPCC IS92 Emission Scenarios*. Cambridge University Press, New York, 1995. Edited by J. T. Houghton, L. G. Meira Filho, J. Bruce, Hoesung Lee, B. A. Callander, E. Haites, N. Harris, and K. Maskell.
- Kernighan, B. W. & D. M. Ritchie. *Programmieren in C mit dem C reference manual*. Carl Hanser Verlag, München, 1. Aufl., 1983.
- Kida, H. General Circulation of Air Parcels and Transport Characteristics Derived from a Hemispheric GCM, Part 2, Very Long-Term Motions of Air Parcels in the Troposphere and Stratosphere. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, *61*, 510–522, 1983.
- Kondo, Y., M. Koike, A. Engel, U. Schmidt, M. Müller, T. Sugita, H. Kanazawa, T. Nakazawa, S. Aoki, H. Irie, N. Toriyama, T. Suzuki & Y. Sasano. NO_y-N₂O correlation observed inside the Arctic vortex in February 1997: Dynamical and chemical effects. *J. Geophys. Res.*, *104*, 8215–8224, 1999.
- Kyrö, E., R. Kivi, T. Turunen, H. Aulamo, V. V. Rudakov, V. V. Khatatov, A. R. MacKenzie, M. P. Chipperfield, A. M. Lee, L. Stefanutti & F. Ravegnani. Ozone measurements during the Airborne Polar Experiment: aircraft instrument validation, isentropic trends, and hemispheric

- fields prior to the 1997 Arctic ozone depletion. *accepted by J. Geophys. Res.*, 2000.
- Lait, L. R. An Alternative Form for Potential Vorticity. *J. Atmos. Sci.*, 51, 1754–1759, 1994.
- Lee, J. M., W. T. Sturges, S. A. Penkett, D. E. Oram, U. Schmidt, A. Engel & R. Bauer. Observed stratospheric profiles and stratospheric lifetimes of HCFC-141b and HCFC-142b. *Geophys. Res. Lett.*, 22, 1369–1372, 1995.
- Leibnitz, E. & H. G. Struppe. *Handbuch der Gaschromatographie*. Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig KG, Leipzig, 3. Aufl., 1984.
- Li, S. & D. W. Waugh. Sensitivity of mean age and long lived tracers to transport parameters in a two-dimensional model. *J. Geophys. Res.*, 104, 30 559–30 569, 1999.
- LI-COR. *LI-6251 CO₂ Analyzer, Instruction Manual*. LI-COR, Inc., Lincoln, Nebraska USA, 1992.
- Loewenstein, M., J. Podolske, K. R. Chan & S. E. Strahan. Nitrous oxide as a dynamical tracer in the 1987 Airborne Antarctic Ozone Experiment. *J. Geophys. Res.*, 94, 11 589–11 598, 1989.
- Maiss, M. & C. A. M. Brenninkmeijer. Atmospheric SF₆: Trends, Sources, and Prospects. *Environ. Sci. Technol.*, 32, 3077–3086, 1998.
- Maiss, M. & C. A. M. Brenninkmeijer. A reversed trend in emissions of SF₆ into the atmosphere? *Proceedings of the 2nd Int. Symp. on Non-CO₂ Greenhouse Gases (NCGG-2)*, 2000.
- Maiss, M., L. P. Steele, R. J. Francey, P. J. Fraser, R. L. Langenfelds, N. B. A. Trivett & I. Levin. Sulfur Hexafluoride – A Powerful New Atmospheric Tracer. *Atm. Environ.*, 30, 1621–1629, 1996.
- Matthey, R., V. Mitev, G. Mileti, V. Makarov, A. Turin, M. Morandi & V. Santacesaria. Miniature aerosol lidar for automated airborne application. *Proc. of SPIE, Laser Radar Technology and Applications V*, 4035, 2000. Edited by Gary Kamerman.
- Müller, M. *Vertikalverteilung von langlebigen Spurengasen in der polaren Stratosphäre*. Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1998.

