Die Messung von Wasserdampf in der Tropopausenregion an Bord eines Passagierflugzeugs (Projekt CARIBIC)

Diplomarbeit im Fach Meteorologie

vorgelegt von

Julia Henriette Keller

Juni 2008

Referent:	Prof. Dr. Herbert Fischer
Korreferentin:	Prof. Dr. Sarah Jones

INSTITUT FÜR METEOROLOGIE UND KLIMAFORSCHUNG

UNIVERSITÄT KARLSRUHE(TH) / FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Kurzfassung

Wasserdampf und Wolken spielen unter anderem durch ihre Absorptionseigenschaften im langwelligen Strahlungsbereich eine essentielle Rolle im Klimasystem der Erde. Ein grosser Anteil der Strahlungsabsorption ist dem Wasserdampf in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (UT/LS) zuzuschreiben. Doch die räumliche und zeitliche Verteilung des Wasserdampfs in diesem Atmosphärenbereich ist noch schlecht verstanden.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Messung von Wasserdampf und Wolkenwasser bzw. -eis in der UT/LS an Bord eines Passagierflugzeugs (Airbus A340-600) der Lufthansa (Projekt CARIBIC). Etwa monatlich finden Messflüge in Richtung Asien oder Nord-/Südamerika statt. Die Wasserdampf- und Wolkenmessungen werden mit einem schnellen 2-Kanal-Photoakustik-Laserspektrometer und einem genauen Taupunktspiegel-Hygrometer durchgeführt.

Das bisher verwendete Instrument stellt einen Prototyp dar. Um in Zukunft noch präzisere Messungen zu erhalten, wurde das Instrument im praktischen Teil der Arbeit optimiert. Das Messverhalten des Taupunktspiegel-Hygrometers wurde verbessert, wodurch sich die Reaktionszeit des Instruments bei Feuchteänderungen verringerte. Dies ermöglicht eine genauere Kalibrierung des Laserspektrometers. Das Photoakustik-Laserspektrometer wird in Zukunft durch ein neues, etwa viermal empfindlicheres System ersetzt. Die detaillierte Beschreibung des zugrundeliegenden Messprinzips, die Charakterisierung des neuen Systems sowie die Präsentation erster Testmessungen sind weitere experimentelle Teile dieser Arbeit.

Im wissenschaftlichen Teil wurden die bisher gewonnenen Daten ausgewertet und unter verschiedenen Aspekten interpretiert. Die Betrachtung einzelner Flüge relativ zur Tropopause aus Modelldaten des ECMWF zeigt, dass die Luft in stratosphärischen Intrusionen und Tropopausenfalten sehr trocken ist, teilweise mit Frostpunkt-Temperaturen von unter -75°C. Die jahreszeitliche Verteilung von Wasserdampf in der UT/LS, abgeleitet aus den Daten von März 2006 bis März 2008 zeigt einen deutlichen Jahresgang. Der Transport von Wasserdampf aus der Troposphäre in die Stratosphäre wurde durch eine Auftragung des Mischungsverhältnisses relativ zur Tropopause untersucht.

Basierend auf den Temperaturmessungen des Flugzeugs wurde die relative Feuchte in den durchflogenen Luftmassen, in Abhängigkeit der Temperatur und der Jahreszeit bestimmt und die Verteilung von eisübersättigten Regionen abgeleitet. Daraus ergab sich eine Verteilung von eisübersättigten Regionen. Diese sind für ein besseres Verständnis des Klimasystems und des Strahlungsantriebs von Wasserdampf und Wolken äusserst wichtig. Darüber hinaus beinhaltet die Arbeit Vergleiche des CARIBIC Datensatzes mit Reanalyse-Daten des ECMWF.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Grundlagen **5**

2.1 Die Kopplung zwischen Troposphäre und Stratosphäre 5

2.2 Luftmassenaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre, globale Zirkulation 6

2.3 Luftmassenaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre, Prozesse an der extratropischen Tropopause 8

2.4 Wasser in der UT/LS 10

2.5 Saisonale Variation der Wasserdampfverteilung 11

2.6 Relative Feuchte und Übersättigung in der UT/LS 13

2.6.1 Mögliche Ursachen für die Entstehung von übersättigten Regionen 14

2.6.2 Globale und saisonale Variation von Übersättigungen in der UT/LS 17

3 Projekt CARIBIC **19**

3.1 Allgemeines zum Projekt CARIBIC 19

3.2 Was ist das Besondere an CARIBIC? 20

3.3 Technische Details 21

3.3.1 Einlass-System für Wasser 21

3.3.2 Messinstrument für Wasserdampf und Gesamtwasser 24

3.3.3 Regelung, Messprozess, Datenspeicherung 25

4 Photoakustische Laserspektroskopie **27**

4.1 Der photoakustische Effekt 27

4.1.1 Historisches 27

4.1.2 Physikalischer Hintergrund 27

4.1.3 Anwendung des photoakustischen Effekts in der Spektroskopie 28

4.2 Photoakustik-Hygrometer in CARIBIC 30

4.2.1 Photoakustik-Laserspektrometer WaSul-Hygro 31

4.2.2 Messprozess und Signalverarbeitung 33

4.3 Wellenlängenmodulation, Line-Lock 34

4.4 Das neue WaSul-Hygro Photoakustik-Laserspektrometer 35

4.4.1 Hardwareunterschiede zwischen den beiden Systemen 35

4.4.2 Software des alten und neuen Systems 36
4.4.3 Test des neuen WaSul-Hygro 39

5 Taupunktspiegel-Hygrometer 43
5.1 CARIBIC Taupunktspiegel-Hygrometer 43
5.1.1 Aufbau und Messprinzip 43
5.1.2 Funktionsweise des Regelkreises zur Temperaturregelung des Spiegels . 45
5.2 Labormessungen und Bestimmung geeigneter PID 47

6 Messdaten 51
6.1 Flugrouten 51
6.2 Datenauswertung 51
6.2.1 Umrechnung des PA-Signals 52
6.2.2 Sortieren der Rohdaten 55
6.2.3 Kalibrierung der PA-Messungen 56
6.2.4 Zukünftig anstehende Verbesserungen des Kalibrierungsprozesses 59
6.3 Qualität der Daten 59

7 Auswertung 63
7.1 Beschreibung eines typischen Fluges 63
7.2 Das Auftreten von Wolken 66
7.3 Saisonale Variation der Wasserdampfverteilung 70
7.4 Relative Feuchte 76
7.4.1 Relative Feuchte in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur 76
7.4.2 Vergleich mit ECMWF Reanalyse-Daten 81
7.4.3 Jahreszeitliche Variation der relativen Feuchte 82

8 Zusammenfassung 87

9 Literaturverzeichnis 91

A Abbildungsverzeichnis 95

B Tabellenverzeichnis 97

C Flüge in CARIBIC II 99

1 Einleitung

Ein wolkenbedeckter Himmel, Schnee- und Regenfälle, Nebel, ohne das Wasser gäbe es all diese, unser Wetter prägenden Erscheinungen nicht. Doch neben der direkt ersichtlichen Bedeutung kommt dem Wasser auch eine entscheidende Rolle im Klimasystem der Erde und als Partner für chemische Reaktionen in der Atmosphäre zu.

Die Beteiligung des Wassers an einer Vielzahl von Prozessen wird unter anderem durch sein besonderes Auftreten möglich. Als einziger Stoff kommt es im atmosphärischen System in allen drei Aggregatzuständen, d.h. in fester, flüssiger und gasförmiger Phase vor.

Für die Chemie der Atmosphäre ist er als Vorläufer des Hydroxylradikals von Bedeutung. Zudem ist er an etlichen homogenen und heterogenen chemischen Prozessen beteiligt. Als Transporteur latenter Wärme und durch deren Freisetzung bzw. Bindung bei Phasenübergängen kontrolliert der Wasserdampf den Energiehaushalt der Erde und trägt so zum Antrieb der atmosphärischen Zirkulation bei. Durch seine starke Absorptionseigenschaft im langwelligen Strahlungsbereich ist der Wasserdampf für $\sim$2/3 (62%) des natürlichen Treibhauseffekts[1] verantwortlich (Schönwiese, 1995) . Während er solare Strahlung nahezu ungehindert zur Erde vordringen lässt, wird ein grosser Anteil der terrestrischen Strahlung vom Wasserdampf absorbiert. Steigt die Temperatur, bedingt durch den Klimawandel, in Zukunft weiter an, so nimmt die Verdunstung zu und der Treibhauseffekt wird weiter verstärkt. Es handelt sich damit um eine positive Rückkopplung. Ein grosser Anteil an der Strahlungsabsorption ist dabei dem Wasserdampf in der oberen Troposphäre, d.h. in 8-15 km Höhe zuzuordnen (auch bezeichnet als UTH-„upper tropospheric humidity“). Abschätzungen mittels eines Strahlungsübertragungsmodells zeigen, dass eine 10%-ige Zunahme der UTH (was eine Temperaturerhöhung von etwa 0.7-0.8°C erfordert) den Strahlungsantrieb um bis zu 1.4 $\frac{W}{m^2}$ verstärkt (Gettelman et al., 2006a).

Doch nicht nur der Wasserdampf, sondern auch die daraus entstehenden Wolkenpartikel (Wasser- und Eispartikel) beeinflussen den Strahlungshaushalt der Erde. Zum einen absorbieren und reflektieren sie terrestrische Strahlung, tragen also zum Treibhauseffekt bei. Zum anderen reflektieren sie aber auch die solare Strahlung, d.h sie erhöhen die Albedo der Erde und verringern somit Treibhauseffekt (negative Rückkopplung). Bis heute ist noch nicht genau abschätzbar, welcher der beiden Prozesse in Zukunft überwiegen wird und ob sich das atmosphärische System erwärmt oder abkühlt (Quaas, 2008).

Eine ebenfalls nicht zu vernachlässigende Rolle im Klimasystem spielt das Auftreten von übersättigten Regionen. In ihnen liegt das Mischungsverhältnis zeitweise deutlich oberhalb der Sättigungsgrenze bzgl. Eis, dennoch treten keine sichtbaren Wolken auf. Diese Gebiete sind Quellregionen für die Bildung

[1] der die Erde im Mittel um 33 °C erwärmt.

von Cirruswolken und Entstehungsgebiete von Kondensstreifen. Dadurch beeinflussen sie die Wolkenbedeckung.
Die genannten Beispiele verdeutlichen, dass verlässliche Klimaprognosen ohne eine korrekte Modellierung bzw. Beschreibung des atmosphärischen Wasserdampfgehalts und der Wolken unmöglich sind. Die Voraussetzung für eine Modellierung des komplexen hydrologischen Kreislaufs ist die genaue Kenntnis der Feuchteverteilung und der dazu beitragenden Austauschprozesse, sowie der Gegebenheiten, unter welchen sich Wolken bilden. Doch gerade die Verteilung der wichtigen UTH (inkl. Wolken) ist bis heute quantitativ noch nicht verstanden.
Um in Zukunft verlässliche Prognosen zu erhalten, werden dringend neue Daten über die Feuchteverteilung benötigt, deren Erhebung mit Problemen verbunden ist. Radiosonden sind in diesem Bereich zu ungenau und ihre Abdeckung reicht nicht aus, um ein globales Bild der Feuchteverhältnisse zu erhalten (Gettelman et al., 2006b). Die vertikale und horizontale Auflösung von Satelliten ist in der Regel zu gering, um die Verteilung der UTH genau zu erfassen. Sie enthalten daher nur wenig Information über kleinskalige Variationen und Austauschprozesse (Gierens et al., 1999). Der Einsatz von Flugzeugen kann durch zeitlich und räumlich hochaufgelöste In-situ Messungen neue Erkenntnisse bringen.
Dies wird beispielsweise im Rahmen des europäischen Forschungsprojekts CARIBIC - „Civil Aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container“ erreicht.
Etwa monatlich werden hier auf einem Passagierflugzeug der Lufthansa (Airbus A340-600) rund 100 Spurenstoffe und Aerosolpartikel im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre gemessen.
Die vorliegende Arbeit widmet sich den in CARIBIC durchgeführten Messungen von Wasserdampf und Wolkenwasser. Eine Auswertung der bisher gewonnenen Daten soll neue Erkenntnisse über die Verteilung der UTH, über Austauschprozesse und die Sättigungsverhältnisse in diesem Atmosphärenbereich bringen. Die Optimierung des Messinstruments soll eine Basis für verbesserte Ergebnisse bei zukünftigen Messflügen legen.
Zunächst werden die relevanten Austauschprozesse zwischen Stratosphäre und Troposphäre dargestellt. Dem schliesst sich eine Präsentation der bisherigen Kenntnisse über die Feuchteverteilung im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre an. Nach einer kurzen Vorstellung des Projekts CARIBIC wird das Instrument zur Wassermessung präsentiert, welches zwei Messtechniken verwendet: ein 2-Kanal Photoakustik-Laserspektrometer und ein Taupunktspiegel-Hygrometer.
Diese beiden Komponenten werden im experimentellen Teil der Arbeit detailiert beschrieben. Für das Photoakustik-Laserspektrometer umfasst die Beschreibung, neben den physikalischen Grundlagen und spezifischen Systemeigenschaften, die Charakterisierung eines neuen Mess-Systems, welches das bisher in CARIBIC verwendete ersetzen soll. Im Falle des Taupunktspiegel-Hygrometers wird, nach einer kurzen Beschreibung des Instrumentenaufbaus, der Prozess zur Optimierung des Messverhaltens erläutert.

Das Kernstück der Arbeit bildet die Kalibrierung[2] der bisher erhobenen Daten und die Betrachtung und Diskussion der Messdaten unter mehreren Aspekten: Die Beschreibung eines typischen Fluges, aus dem CARIBIC Datensatz extrahierbare Informationen und die daraus resultierenden Fakten über die Verteilung der UTH und die Sättigungsverhältnisse. Eine Zusammenfassung der gewonnenen Erkenntnisse schliesst die Arbeit ab.

[2] Das Photoakustik-Spektrometer ist kein absolut messendes Instrument und muss anhand des Taupunktspiegel-Hygrometers kalibriert werden.

2 Grundlagen

Aufgrund seiner starken Klimawirksamkeit ist die Verteilung von Wasser in seinen drei Aggregatzuständen (Dampf, Flüssigwasser und Eis) im Bereich der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre (UT/LS- „upper troposphere/lower stratosphere“) von enormer Bedeutung.
Die Wasserverteilung der UT/LS wird bestimmt durch die atmosphärische Zirkulation und durch Austauschprozesse an der Tropopause. Zunächst sollen diese Transportprozesse kurz dargestellt werden, bevor näher auf die Wasserverteilung im Bereich der UT/LS eingegangen wird.

2.1 Die Kopplung zwischen Troposphäre und Stratosphäre

Ein erster Blick auf die Schichteneinteilung der Erdatmosphäre kann den Eindruck erwecken, dass es sich bei den einzelnen Bereichen um völlig verschiedene, durch die jeweiligen Grenzflächen[1] von einander separierte Luftmassen handelt. Die Schichteneinteilung ergab sich aus den unterschiedlichen Charakteren der Luftmassen in verschiedenen Höhen, hinsichtlich Temperatur, Druck und chemischer Zusammensetzung. Dennoch sind die einzelnen Schichten miteinander verknüpft und stehen in ständiger Interaktion.
Besonders zwischen Stratosphäre und Troposphäre herrscht ein global und saisonal variierender, jedoch ständig existierender Luftmassenaustausch, der erheblichen Einfluss auf die dynamische und chemische Zusammensetzung beider Schichten hat.
Das Verständnis der Prozesse, die diesen Austausch antreiben, ist unabdingbar für die Vorhersage von Klimaänderungen (siehe dazu auch Stohl et al., 2003). So lag das bessere Verständnis des Stratosphären-Troposphären-Austausches in den letzten 30 Jahren im Fokus vieler Forschungsprojekte.
Eine detaillierte Zusammenfassung des Kenntnissstandes veröffentlichten Holton et al. (1995). Während sich dieser Rückblick jedoch hauptsächlich mit den globalen Aspekten des Stratosphären-Troposphären-Austauschs beschäftigte, widmet sich eine Studie von Chen (1995) den kleinskaligeren Austauschprozessen speziell in den Extratropen.
Die bisherige Differenzierung zwischen Stratosphäre, Tropopause und Troposphäre stellte sich als eher ungeeignet für die Bestimmung der Austauschprozesse heraus. So schlug Hoskins (1991) eine neue Aufteilung der unteren Atmosphäre basierend auf Flächen konstanter potentieller Vorticity (PV) und potentieller Temperatur (Θ) vor.
Er teilte Troposphäre und Stratosphäre in drei Bereiche ein (siehe Abbildung 2.1):

die „overworld“: Der Atmosphärenbereich, in welchem sich die Isentropen komplett oberhalb der thermisch definierten Tropopause in den Tropen befinden, d.h. oberhalb einer potentiellen Tem-

[1] Tropopause, Stratopause und Mesopause.

peratur von Θ =380 K. Ein Luftmassentransport zwischen den darunter liegenden Schichten und der „overworld“ ist nur durch diabatisches Erwärmen oder Abkühlen möglich.

die „middleworld“: Hier schneiden die Isentropen die thermisch definierte Tropopause. Die “middleworld“ liegt unterhalb von $\Theta \approx 380$ K und oberhalb von $\Theta \approx 300$ K im Winter bzw. $\Theta \approx 320$ K im Sommer. Dieser Begriff umfasst damit sowohl einen Teil der Troposphäre als auch einen Teil der Stratosphäre. Bedingt duch den Isentropenverlauf ist hier ein direkter Austausch zwischen den beiden angrenzenden Atmosphärenschichten möglich. Der stratosphärische Anteil der „middleworld“ trägt den Namen LMS - „lowermost stratosphere“.

die „underworld“: Der verbleibende darunter liegende Bereich, in dem die Isentropen ausschliesslich in der Troposphäre liegen und einen Schnittpunkt mit der Erdoberfläche aufweisen. Auch hier ist ein Austausch mit darüber liegenden Schichten nur nach diabatischer Temperaturänderung möglich.

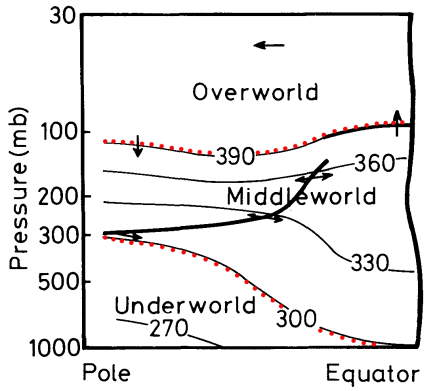

Abb. 2.1: Schemazeichnung der Atmosphäreneinteilung. Die Pfeile deuten Transportwege an (Hoskins, 1991).

Die „overworld“ liegt in Abbildung 2.1 über der oberen gepunkteten Linie.
Zwischen den gepunkteten Linien befindet sich die „middleworld“ .
Die dynamisch definierte Tropopause (dicke schwarze Linie)[2] teilt die „middleworld“ in den troposphärischen Anteil und die LMS.

Im Bereich der Tropen umfasst die „middleworld“ nur troposphärische Luftmassen.
Die „underworld“ befindet sich unterhalb der rot gepunkteten Linie und liegt damit vorwiegend in den Extratropen und der Polarregion.

2.2 Luftmassenaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre, globale Zirkulation

Auf der globalen Skala ist die Brewer-Dopson-Zirkulation für den Austausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre verantwortlich. In einer ersten qualitativen Betrachtung kann sie durch ein Aufsteigen von Luftmassen in die Stratosphäre über dem Äquator und ein Absinken in den mittleren und höheren Breiten der Stratosphäre und Mesosphäre charakterisiert werden, siehe Abbildung 2.2.
Der Antrieb dieser Zirkulation ist dem Brechen von Rossby- und Schwerewellen in der Stratosphäre der mittleren und hohen Breiten zuzuschreiben, in Zusammenspiel mit der Erdrotation.
Durch dieses Wellenbrechen stellt sich ein nichtlokales Ungleichgewicht bzgl. des Massenerhaltungsgesetzes in der extratropischen Stratosphäre ein, welches einen Luftmassenfluss vom Äquator in die Extra-

[2]Holton et al. (1995) wiesen die Tropopause der 2 PVU-Fläche zu, mit welcher sie im Jahresmittel zusammenfällt.

tropen induziert. Um den Kreislauf weiter zu schliessen, müssen die aus der tropischen Stratosphäre abgeführten Luftmassen durch einen entsprechenden Anteil troposphärischer Luft ersetzt werden, was den aufwärts gerichteten Ast dieser globalen Luftmassenzirkulation darstellt. Holton et al. (1995) vergleichen diesen Effekt der extratropischen Stratosphäre auf die tropische Troposphäre mit einer Vakuumpumpe und bezeichnen ihn als „extratropical pumping“. Neuere Studien zeigen, dass sich das Wellenbrechen bis in die Subtropen ausbreiten muss, um den aufsteigenden Ast der Zirkulation zu induzieren (vgl. Stohl et al., 2003; Plumb und Eluszkiewicz, 1999). Im Hinblick auf die Hervorhebung der zugrunde liegenden Prozesse wird diese mechanisch angetriebene Zirkulation oftmals auch als „wave-driven-circulation“ bezeichnet.

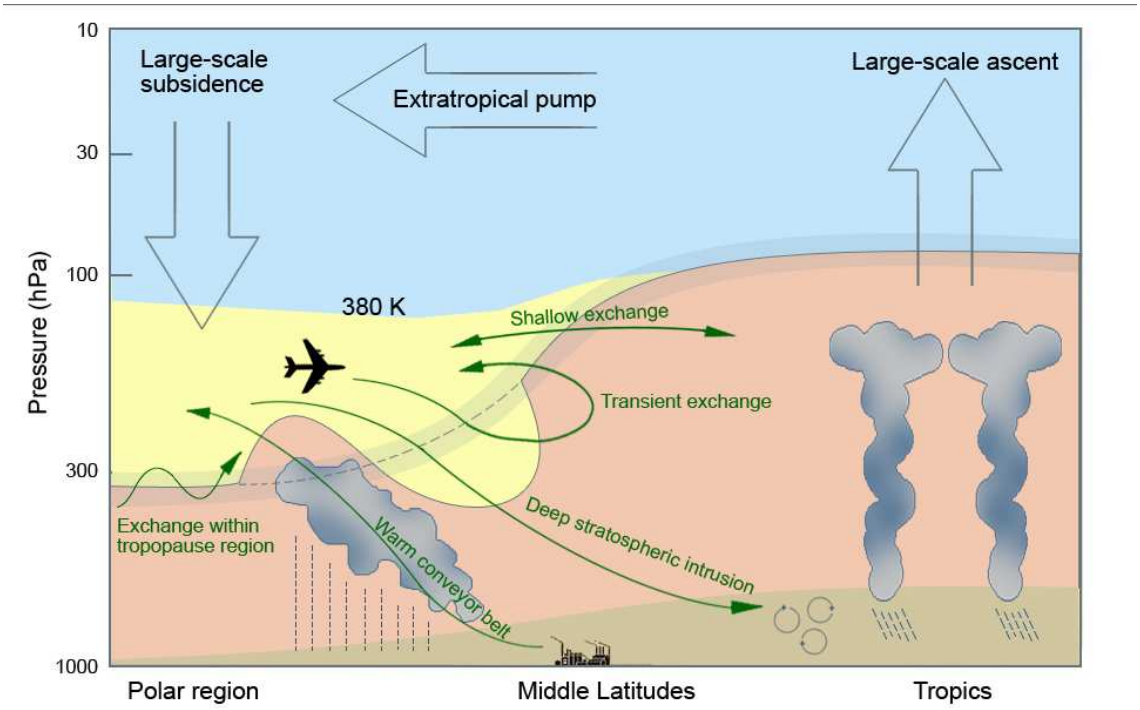

Abb. 2.2: Schematische Darstellung der verschiedenen Prozesse, die zum Stratosphären-Troposphärenaustausch führen. Die durchgezogene schwarze Linie stellt die lokale Tropopause dar, die gestrichelte ihren zeitlich gemittelten Verlauf in den mittleren Breiten. Pfeile stehen für die existierenden Transportpfade (Stohl et al., 2003).

Der Luftmassenaustausch ist nicht über das ganze Jahr konstant, sondern weist einen Jahresgang auf. Appenzeller et al. (1996) leiteten die saisonale Variation der Massenflüsse über die Tropopause aus einer Abschätzung der Masse der drei angeführten Teilbereiche ab. Demzufolge tritt der maximale Transport aus der „overworld“ in die LMS im mittleren Winter der jeweiligen Hemisphäre auf, was gut zu der Beobachtung eines maximalen Wellenbrechens („wavebreaking“) ebenfalls in dieser Jahreszeit passt.
Die eingetragene Luft verbleibt zunächst zum Großteil in der LMS und führt zu deren Massen- bzw. Volumenzunahme bis in den Frühling. Gleichzeitig sinkt die eingemischte stratosphärische Luftmasse

langsam vom Oberrand der LMS nach unten. Erst im Frühling setzt sich dann der abwärtsgerichtete Transport fort, nun von der LMS in die Troposphäre. Dieser zweigliedrige Austausch wird auch weiter unten noch einmal von Bedeutung sein.

Über die jahreszeitliche Variation der Zirkulation lässt sich auch eine beobachtete Abweichung der Stratosphärentemperaturen von der zu erwartenden Strahlungsgleichgewichtstemperatur erklären. So liegen die Temperaturen während des Zirkulationsmaximums im Winter in der absinkenden Luftmasse in den Extratropen deutlich oberhalb des Strahlungsgleichgewichts (bedingt durch die adiabatische Erwärmung während des Absinkens). In den Tropen hingegen zeigt sich das erwartete Gegenteil mit den durch das Aufsteigen bedingten tieferen Temperaturen, verglichen mit der Strahlungsgleichgewichtstemperatur. Gleichzeitig führt die starke Abkühlung in den Tropen auch zu einer Dehydration der eingetragenen Luft (Holton et al., 1995; Chen, 1995).

Die globalskalige Zirkulation ist für den Netto-Massenaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre verantwortlich. An der extratropischen Tropopause gemessene Spurenstoffverteilungen, z.B. von Wasserdampf, lassen sich mit diesen großskaligen Austauschprozessen nicht erklären und deuten auf die Existenz weiterer, kleinskaliger Transportwege hin (Chen, 1995).

2.3 Luftmassenaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre, Prozesse an der extratropischen Tropopause

Etwa zwanzig Jahre sind seit Beginn der intensiven Erforschung des extratropischen Massenaustausches über die Tropopause vergangen. Trotzdem sind viele Prozesse und insbesondere die auftretenden Massen- und Spurengasflüsse quantitativ noch nicht verstanden und die involvierten Prozesse werden weiterhin heftig debattiert.
Das grosse Interesse an mesoskaligen Austauschprozessen in der UT/LS lässt sich mit ihrem Einfluss auf die Spurenstoffverteilung in diesem Atmosphärenbereich begründen. Diese übt einen direkten Einfluss auf chemische und strahlungsbedingte Prozesse in der UT/LS aus. Vor allem der Eintrag antropogen verschmutzter Luftmassen aus der Troposphäre kann das empfindliche Gleichgewicht der stratosphärischen Chemie enorm beeinflussen. Gleichzeitig verändern Komponenten, wie z.B. der Wasserdampf mit ihrer starken Strahlungsabsorption die Temperaturverteilung in der LMS und haben damit einen direkten Effekt auf das Klima der Erde (Hoor et al., 2004).

Die Basis der mesoskaligen Austauschprozesse in der UT/LS bilden die Isentropen, d.h. die Flächen konstanter potentieller Temperatur. Durch ihren Schnitt mit der Tropopause stellen sie einen direkten Verbindungsweg für Austauschprozesse zwischen den angrenzenden Luftmassen her. Allerdings wirkt die Tropopause als Grenzfläche zwischen beiden Atmosphärenschichten dem Austausch entlang von Isentropen als elastische Barriere entgegen, was sich durch starke PV- und Konzentrationsgradienten

an der dynamisch definierten Tropopause[3] verdeutlicht. Es treten zwar Verformungen der Tropopause auf, die auch in den jeweils anderen Atmosphärenbereich reichen können. Zur Vermischung der Luftschichten kommt es aber zunächst nicht. Bestimmte synop- und mesoskalige Prozesse können jedoch Massenflüsse zwischen den beiden Atmosphärenschichten ermöglichen.
Einen ersten Überblick des isentropen Massenaustausches veröffentlichte Chen (1995). Basierend auf Berechnungen mittels eines „semi-Lagrange Transport-Modells“ fand er eine zweigeteilte saisonale Variation des isentropen Massenaustausches, mit der 340 K- Isentrope als Grenzfläche. Neuere Modell- und In-situ-Studien konnten dies bestätigen (Zahn et al., 2004). Zur Untersuchung von Austauschprozessen bedient man sich der Betrachtung von Tracer-Verteilungen. Jede Luftmasse wird durch einen Tracer charakterisiert; durch räumliche und zeitliche Betrachtung der Tracer-Verteilungen ist die Untersuchung der Austausch- und Mischungsprozesse möglich.

Oberhalb der 340 K-Isentrope scheint der Luftmassenaustausch eine starke jahreszeitliche Variation aufzuweisen. Im Winter bilden die PV-Gradienten an der Tropopause eine starke Barriere, die nahezu sämtliche Austauschprozesse verhindert. Dagegen ermöglichen die schwächeren PV-Gradienten im Sommer einen Austausch über die Tropopause. Zu einem solchen Luftmassenaustausch kommt es z.B. im Zusammenhang mit Tropopausenfalten. Hier ragt stratosphärische Luft, zunächst weiterhin durch die dynamische Tropopause separiert, weit in die Troposphäre hinein. Diese Tropopausenfalten sind in der Regel im Bereich des Polar- und des Subtropenjets sowie in Verbindung mit Kaltlufttropfen zu finden.
Ein Großteil der sommerlichen Austauschprozesse oberhalb der 340 K-Isentrope kommt allerdings duch schmale Filamente und Zungen zustande, die sich an asiatischen und mexikanischen Monsunantizyklonen entwickeln. Auf der Ostseite der Antizyklonen erstrecken sich immer schmäler werdende Zungen stratosphärischer Luft weit in die Troposphäre hinein (Chen, 1995). Quasi-adiabatisch verwickeln sich die Filamente dann mit der umgebenden troposphärischen Luftmasse und werden dabei immer schmaler. Nach und nach lösen radiative, konvektive und auch turbulente Prozesse die Filamente auf. So kommt es zur endgültigen Vermischung der beiden Luftmassen (Stohl et al., 2003). Auf der Westseite der Monsunantizyklonen kommt es analog zu oben beschriebenem Prozess zu einem Eintrag troposphärischer Luft in die Stratosphäre (Chen, 1995). Allerdings verbleiben die troposphärischen Luftmassen im untersten Stratosphärenbereich, da keine Prozesse existieren, die ein weiteres Aufsteigen zu höheren Isentropenflächen ermöglichen. Das Maximum der Austauschprozesse im Oberteil der UT/LS ist im Juli und August zu verzeichnen.

Unterhalb der 340 K-Isentrope findet hingegen über das gesamte Jahr ein reger Massenaustausch zwischen Troposphäre und LMS, mit einer Gewichtung des Eintrags troposphärischer Luft in die Stratosphäre statt (Stohl et al., 2003). Die Ursache dieses Austausches ist damit auch in Ereignissen zu suchen, die das gesamte Jahr über stattfinden. So sorgen synop- und mesoskalige Zyklonen und Antizyklonen,

[3] Es wird angenommen, dass die Tropopause in den Extratropen mit der 2-PVU-Fläche zusammenfällt.

ebenso wie diabatische Prozesse und sich vertikal ausbreitende und brechende Wellen, für eine irreversible Vermischung der beiden Luftmassen. Auch „warm-conveyor-belts“ und konvektive, meist lokale Erscheinungen haben einen Anteil an den Transportprozessen.
Durch diesen ständigen Eintrag troposphärischer Luftmassen in die LMS und gleichzeitiges Absinken stratosphärischer Luft in der LMS bildet sich direkt oberhalb der Tropopause eine Mischungsschicht (Zahn et al., 2004). Innerhalb der Mischungsschicht ist eine Quantifizierung der eingetragenen Luftmassen anhand von Tracer-Korrelationen möglich, im Allgemeinen über Auftragung eines troposphärischen Tracers, z.B. Wasserdampf, gegenüber einem stratosphärischen Tracer, z.B. Ozon. Die Existenz der extratropischen Tropopausenmischungsschicht ist inzwischen sowohl durch Modellberechnungen, als auch durch Analysen und In-situ Messungen bestätigt.

2.4 Wasser in der UT/LS

Die eben vorgestellten Transportprozesse sorgen für den Luftmassenaustausch und den Transport von Wasserdampf aus der unteren Troposphäre in die UT/LS. Wieviel die UT/LS davon tatsächlich aufnehmen kann, wird stark von der herrschenden Lufttemperatur bestimmt. Der Clausius-Clapeyron-Gleichung (Gleichung 2.1) folgend, nimmt die Kapazität der Luft, Wasserdampf aufzunehmen, mit sinkender Temperatur nicht-linear ab (siehe auch Abbildung 2.3). Je geringer die Temperatur, desto weniger Feuchte

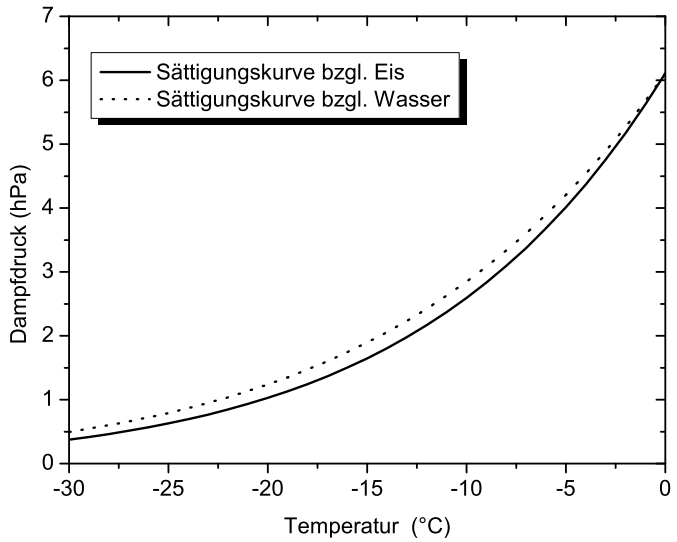

Abb. 2.3: Sättigungsdampfdrücke über Wasser (gestrichelt) und Eis (durchgezogen) bei Temperaturen unter 0°C.

kann die Luftmasse aufnehmen und desto geringer ist das Wasserdampfmischungsverhältnis.

$$\frac{de_s(T)}{dT} = \frac{l_v}{T(v_d - v_w)} \approx \frac{l_v}{T v_d} = \frac{l_v e_s}{R_w T^2} \qquad [2.1]$$

Die Grösse e_s steht dabei für den Sättigungsdampfdruck, T für die Temperatur (in °C). l_v ist die spezifische Verdampfungswärme für Wasser ($2.5 \cdot 10^6 Jkg^{-1}$ für 0°C (Kraus, 2004)), v_d und v_w die spezifischen Volumina im gasförmigen, respektive flüssigen Zustand.
Vertikal betrachtet nimmt der Wasserdampfgehalt der Luft zunächst von der unteren Troposphäre ausgehend kontinuierlich ab und erreicht sein Minimum kurz oberhalb der Tropopause. Im Bereich der tropischen Tropopause treten dabei die niedrigsten Mischungsverhältnisse auf.
Wie bereits in Kapitel 2.2 angedeutet, kommt es im Bereich der tropischen Tropopause zur Dehydration der, über hochreichende Konvektion oder großskaliges Aufsteigen eingetragenen Luftmassen. Im Falle der konvektiven Dehydration steigen die Luftmassen aufgrund ihres Impulses über die Tropopause bis in die untere Stratosphäre auf. Dabei durchlaufen sie den kältesten Bereich der Tropopause und kühlen ab. Es bilden sich Wolkenpartikel, die Luftmasse wird dehydriert. Im Vergleich zu den Verhältnissen in der unteren Stratosphäre ist sie dann kälter und trockener. Allerdings durchdringen konvektive Ereignisse nur selten die Tropopause (Stenke, 2005) und so ist der Beitrag dieses Dehydrationsmechanismus zur beobachteten Trockenheit nicht bekannt. Die Dehydration durch globalskaliges Aufsteigen führen Gettelman et al. (2002) auf einen horizontalen Transport durch die kältesten Regionen der Tropopause zurück, bei welchem die Luftmasse extrem abkühlt und ebenfalls durch Eispartikelbildung dehydriert wird. Die genauen Mechanismen dieser beobachteten Dehydration sind jedoch bis heute noch nicht vollständig verstanden (Stenke, 2005).
In den Extratropen ist der Wasserdampfgehalt im Bereich der UT/LS höher als an der tropischen Tropopause (Hoinka, 1999). Dies beruht auf der höheren Temperatur und den vermehrten synoptischen Austauschprozessen (Chen, 1995; Holton et al., 1995).
Global betrachtet weist die extratropische unterste Stratosphäre der Nordhemisphäre einen höheren Wasserdampfgehalt als die der Südhemisphäre auf. Dies beruht auf den beschriebenen Austauschprozessen in Zusammenhang mit den Monsunzirkulationen (Chen, 1995), die in der Südhemisphäre in dieser Form nicht exisitieren (Stenke, 2005).
Zeitweise treten am Oberrand der extratropischen Troposphäre äusserst geringe Mischungsverhältnisse auf. Diese liegen z.T. unter dem Feuchteniveau, welches bei der Gefriertrocknung an der tropischen Tropopause erreicht wird (Chen, 1995). Damit können sie nicht ausschliesslich durch einen Eintrag dieser dehydrierten Luftmassen erklärt werden. Ihre Entstehung beruht ebenfalls auf den synoptisch bedingten Austauschprozessen, die trockene stratosphärische Luft in die obere Troposphäre einbringen.

2.5 Saisonale Variation der Wasserdampfverteilung

Das effektivste Werkzeug zur Untersuchung von globalen Verteilungen und Variationen sind Satellitendaten. Für genauere Untersuchungen im Bereich der UT/LS reicht ihre Auflösung allerdings nicht aus. Im Falle der häufig eingesetzten Nadir-Sondierung beträgt die typische vertikale Auflösung mehrere Kilometer. So wird die Messung der Wasserdampfverteilung in der Tropopausenregion durch darüber und darunter liegende Schichten verfälscht. Die andere Methode, das sog. „limb-scanning“ bringt zwar

eine höhere vertikale Ausflösung, dafür fallen kleinräumige Fluktuationen in der Horizontalen heraus (Gierens et al., 1999). Dies führte zu mehreren flugzeugbasierten Messkampagnen, wie beispielsweise die von November 2001 bis Juli 2003 über Europa durchgeführte SPURT-Kampagne[4]. In acht, über diesen Zeitraum verteilten Flugphasen, mit insgesamt 36 Flügen á 4 Stunden wurde die Wasserdampf- und Ozonverteilung der UT/LS im europäischen Sektor (30°West bis 30°Ost und 30°N bis 80°N) untersucht. Aus den Messungen ergibt sich ein zeitlich und räumlich hochaufgelöstes Bild der Mischungsverhältnisse zu jeder Jahreszeit (Krebsbach et al., 2006).
Für die Auswertung der SPURT-Resultate wurden die Datensätze anhand ihrer PV den einzelnen Atmosphärenschichten zugeordnet. Vermessene Luftmassen mit PV-Werten von 0-1 PVU entstammen demnach der Troposphäre. Besitzt das Luftpaket eine PV zwischen 1 und 3 PVU so kommt es aus der Troposphäre. PV-Werte oberhalb von 3 PVU sind einem stratosphärischen Luftmassenursprung zuzuschreiben. Das resultierende Bild der saisonalen H_2O-Variation (Abbildung 2.4) im UT/LS-Bereich ist nahezu konsistent zu den, aus Temperaturverteilung und Transportprozessen abgeleiteten Erwartungen. Die mittleren Mischungsverhältnisse (Ordinate) über das gesamte Jahr hinweg (Abszisse) auf den verschiedenen Höhenniveaus (Farbcodierung), sind in Abbildung 2.4 in Form eines sog. Boxplots zu sehen. Innerhalb der Box befinden sich 50% der Daten. Der Punkt in der Box gibt den Mittelwert an, die Balken an den Enden der Box zeigen den minimal bzw. maximal aufgetretenen Wert. Die grauen Kurven stellen jeweils einen polynomen Fit der beiden Quadrile dar. In hellgrau aufgetragen ist die Verteilung in der Troposphäre (für $0 \leq PV \leq 1$). Dunkelgrau repräsentiert die saisonale Variation in der untersten Stratosphäre (für $7 \leq PV \leq 9$). Die Zahlenwerte am oberen Rand stellen die eingegangenen Beobachtungspunkte dar.
In der Troposphäre treten die maximalen Mischungsverhältnisse erwartungsgemäß in dem Sommermonaten auf. Zum Winter hin, nimmt die H_2O-Konzentration in der oberen Troposphäre ab. Ähnlich sieht auch der Verlauf in der LMS aus.
Krebsbach et al. (2006) schreiben die beobachtete saisonale Variation zwei verschiedenen Mechanismen zu. Einerseits führen die kalten Temperaturen an der Wintertropopause zu einer Dehydration der Luftpakete auf deren Weg in die untere Stratosphäre. Zum anderen weist der Eintrag trockener stratosphärischer Luft aus der „overworld“ in die LMS in den Wintermonaten sein Maximum auf. Im Sommer hingegen ist die Transportbarriere zwischen Stratosphäre und Troposphäre abgeschwächt, sodass feuchte Luftmassen aus der Troposphäre in die untere Stratosphäre vordringen können.
Generell deuten die Mischungsverhältnisse von mindestens 20-30 ppmv in der unteren Stratosphäre auf die Existenz des Luftmassenaustausches über die extratropische Tropopause hin. Würde die Luft aus den Tropen kommen, so läge ihr Mischungsverhältnis mit 2-6 ppmv (Hintsa et al., 1994) deutlich darunter (Krebsbach et al., 2006).