- Montzka, S. A., J. H. Butler, J. W. Elkins, T. M. Thompson, A. D. Clarke & L. T. Lock. Present and future trends in the atmospheric burden of ozone-depleting halogens. *Nature*, 398, 690–694, 1999.
- Montzka, S. A., J. H. Butler, R. C. Myers, T. M. Thompson, T. H. Swanson, A. D. Clarke, L. T. Lock & J. W. Elkins. Decline in the Tropospheric Abundance of Halogen from Halocarbons: Implications for Stratospheric Ozone Depletion. *Science*, 272, 1318–1322, 1996.
- Moore, F. L., J. W. Elkins, E. A. Ray, R. E. Dunn, G. S. Dutton, C. M. Volk & Fahey. First in-situ gas chromatographic balloon measurements of the trace gases in the middle stratosphere. *EOS Trans. AGU*, 78, 1997. Fall Meeting Suppl.
- Moore, F. L., J. W. Elkins, E. A. Ray, G. S. Dutton, D. W. Fahey, R. J. McLaughlin & T. L. Thompson. First in situ Gas Chromatograph on an Balloon Platform Yielding Tracer Measurements With Improved Spatial Resolution. 2000. To be submitted to *J. Geophys. Res.*
- Morris, R. A., T. M. Miller, A. A. Viggiano, J. F. Paulson, S. Solomon & G. Reid. Effects of electron and ion reactions on atmospheric lifetimes of fully fluorinated compounds. *J. Geophys. Res.*, 100, 1287–1294, 1995.
- Mote, P. W., T. J. Dunkerton, M. E. McIntyre, E. A. Ray, P. H. Haynes & J. M. Russell III. Vertical velocity, vertical diffusion, and dilution by midlatitude air in the tropical lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 103, 8651–8666, 1998.
- Mote, P. W., K. H. Rosenlof, M. E. McIntyre, E. S. Carr, J. C. Gille, J. R. Holtton, J. S. Kinnnersley, H. C. Pumphrey, J. M. Russel III & J. W. Waters. An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor. *J. Geophys. Res.*, 101, 3989–4006, 1996.
- Nakazawa, T., K. Miyashita, S. Aoki & T. Masayuki. Temporal and spatial variations of upper tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide. *Tellus*, 43B, 106–117, 1991.
- Neu, J. L. & R. A. Plumb. Age of air in a "leaky pipe" model of stratospheric air. *J. Geophys. Res.*, 104, 19 243–19 255, 1999.
- Noone, K. B., K. J. Noone, J. Heintzenberg, J. Ström & J. A. Ogren. In-situ observations of cirrus cloud microphysical properties using the counterflow virtual impactor. *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, 10, 294–303, 1993.

- Noone, K. J., J. A. Ogren, J. Heintzenberg, R. J. Charlson & D. S. Covert. Design and calibration of a counterflow virtual impactor for sampling of atmospheric fog and cloud droplets. *Aerosol Sci. Tech.*, 8, 235–244, 1988.
- Nopper, R. *Charakterisierung eines In-situ Gaschromatographen zur Messung langlebiger Spurengase in der Stratosphäre*. Diplomarbeit, Gerhard Mercator-Universität - Gesamthochschule Duisburg, 1997.
- On Time Informatik GmbH. *RTKernel 4.0 für C/C++*, keine Jahresangabe.
- Peter, T. Microphysics and Chemistry of Polar Stratospheric Clouds. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 48, 785–822, 1997.
- Petricoli, A., G. Giovanelli, U. Bonafe, D. Bortoli, I. Kostadinov & F. Ravagnani. An Airborne UV and Visible Spectrometer for DOAS and Radiometric Measurements. *Proc. SPIE, Optical Spectroscopic Techniques and Instrumentation for Atmospheric and Space Research III*, 3756, 544–554, 1999.
- Phillips, M. P., R. E. Sievers, P. D. Goldan, W. C. Kuster & F. C. Fehsenfeld. Enhancement of Electron Capture Detector Sensitivity to Nonelectron Attaching Compounds by Addition of Nitrous Oxide to the Carrier Gas. *Anal. Chem.*, 51, 1819–1825, 1979.
- Piesch, C., T. Gulde, C. Sartorius, F. Friedel-Vallon, M. Seefeldner, M. Wölfel, C. E. Blom & H. Fischer. Design of a MIPAS Instrument for high-altitude aircraft. *Proceedings of the Second International Airborne Remote Sensing Conference and Exhibition, San Francisco, II*, 199–208, 1996.
- Plumb, I. C., P. F. Vohralik & K. R. Ryan. Normalization of correlations for atmospheric species with chemical loss. *J. Geophys. Res.*, 104, 11 723–11 732, 1999.
- Plumb, R. A. A "tropical pipe" model of stratospheric transport. *J. Geophys. Res.*, 101, 3957–3972, 1996.
- Plumb, R. A. & M. K. W. Ko. Interrelations between Mixing Ratios of Long-Lived Stratospheric Constituents. *J. Geophys. Res.*, 97, 10 145–10 156, 1992.
- Plumb, R. A., D. W. Waugh & M. P. Chipperfield. The effect of mixing on tracer relationships in the polar vortices. *J. Geophys. Res.*, 105, 10 047–10 062, 2000.