Im Rahmen dieser Arbeit soll anhand des CARIBIC-Datensatzes eine saisonale Variation der Mischungs-

[4]SPURT bedeutet:SPURenstofftransport in der Tropopausenregion.,

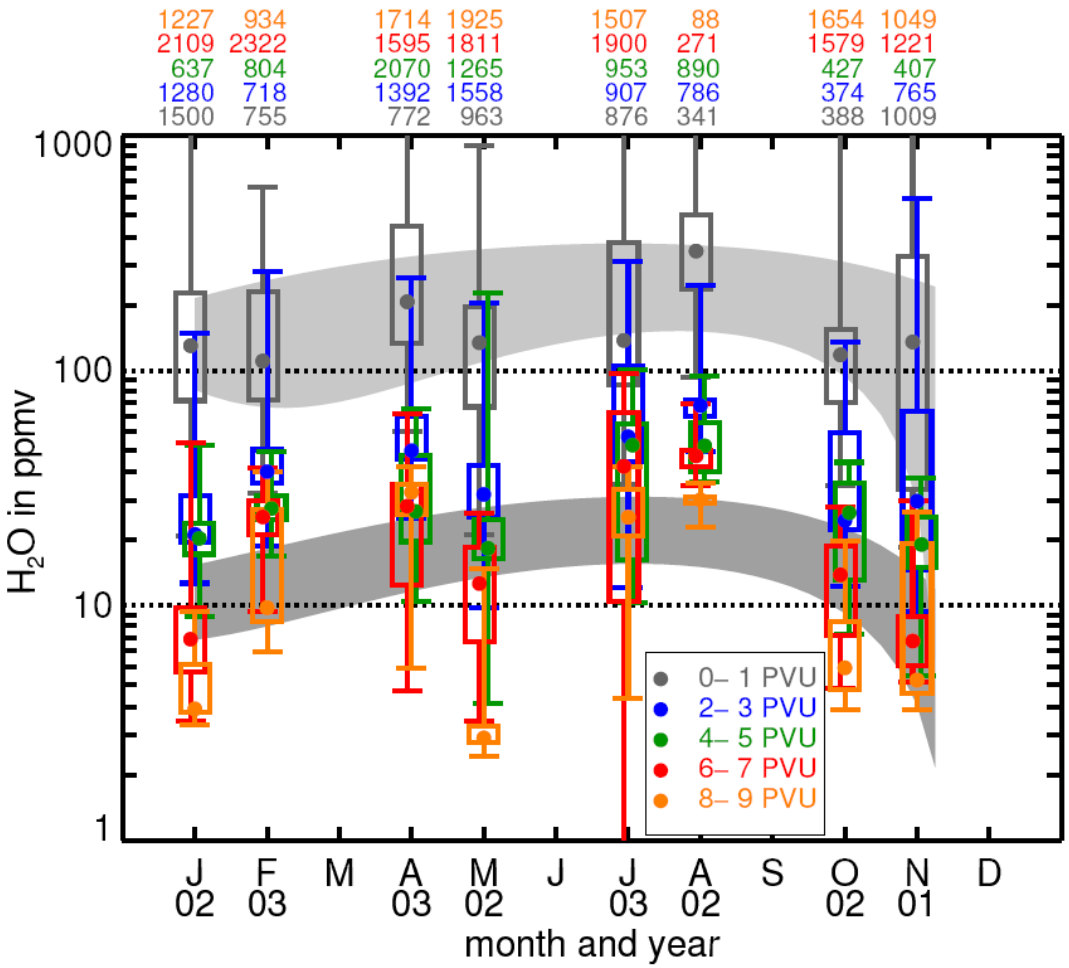

Abb. 2.4: Saisonale Variation von H_2O auf verschiedenen PV-Niveaus (Farbcodierung). Nähere Erläuterung siehe Text (Krebsbach et al., 2006).

verhältnisse in der UT/LS erstellt, und mit der aus SPURT gewonnenen, verglichen werden.

2.6 Relative Feuchte und Übersättigung in der UT/LS

Allein aus der Kenntnis des absoluten Wassergehalts in der UT/LS lassen sich noch keine Rückschlüsse auf eine mögliche Wolkenbildung ziehen.
Hierzu ist es notwendig die relative Feuchte, im Folgenden als RH für „relative humidity“ bezeichnet, näher zu betrachten. Sie ist die Verbindung zwischen dem herrschenden Mischungsverhältnis μ und dem Mischungsverhältnis, bei welchem Sättigung erreicht wird (μ_s).

$$RH = \frac{\mu}{\mu_{sat}} \cdot 100\% \quad = \quad \frac{p_{H_2O}}{p_{sat}(T)} \cdot 100\% = \frac{n_{H_2O}}{n_{sat}(T)} \qquad [2.2]$$

Mit dem Dampfdruck p_{H_2O} und dem Sättigungsdampfdruck p_{sat} bzw. der jeweiligen Partikelanzahl n lässt sie sich in weiteren Formen darstellen. Je niedriger die Temperatur eines Luftpaketes, desto ge-

ringere Feuchten sind notwendig um die Sättigung zu erreichen (entsprechend der Clausius-Clapeyron-Gleichung, Kapitel 2.4).
Bei höheren Temperaturen können sich sofort bei Erreichen der Sättigung Wolkentröpfchen bilden, vorausgesetzt es liegen hygroskopische Kondensationskeime vor.
In der UT/LS kommt es durch die dort vorherrschenden tiefen Temperaturen i. allg. zur Bildung von Eispartikeln, die sich zu Cirruswolken formieren. Die Nukleation von Eispartikeln setzt nicht sofort bei Erreichen einer relativen Feuchte von 100% gegenüber Eis ein, sondern erst wenn eine gewisse Übersättigung bzgl. Eis vorliegt (Nukleationsgrenzwert, siehe auch 2.6.1).

Bereits 1940 (Gettelman et al., 2006b) wurden in der UT/LS Regionen beobachtet, die eine deutliche Übersättigung gegenüber Eis aufweisen, zeitweise von bis zu 100%. Trotz Überschreiten des Nukleationsgrenzwertes bilden sich in diesen Gebieten keine Wolkenpartikel. Neuere Untersuchungen in der UT/LS zeigten, dass diese Regionen häufiger auftreten, als man zunächst vermutete.
Doch obwohl die Existenz dieser übersättigten Gebiete damit schon länger bekannt ist, wurde ihre Bedeutung für die Strahlungsbilanz und deren korrekte Modellierung erst in den letzten 20 Jahren erkannt (Gierens et al., 2000).
So können übersättigte Regionen für den Menschen nicht sichtbare Cirruswolken beinhalten die -wie Wolken generell- über Reflektion einen zusätzlichen Einfluss auf die Strahlungsbilanz der Erde haben.
Desweiteren bilden diese Cirruswolken die Entstehungsregion für Kondensstreifen. Die relative Feuchte in der Region ist dabei zu niedrig um zur Bildung von Wolkenpartikeln zu führen. Wird jedoch durch die Flugzeugantriebe weiterer Wasserdampf in die Region injiziert, so steigt die Übersättigung im Bereich des Abgasstrahls soweit an, dass Eisnukleation einsetzten kann (Gierens et al., 2000). Bedingt durch die generell existierende Übersättigung können sich die einmal gebildeten Eispartikel weiter halten und zu permanenten Kondensstreifen führen. Kondensstreifen stellen für die Strahlungsbilanz der Erde nichts anderes als Cirruswolken dar.

Diese Prozesse verdeutlichen die Notwendigkeit einer korrekten Parametrisierung der übersättigten Regionen in der UT/LS für Modellprojektionen des künftigen Klimas, auch im Hinblick auf antropogen induzierte Veränderungen.

2.6.1 Mögliche Ursachen für die Entstehung von übersättigten Regionen

Es stellt sich die Frage, wie übersättigte Regionen zu Stande kommen. Nach klassischem Verständnis muss für die Bildung von Eispartikeln eine gewisse Übersättigung erreicht werden.
Liegen Nukleationskeime vor, so bildet sich an deren Oberfläche bereits bei geringen Übersättigungen eine Eisschicht aus, die ein weiteres Anwachsen des Partikels durch Anfrieren ermöglicht.
Bei einem Mangel an Kondensationskeimen kommt es bei Erreichen einer bestimmten Übersättigung zur homogenen Nukleation. Gasförmige Verbindungen (z.B. SO_3 und H_2SO_4) lagern sich mit Wasser-

molekülen zu Molekülclustern (Embryonen) zusammen. Ab einem bestimmten Radius (in Abhängigkeit der Übersättigung) werden sie stabil und können zu Wolkenpartikeln anwachsen (Möller, 1998). Diese, als Nukleationsgrenzwert bezeichnete Übersättigung ist direkt abhängig von der Temperatur des Luftpaketes. In Labormessungen fanden Koop et al. (2000) einen Grenzwert von 140-180% für Temperaturen zwischen 240 K und 180 K heraus. Als Schemazeichnung sind in Abbildung 2.5 die Nukleationsgrenzen und die entsprechenden Übersättigungen dargestellt (entnommen aus einem Vortrag von Peter et al. (2008)).

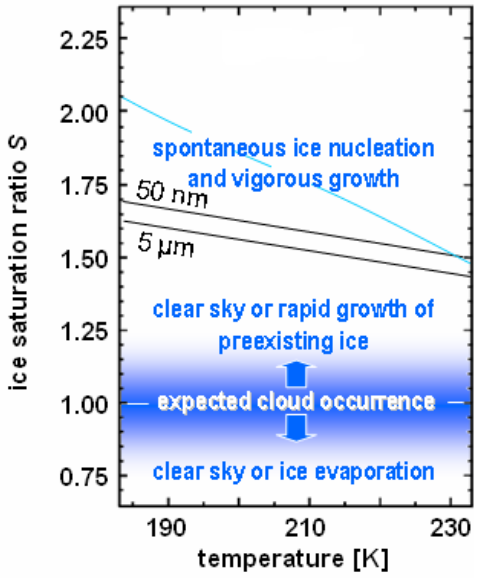

Abb. 2.5: Im Labor bestimmter Verlauf der Nukleationsgrenzwerte in Abhängigkeit der Temperatur. Die beiden schwarzen Linien stellen den Nukleationsgrenzwert für verschieden grosse Molekülcluster dar, die zur homogenen Nukleation führen. Zwischen der Sättigungsgrenze und dem Nukleationsgrenzwert ist entweder ein Anwachsen von existierenden Eispartikeln oder heterogene Nukleation zu erwarten. Oberhalb des Nukleationsgrenzwertes kann es zur spontanen homogenen Nukleation kommen. Die hellblau eingezeichnete Linie repräsentiert den Verlauf der Sättigung bzgl. Wasser.

Sobald erste Eispartikel existieren, wachsen sie durch Anfrieren von Wassermolekülen weiter an, wodurch sich gleichzeitig die Übersättigung abbaut. Nach einer gewissen Zeit sollte sich ein Gleichgewicht zwischen Sublimation und Verdunstung eingestellt haben und die relative Feuchte im Bereich von 100% bezüglich Eis liegen.

Die nachgewiesene Existenz der übersättigten Regionen in der UT/LS deutet darauf hin, dass in dieser die Bildung von Eispartikeln und damit das Erreichen eines Sättigungsgleichgewichts [5] gehemmt ist. Speziell im Falle der Übersättigungen innerhalb von Cirruswolken kommt es zwar zur Nukleation, doch die Parktikel sind nicht in der Lage weiter anzuwachsen und damit die Übersättigung abzubauen. Einen

[5] Erreichen von 100% RH bezüglich Eis bei Gleichgewicht zwischen Sublimation und Verdunstung.

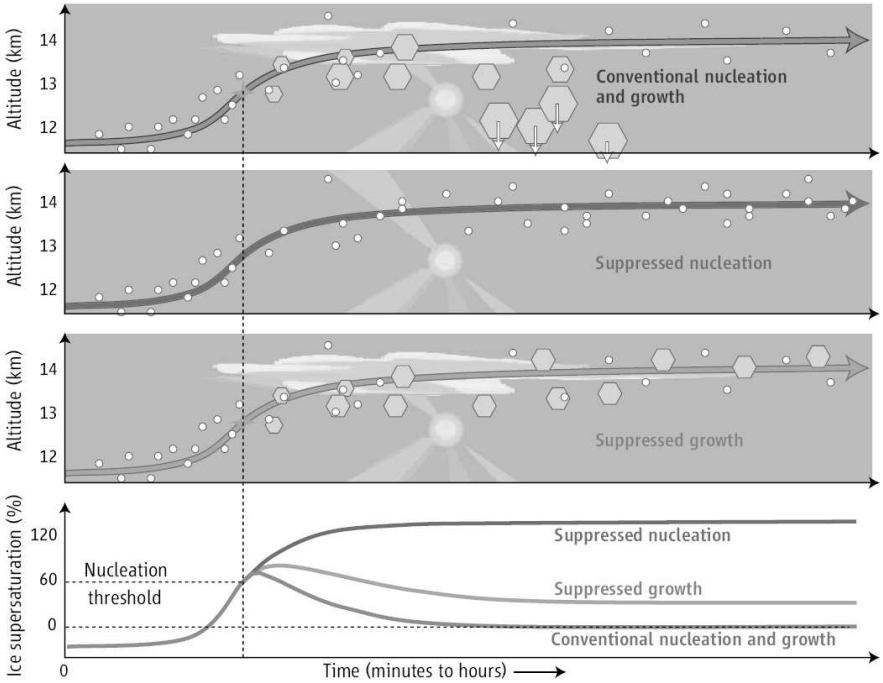

Abb. 2.6: Schemazeichnung für verschiedene Nukleationsprozesse. Die oberen drei Bilder zeigen die verschiedenen Nukleationsprozesse. Im untersten Bild ist die Wirkung dieser Prozesse auf die Eisübersättigung aufgetragen. Das oberste Bild zeigt das konventionelle Verständnis der Eispartikel-Bildung, wonach bei Erreichen eines gewissen Grenzwertes die Nukleation einsetzt, die Partikel im Folgenden anwachsen und so zum Abbau der Übersättigung beitragen. Der Fall der unterdrückten Nukleation ist im zweiten Bild zu sehen. Hier bilden sich keine Eispartikel, die Übersättigung bleibt bestehen. Der dritte Fall der gehemmten Nukleation führt zwar zur Partikelbildung, allerdings ist das Wachstum der Partikel gehemmt, so dass ein gewisses Maß an Übersättigung erhalten bleibt.

schematischen Überblick über die möglichen Arten der Eiswolken-Bildung und das zu Stande kommen der beobachteten Übersättigungen gibt eine Abbildung von Peter et al. (2006) (Abbildung 2.6).

Als mögliche Ursache für diese hohen Feuchtewerte und die gehemmte Nukleation stehen mehrere Prozesse zur Diskussion.

So basiert der Nukleationsgrenzwert von im Mittel 60% auf Messungen an atmosphärentypischen Salz- und Schwefelsäure-Lösungstropfen. Für organische Verbindungen kann er wesentlich höher liegen. Möglicherweise kann an ihnen gar keine Eisnukleation stattfinden (Peter et al., 2006). Eventuell verhindern auch organische Anhaftungen oder ein Überzug aus organischen Stoffen, auf bzw. um wasserreiche Aerosolpartikel deren weiteres Anwachsen (Jensen et al., 2005; Peter et al., 2006).

Peter et al. (2006) nennen noch einen weiteren möglichen Grund für die beobachteten Übersättigungen. Neben den Effekten auf mikrophysikalischer Ebene führen sie die hohen Übersättigungen innerhalb von Wolken auch auf die Auflösung der Flugzeugmessungen zurück. Möglicherweise werden kleinräumige übersättigte, aber wolkenfreie Gebiete innerhalb von Eiswolken nicht aufgelöst, sondern in die Mittelung

mit einbezogen. Bei Temperaturen unter 200 K konnte die Bildung von metastabilen kubischen Eiskristallen anstelle der gewöhnlichen hexagonalen Kristallen beobachtet werden. Labormessungen zeigten, dass Wolken, die kubische Eiskristalle enthalten, einen rund 11% höheren Sattigungsdampfdruck aufweisen als Wolken, die nur hexagonale Kristalle beinhalten (Murray und Bertram, 2007).
Generell ist zu erwähnen, dass bezüglich der Eisübersättigung in der UT/LS noch grosse Unsicherheiten existieren. Sowohl die Prozesse, die zur Ausbildung dieser Regionen führen, als auch die genaue Verteilung der übersättigten Regionen und ihre Variabilität sind bis heute noch nicht vollständig verstanden.
Die Existenz der eisübersättigten Regionen steht allerdings inzwischen ausser Frage. Auch unter Berücksichtigung sämtlicher Messungenauigkeiten, von der z.T. schlechten Auflösung in der UT/LS oder falschen Temperaturmessungen, die direkt das errechnete Sättigungsmischungsverhältnis beeinflussen, ist das Auftreten übersättigter Regionen signifikant.

2.6.2 Globale und saisonale Variation von Übersättigungen in der UT/LS

Aus verschiedenen Untersuchungen zur saisonalen Variation und globalen Verteilung der übersättigten Regionen (z.B. Gettelman et al. (2006b); Gettelman et al. (2006a)) ergaben sich erste Erkenntisse . Während die Subtropen selten Übersättigungen im Bereich der Tropopause aufweisen, liegt die Häufigkeit für ein Auftreten von Übersättigungen in den Extratropen knapp unterhalb der Tropopause mit 10-30% am höchsten. In den Tropen scheint das Auftreten von Übersättigungen an die Konvektionsgebiete gekoppelt zu sein und dem Verlauf der ITCZ zu folgen. Global betrachtet ist diese Verteilung nicht gleichförmig. In der Südhemisphäre treten höhere Übersättigungen auf als in der Nordhemisphäre. Ovarlez et al. (2002) brachten dies mit einer stärkeren Verschmutzung der Nordhemisphäre und einer damit erhöhten Anzahl an Nukleationskernen in Verbindung. Gettelman et al. (2006b) führen die Erscheinung auf die unterschiedliche Temperaturverteilung (siehe z.B. Hoinka, 1999) der beiden Hemisphären zurück.
Unterschiede zeigt auch eine zonale Betrachtung. So ist die Häufigkeit des Auftretens über dem Nordpazifik geringer als über dem Nordatlantik. Dies lässt sich mit der unterschiedlichen Tropopausenhöhe in Verbindung bringen. Über dem Nordpazifik liegt die Tropopause etwas niedriger, so sind die stratosphärischen Einflüsse (trockene Luftmasse) auf dem gleichen Höhenniveau hier grösser. Saisonal betrachtet weist die Region des östlichen Nordpazifiks am seltensten eine Übersättigung auf. Hier dominieren aus dem amerikanischen Kontinent eingetragene trockene Luftmassen. Die höchsten Werte an relativer Feuchte und die häufigsten Übersättigungen nahe der Tropopause treten im Frühjahr und Sommer über dem westlichen Pazifik und dem Atlantik auf. Dies ist der verstärkten Konvektion und dem asiatischen Monsun zuzuschreiben (Gettelman et al., 2006a).

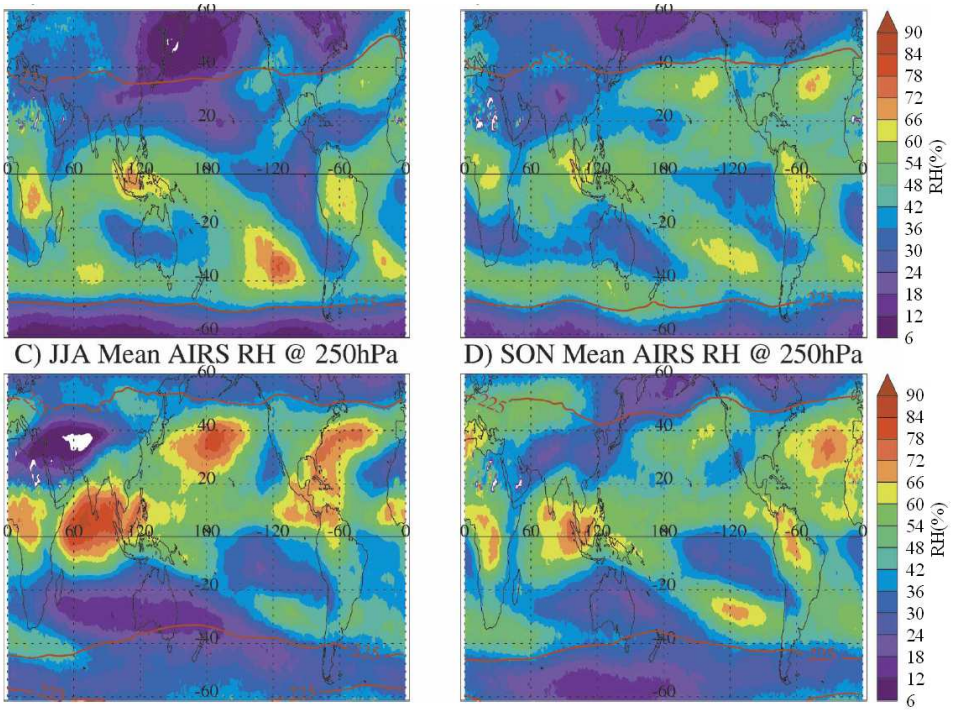

Abb. 2.7: Jahreszeitlich gemittelte Verteilung der relativen Feuchte aus Satellitenmessungen (AIRS) auf 250 hPa für jeweils 3 Monate. Die rote Linie zeigt den Verlauf der Tropopause in AIRS (Gettelman et al., 2006a).

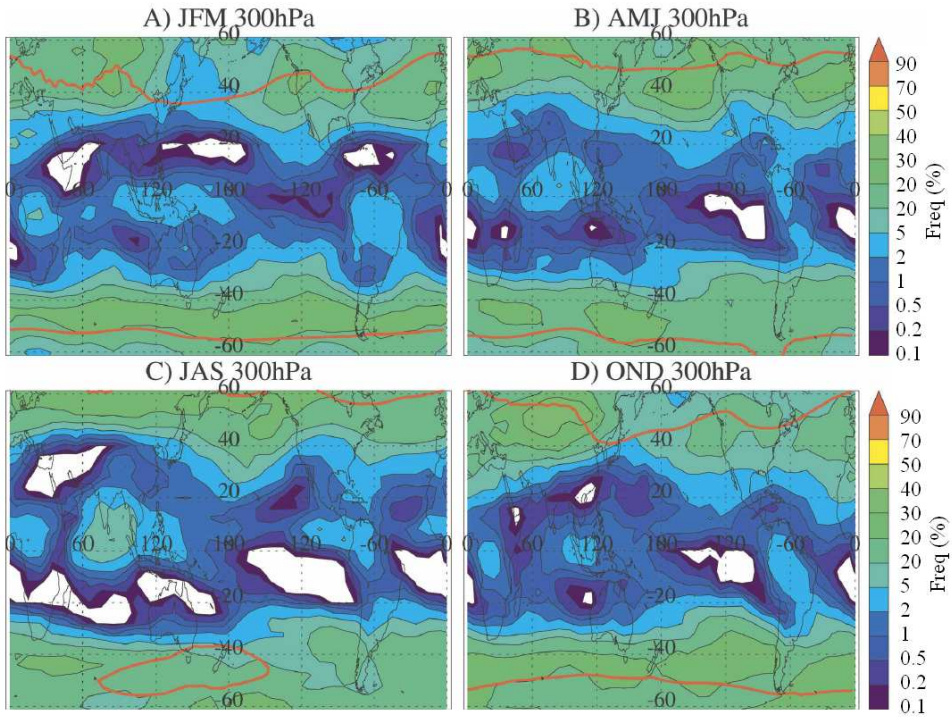

Abb. 2.8: Wie oben aber für die Auftrittsfrequenz von Übersättigungen auf 300hPa. Die roten Linien stellen Verlauf der Tropopause in der NCEP-NCAR Reanalyse dar (Gettelman et al., 2006b).

3 Projekt CARIBIC

Seit Bekanntwerden des Klimawandels wurden stetig wachsende Anstrengungen unternommen, die atmosphärischen Prozesse und Zusammenhänge besser zu verstehen. Kenntnis über die Zusammensetzung der verschiedenen Atmosphärenschichten, die herrschenden und anhand von Spurenstoffen ableitbaren Austauschprozesse und chemischen Reaktionen sind von enormer Wichtigkeit für die Vorhersage von Klimaänderungen. Zur Verfügung stehende Datensätze decken einen Grossteil der interessierenden Grössen ab. Dennoch genügen sie, aufgrund begrenzter Auflösung und Messungenauigkeiten noch längst nicht für das Gesamtverständnis. Kontinuierliche Verbesserungen der Messmethoden und neue Ansätze eröffnen immer neue Einsichten in das atmosphärische System.
So soll auch das Projekt CARIBIC neue Erkenntisse über die Verteilung von atmosphärischen Spurenstoffen, speziell in der UT/LS liefern und damit helfen die Lücke im Verständnis dieser Atmosphärenschicht zu verkleinern.

3.1 Allgemeines zum Projekt CARIBIC

CARIBIC - “Civil aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container” - In diesem Akronym steckt bereits ein Grossteil an Information über das Projekt CARIBIC.
Ein umgebauter Luftfrachtcontainer wurde mit 15 verschiedenen Messgeräten bestückt und führt regelmässig im Frachtraum eines Langstrecken-Passagierflugzeuges Messungen in der Atmosphäre durch. Die technischen Details der Umbaumaßnahmen und des speziell entwickelten Einlass-Systems am Flugzeugrumpf sind in Kapitel 3.3 beschrieben.
Insgesamt elf Institute aus sieben Ländern bilden das Konsortium dieses europäischen Forschungsprojekts. Die meisten dieser Institute betreiben ein oder mehrere Instrumente im Container, führen die Wartung des eigenen Instruments durch und werten die jeweils gewonnenen Daten aus. Die Federführung des Gesamtprojektes obliegt dem Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz. Hier werden die Instrumente nach der Wartung in den Container eingebaut und das Gesamtsystem auf seine Funktion hin überprüft. Die Systemsteuerung während des Fluges übernimmt ein Master-Computer; das System ist also vollautomatisiert und benötigt kein Bedienungspersonal während des Fluges.

Nach einer ersten Messphase von 1997-2002 auf einer Boeing 767-300 der LTU, startete CARIBIC mit einem optimierten System 2004 in seine zweite Phase (CARIBIC II). Als neuer Partner bis 2014 konnte Lufthansa (Star Alliance) gewonnen werden. Seitdem erfolgen die monatlichen Messflüge auf einem Airbus A340-600.

Die Planungs- und Entwicklungsphase des neuen Containers und die Zertifizierung beim Luftfahrtbundesamt (LBA) dauerte ca. 3 Jahre. Etwa 10 Firmen waren dabei involviert; der Aufbau des Containers und die Modifizierung des Flugzeuges kostete über 1 Mio Euro. Diese Kosten wurden hauptsächlich vom BMBF und von Lufthansa übernommen.

Pro Flug zahlt das Konsortium Frachtkosten für den Container an die Lufthansa, zudem fallen noch weitere Kosten für Entwicklung und Instandhaltung der Geräte sowie für Testmessungen an. Die Gesamtkosten liegen jedoch deutlich unter denen für Forschungsflugzeuge [1].
Finanziert werden die Flüge hauptsächlich von den beteiligten Instituten, mit kleinen Beiträgen (<15%) durch die europäische Union und Sponsoren wie E.ON, Ruhrgas und Ford.

3.2 Was ist das Besondere an CARIBIC?

CARIBIC liefert zu Forschungsflugzeugen komplementäre Daten. Durch monatliche Messflüge entsteht ein repräsentativer Datensatz, welcher die Beobachtung der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre über mehrere Jahre hinweg zulässt. So ermöglicht CARIBIC die Untersuchung auf jahreszeitliche Variationen und mehrjährige Trends in den durchflogenen Regionen im Gegensatz zu kurzen Flugzeug-Messkampagnen von typisch 2-3 Wochen. Allerdings können die Flugrouten für CARIBIC nicht frei gewählt werden; der genaue Verlauf des Fluges und die Flughöhe unterliegen den Vorgaben der zivilen Luftfahrt. Nur die Auswahl zwischen verschiedenen Flugzielen ist möglich.
In der Regel erfolgen die Langstreckenflüge in 10-12 km Höhe, genau in dem Atmosphärenbereich (UT/LS), der bis jetzt noch schlecht verstanden ist. Das gesamte Potential dieses Forschungsansatzes könnte durch Vernetzung mehrerer solcher Projekte, den gesamten Globus umspannend, ausgeschöpft werden.
Nahezu 100 Spurenstoffe und Aerosolparameter werden mit den 15 Messgeräten in CARIBIC erfasst. Vor allem über die Verteilung der Aerosolparameter und deren Variabilität ist bisher wenig bekannt, obwohl auch sie durch Wolkenbildung und mikrophysikalische Prozesse einen wichtigen Beitrag zum Klima liefern. Da die Messungen immer mit den gleichen oder sehr ähnlichen Messinstrumenten erfolgen, wird ein hoher Grad an Kontinuität in den Datensätzen erreicht und ein direkter Vergleich der einzelnen Flüge möglich.
Weltweit gibt es bislang nur zwei andere Projekte, die ein Zivilflugzeug als Messplattform nutzen. Neben einem kleinen Projekt von Japan Airlines (JAL) führt MOZAIC seit Beginn der 90-er Jahre Messungen von O_3, H_2O, CO und NO_y in der UT/LS durch. Die Messplattform bilden hier fünf A340-400, welche permanent mit Messinstrumenten ausgerüstet sind.

[1] da keine zusätzlichen Flüge notwendig sind.

3.3 Technische Details

Vor dem ersten Einsatz von CARIBIC waren Modifikationen am Flugzeug notwendig. Es musste ein spezielles, sehr komplexes Einlass-System entwickelt werden, welches die zu vermessende Luftmasse so wenig wie möglich beeinflusst.
Für die Unterbringung der 15 Instrumente wurde ein Luftfrachtcontainer (LD11) modifiziert, verstärkt und mit neun Racks (welche auf Schwingungsdämpfern gelagert sind) ausgerüstet. Ein Ventilationssystem transportiert die Abwärme der Instrumente aus dem Container heraus und verhindert dadurch deren Überhitzung. Um die Flugsicherheit zu gewährleisten, überwachen zwei Rauch- und Überhitzungs-Detektoren den Container, schalten ihn im Bedarfsfall ab und senden eine Warnmeldung an das Cockpit. Der Container wird für die Messflüge am hinteren Ende des vorderen Frachtraumes eingebaut, so dass er an den jeweiligen Zwischenstationen im Flugzeugrumpf verbleiben kann. Von dieser Stelle des Frachtraumes aus musste eine Verbindung zum Einlass-System an der Flugzeughülle hergestellt werden. Optimal wäre das Einlass-System direkt unterhalb des Containers am Flugzeugrumpf angebracht, um lange Rohrzuleitungen und damit mögliche Verunreinigungen und Verluste in der zu messenden Luftprobe zu verhindern. Dies liess jedoch die geringe Stabilität der Flugzeughülle an dieser Stelle nicht zu. Als bestmöglicher Kompromiss erwies sich die Anbringung des Systems zwei Meter vor dem Container. Somit befindet sich das Einlass-System 25 m von der Flugzeugnase entfernt, der Container 27 m.

Bei der Entwicklung des Einlass-Systems musste ein guter Mittelweg zwischen den wissenschaftlichen und sicherheitstechnischen Belangen gefunden werden. Für die wissenschaftliche Untersuchung ist es notwendig, Luft ausserhalb der Grenzschicht des Flugzeugs zu entnehmen. Dem stehen sicherheitstechnische und aerodynamische Belange der Flugsicherheit gegenüber.
Die grosse Anzahl der zu messenden Gas- und Aerosolkomponenten erfodert jeweils geeignete Lufteinlässe und Leitungen mit einem speziellen Heizsystem, welches zum einen die Vereisung der Einlässe und zum anderen die Adsorption von reaktiven und polaren Gasen in den Leitungen verhindert. In Strömungsmodellen wurde in Abhängigkeit der Flugzeugumströmung nach einer möglichst idealen Form gesucht, welche vor allem die Aerosolkonzentration nicht beeinflusst.
Das Einlass-System hat ein Gesamtgewicht von 3.5 kg, ist 55 cm lang, 18 cm breit und 34 cm hoch. Im Holm befinden sich drei kleine DOAS-Teleskope für Fernerkundungszwecke und eine Kamera, welche die Beobachtung von Wolken bei Tage zulässt. Sämtliche Einlass-Öffnungen sind beheizt, um eine Vereisung zu verhindern. Abbildung 3.1 zeigt das Einlass-System vor und nach dem Einbau.

3.3.1 Einlass-System für Wasser

Das Einlass-System für die Wassermessungen ist in Flugrichtung gesehen rechtsseitig des Mittelholms befestigt. Durch eine nach vorn gerichtete, 4mm breite Öffnung wird Luft für die Messung des Gesamtwassers (Wasserdampf und Wasser-/Eispartikel) eingeleitet. Die Druckdifferenz zwischen dem an der

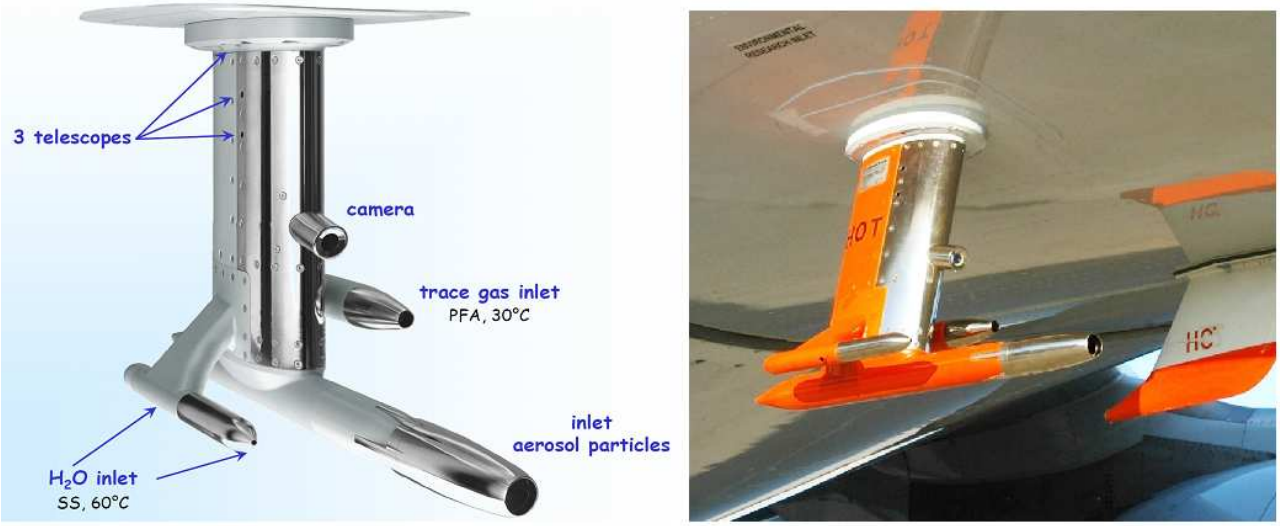

Abb. 3.1: Simulation und Fotografie des Einlass-Systems.

Öffnung anliegenden Staudruck und dem statischen Druck (Druckniveau des Auslasses), treibt die Luft mit einem Fluss von 30-50 vol-l/min zum Messinstrument im Container und macht die Verwendung einer zusätzlichen Pumpe überflüssig. Über ein zur Seite zeigendes Einlassrohr wird Luft für die Messung des Wasserdampfes angesaugt. Es liegt auf gleichem Druckniveau wie der Auslass (statischer Druck), weshalb hier eine Pumpe notwendig ist.
Ausgehend von den Einlass-Öffnungen wird die Luft über elektropolierte Edelstahlleitungen zum Wasserinstrument geleitet. Die Leitungen sind auf 60°C beheizt, was einen Verlust von Wasserdampf durch Adsorption an den Leitungen vermeidet. Proportionalventile im Instrument regeln auf einen konstanten Fluss der Probenluft durch die beiden Messinstrumente. Siehe hierzu auch Kapitel 3.3.2.
Mehr Details über den Gesamtaufbau und typische Grössen des Systems sind Abbildung 3.2 zu entnehmen.

Bei der Berechnung des Wolkenwassers/-eis müssen noch zwei Partikelanreicherungen berücksichtigt werden.

Partikelanreicherung durch das Flugzeug

Das Flugzeug verdrängt die umgebende Luft und die darin befindlichen Partikel.
Durch ihre Trägheit werden die Partikel dabei stärker abgedrängt als die Luft, wodurch es zu einer Partikelabreicherung in der Flugzeuggrenzschicht kommt und zu einer Anreicherung weiter ausserhalb. Berechnungen von Airbus zeigen an der Stelle Einlasses für die Gesamtwassermessungen eine Anreicherung von Wolkenpartikeln um 19%.

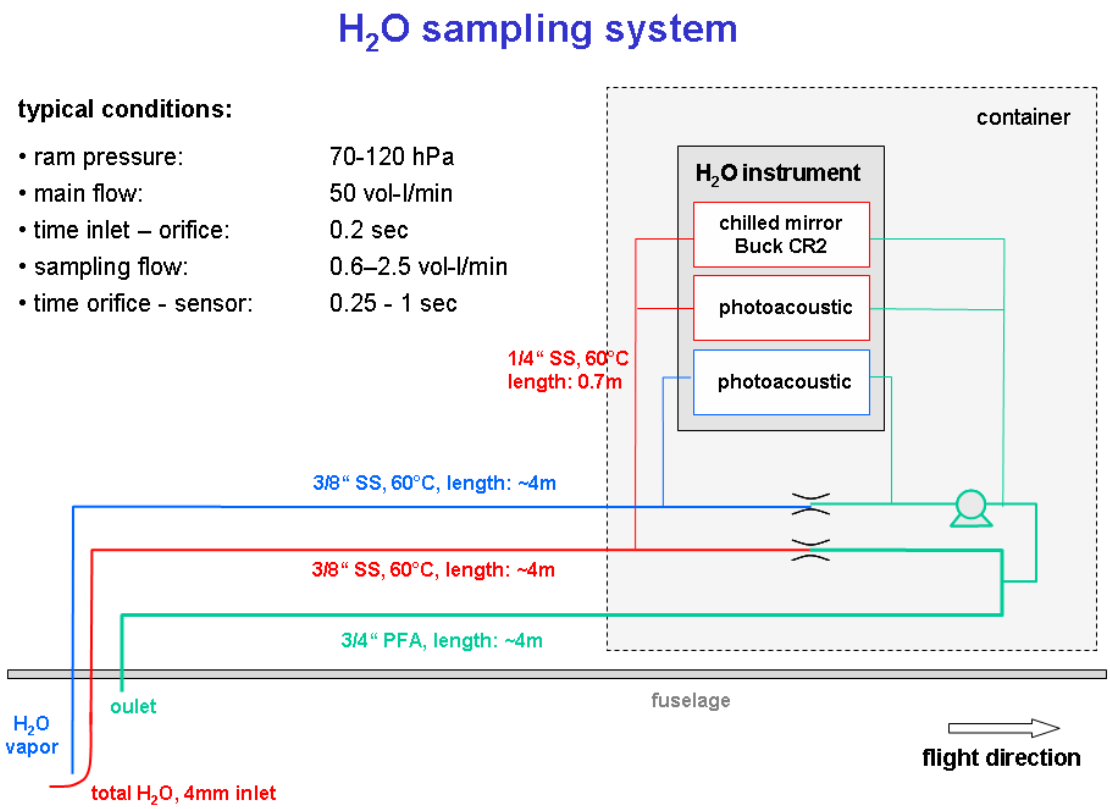

Abb. 3.2: Die einzelnen Komponenten des Wasserinstruments und die Zuleitungen als Schemazeichnung. Zudem sind typische Messbedingungen aufgelistet.

Partikelanreicherung durch das Einlass-System

Eine ähnliche Verdrängung entsteht auch durch das Einlass-System selbst. Ein Großteil der Luftmasse wird bereits vor der Einlassöffnung abgedrängt und strömt vorbei. Die Trägheit der Partikel treibt diese weiter in Richtung der Einlassöffnung wo sie sich anreichern. Je nach Volumenfluss liegt die Anreicherung zw. 210-380%.

Weitere Informationen über das Projekt CARIBIC können Brenninkmeijer et al. (2007) oder der Homepage *www.caribic.de* entnommen werden.

3.3.2 Messinstrument für Wasserdampf und Gesamtwasser

Den technischen Teil soll die Beschreibung des CARIBIC Wasserinstruments abschliessen. In diesem Instrument werden zwei Messtechniken eingesetzt:

- ein präzises Taupunktspiegel-Hygrometer für die Messung des Gesamtwassers
- ein schnelles 2-Kanal Photoakustik-Laserspektrometer (PA-System) mit zwei Messzellen für Wasserdampf- und Gesamtwassermessungen

Beiden Instrumenten ist jeweils ein eigenes Kapitel gewidmet (Kapitel 4 für das PA-System, Kapitel 5 für das Taupunktspiegel-Hygrometer), hier wird nur das in Abbildung 3.3 gezeigte Gesamtinstrument beschrieben.

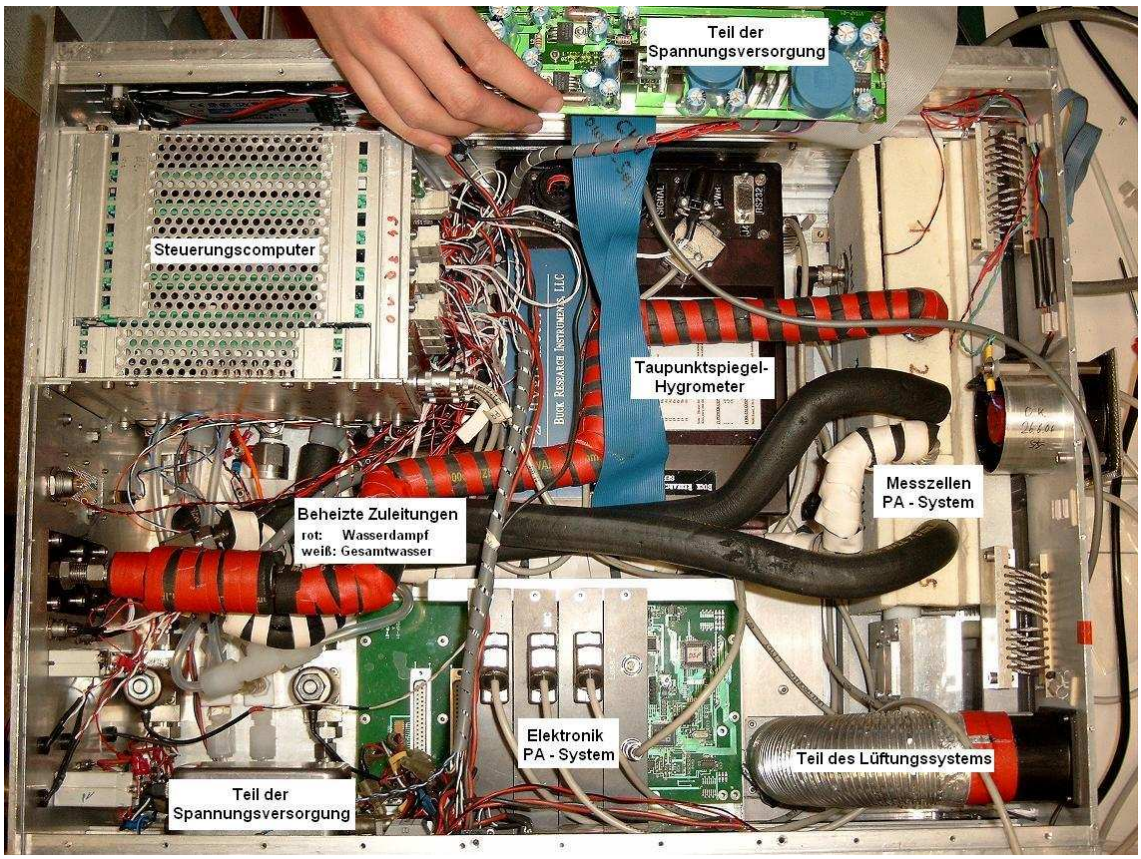

Abb. 3.3: Das CARIBIC-Wasserinstrument.