- Podolske, J. R. & M. Loewenstein. Airborne tuneable diode laser spectrometer for trace gas measurements in the lower stratosphere. *Appl. Optics*, *32*, 5324–5333, 1993.
- Pollock, W. H., L. E. Heidt, R. A. Lueb, J. F. Vedder, M. J. Mills & S. Solomon. On the Age of Stratospheric Air and Ozone Depletion Potentials in Polar Regions. *J. Geophys. Res.*, *97*, 12993–12999, 1992.
- Prather, M. J. & A. H. Jaffe. Global Impact of the Antarctic ozone hole: Chemical Propagation. *J. Geophys. Res.*, *95*, 3473–3492, 1990.
- Ravishankara, A. R., S. Solomon, A. A. Turnipseed & R. F. Warren. Atmospheric lifetimes of long-lived halogenated species. *Science*, *259*, 194–199, 1993.
- Ray, E. A., F. L. Moore, J. W. Elkins, G. S. Dutton, D. W. Fahey, H. Vömel, S. J. Oltmans & K. H. Rosenlof. Transport into the Northern Hemisphere lowermost stratosphere revealed by in situ tracer measurements. *J. Geophys. Res.*, *104*, 26 565–26 580, 1999.
- Reddmann, T., R. Ruhnke & W. Kouker. 3-D Model simulations of SF₆ with mesospheric chemistry. *submitted to J. Geophys. Res.*, 2000.
- Rex, M., R. J. Salawitch, G. C. Toon, B. Sen, J. J. Margitan, G. B. Osterman, J.-F. Blavier, R. S. Gao, S. Donnelly, E. Keim, J. Neuman, D. W. Fahey, C. R. Webster, D. C. Scott, R. I. Herman, R. D. May, E. J. Moyer, M. R. Gunson, F. W. Irion, A. Y. Chang, C. P. Rinsland & T. P. Bui. Subsidence, mixing, and denitrification of Arctic polar vortex air measured during POLARIS. *J. Geophys. Res.*, *104*, 26 611–26 623, 1999.
- Riediger, O., U. Schmidt, M. Strunk & C. M. Volk. HAGAR – A new in-situ instrument for stratospheric balloons and high altitude aircraft. In *Harris et al.* [2000].
- Robinson, A., J. McIntyre, N. R. P. Harris, J. A. Pyle, P. G. Simmonds & F. Danis. A lightweight balloon-borne gas chromatograph for in situ measurements of atmospheric halocarbons. *Rev. Sci. Instrum.*, *in press*, 2000.
- Roedel, W. *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 1. Aufl., 1992.
- Romashkin, P. A., D. F. Hurst, J. W. Elkins, G. S. Dutton & P. R. Wamsley. Effect of the tropospheric trend on the stratospheric tracer-tracer correlations: Methyl chloroform. *J. Geophys. Res.*, *104*, 26 643–26 652, 1999.

- Schmeltekopf, A. L., D. L. Albritton, P. J. Crutzen, P. D. Goldan, W. J. Harrop, W. R. Henderson, J. R. McAfee, M. McFarland, H. I. Schiff & T. L. Thompson. Stratospheric nitrous oxide altitude profiles at various latitudes. *J. Atmos. Sci.*, *34*, 729–736, 1977.
- Schmidt, U., R. Bauer & A. Engel. The variation of available chlorine, Cl_y , in the Arctic polar vortex during EASOE. *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1215–1218, 1994.
- Schmidt, U., R. Bauer, A. Khedim, E. Klein, G. Kulesa & C. Schiller. Profile observations of long-lived trace gases in the Arctic vortex. *Geophys. Res. Lett.*, *18*, 767–770, 1991.
- Schmidt, U. & A. Khedim. In Situ Measurements of Carbon Dioxide in the Winter Arctic Vortex and at Midlatitudes: An Indicator of the 'Age' of Stratospheric Air. *Geophys. Res. Lett.*, *18*, 763–766, 1991.
- Schmidt, U., G. Kulesa, E. Klein, E.-P. Röth, P. Fabian & R. Borchers. Intercomparison of balloon borne cryogenic whole air samplers during MAP/GLOBUS 1983 campaign. *Planet. Space Sci.*, *35*, 647–656, 1987.
- Schoeberl, M. R. & P. A. Newman. A multiple-level trajectory analysis of vortex filaments. *J. Geophys. Res.*, *100*, 25 801–25 815, 1995.
- Seinfeld, J. H. & S. N. Pandis. *Atmospheric Chemistry and Physics – From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 1. Aufl., 1998.
- Sokolov, L. & B. Lepouchov. *Protocol of interaction between Unit for Connection with Scientific Equipment (UCSE) and on-board scientific equipment of Geophysica aircraft (second wording)*. Myasishchev Design Bureau (MDB), 1998.
- Solomon, S. Progress towards a quantitative understanding of Antarctic ozone depletion. *Nature*, *347*, 347–354, 1990.
- Solomon, S. Stratospheric Ozone Depletion: A Review of Concepts and History. *Reviews of Geophysics*, *37*, 275–316, 1999.
- Stefanutti, L., A. Adriani, S. Azzolini, S. Borrmann, B. Carli, G. Fiocco, G. Giovanelli, T. Georgiadis & V. Khatatov. The Airborne Polar Experiment (APE). *Life Chem. Rep.*, *13*, 57–62, 1998.

- Stefanutti, L., A. R. MacKenzie, S. Balestri, V. Khattatov, G. Fiocco, E. Ky-rö & T. Peter. Airborne Polar Experiment - Polar Ozone, Leewaves, Chemistry, and Transport (APE-POLECAT): Rationale, road map and summary of measurements. *J. Geophys. Res.*, *104*, 23 941–23 959, 1999a.
- Stefanutti, L., L. Sokolov, S. Balestri, A. R. MacKenzie & V. Khattatov. The M-55 Geophysica as a Platform for the Airborne Polar Experiment. *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, *16*, 1303–1312, 1999b.
- Strahan, S. E., A. R. Douglass, J. E. Nielsen & K. A. Boering. The CO₂ seasonal cycle as a tracer of transport. *J. Geophys. Res.*, *103*, 13 729–13 741, 1998.
- Strahan, S. E., M. Loewenstein & J. R. Podolske. Climatology and small-scale structure of lower stratospheric N₂O based on in situ observations. *J. Geophys. Res.*, *104*, 2195–2208, 1999.
- Strunk, M. *An Experimental Study on the Mean Age of Stratospheric Air*. Dissertation, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1999.
- Strunk, M., A. Engel, U. Schmidt, T. Wetter, I. Levin & H. Glatzel-Mattheier. CO₂ and SF₆ as stratospheric age tracers: consistency and the effect of mesospheric SF₆-loss. *Geophys. Res. Lett.*, *27*, 341–344, 2000.
- Sturges, W. T., D. E. Oram, S. A. Penkett, P. J. Fraser & A. Engel. Long-lived Halogenated Compounds in the Stratosphere. In *Non-CO₂ Greenhouse Gases: Scientific Understanding, Control and Implementation*, herausgegeben von J. van Ham et. al, S. 239–240. Kluwer Academic Publishers, 2000.
- Sutton, R. T., H. MacLean, R. Swinbank, A. O'Neill & F. W. Taylor. High resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using lagrangian trajectory calculations. *J. Atmos. Sci.*, *51*, 530–540, 1994.
- Toci, G., P. Mazzinghi & M. Vannini. A Diode Laser Spectrometer for the In Situ Measurements of the HNO₃ Content of Polar Stratospheric Clouds. *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, *16*, 1295–1302, 1999.
- Tuck, A. F., D. Baumgardner, K. R. Chan, J. E. Dye, J. W. Elkins, S. J. Hovde, K. K. Kelly, M. Loewenstein, J. J. Margitan, R. D. May, J. R. Podolske, M. H. Proffitt, K. H. Rosenlof, W. L. Smith, C. R. Webster & J. C. Wilson. The Brewer-Dobson circulation in the light of high altitude in situ aircraft observations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *123*, 1–69, 1997.