Wie bereits erläutert, gelangt die Luft für die Gesamtwassermessungen, angetrieben durch den Staudruck vom Einlass über eine 2,6 m lange, auf 60°C beheizte Edelstahlleitung zum Messinstrument. Kurz vor diesem werden 3.1 vol-l/min des Gesamtvolumenstromes von etwa 50 vol-l/min abgezweigt und in das Instrument geleitet. Über Ventile erfolgt die Verteilung auf das Taupunktspiegel-Hygrometer (2.5 vol-l/min) und das PA-System (0.6 vol-l/min).

Für die Messung des Wasserdampfes zieht eine Vakuumpumpe (Vacuubrand MD-1 vario) 40-60 vol-l/min Luft über den seitlichen Einlass ein. Davon werden wieder 0.6 vol-l/min abgezweigt und in die zweite Kammer des PA-Systems geleitet.
Das äußerst schnelle und daher für die Detektion kurzzeitiger Fluktuationen in den durchflogenen Luftmassen geeignete PA-System ist kein absolut messendes Instrument und wird mit dem langsameren, aber genauen Taupunktspiegel-Hygrometer kalibriert (siehe dazu Kapitel 6.2)

3.3.3 Regelung, Messprozess, Datenspeicherung

Das Wasserinstrument ist mit einem V25-Steuerungscomputer ausgerüstet, der den Messablauf während des Fluges steuert und die Messungen auf einer Flashdisk abspeichert. Die gesamte Prozess-Steuerung, wie Instrument-interne Ventilsteuerung, Temperaturüberwachung- und Regelung oder die Kommunikation mit dem Master-PC wird vom V25 übernommen.
Allen Instrumenten übergeordnet ist der bereits erwähnte Master-Computer. Er regelt die Komponenten, die in Zusammenhang mit dem Container stehen, wie Gesamtventilation und Pumpsysteme. Gleichzeitig überwacht und steuert er die einzelnen Instrumente und kann sie bei einem Kommunikationsverlust abschalten. Desweiteren obliegt ihm die Speicherung von Flugzeugdaten. Neben Informationen über den Flugverlauf werden hier auch Datensätze flugzeugeigener Druck- und Temperaturmessungen gesammelt. Letztgenannte sind für die Auswertung der Wassermessungen von Bedeutung (Kapitel 7).

4 Photoakustische Laserspektroskopie

Da diese Messtechnik im Bereich der flugzeugbasierten Atmosphärenforschung ein neuartiges Messverfahren darstellt, soll das folgende Kapitel einen Einblick in die Hintergründe und Vorzüge der photoakustischen Spektroskopie (PAS) geben.

4.1 Der photoakustische Effekt

4.1.1 Historisches

In der zweiten Hälfte des 19. Jahrhunderts führten unabhängige Experimente mehrerer Wissenschaftler zu der Erkenntnis, dass sich bestimmte Eigenschaften (Dichte, Temperatur, Druck) eines Mediums verändern, wenn das Medium unterschiedlichem Lichteinfall ausgesetzt wird. Diese Veränderungen schienen direkt an die Variation des Lichteinfalls geknüpft zu sein. Beispielsweise ändert sich die Leitfähigkeit eines Selenkernes in Abhängigkeit des periodischen Wechsels zwischen Hell und Dunkel.
Wohl am bekanntesten - da 1880 im American Journal of Sciences veröffentlicht - sind heute die Untersuchungen von Alexander Graham Bell, die er während seiner Versuche zur kabellosen Schallweiterleitung durchführte. Bells Idee war, den bisher mittels Galvanometer detektierten Effekt der Widerstandsänderung des Selenkerns über ein Telefon hörbar zu machen. Anders als beim Galvanometer wäre hier der Zeitpunkt des Wechsels von Hell nach Dunkel oder umgekehrt entscheidend, da letztendlich die Stromänderung den Ton produziert (Bell, 1880). Bells Überlegungen und Versuche motivierten weitere Wissenschaftler der damaligen Zeit, sich dem photoakustischen Effekt zuzuwenden.
So entdeckten J.Tyndall und W.C.Röntgen, dass auch Gase ein akustisches Signal produzieren, wenn diese periodischen Lichtschwankungen ausgesetzt sind (Rosencwaig und Gersho, 1976). Vermutlich war der damalige Stand der Technik, welcher viele Experimente scheitern liess, letztendlich die Ursache dafür, dass der photoakustische Effekt nach der ersten Euphorie schnell wieder in Vergessenheit geriet und erst um 1940 für die Gasdetektion wiederentdeckt wurde. Durch ständige Verbesserungen und nicht zuletzt durch die Entwicklung des Lasers hat er sich inzwischen zu einem festen Bestandteil der Gas-Spektroskopie etabliert.

4.1.2 Physikalischer Hintergrund

Die physikalischen Vorgänge, welche dem photoakustischen Effekt zu Grunde liegen, sind leicht nachvollziehbar und beruhen auf dem Absorptionsverhalten der bestrahlten Gase.
Fällt Strahlung auf ein Gas, so absorbiert dieses einen gewissen Teil in Abhängigkeit der Wellenlänge.

Die dabei aufgenommenen Photonen regen die Moleküle in einen höheren Energiezustand an. Je nach Energie des anregenden Photons wird nur die Rotationsenergie des Moleküls verändert oder auch sein Schwingungszustand und das Energieniveau der Elektronen in den Molekülorbitalen. Über Strahlungsprozesse, chemische Reaktionen oder strahlungsfrei durch intermolekulare Stöße (hauptsächlich mit N_2 und O_2) mit Umwandlung der Photonenenergie in kinetische Energie relaxieren die angeregten Moleküle zurück in den Grundzustand. Letztgenannte Relaxationsmöglichkeit ist die für den photoakustischen Effekt Entscheidende. Die vom interessierenden Molekül absorbierte Lichtenergie geht also durch Stösse (bei 1 bar ist die Stoßrate 10^{10} Hz) an die umgebenden Luftmoleküle über. Durch die zusätzliche kinetische Energie nimmt die Geschwindigkeit der Luftmoleküle zu. Dies macht sich durch eine Temperaturerhöhung und eine damit verbundene Druckerhöhung bemerkbar. Bei periodischer Bestrahlung des Mediums resultiert eine korrelierte Druckänderung, die nichts anderes als eine Schallwelle darstellt und mit einem Mikrophon aufgenommen werden kann. Das gewonnene Signal ist dabei proportional zur Intensität der anregenden Strahlung.
Im vorliegenden Fall der Schwingungs-Rotationsanregung im IR-Wellenlängenbereich und der hohen Stoßrate der Moleküle ist die strahlungsbedingte Lebensdauer lang gegenüber der Relaxationszeit über Stösse. Gleichzeitig ist die dabei auftretende Photonenenergie zu gering um eine Relaxation über chemische Reaktionen hervorzurufen (Miklós und Hess, 2000). So findet die Relaxation fast ausschliesslich über Stösse statt und die dabei induzierte Temperatur- bzw. Druckänderung (und damit der induzierbare PA-Effekt) ist maximal. Die Stärke des akustischen Signals ist bei konstanter und bekannter Lichtintensität ein direktes Maß für die Konzentration des zu untersuchenden Gases. Je höher die Konzentration des Spurengases ist, desto mehr Strahlung wird absorbiert und umso stärker ist das Signal.

4.1.3 Anwendung des photoakustischen Effekts in der Spektroskopie

Die photoakustische Spektroskopie hat sich zu einem festen Bestandteil in der Detektion und Analyse von Spurengasen etabliert. Ihr grösster Vorteil ist der geringe technische Aufwand bei zugleich relativ hoher Genauigkeit.
Einen Überblick über den allgemeinen Aufbau eines photoakustischen Spektrometers gibt Abbildung 4.1. Das System setzt sich aus den Messzellen, der Elektronik- und der Lasereinheit zusammen. Über einen angeschlossenen PC erfolgt die Datenaufzeichnung. Bei dem, in Abbildung 4.1 schematisch gezeigten System, unterbricht ein sog. Chopper den permanent ausgesandten Lichtstrahl, wodurch die periodische Anregung entsteht. Dies kann zu einem zusätzlichen Rauschen führen. Denn neben der zu untersuchenden Gasprobe absorbieren auch die Fenster der Messzelle die einfallende Strahlung und induzieren ein Hintergrundsignal, welches zu der anregenden Strahlung synchron und dem eigentlichen Mess-Signal überlagert ist. Dieses zusätzliche Rauschen wird als „window noise“ bezeichnet (Pilgrim und Bomse, 2003). Heute lässt sich diese Rauschquelle über den Einsatz von Distributed-Feedback-Laserdioden eliminieren.
Die aktive Zone der DFB-Laserdioden weist eine gitterartige Variation des Brechungsindexes auf, was

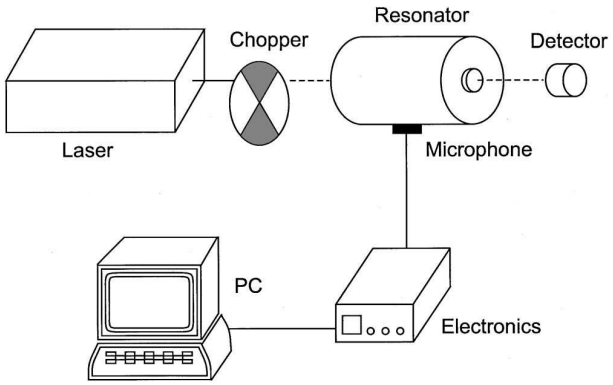

Abb. 4.1: Komponenten eines Photoakustik-Laserspektrometers im Allgemeinen (Miklós et al., 2001).

dem Effekt der Frequenzstabilisierung durch ein optisches Gitter entspricht. Dies führt zur Emission sehr schmalbandiger Strahlung. Durch Veränderung der Lasertemperatur und des Versorgungsstromes ist die ausgestrahlte Wellenlänge über einen bestimmten Bereich variierbar (Kraft, 2006).
Diese Verstimmbarkeit ermöglicht die heute weit verbreitete Anwendung der Wellenlängenmodulation in der photoakustischen Spektroskopie. Dabei wird der periodische Wechsel zwischen anregender Strahlung und Anregungspause nicht mehr über die Unterbrechung eines konstanten Lichtstrahles oder das periodische An- und Abschalten des Lasers[1] erreicht, sondern durch das periodische Verändern der ausgestrahlten Wellenlänge zwischen einem Wert auf der gewünschten Absorptionslinie und einem Wert daneben. Ein schematisches Bild der Wellenlängenmodulation zeigt Abbildung 4.2. Variiert man die Wellenlänge der ausgesandten Strahlung im Maximum der Absorptionslinie wie unten links eingezeichnet, so entsteht die auf der rechten Seite skizzierte Schallwelle.
Damit ist eine ständige Bestrahlung der Gasprobe und insbesondere der Fenster gegeben, wodurch das

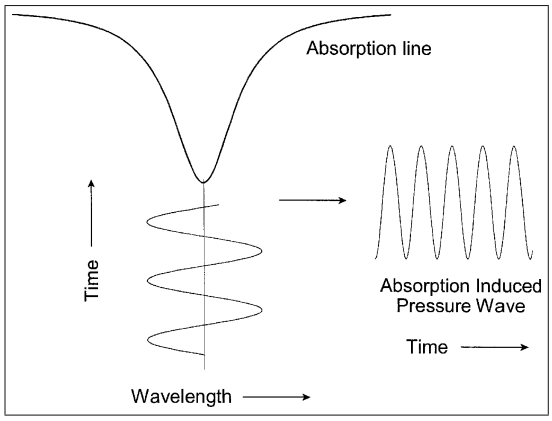

Abb. 4.2: Prinzip der Wellenlängenmodulation, Erläuterung siehe Text (Pilgrim und Bomse, 2003).

„window noise“ ein permanentes Hintergrundsignal darstellt und so von den nur periodisch auftretenden

[1] Eine weitere Möglichkeit, die periodische Anregung zu induzieren.

Meßsignalen separierbar ist (Pilgrim und Bomse, 2003). Vorausgesetzt wird dabei, dass die Absorption der Fenster keinem merklichen Einfluss der Wellenlänge unterliegt.
Durch den Einsatz der verstimmbaren Laserdioden lässt sich zudem eine eventuell auftretende Laserdrift abfangen, die beispielsweise durch Alterungsprozesse oder Temperaturänderungen entstehen kann. Eine genaue Beschreibung des dabei zugrunde liegenden Line-Lock-Prozesses und zur Wellenlängenmodulation beinhaltet Kapitel 4.3.
Ebenfalls grossen Einfluss auf Signalstärke und Signalrauschen haben Geometrie und Volumen der Messzellen. In Abhängigkeit dieser Grössen weist die Zelle eine Eigenresonanz auf. Wird die Modulationsfrequenz der Strahlungsanregung so gewählt, dass sie mit der Eigenresonanz der Zelle zusammenfällt, resultiert eine Verstärkung des akustischen Signals durch Ausbildung einer stehenden Welle.

Neben der qualitativen Darstellung ist auch eine Berechnung des photoakustischen Signals (PAS) möglich, was zugleich zu einem Überblick über die beeinflussenden Grössen führt.

$$PAS(\omega_j) = \frac{(\gamma-1)C_jQ_j}{V\omega_j}\alpha W \qquad [4.1]$$

PAS ist also abhängig von der gewählten Eigenmode j, deren Kreisfrequenz ω_j für den resonanten Fall mit der Modulationsfrequenz übereinstimmt. Im Faktor C_j schlagen sich die Position des Laserstrahls und des Mikrophons bezüglich der j-ten Eigenmodiverteilung nieder. Q_j steht für den Qualitätsfaktor der Zelle. Er beschreibt das Verhältnis zwischen der in der Welle gespeicherten Energie und dem Energieverlust durch inelastische Stösse mit der Zellwand. V ist das Zellvolumen. Über den Adiabatenkoeffizienten γ ist das Signal von der zu untersuchenden Gasprobe abhängig. All diese Grössen stellen charakteristische Systemgrössen dar. Sie können einmal für die jeweilige Eigenmode und das zu untersuchende Gas bestimmt und dann zur Zellkonstante zusammengefasst werden. Der Parameter W steht für die einfallende Strahlungsintensität und zeigt die direkte Abhängigkeit des Signals von dieser Grösse. Für die spektroskopische Anwendung ist der Absorptionskoeffizient α (in cm^{-1}) entscheidend. Er setzt sich aus der Volumenkonzentration c_i des Gases multipliziert mit dem wellenlängenabhängigen Absorptionsquerschnitt $\sigma(\lambda)$ zusammen

$$\alpha = c_i \cdot \sigma(\lambda) \qquad [4.2]$$

und stellt das photoakustische Signal in ein direktes Verhältnis zur Gaskonzentration.

4.2 Photoakustik-Hygrometer in CARIBIC

Photoakustische Spektrometer zeichnen sich durch ihren einfachen und robusten Aufbau aus. Während andere optische Absorptionstechniken oft einen komplexen optischen Aufbau zur Verlängerung des Absorptionsweges benötigen, kommt ein photoakustisches Spektrometer mit einer kleinen Messzelle aus. Gleichzeitig liefert es präzise Ergebnisse mit einer grossen Dynamik in hoher zeitlicher Auflösung und kann dabei weitgehend automatisch operieren (Szakáll et al., 2001).

Durch diese Eigenschaften und nicht zuletzt die Möglichkeit eines sehr kompakten Instrumentenaufbaus eignet sich ein photoakustisches Spektrometer gut für den Einsatz im Rahmen von CARIBIC. Erkenntnisse aus anderen Flugzeugmesskampagnen lagen zu Beginn des Projekts noch nicht vor, da dies der erste Einsatz eines Photoakustik-Laserspektrometers an Bord eines Flugzeugs ist.

Seit Beginn von CARIBIC II ist die erste Version dieses Hygrometers im Einsatz, bisher mit sehr guten Resultaten und geringen Schwierigkeiten.
Die Entwicklung ist in den letzten vier Jahren weiter fortgeschritten, so dass neuere Instrumente der gleichen Bauweise inzwischen bis zu vierfach höhere Empfindlichkeiten aufweisen, was wesentlich genauere und höher aufgelöste Messungen ermöglicht. Um von diesen Entwicklungen profitieren zu können, ist für 2008 der Austausch des aktuell verwendeten Systems durch die verbesserte Version geplant.
Das Durchführen von Testmessungen und der Vergleich mit dem aktuell eingesetzten System ist Teil der hier vorgelegten Arbeit. Das Ziel, mit dem neuen Instrument erfolgreich an einer Vergleichsmesskampagne[2] im Oktober 2007 in der Aerosolkammer AIDA am FZK teilzunehmen, konnte allerdings nicht erreicht werden. Verschiedene Schwierigkeiten mit der gesamten Messapparatur und vor allem dem Steuerungscomputer verhinderten die erfolgreiche Teilnahme an dieser Kampagne. Durch Implementierung eines neuen Steuerungscomputers - geplant für Mitte 2008 - werden sich die meisten Probleme hoffentlich beheben lassen.

4.2.1 Photoakustik-Laserspektrometer WaSul-Hygro

Bei dem zum Einsatz kommenden System handelt es sich um das 2-Kanal Photoakustik-Spektrometer WaSul-Hygro der Firma Hilase LTD aus Szeged (Ungarn), welches in Kooperation mit dem Institut für Optik und Quantenelektronik der Universität Szeged entwickelt wurde. Testmessungen vor Beginn des regulären Einsatzes in CARIBIC II zeigten verschiedene Punkte, die für den Einsatz auf dem Flugzeug zu verbessern sind. So wurden zusätzliche akustische Filter in den Zuleitungen notwendig, um Störgeräusche durch Pumpen und Luftströmung zu eliminieren. Diese filtern weitgehend alle Schallwellen im Bereich der Anregungsfrequenz heraus, die bereits ausserhalb der Messzellen vorhanden sind.

Drei in sich abgeschlossene Edelstahlzellen (Abbildung 4.3) mit getrennten Zu- und Ableitungen bilden den knapp 26 cm langen und 8 cm hohen Zellenblock des Spektrometers. Fenster im Bereich des Strahlenganges stellen einen durchgehenden Lichtweg her. Durch den separierten Aufbau ist eine unabhängige Messung von Wasserdampf und Gesamtwasser (Wasserdampf + Wolkenwasser/-eis) in jeweils einer Zelle mit nur einem Instrument möglich. Die dritte Zelle ist mit einer konstanten Wasserdampfkonzentration gefüllt und dient als Referenzzelle. Es ist hier noch zu erwähnen, dass es bei sehr hohen Konzentrationen zur Abschwächung der Strahlintensität durch Absorption in der ersten Messzelle kommt und so der induzierte photoakustische Effekt in der zweiten Messzelle und der Refernzzelle entsprechend verringert ist.

[2] AquaVIT, 8.-26.Oktober 2007.

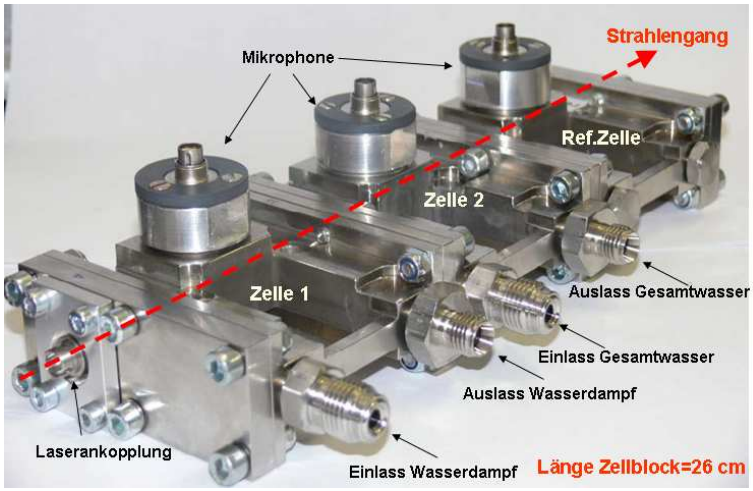

Abb. 4.3: Der Edelstahl-Messzellenblock des WaSul-Hygro-Spektrometers. Nicht abgebildet ist dabei die Laserbox mit der glasfasergekoppelten Laserdiode. Diese schliesst sich an der linken Seite an.

Bei gewöhnlich während den Messflügen auftretenden Mischungsverhältnissen ist dieser Effekt jedoch vernachlässigbar klein.

Der Laser (DFB-Laserdiode der Firma NTT Electronics Corporation) wird über eine Glasfaser mit der ersten Messzelle verbunden. Die Ankopplung (Abbildung 4.3) ist dabei so justiert, dass der Laserstrahl ungestört die drei Zellen passieren kann und es nicht zu Streueffekten durch Auftreffen an der Zellwand kommt. In den runden Erhebungen befinden sich die Mikrophone. Laser und Messzellen sind auf einem Aluminium-Rahmen im Instrument befestigt. Schwingungsdämpfer verhindern die Übertragung von Vibrationen des Flugzeugs und der Pumpen auf das Spektrometer.

Heizfolien halten die Messzellen konstant auf einer Temperatur von 40°C. Zum einen, um Adsorptionseffekte an den Wänden zu verringern und zum anderen, um die Schallgeschwindigkeit und damit die Zellkonstante und Sensitivität[3] konstant zu halten.

Besonders wichtig ist auch die korrekte und konstante Temperierung des Lasers mit einem Peltierelement, denn die Lasertemperatur führt bekanntlich zur Verstimmung der Laserdiode (siehe Kapitel 4.3). Während mancher Flüge traten sehr hohe Temperaturen im Container auf, die sich auch auf das Spektrometer ausgewirkt haben. Mit zunehmender Temperatur war eine Signalabnahme zu verzeichnen, die bei der Datenauswertung entsprechende Berücksichtigung erfordert.