- Volk, C. M. *Stratospheric transport and tracer lifetimes from airborne in-situ observations*. Ph.D. Thesis, University of Colorado, Boulder, USA, 1996.
- Volk, C. M., J. W. Elkins, D. W. Fahey, G. S. Dutton, J. M. Gilligan, M. Loewenstein, J. R. Podolske, K. R. Chan & M. R. Gunson. Evaluation of source gas lifetimes from stratospheric observations. *J. Geophys. Res.*, *102*, 25 543–25 564, 1997.
- 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 & K. R. Margitan, J. J. Chan. Quantifying Transport Between the Tropical and Mid-Latitude Lower Stratosphere. *Science*, *272*, 17631–17638, 1996.
- Volk, C. M., O. Riediger, M. Strunk, U. Schmidt, F. Ravagnani, A. Ulanovsky & V. Rudakov. In situ Tracer Measurements in the Tropical Tropopause Region During APE-THESEO. In *Harris et al.* [2000].
- Waugh, D. R., R. A. Plumb, J. W. Elkins, D. W. Fahey, B. K. A., G. S. Dutton, C. M. Volk, E. Keim, R.-S. Gao, B. C. Daube, S. C. Wofsy, M. Loewenstein, J. R. Podolske, K. R. Chan, M. H. Proffitt, K. K. Kelly, P. A. Newman & L. R. Lait. Mixing of polar vortex air into middle latitudes as revealed by tracer-tracer scatterplots. *J. Geophys. Res.*, *102*, 13 119–13 134, 1997.
- Waugh, D. W. & R. A. Plumb. Contour Advection with Surgery: A Technique for investigating Finescale Structure in Tracer Transport. *J. Atmos. Sci.*, *51*, 530–540, 1994.
- Webster, S. R., R. D. May, D. W. Toohey, L. M. Avallone, J. G. Anderson, P. Newman, L. Lait, M. R. Schoeberl, J. W. Elkins & K. R. Chan. Chlorine chemistry on polar stratospheric clouds particles in the winter. *Science*, *261*, 1130–1134, 1993.
- Wetter, T. *Eine Untersuchung zur Charakterisierung der zeitlichen Variabilität der luftchemischen Bedingungen am Taunus-Observatorium: Messungen des CO- und H₂-Mischungsverhältnisses im Winter 1996/97*. Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1998.
- Wetter, T., A. Engel, O. Riediger & U. Schmidt. STREAM: Airborne measurements of the long-lived tracers N₂O, CFC-12 and CFC-11. In *Harris et al.* [2000].