Die dritte Komponente des Geräteaufbaus stellt die Elektronikeinheit dar, welcher die Steuerung der Messprozesse, die Signalverarbeitung und -ausgabe obliegt. Ihr Kernstück bildet ein 16-bit Digital Signalprozessor (DSP-Chip) für Aufzeichung, Generierung und Speicherung der Signale. Ein 16-bit DA-Konverter wandelt das 4096 Punkte umfassende digitale Signal des DSP-Chips in ein Analogsignal um, welches zur Laseransteuerung dient. Die Eingangsgrösse für den DA-Konverter bildet ein, als Offset

[3] Die Sensitivität des PA-Systems ergibt sich aus der Division des PA-Signals mit dem Mischungsverhältnis (siehe auch Kapitel 6.2).

bezeichneter Wert (100 mA entsprechen dabei 26000 Offset-Einheiten). Parallel dazu wandelt ein AD-Konverter das analoge Signal der Mikrophone in ein 4096 Punkte langes 16-Bit Digitalsignal um (Szakáll et al., 2001)[4]. Die Abtast-Frequenz beträgt das 32-fache der Lasermodulation. Das heisst, während einer Modulationsperiode erfolgen 32 Abtastungen und das 4096 Punkte lange Signal beinhaltet 128 Modulationsperioden. Nach der Weiterverarbeitung im DSP-Chip wird das Signal über eine RS-232-Schnittstelle an einen angeschlossenen Computer ausgegeben.
Das System ist auf 400 hPa optimiert, d.h. dass es bei diesem Druck die höchste Sensitivität erreicht (Abbildung 4.4). Zu niedrigen Drücken nimmt die Sensitivität stark ab, da zunehmend weniger Moleküle zur Vefügung stehen, um den photoakustischen Effekt zu induzieren. Bei hohen Drücken verringert sich die Sensitivität durch die Druckverbreiterung der Absorptionslinie (vgl. Kapitel 4.3)

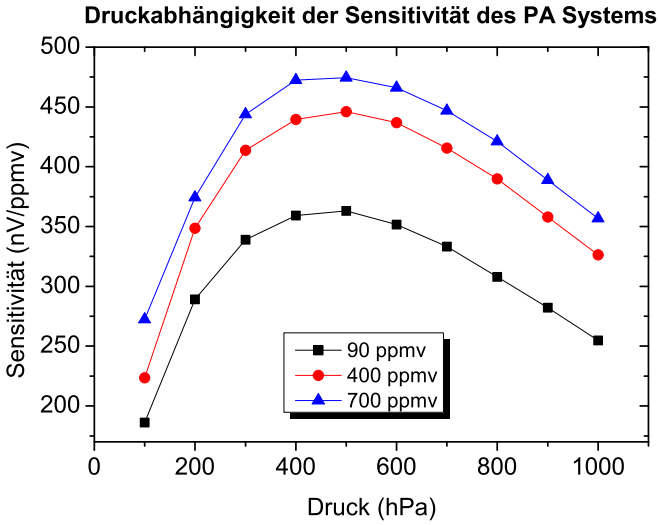

Abb. 4.4: Druckabhängigkeit der Sensitivität. Das PA-System ist auf eine Messung bei 400 hPa optimiert, hier wird die maximal mögliche Sensitivität erreicht.

4.2.2 Messprozess und Signalverarbeitung

Basierend auf den eingestellten Parametern steuert das DSP-Board den Lasertreiber. Dieser wiederum veranlasst die Aussendung der gewünschten Strahlung. Die Strahlung induziert in den Messzellen ein photoakustisches Signal, welches von den Mikrophonen aufgezeichnet wird.
Über einen Vorverstärker und einen Bandpassfilter gelangt das Signal in den integrierten Lock-In-Verstärker. Dieser empfängt als Referenzsignal die Anregungsfrequenz des Lasers und multipliziert sie mit dem eingehenden Mess-Signal. Im Falle der Frequenzgleichheit wird die zugehörige Signalkomponente auf Gleichspannung herabgemischt, kann den nachgeschalteten Tiefpassfilter passieren und liegt am Aus-

[4]Die im Paper erwähnten Grössen wurden durch die entsprechenden Werte des neuen PA-Systems ersetzt.

gang des Lock-In-Verstärkers als Gleichspannung an, mit einer Amplitude proportional zum Kosinus der Phase (Bimberg, 2004). Das ausgegebene Signal entspricht in unserem System der ersten Harmonischen der aufgezeichneten Linie, was gleichbedeutend mit der ersten Ableitung ist.
Sämtliche Rauschanteile, die nicht der gleichen oder annähernd gleichen Frequenz des Referenz- bzw. Mess-Signals entsprechen, werden so komplett heraus gefiltert. Dennoch bleibt dem Signal ein gewisses Hintergrundsignal überlagert, welches das Verhältnis zwischen Signal und Konzentration nicht-linear werden lassen kann. Dadurch, und auch wegen des direkten Einflusses der Strahlungsintensität auf das Signal, stellt die Konzentrationsmessung über den photoakustischen Effekt kein absolutes Messverfahren dar (Bozóki et al., 2003).

4.3 Wellenlängenmodulation, Line-Lock

Die Strahlungsquelle des WaSul-Hygro-Spektrometers bildet eine glasfasergekoppelte DFB-Laserdiode, die in Abhängigkeit der Lasertemperatur und des Versorgungsstromes Strahlung einer Wellenlänge im Bereich von 1361 nm aussendet. Gleichzeitig erfordert die Temperaturabhängigkeit eine exakte Temperierung des Lasers und seiner Bodenplatte, was durch den Einsatz von Peltierelementen gewährleistet ist. Damit möglichst alle Messungen auf dem gleichen Punkt der Absorptionslinie stattfinden, wird der Laser auf einen konstanten Punkt der Absorptionslinie "gelockt".
Nach einer bestimmbaren Anzahl von Messpunkten (typisch 100 Messungen bzw. 4-5 min) mit konstanter Lasertemperatur und konstantem Versorgungsstrom findet die Suche nach dem idealen Platz auf der Linie und ggf. die Neujustierung der ausgestrahlten Wellenlänge statt.
Bei der eingestellten Lasertemperatur scannt der Laser mittels einer rampenartigen Veränderung des Versorgungsstromes (Gleichung 4.3) die Absorptionslinie ab.

$$i(t) = i_0 + i_1(t) + A \cdot \sin(2\pi \cdot f \cdot t) \qquad [4.3]$$

Der Versorgungsstrom $i(t)$ setzt sich zusammen aus einem konstanten Wert i_0, der den Laser in die Nähe der Absorptionslinie bringt, der Stromrampe $i_1(t)$ welche zum Abscannen der Absorptionslinie führt, sowie der Lasermodulation mit der Amplitude A und der Frequenz f, durch die das photoakustische Signal induziert wird (Szakáll et al., 2007). Je weiter sich die Wellenlänge in Richtung des Absorptionsmaximums bewegt, desto grösser ist das photoakustische Signal. Die Wellenlängenmodulation führt also zu einem amplitudenmodulierten Mess-Signal (bzw. Schallstärke) mit grösster auftretender Amplitude im Maximum der Absorptionslinie. Das Schema der Stromrampe und das daraus resultierende Schallsignal sind in Abbildung 4.5 zu sehen. Die obere Einhüllende des Schallsignals stellt dabei die erste Ableitung der Absorptionslinie dar (genauer deren Absolutwert) und wird für das Line-Lock verwendet.
Der Referenzpunkt für das Line-Lock befindet sich nicht im Linienmaximum sondern auf der Linienflanke. Es ist der Punkt der stärksten Steigung (Halbwertsbreite der Linie). Dieser lässt sich auch dann genau bestimmen, wenn die Absorptionslinie bei hohen Drücken stark verbreitert ist [5] (Szakáll et al., 2007,

[5] Die Breite einer Absorptionslinie ist stark druckabhängig.

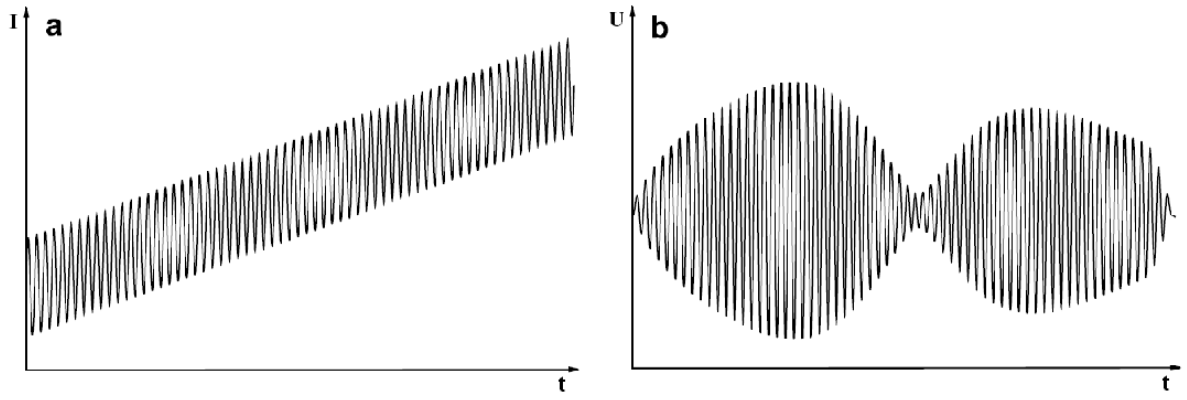

Abb. 4.5: a) Rampenartige Erhöhung des Laser-Versorgungsstromes, die das in b) gezeigte photoakustische Signal induziert (Szakáll et al., 2007).

2004). Zunächst wird der Strom des Referenzpunktes bestimmt und anschliessend um einen konstanten Offset erhöht. Der so zusammengesetzte Strom führt dazu, dass die ausgestrahlte Wellenlänge genau im Maximum der Absorptionslinie liegt (zur Veranschaulichung siehe Abbildung 4.6). Er dient in der folgenden Messphase als Versorgungsstrom. Insgesamt beansprucht der Line-Lock-Prozess in dieser Form knapp 3 Sekunden und führt so zu einem äusserst geringen Datenverlust. Denn während des Line-Locks finden keine regulären Messungen statt.

Bei den Flügen mit dem alten System trat häufig eine Übersättigung des Referenzsignals auf. Dadurch wurde der obere Teil des Spektrums in Abbildung 4.5 abgeschnitten und der Referenzpunkt falsch bestimmt. Ein Widerstandsteiler am Ausgang des Mikrophons und die damit verbundene Verringerung des Signals löste schliesslich dieses Problem.

4.4 Das neue WaSul-Hygro Photoakustik-Laserspektrometer

Das neue WaSul-Hygro besitzt einen 3x stärkeren Laser und eine verbesserte Elektronik. Dadurch hat sich seine Sensitivität gegenüber dem alten System fast vervierfacht.
Da es sich bei dem alten CARIBIC-Wasserinstrument um einen Prototyp handelt, der an mehreren Stellen zu verbessern ist, wurde beschlossen ein komplett neues Instrument mit einer neuen Version des WaSul-Hygro aufzubauen.
Zunächst galt es nun das neue PA-System diversen Tests zu unterziehen und dabei seine Besonderheiten und idealen Parametereinstellungen für den Einsatz in CARIBIC herauszufinden.

4.4.1 Hardwareunterschiede zwischen den beiden Systemen

Das neue System setzt sich aus den gleichen drei Hauptkomponenten zusammen wie das alte. Die im alten System noch einzeln vorliegenden Platinen der Elektronikeinheit sind im neuen System zu einer

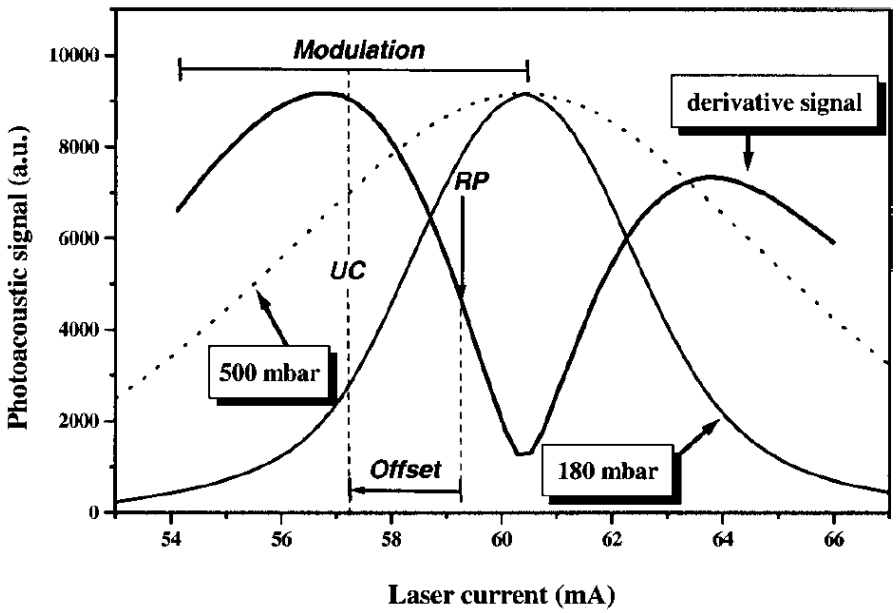

Abb. 4.6: Die Absorptionslinie bei 500 hPa (gepunktet) und bei 180 hPa (dünn, durchgezogen) in Abhängigkeit des Laserstroms als Beispiel für die Druckverbreiterung. Erste Ableitung der Linie bei 180 hPa (dick). Auf der Linienflanke des Ableitungssignals ist der Referenzpunkt für den Line-Lock-Prozess mit RP gekennzeichnet. Ebenfalls eingezeichnet ist die Breite der Amplitudenmodulation und der Offset der zu dem, im Line-Lock-Prozess ermittelten Strom (RP) addiert wird (Szakáll et al., 2007).

kompakten Box (B:19cm, H:13 cm, L=18cm) zusammengesetzt und ermöglichen somit die einfachere Implementierung in das Gesamtinstrument. Der neue Zellblock ist deutlich leichter, hat eine modifizierte Mikrophonhalterung und VCR-Anschlüsse.

4.4.2 Software des alten und neuen Systems

Die neue Software bietet mehr Einstellmöglichkeiten und erlaubt das Einbinden von Basic-ähnlichen Organisationsprogrammen.

Für die Einstellung der Parameter, wie Lasertemperatur, Anzahl der Schritte einer Messphase oder Anregungsfrequenz steht in beiden Systemen ein fensterartig strukturiertes Menü zur Verfügung. Das alte System erlaubt die Einstellung von zwei verschiedenen Parameterkombinationen, welche im Messbetrieb abwechselnd berücksichtigt werden. So ist es z.B. während eines Fluges möglich, zwischen zwei normalen Messphasen einen Temperaturscan durchzuführen, um eine mögliche Laserdrift feststellen zu können, oder auf zwei Linien[6] zu messen. Im neuen System existieren drei solcher Parametertabellen, wobei in der Ursprungsversion des Systems eine davon für den Line-Lock-Prozess benötigt wurde (siehe auch 4.3).

Neben der Einstellung der Parameter ist im neuen System auch die Wahl eines, für die jeweils gewünsch-

[6]Bei verschiedenen Lasertemperaturen.

ten Messungen passenden Organisationsprogrammes notwendig. Je nach dem, ob reguläre Messungen, Temperatur- oder Frequenzscans durchgeführt werden sollen, setzt das jeweilige Messprogramm bestimmte Standardeinstellungen fest, lädt die erforderlichen Parameter aus der entsprechenden Parametertabelle und steuert die Abfolge des Messprozesses. Im alten System gab es diese Wahlmöglichkeit nicht; alles erfolgte direkt über die Parametereinstellung.

Organisationsprogramm

Im neuen Messprogramm ist es möglich, die Intensität der ausgestrahlten Wellenlänge zu verändern. Bei hohen Mischungsverhältnissen (bei denen ein grosses PA-Signal induziert wird) kann mit einer geringeren Strahlungsintensität gemessen werden als bei niedrigen Mischungsverhältnissen. Nach Gleichung 4.1 ist dadurch das induzierte PA-Signal bei hohen Feuchten verhältnismässig klein. Dies wird in CARIBIC wie folgt zum Einsatz kommen.
Im unteren Bereich der Atmosphäre, wo hohe Mischungsverhältnisse zu erwarten sind, erfolgt die Messung mit der schwachen Strahlungsintensität. Im Bereich der UT/LS wird mit der starken Strahlungsintensität gemessen. Die schwache Intensität erlaubt Messungen von $\sim$ 10 bis 40000 ppmv, die starke von $\sim$ 1 bis 4000 ppmv.
Der Wechsel von der einen zur anderen Strahlungsintensität findet bei Erreichen von 400 hPa Umgebungsluftdruck statt. Dies geschieht allerdings erst dann, wenn der Druck die 400 hPa um mehr als 10 hPa über- bzw. unterschreitet. Dadurch wird ein Springen zwischen den Intensitäten vermieden, falls der Druck um 400 hPa variiert. Neben diesem Messprogramm für den Einsatz in CARIBIC existieren noch weitere Organisationsprogramme, die bei Labormessungen verwendet werden.

Line-Lock-Prozedur im neuen System

Die Druckverbreiterung der Absorptionslinie (Abbildung 4.6) kann zu Problemen beim Line-Lock-Prozess führen. Da die Referenzzelle auf einem Druck von 1000 hPa liegt, kann der darin bestimmte Laserstrom von dem abweichen, der für die Messungen bei niedrigeren Drücken notwendig wäre.
Zwei modifizierte Line-Lock-Techniken sollten diesen druckabhängigen Effekt vermeiden:

- die Referenzzelle auf das Druckniveau der Messzellen bringen
- die druckabhängige Linienverbreiterung im Labor bestimmen und daraus eine Verschiebung ableiten

Der erste Ansatz erwies sich in Testmessungen als ungeschickt. Das Mischungsverhältnis in der Referenzzelle sollte trotz der Kopplung mit der Messzelle konstant sein[7]. Dies liess sich infolge technischer Probleme, z.B. bei der Ventilsteuerung bisher nicht realisieren. Zeitweise trat ein zu hohes Mischungsverhältnis in der Referenzzelle auf, was eine Übersteuerung des Mikrophonverstärkers hervorrief.

[7] Eine während des Line-Locks auftretende Feuchteänderung könnte das Line-Lock verfälschen.

Diese Technik wird daher wahrscheinlich nicht in CARIBIC eingesetzt. Für den zweiten Ansatz muss die Absorptionslinie in Abhängigkeit des Laserstroms im Labor aufgenommen werden, bei 1000 hPa in der Referenzzelle und bei verschiedenen, für die UT/LS typischen Drücken in den Messzellen. Aus einem Vergleich der Linienverläufe bei verschiedenen Drücken mit dem Linienverlauf bei 1000 hPa sollte sich eine (konstante) Verschiebung $\Delta\lambda(p)$ ergeben. Während der Messflüge muss dann der in der Referenzzelle bestimmte Laserstrom um $\Delta\lambda(p)$ verschoben werden, um in den Messzellen auf dem richtigen Punkt der Linie messen zu können. Diese Messungen müssen noch durchgeführt werden.

Da die schnelle Änderung des Laserstroms um $\sim 12\%$ (in 5-6 sec) während des Line-Locks zu einem thermischen Ungleichgewicht im Laser führen kann[8], wurde das Line-Lock mit einer quasistatischen Stromänderung verglichen. Bei dieser erfolgte die Erhöhung des Laserstroms in Schritten von ~ 3 sec, wodurch der Laser im thermischen Gleichgewicht blieb. Den Vergleich zeigt Abbildung 4.7 für eine Messung bei 300 hPa.
In der Auswertung wurde bei beiden Variationen der Strom bestimmt, bei dem das Linienmaximum

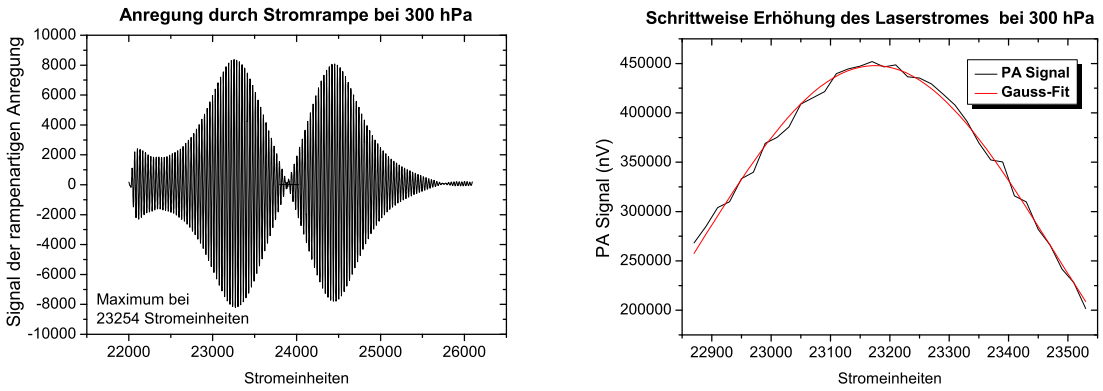

Abb. 4.7: Variation des Versorgungsstroms mittels Stromrampe (links) und schrittweise Erhöhung (rechts).

auftrat. Bei der rampenartigen Stromänderung lag das Maximum (bei dem in Abbildung 4.7 gezeigten Fall) bei 23254 Einheiten (89.45 mA). Während der quasistatischen Stromerhöhung trat es bei 23174 Einheiten (89.13 mA) auf. So beträgt die temperaturbedingte Verschiedung des Maximums 80 Einheiten (0.31 mA). Bei verschiedenen Drücken durchgeführte Messungen ergaben eine mittlere Differenz der beiden Maxima von 68 Einheiten (0.26 mA). Diese Verschiebung des Laserstroms wurde im Line-Lock berücksichtigt.