- Wirth, M. *Bestimmung der Verteilung von Aerosol, polaren stratosphärischen Wolken und Ozon in der arktischen Stratosphäre mittels eines flugzeuggetragenen Lidars*. Dissertation, Ludwig Maximilian-Universität München, 1997.
- Wirth, M. & W. Renger. Evidence of large scale ozone depletion within the arctic polar vortex 94/95 based on airborne lidar measurements. *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 813–816, 1996.
- WMO. Atmospheric Ozone: 1985. Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No 16, World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland, 1986.
- WMO. Scientific assessment of ozone depletion: 1994. Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No 37, World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland, 1995.
- WMO. Scientific assessment of ozone depletion: 1998. Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No 44, World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland, 1999.
- Wofsy, S. C., K. A. Boering, B. C. Daube Jr., M. B. McElroy, M. Loewenstein, J. R. Podolske, J. W. Elkins, G. S. Dutton & D. W. Fahey. Vertical transport rates in the stratosphere in 1993 from observations of CO₂, N₂O and CH₄. *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 2571–2574, 1994.
- Yushkov, V., A. Oulanovsky, N. Lechenuk, I. Roudakov, K. Arshinov, F. Tikhonov, L. Stefanutti, F. Ravegnani, U. Bonafé & T. Georgiadis. A Chemiluminescent Analyzer for Stratospheric Measurements of the Ozone Concentration (FOZAN). *J. Atmos. & Ocean. Tech.*, *16*, 1345–1350, 1999.
- Yushkov, V. A. Optical balloon hygrometer for upper troposphere and stratosphere water vapor measurements. *Proc. of SPIE*, *3501*, 439–445, 1998.
- Zöger, M., A. Afchine, N. Eicke, M.-T. Gerhards, E. Klein, D. S. McKenna, U. Mörschel, U. Schmidt, V. Tan, F. Tuitjer, T. Woyke & C. Schiller. Fast in situ stratospheric hygrometers: A new family of balloon-borne and airborne Lyman- α photofragment fluorescence hygrometers. *J. Geophys. Res.*, *104*, 1807–1816, 1999.

zu guter letzt . . .

Drei interessante, lehr-, arbeits- und erlebnisreiche Jahre am Institut für Meteorologie und Geophysik und auf der halben Welt liegen hinter mir. Das HAGAR-Projekt hat mir viel Kopfzerbrechen und noch viel mehr Freude bereitet. Unzählige Menschen waren daran beteiligt und ich bitte schon jetzt um Verzeihung, falls ich jemanden vergessen haben sollte.

Zunächst sei Professor U. Schmidt genannt, der den Mut hatte, einen Tieftemperaturphysiker wie mich einzustellen. Er gab mir die Freiheiten und die Rückendeckung, die sich jeder Doktorand nur wünschen kann. Dank auch an Professor T. Peter, der sich freundlicherweise bereit erklärt hat, diese Arbeit zu begutachten.

Einen erheblichen Anteil an dem Erfolg des HAGAR-Teams hat Michael Volk. Seine Kenntnisse über in-situ Messungen und stratosphärische Dynamik, aber vor allem auch seine stete ansteckende Bereitschaft, das Optimum zu erreichen, brachte das Projekt weiter, als ich es je gedacht hätte. Die Diskussionen mit ihm – insbesondere auch im Rahmen dieser Arbeit waren stets erhellend.

Die Zusammenarbeit mit Martin Strunk erwies sich als das, was man wohl mit perfekte Symbiose bezeichnen würde. Dies war jedoch nicht allein für die Entwicklung von HAGAR ein Gewinn, sondern auch eine menschliche Erfahrung die man jedem Arbeitenden nur wünschen kann. Insbesondere danke ich ihm, dass er neben seiner neuen Arbeit noch Zeit fand, mit mir mein Manuskript zu diskutieren.

Für alle Fragen des alltäglichen und nicht-alltäglichen Wissenschaftler- und Nicht-Wissenschaftlerlebens war Andreas Engel stets eine Anlaufstelle. Für das HAGAR-Projekt war vor allem seine Hilfe bei der Vorbereitung des LITES-Ballonfluges unersetzbar.

Dank geht an die „Meteorologen“ Ulrich Bundke, Hans-Peter Haase, Melanie Müller, Martin Steinbacher und Thomas Wetter. Sie halfen mir in unzähligen fachlichen und anderen Diskussionen über so manche Hochs und Tiefs hinweg. Mit Hans-Peter durfte ich zwei Jahre das Büro teilen und allein die vielen Kilometer, die er auf der Suche nach mir zurücklegte, kann

ich nie wieder zurückgeben. Vor allem aber bei den EMV-Tests und während der Testkampagne in Forlì war er unersetzlich! Melanie und Thomas sei insbesondere dafür gedankt, dass sie mir großzügig ihre Kryosammler- bzw. GhOST-Daten für einen Vergleich zur Verfügung gestellt haben. Es gibt wohl wenige Themen, über die man mit Graeme Handisides keine fruchtbare Diskussion führen könnte; wenn ich das Institut verlasse, werde ich das sehr vermissen.

Ein Extra-Danke geht auch nochmal an Xiaobin, Martin und Graeme, die mit mir gemeinsam das Abenteuer L^AT_EX bestanden haben.

Katja Ivanova und Anja Werner sind die „Neuen“ im HAGAR-Team. Obwohl in den letzten Wochen und Monaten oft wenig Zeit war, sie an die Arbeit heranzuführen, sind sie doch bereits voll „dabei“. Ich wünsche beiden, dass sie etwas weniger Hektik, dafür aber mindestens genauso viel Freude mit diesem Projekt haben, wie ich es hatte.

Frau Stickler-Schmidt danke ich, weil sie für die gesamte Arbeitsgruppe stets mehr war als „nur“ die Sekretärin. Dabei sind nicht allein ihre Talente als Reiseleiterin und Schwedisch-Lehrerin gemeint. Kurz: Wir vermissen Sie!

Die feinmechanische Werkstatt unseres Institutes unter der Leitung von Robert Röder fertigte unzählige Teile für HAGAR. Ohne die tolle Kooperation bei der Planung und in den hektischen Phasen vor den Kampagnen wäre es nicht zu schaffen gewesen. E. Mommertz und J. Bartel von der mechanischen Werkstatt des FZ Jülich konstruierten und bauten die Grundplatten und den Kessel für HAGAR. Obwohl wir dort nur zu Gast waren, zeigten sie volle Unterstützung und technischen Beistand für unser Projekt. Sven Reploeg aus der Werkstatt des Physikalischen Institutes hat mit der Fertigung des Montagerahmens großen Anteil an der erfolgreichen Integration auf der Geophysica.

Vera Fischer aus der Elektronikwerkstatt konzipierte und fertigte eine ganze Reihe von Platinen und Kabeln. Unser Motto „Mehr Platz haben wir aber nicht“ bereitete ihr dabei sicher mehr als einmal Kopfzerbrechen.

Vicheith Tan vom Forschungszentrum Jülich weihte mich in die Grundzüge der Treiberprogrammierung für die ADC-Karten von Exxact ein. Obwohl wir uns immer nur kurz trafen, schaffte er es mir doch, unzählige wichtige und direkt verwertbare Informationen zu geben. Kauko Pienimäki von Vaisala danke ich für Nachhilfe in Fragen der Datenübertragung per Funk und die gute Zusammenarbeit bei der Fehleranalyse nach dem Ballonflug.

Der Ballonstart am 13. Mai 1998 war für die „Ballon-Neulinge“ des HAGAR-Teams sehr aufregend. Die hervorragende Zusammenarbeit mit der Mannschaft der CNES unter der Leitung von Pierre Faucon baute jegliche unnötige Nervosität ab. Insbesondere die Geduld von Pierre Dedieu sei hervorgehoben, der uns stets volle Unterstützung bei den Tests unserer neuen

Telemetrie zukommen ließ.

Der Erfolg von HAGAR an Bord der Geophysica ist in besonderem Maße der Crew des MDB unter der Leitung von Boris Lepouchov zu verdanken. Insbesondere während APE-ETC und APE-THESEO, als HAGAR aufgrund technischer Schwierigkeiten eine ganze Reihe von Ausnahmesituationen hervorrief, zeigte sie ihre große Hilfsbereitschaft. Namentlich sei auch noch Andrei Chevtsov erwähnt, der als Chefmechaniker neben vielen anderen Dingen auch für HAGAR zuständig war und dennoch stets ein wachsames Auge auf unser Instrument hatte.

Alle drei Kampagnen mit der Geophysica waren mit großem Aufwand und viel Einsatz organisiert worden. Insbesondere der unermüdliche Einsatz von Stefano Balestri während APE-ETC und APE-THESEO sei erwähnt. Er nahm sich stets auch für die Lösung der ungewöhnlichsten Probleme Zeit. Für APE-THESEO sei nicht nur der Leitung in persona von Leopoldo Stefanutti und Rob McKenzie gedankt. Ohne die Gabe von Heinz Finkenzeller, Probleme auf dem „kleinen Dienstweg“ zu lösen, wäre vieles sicher schwieriger geworden.