[8] Ein veränderter Strom führt zu einer geringfügigen Temperaturänderung des Lasers. Diese kann sich während der schnellen, rampenartigen Veränderung nicht einstellen. Wird der Laser längere Zeit mit dem so bestimmten Strom betrieben, stellt sich die Temperaturveränderung ein und die Wellenlänge des Lasers verändert sich.

4.4.3 Test des neuen WaSul-Hygro

Den Zusammenhang zwischen PA-Signal und Mischungsverhältnis präsentieren die von Hilase LTD durchgeführten Kalibrierungsmessungen (Abbildung 4.8). Bei niedrigen Mischungsverhältnissen zeigt

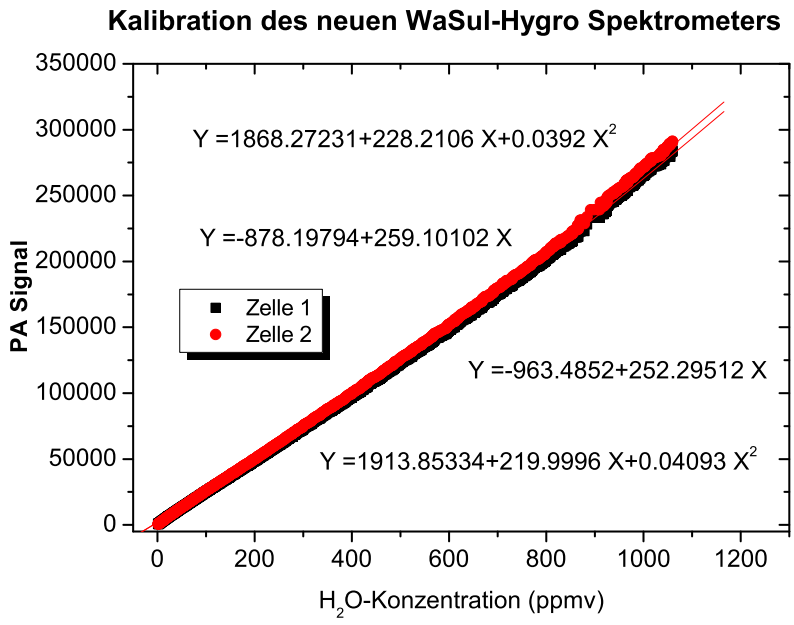

Abb. 4.8: Kalibrierungskurven des neuen WaSul-Hygro, aufgezeichnet vom Systemhersteller. Aufgetragen ist die Abhängigkeit des PA-Signals von der Wasserdampfkonzentration für beide Messzellen.

sich eine nahezu lineare Zunahme der Photoakustik-Signale, die mit zunehmender Feuchte in einen polynomen Zusammenhang übergeht. Dies beruht auf der nicht-linearen Relaxation der vom H_2O-Molekül absorbierten Lichtleistung an die umgebenden Luftmoleküle. Anders als beim alten System ist hier die Sensitivität beider Messzellen etwa gleich.

Der Laser des neuen Systems zeigt eine Alterung, bzw. ein „Einbrennverhalten“. Bezüglich der anfänglichen Messungen von Hilase und dem dort gemessenen Signalmaximum bei einer Lasertemperatur von 15.01°C (aus persönlicher Kommunikation) hat sich das Maximum etwa acht Wochen später auf $\sim 14,50$°C verschoben (siehe Abbildung 4.9).

Das maximale PA-Signal tritt auf, wenn der Laser mit der Resonanzfrequenz der PA-Zellen moduliert wird (Kapitel 4.1.3). Hier wird auch die in Kapitel 4.2.1 erwähnte Abhängigkeit der Signalstärke (bzw. Sensitivität) von der Temperatur über die Schallgeschwindigkeit deutlich. Es gilt (mit λ=Wellenlänge,

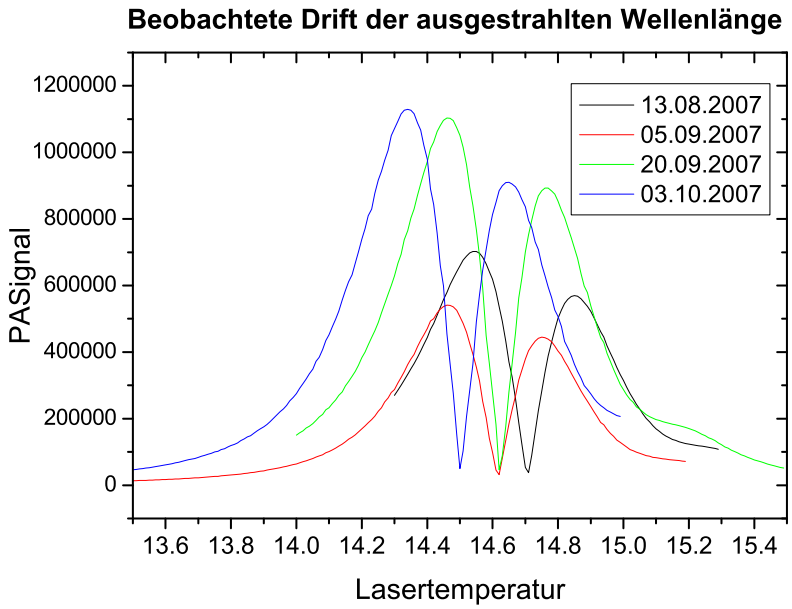

Abb. 4.9: Zusammenschau mehrerer Temperaturscans seit Inbetriebnahme des Systems. Mit der Zeit verschiebt sich die ausgestrahlte Wellenlänge bei konstanter Temperatur, das Maximum tritt bei geringerer Lasertemperatur auf.

c=Schallgeschwindigkeit, f=Resonanzfrequenz, γ=Adiabatenexponent, R=ideale Gaskonstante, M =molare Masse und T =Temperatur in °C):

$$\begin{aligned}
\lambda = \frac{c}{f} &\stackrel{!}{=} 2 \cdot L \qquad \text{mit } L = \text{Länge der PA-Zelle} \approx 4 \text{ cm} \\
\Rightarrow f &= \frac{c}{2 \cdot L} \\
c &= \sqrt{\frac{\gamma R T}{M}} \\
&\approx 380 \frac{m}{s} \\
\Rightarrow f &\approx \frac{380 \frac{m}{s}}{2 \cdot 0.04} \approx 4750\, Hz
\end{aligned}$$

Das Signalmaximum wurde durch Änderung der Modulationsfrequenz bestimmt (Abbildung 4.10). Die Differenz der Resonanzfrequenz beider Messzellen

$$\sim \left(\tfrac{4890}{4714} - 1\right) \cdot 100\% \approx 3.8\%$$

ist wahrscheinlich auf eine gernigfügig unterschiedliche Zellenlänge ($4\,\text{cm} \cdot 0.038 \approx 1,5\,\text{mm}$) zurückzuführen.

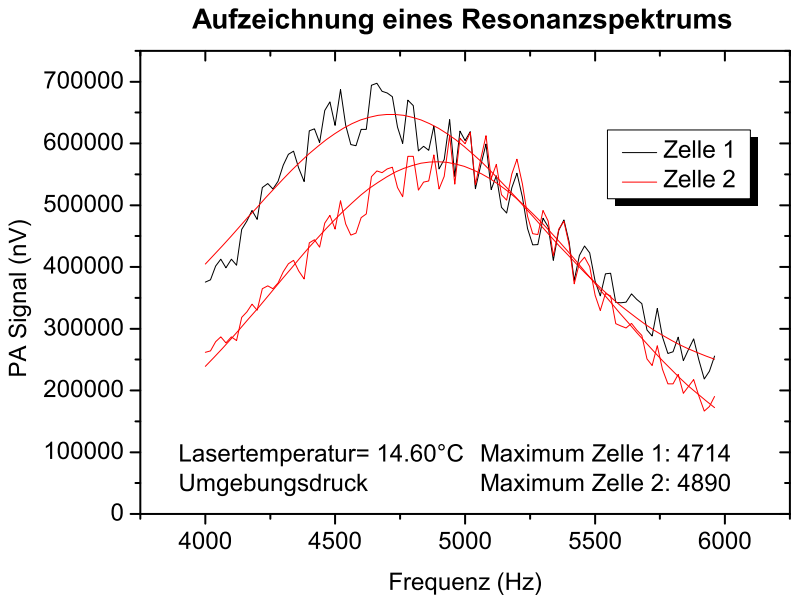

Abb. 4.10: Abhängigkeit des PA-Signals von der Anregungsfrequenz

5 Taupunktspiegel-Hygrometer

Anders als die photoakustische Spektroskopie ist die Bestimmung der Feuchte mithilfe eines Taupunktes ein altbewährtes Verfahren, dessen erste Anwendung auf die zwanziger Jahre des 19. Jahrhunderts dokumentiert ist.
Das Messprinzip ist einfach und dabei äusserst präzise. Ein Lichtstrahl bekannter Intensität trifft in einem bestimmten Winkel auf eine Spiegeloberfläche, wird dort reflektiert und trifft auf einen Photosensor. Durch Abkühlung der Spiegeloberfläche bis zum Einsetzen einer Kondensation bzw. Resublimation ist die direkte Bestimmung der Taupunktstemperatur möglich. In CARIBIC kommt dieses absolute Messverfahren zur Kalibration des Photoakustik-Datensatzes zum Einsatz.

5.1 CARIBIC Taupunktspiegel-Hygrometer

Der Einsatz im Rahmen von CARIBIC erforderte ein Messinstrument, welches auch bei stratosphärischen Taupunkt- bzw. Frostpunkttemperaturen (bis < -75°C) äusserst präzise Messergebnisse liefert und gleichzeitig eine möglichst kurze Reaktionszeit aufweist. Zudem sollte es kompakt und robust sein. All diesen Anforderungen genügt das Taupunktspiegel-Hygrometer CR-2 der US-Firma Buck Research Instruments L.L.C. aus Boulder, Colorado.
Dieses Instrument wurde speziell für den Einsatz auf Flugzeugen entwickelt. Durch die Kühlung des Spiegels über einen „cryo-cycle“ Stirling-Kühler weist es einen Messbereich von -100°C bis +30°C auf. Die Reaktionszeit von 10-180 sec (je nach Feuchte) ermöglicht gleichzeitig eine zeitlich gut aufgelöste Messung der auftretenden Feuchteschwankungen. Über eine integrierte Druckmessung in der Messkammer ist die exakte Bestimmung des gemessenen Sättigungsdampfdruckes möglich. Das äusserst kompakte Instrument (Abmessung: 25 x 27.5 x 9.5 cm) lässt sich in das 19" grosse CARIBIC-Wasserinstrument integrieren. Die exotherme Arbeitsweise des Kühlmechanismus erforderte jedoch den Einbau eines speziellen Lüftungssystems.

5.1.1 Aufbau und Messprinzip

Das CR-2 Taupunkspiegel-Hygrometer setzt sich aus einem Spiegelmodul mit angeschlossenem Kühlsystem und der Optikeinheit zusammen. Die Luftprobe strömt mit einem Fluss von $\sim$ 2,5 vol-l/min durch die Messkammer und tritt dabei direkt in Kontakt mit der gekühlten Spiegeloberfläche. Einen Überblick gibt Abbildung 5.1. Als Spiegel wird eine dünne (0.003" = 76 μm) Edelstahlfolie verwendet, die über einen Stab mit dem Kühlfinger verbunden ist. Ein kleiner Thermistor an der Spiegeloberfläche misst die Spiegeltemperatur.

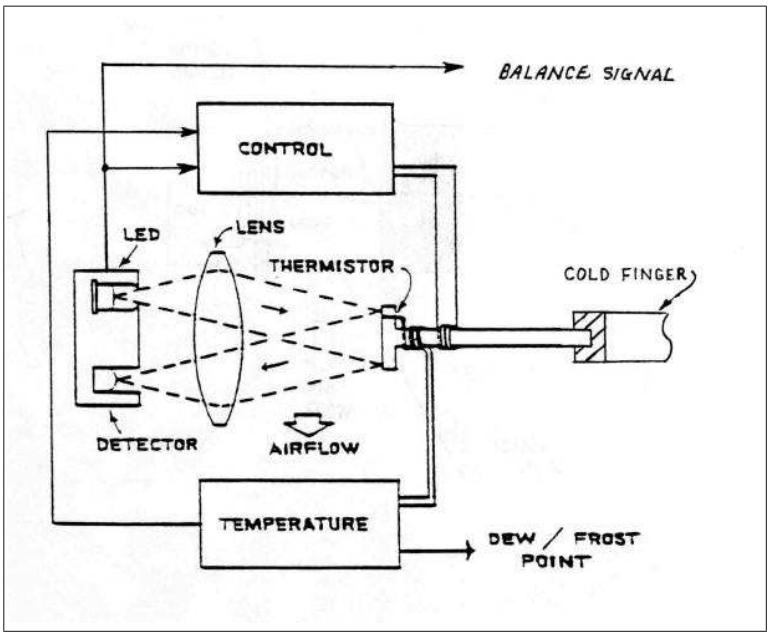

Abb. 5.1: Blockdiagramm der Messeinheit des Taupunktspiegel-Hygrometers CR-2 (Buetow, 2001).

Dem Spiegel gegenüber ist die Optikeinheit angebracht, bestehend aus einer LED, einer Linse und zwei Phototransistoren. Einer der Phototransistoren kontrolliert die ausgestrahlte Intensität der LED. Der andere empfängt den vom Spiegel reflektierten und durch die Kondensatschicht um etwa 8-15% abgeschwächten Lichtstrahl (Buetow, 2001). In der Kontrolleinheit laufen die Informationen des Spiegelthermistors und der Phototransistoren zusammen.

Abhängig von der Abschwächung des Lichtstrahls regelt die Kontrolleinheit die Spiegeltemperatur. Durch die thermische Kopplung des Spiegels an den Kühlfinger transportiert der Heliumkreislauf des Stirling-Kühlers fortwährend Wärme von der Spiegeloberfläche ab. Über eine, um den Stab des Spiegels gewickelte Heizspirale bringt die Kontrolleinheit den Spiegel auf die Temperatur, bei der er von einer vordefinierten Kondensatschicht bedeckt ist (wobei die Abschwächung der Strahlungsintensität im gewünschten Bereich liegt) und sich Verdunstung/Sublimation und Kondensation/Resublimation die Waage halten. Ist dies der Fall, so entspricht die Spiegeltemperatur dem gesuchten Taupunkts und wird als solcher vom Spiegelthermistor ausgegeben.

Je nach Feuchtetendenz sorgt im Folgenden ein entsprechendes Erhöhen oder Verringern der Heizleistung für die Erhaltung dieser dünnen Kondensatschicht. Die Regelabweichung wird über die „Balance“ mit der Dimension 1 angegeben. Bewegt sie sich im Bereich zwischen $\pm$ 200 ist das System eingeregelt und die angezeigte Temperatur entspricht dem tatsächlichen Taupunkt.

5.1.2 Funktionsweise des Regelkreises zur Temperaturregelung des Spiegels

Die Einregelung des Spiegels erfolgt über einen PID-Regelkreis, dessen Regelgrössen Ansprechzeit und Einschwingverhalten des Hygrometers beeinflussen.
Die Regelgrösse ist die auf den Photodetektor auftreffende Lichtleistung. Diese Istgrösse wird im Kontrollmodul (Regler) mit dem vordefinierten Sollwert verglichen. Bei einer Abweichung beider Werte (Regelabweichung) beginnt der Regler das System zu beeinflussen, bis keine Regelabweichung mehr auftritt. In Abhängigkeit der Grösse der Regelabweichung veranlasst er eine Änderung der Stellgrösse, die hier der Leistung der Heizspirale entspricht. Durch Veränderung ihres Versorgungsstromes (Steuergrösse) erhöht oder verringert der Regler die Heizleistung. Dies bewirkt eine Zu- bzw. Abnahme der Kondensatschicht und eine damit verbundene Änderung der Intensitätsabschwächung.
Heizspirale, Spiegel und Photothermistor bilden zusammen die Regelstrecke, also den Bereich, der dem Einfluss des Reglers unterliegt.
Als Regler wird beim CR-2 Hygrometer ein sog. PID-Regler eingesetzt. PID steht für Proportional, Integral und Differential. Dies bedeutet, wie Gleichung 5.1 zu entnehmen ist, dass in die Berechnung der Stellgrösse y ein, der Regelabweichung e proportionaler, integraler und differentieller Anteil der Regelabweichung eingeht.

$$y = K_P \cdot e + K_I \cdot \int_0^t e(t)dt + K_D \cdot \frac{de(t)}{dt} \qquad [5.1]$$

$K_{P,I,D}$ sind dabei die jeweiligen Beiwerte für die drei Anteile.
Durch das richtige Zusammenspiel der einzelnen Anteile ist eine präzise und schnelle Einregelung des Systems möglich. In Abbildung 5.2 sind die Verhaltensweisen der einzelnen, im Folgenden dargestellten Regleranteile aufgetragen.

Proportionalteil : Dieser direkt zur Regelabweichung proportionale Anteil beeinflusst, wie stark das System auf eine Störung reagiert. Je grösser die Regelabweichung, desto grösser ist auch der errechnete Stellwert. Allerdings muss die Regelabweichung erst einen bestimmten Schwellenwert erreichen, bevor die Regelung einsetzt. Unterhalb des Schwellenwertes wird keine Stellgrösse erzeugt. Istwert und Sollwert können sich mit einem reinen P-Regler nie vollständig angleichen, wodurch immer eine gewisse Regelabweichung erhalten bleibt (Moros et al., 2008).

Integralteil : Durch Hinzunahme des Integralteils lässt sich die Regelabweichung des Proportionalteils eliminieren. Er summiert die Regelabweichung über ihre Zeitdauer auf, multipliziert den entstehenden Wert mit dem Beiwert K_I und addiert das Ergebnis zu der über den proportionalen Anteil errechneten Stellgrösse hinzu. So nähert sich der Istwert immer mehr dem Sollwert an, was letztendlich zur vollständigen Aufhebung der Regelabweichung führt. Tritt durch eine Störung eine erneute Regelabweichung auf, die jedoch unterhalb des Schwellenwertes des Proportionalreglers liegt, so ist der I-Teil in der Lage, diese Abweichung wieder auszugleichen. Unter Verwendung

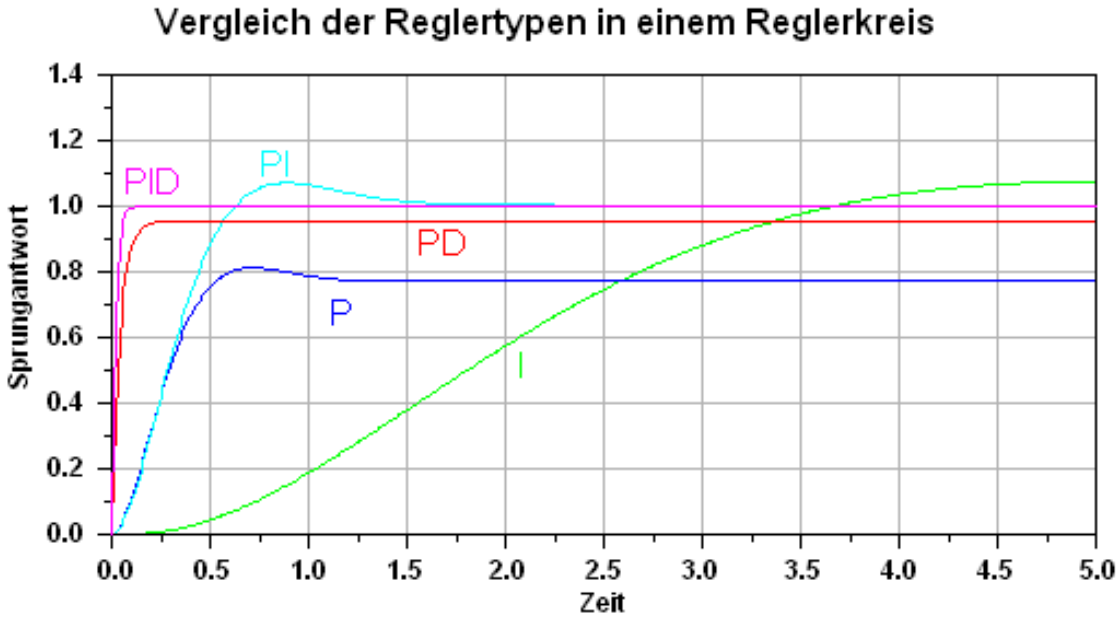

Abb. 5.2: Darstellung der Verhaltensweisen verschiedener Regler auf eine Regelabweichung. Ein sprunghafter Anstieg der Eingangsgrösse führt zu der reglerabhängigen Sprungantwort.

der Nachstellzeit T_N kann der Integrationsbeiwert K_I in Relation zum Proportionalteil gebracht werden:

$$K_I = \frac{K_P}{T_N} \qquad [5.2]$$

Als Nachstellzeit bezeichnet man die Zeit, die benötigt wird um über den Integralteil die gleiche Änderung der Stellgrösse hervorzurufen, die sich über den Proportionalteil direkt ergibt ($K_P = K_I \cdot T_N$). Je grösser T_N, desto geringer fällt der Beitrag des Integralteils an der Stellgrösse aus. Eine zu starke Gewichtung des Integralteils (kleine T_N) kann zu einer Schwingung um den Sollwert führen. Das liegt daran, dass der Integrationsbeitrag erst null wird, wenn die Regelabweichung einmal das Vorzeichen gewechselt hat. Bei großem K_I fällt diese Überschwingung entsprechend groß aus und es kann zu weiteren Schwingungen kommen (Moros et al., 2008).

Differentialteil : Der Differentialteil ergänzt die Stellgrösse um einen Term, der proportional zur zeitlichen Änderung der Regelabweichung ist. Er wirkt der Regelabweichung sofort bei derem erstmaligen Auftreten entgegen. Das Entgegenwirken ist umso stärker, je schneller sich die Regelabweichung mit der Zeit ändert (je grösser also der Faktor $\frac{de}{dt}$ ist). Nimmt die Änderung der Regelabweichung mit der Zeit ab, so verringert sich auch der Beitrag des Differentialanteils bei Berechnung der Stellgrösse.