Für die Kampagne APE-GAIA, die unter der Leitung von Bruno Carli stand, wurde dies hervorragend von Ugo Cortesi, Diana Galimberti und Giuseppe DeRossi in Ushuaia und Sevilla geleistet. Aber auch das MIPAS-Team von Kees Blom war immer bereit, uns in vielerlei Art und Weise zu unterstützen. Nicht vollständig erwähnen kann ich die vielen Kollegen, die uns während der einen oder anderen Situation auf Kampagne geholfen hatten oder aber auch einfach nur eine gute Zeit mit uns verbracht haben. Denke ich an die Teilnehmer aus über zehn Nationen, sehe ich, wie einfach Völkerverständnis sein kann.

Gianluca Redalli von der Universität von l'Aquila/Italien stellte die DFT-PV- und DFT-MPV-Daten für APE-GAIA zur Verfügung. Zudem fertigte er stets auch noch die individuellen Wunsch-PV-Karten an, die in Kapitel 5 und 10 zu sehen sind.

Mit Arlyn Andrews konnte ich über die offenen Fragen der Messung und der Interpretation von CO₂-Daten diskutieren. Dabei tat es gut als CO₂-Neuling vom Erfahrungsschatz der Gruppe aus Harvard profitieren zu können. Zudem stellte sie mir noch kurzfristig Daten für eine Vergleich zu Verfügung.

In HAGAR-Labor entstand bei einer Diskussion mit Horst Fischer vom Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz die Idee das Instrument um einen CO₂-Sensor zu erweitern. Durch Finanzierung und praktische Tipps aus seiner Arbeitsgruppe (vor allem von Peter Hoor) konnte dieses Projekt realisiert werden.

Martina Schmidt aus der Arbeitsgruppe von I. Levin am Institut

für Umweltphysik an der Universität Heidelberg bestimmte die CO₂-Mischungsverhältnisse der HAGAR-Arbeitsstandards und gab wertvolle Hinweise zur Pflege der längerfristigen Qualitätssicherung unserer CO₂-Messungen.

Vielleicht gerade weil sie nichts mit dieser Arbeit zu tun hatten, wäre das Gelingen ohne meine Freunde ungleich schwieriger gewesen. Ohne weitere Worte: Christiane, Dörte, Frank, Jens, Jörg, Karin, Karl-Heinz, Markus, Martin, Petra und natürlich Laura.

Es mag vielleicht überraschend klingen, wenn mir am Ende dieser Arbeit die Worte fehlen, um meiner Frau Andrea angemessen zu danken. Doch sie weiß hoffentlich – wie immer – wie ich es meine, deshalb

Allen genannten und noch einer ganzen Reihe nicht genannten Personen
gilt nun dieses

DANKE !

Lebenslauf

Name: Oliver Martin Riediger
Geburtsdatum: 17. November 1969
Geburtsort: Konstanz
Nationalität: deutsch
Familienstand: verheiratet mit Andrea Riediger

Mai 1989 **Heinrich Suso Gymnasium Konstanz**
Abitur

Juli 1989 –
September 1990 **Klinikum der Stadt Mannheim**
Zivildienst in der chirurgischen Notaufnahme

1989 – 1997 **Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg**
Studium der Physik

April 1993 Vordiplom Physik

Februar 1995 –
Februar 1996 **Physikalisches Institut der Universität Heidelberg**
Arbeitsgruppe *Flüssiges Helium*
Diplomarbeit: *Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit von Erdalkalitionen in flüssigem Helium*
Betreuer: Prof. Dr. G. zu Putlitz

April 1996 Abschluss: Diplom-Physiker
Nebenfächer: Physik der Atmosphäre, Volkswirtschaftslehre

Juli 1997 –
August 2000 **Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt**
Institut für Meteorologie und Geophysik
Dissertation: *Entwicklung und Einsatz eines flugzeuggetragenen Instrumentes zur in-situ-Messung langlebiger Spurengase in der Stratosphäre*
Betreuer: Prof. Dr. U. Schmidt