Auch hier lässt sich der Beiwert in Beziehung zum Beiwert des Proportionalteils bringen. In diesem Fall mit der Vorstellzeit T_V. Sie lässt sich am Besten anhand einer linearen Anstiegsfunktion

als Beispiel erklären. Bei einer solchen Funktion liegt eine konstante zeitliche Änderung der Regelabweichung vor. Daher induziert der Differentialteil unverzüglich die notwendige Änderung der Stellgrösse und wirkt damit der Änderung direkt entgegen. Ein reiner Proportionalregler würde deutlich langsamer reagieren, da die auftretende Regelabweichung zunächst nur sehr klein ist und auch so nur eine schwache Gegenwirkung in Kraft tritt. Die Zeit, die ein Proportionalregler benötigt, um den gleichen Stellwert zu erreichen, den der Differentialteil sofort erzeugt, trägt den Namen Vorstellzeit (Müller, 2004). Es gilt $T_V = K_D/K_P$. Der Differentialteil trägt so zur schnellen Einregelung des Systems und zur Verhinderung der vom Integralteil induzierten Schwingungen bei, wirkt also stabilisierend.

Der PID-Regler ist damit in der Lage, durch seinen Proportionalteil ohne grössere Zeitverzögerung auf eine Regelabweichung zu reagieren und gleichzeitig durch den Integralteil genau auszuregeln. Über den Differentialanteil reagiert der Regler entsprechend der Änderung der Regelabweichung und kann so einer starken Änderung (Sprung, in diesem Fall eine schnelle Feuchteänderung) schnell und gezielt entgegenwirken.

5.2 Labormessungen und Bestimmung geeigneter PID

Nach den ersten Einsätzen im Rahmen von CARIBIC zeigte sich, dass das Verhalten des Instruments, vor allem im Hinblick auf die Detektion kurzzeitiger Fluktuationen, noch verbesserungsfähig war. Über mehrere Labormessungen wurden akzeptable PID-Werte von P=2, I=350 und D=530 ermittelt, die über ein Jahr zum Einsatz kam.
Da das Taupunktspiegel-Hygrometer auch eine Komponente des neuen CARIBIC-Wasserinstruments bildet, wurde über Labormessungen versucht sein Verhalten zu optimieren. Das Ziel war die Reaktionszeit weiter zu verkürzen und das Einschwingverhalten dabei möglichst gering zu halten.

Vorgehensweise zur PID-Bestimmung

Generell ist die Einstellung der PID-Parameter im sog. Diagnostic Mode des Hygrometers möglich, welcher kurz nach Einschalten des Instumentes erreichbar ist. Neben der Einstellung der PID-Parameter sind hier auch weitere Grössen wie z.B. die Kondensat-Schichtdicke auf dem Spiegel veränderbar. Doch auch während der Messungen ist über einen, mit dem Instrument verbundenen PC (via RS-232) die Veränderung der PID-Parameter möglich. Die Eingabe von „D“ bzw. „d“ führt zu einer Multiplikation, respektive Division des voreingestellten Differentialwertes mit 1.5. Für die anderen Parameter gilt entsprechend das gleiche.
Die neuerliche Bestimmung der Parameter sollte über eine Erhöhung des Proportionalteils im ersten Schritt und nachfolgender Variation des Differentialteils bei konstant gehaltenem P- und zu Null ge-

setztem I-Anteil erfolgen. Bei gleichförmig durchgeführten Feuchteveränderungen wurde das Verhalten jeder eingestellten PD-Kombination auf die Veränderungen bei verschiedenen Mischungsverhältnissen untersucht.

Ausgangswerte für die ersten Testmessungen waren ein Proportionalteil von P=5.0625 und ein Differentialteil von D=225. Die schrittweise Erhöhung des Differentialteiles bei Mischungsverhältnissen zwischen 1000 und 2000 sowie 500 und 30 ppmv führte zu den in Abbildung 5.3 gezeigten Ergebnissen. Bei niedrigen D-Werten (aufgetragen in blau und grün) sind in Bereichen hoher Feuchte deutliche Über-

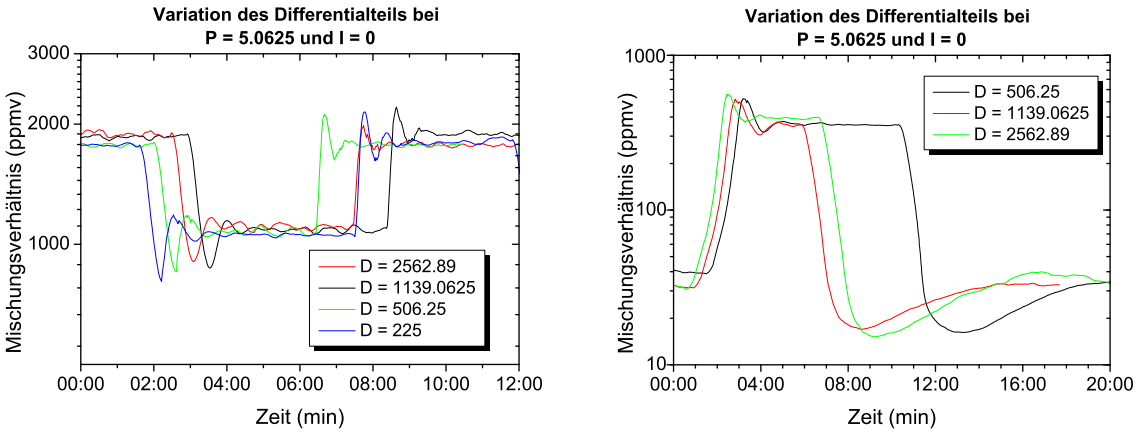

Abb. 5.3: Verhalten des Regelers bei einer Variation des D-Teils bei hohen (links) und niedrigen (rechts) Mischungsverhältnissen mit P=5.0625 und I=0. Die Werte des D-Teils sind der Legende zu entnehmen.

schwingungen bei einer Feuchteänderung zu erkennen. Mit zunehmenden D-Werten (schwarz und rot) nimmt die Amplitude der Überschwingung ab, wobei sie sich gleichzeitig etwas verbreitern und Änderungen insbesondere bei niedrigen Feuchten langsamer sind. Der gegenüber P hohe D-Teil verlangsamt also die Systemgeschwindigkeit. Das Signal weist bei niedrigen D-Werten einen ruhigen Verlauf mit verhältnismässig kurzem Einschwingverhalten auf. Bei höheren Werten, vor allem bei D=2256 zeigen sich deutliche Signalschwankungen bei konstanter Feuchte, die eine Tendenz zur Instabilität zeigen.

Bezieht man auch die Balance mit ein (Abbildung 5.4), so fällt der deutliche Offset bzw. fehlende I-Teil ins Auge. Daher ist fraglich, ob die angezeigte Taupunktstemperatur der tatsächlich herrschenden entspricht. Durch Hinzunahme des Integralteils liess sich dieser Offset weitgehend eliminieren.

Anhand der gewonnenen Erkenntnisse über den Zusammenhang zwischen Systemverhalten und gewählten Parametern war es in weiteren Labormessungen möglich, den Proportionalteil noch einmal zu erhöhen und die beiden anderen Regelgrössen entsprechend anzupassen. Die dabei gewonnenen Messergebnisse zeigt Abbildung 5.5.

Zu Beginn der Messphase (08:00 UTC) mit den Parametern P=4.5, I=600 und D=350 besitzt das Signal ein Schwingverhalten, wahrscheinlich eine Folge des kleinen Differentialanteils. Dieses verringert sich leicht mit der Erhöhung des Differentialanteiles auf D=525 gegen 11:15 Uhr. Nach weiterer Erhöhung des Proportionalanteils gegen 12:42 auf P=6.75 scheint die Signalabnahme bei Verringerung der

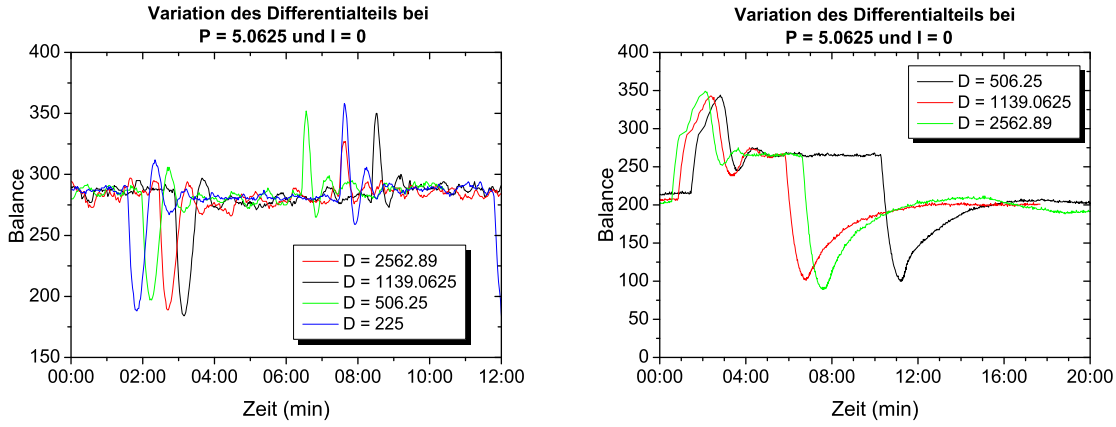

Abb. 5.4: Balance-Verlauf während Variation des D-Teils bei hohen (links) und niedrigen (rechts) Mischungsverhältnissen mit P=5.0625 und I=0. Die Werte des D-Teils sind der Legende zu entnehmen.

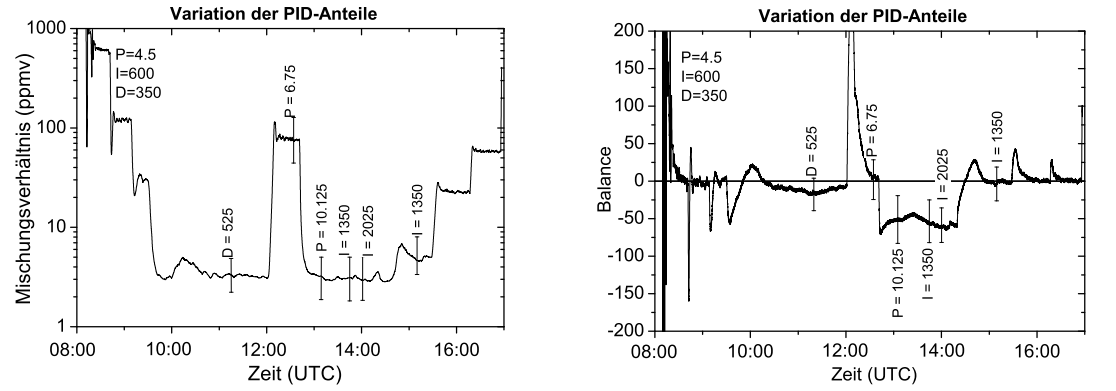

Abb. 5.5: Signalverhalten bei nochmals erhöhtem Proportionalanteil. Links: Mischungsverhältnis, rechts: Balance. Die jeweils eingestellten Regleranteile sind in der Abbildung eingetragen.

Feuchte etwas steiler und damit schneller zu sein als beim ersten Abstieg. In der Balance tritt der durch den Integralteil bedingte Offset nun deutlicher hervor. Die anschliessende Erhöhung des Proportional- und Integralanteils auf P=10.125 (13:08 Uhr) und I=1350 (13:44 Uhr) zeigt zunächst keine deutliche Veränderung des Mischungsverhältnisses und der offset-behafteten Balance. Eine weitere Erhöhung des Integralanteiles auf I=2025 um 14:00 Uhr führte, wie im rechten Schaubild deutlich zu erkennen ist, zur Behebung des Offsets. Gleichzeitig traten im Mischungsverhältnis jedoch Schwankungen auf, die in den zugehörigen Photoakustik-Daten nicht auftraten (nicht gezeigt) und so auf ein Instabilwerden des Systems hindeuteten. Dies veranlasste die erneute Verringerung auf I=1350.
Die anschliessend durchgeführte Erhöhung der Luftfeuchtigkeit deutet an, dass die nun eingestellten Parameter P=10.125, I=1350 und D=525 die gewünschten Anforderungen an das Messverhalten erfüllen.
Eine endgültige Bestätigung der gewählten Parameter brachte der darauffolgende CARIBIC-Flug. Bei Vergleichen mit einem früheren Flug (Abbildung 5.6) mit den Parametern P=2, I=350 und D=530 lie-

ferte das Taupunktspiegel-Hygrometer mit den neuen Einstellungen weniger schwingungsbehaftete und schneller angepasste Messergebnisse.

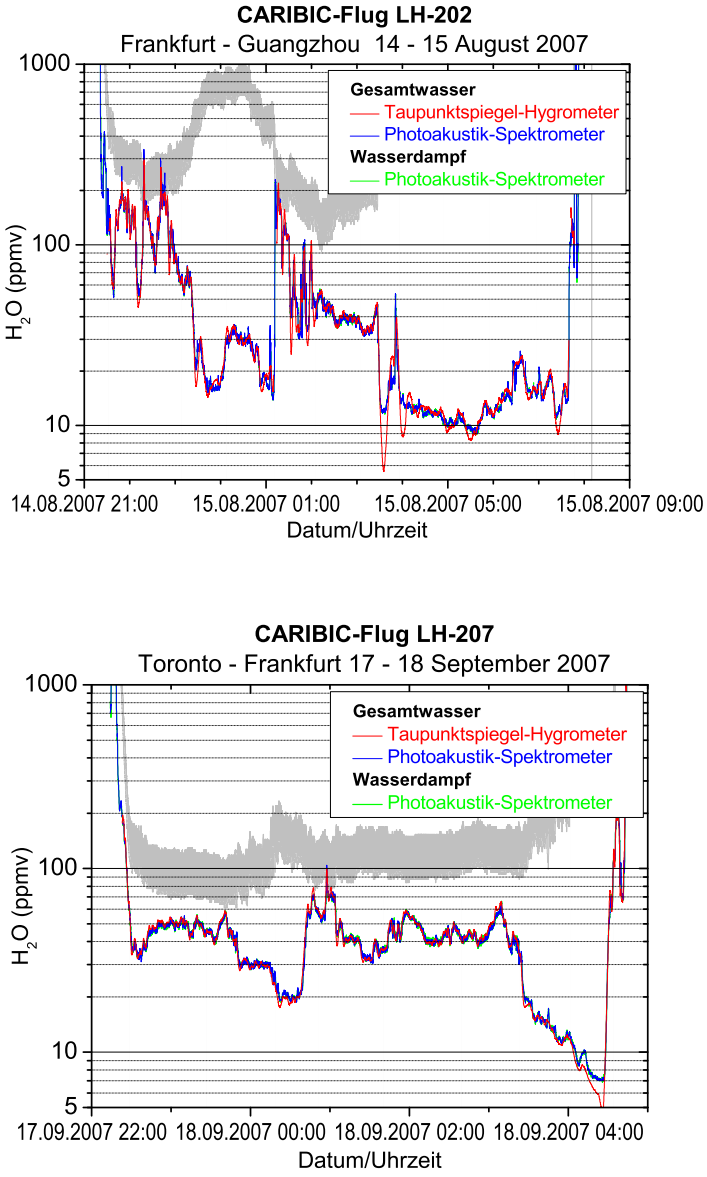

Abb. 5.6: Vergleich zweier CARIBIC-Flüge vor Anpassung der PID-Parameter (oben) und mit den neu angepassten Parametern (unten).

6 Messdaten

Seit Beginn von CARIBIC II im Dezember 2004 absolvierte der Container an Bord des A340-600 bis April 2008 insgesamt 33 Flugphasen mit rund 127 einzelnen Flügen. Dabei entstand eine Datenbank, die Messungen von etwa 100 verschiedenen Komponenten für fast alle Monate dieses Zeitraumes umfasst; lediglich im Januar fanden bislang aus organisatorischen Gründen keine Messflüge statt.
Während einer normalen Flugsequenz mit vier Flügen sammelt sich, z.B. im Falle des Wasserinstruments, ein Rohdatensatz in der Grössenordnung von 50 MB an. Er beinhaltet Taupunkt, Photoakustik-Signale, House-Keeping- und Flugdaten.
Die Kalibrierung der PA-Messungen und die Auswertung der Messflüge sind im Folgenden beschrieben.

6.1 Flugrouten

Anders als bei Forschungskampagnen ist die freie Wahl der Flugrouten in CARIBIC nicht möglich. Das CARIBIC-Konsortium kann lediglich unter 8-10 möglichen Flugzielen der Lufthansa A340-600 Flotte auswählen.
Von Juni 2005 bis März 2006 erfolgten die Flüge vorwiegend über den Atlantik bis in die Südhemisphäre, ausgehend von Frankfurt nach Santiago de Chile mit einem Zwischenstopp in Sao Paulo und zurück. Seit April 2006 wurde meist Manila (Philippinen) via Guangzhou (China) angeflogen; aber auch nach Toronto, Houston und Denver gab es vereinzelte Flüge (Abbildung 6.1).
Gerade auf der Südamerikaroute beeinflussen großflächige Biomassenverbrennungen die Zusammensetzung der Atmosphäre erheblich. Ähnliches gilt für die anthropogen verschmutzte Atmosphäre entlang der Asienroute. Hier liegt die Ursache maßgeblich in den z.T. noch sehr rückständigen Industrieanlagen und Raffinerien Chinas und Russlands.
Wie im Schemabild der Atmosphäre zu sehen (Abbildung 6.2), liegt die Flughöhe von 10-12 km bei den Asien-Flügen vorwiegend in der untersten Stratosphäre und damit in der extratropischen Tropopausen-Mischungsschicht. Bei den Flügen nach Südamerika wurde in Äquatornähe die mittlere bis obere Troposphäre durchflogen. Während Start und Landung gemessene Vertikalschnitte eröffnen Einblicke in die Atmosphäre im Einzugsgebiet der angeflogenen Flughäfen.

6.2 Datenauswertung

Die Auswertung der gewonnenen Daten vollzieht sich in mehreren Schritten, dabei kommen drei verschiedene Programme (geschrieben in Turbo-Pascal) zum Einsatz. Sie existierten bereits und wurden

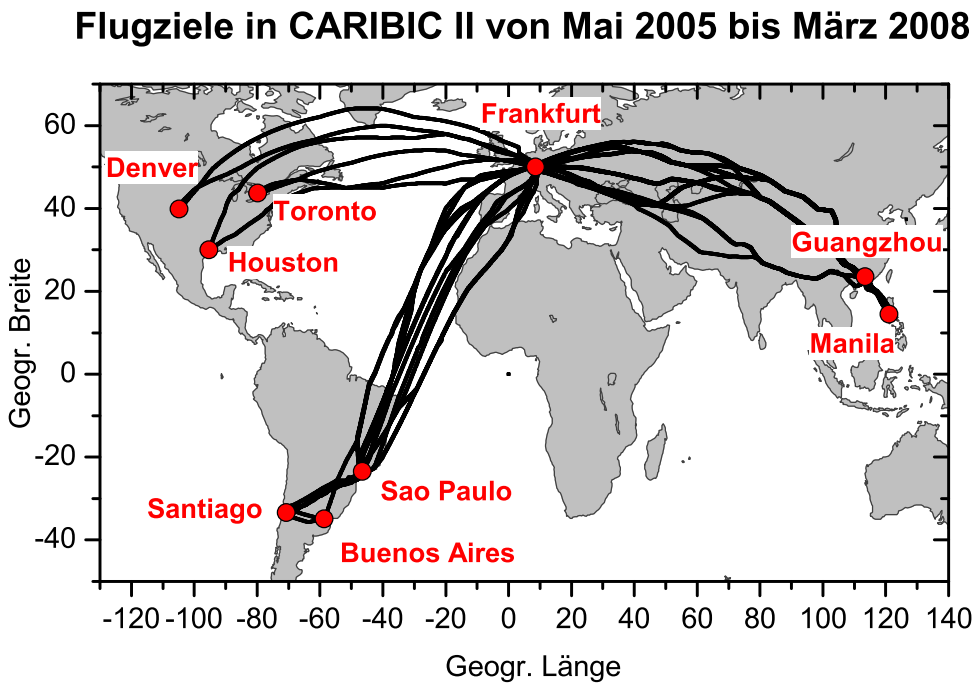

Abb. 6.1: Flugrouten während CARIBIC II

lediglich an verschiedenen Stellen modifiziert. Der Auswertungsprozess ist zur Veranschaulichung auch in einem Blockdiagramm (Abbildung 6.2.1) dargestellt.
Eine Auswertung beansprucht etwa einen halben bis ganzen Tag, jeder Flug muss einzeln ausgewertet werden.

6.2.1 Vorgehensweise zu Umrechnung des PA-Signals in ein Mischungsverhältnis

Den Hauptteil der Auswertung bildet die Kalibrierung der PA-Messungen und die anschliessende Umrechnung in ein Mischungsverhältnis. Das PA-Signal ist über ein Polynom 2.Grades mit dem Mischungsverhältnis(H_2O) verbunden (vgl. Kapitel 4.4.3):

$$\begin{aligned} \mathrm{PA} &= a \cdot H_2O^2 + m \cdot H_2O + b \\ &= b + m \cdot H_2O \left(1 + \frac{a}{m} \cdot H_2O\right) \end{aligned} \qquad [6.1]$$

Der Parameter b steht für das Hintergrundsignal[1], a beschreibt die quadratische Abhängigkeit des PA-Signals vom Mischungsverhältnis. Der Faktor m kann bei niedrigen Feuchten (d.h. bei $\frac{a}{m} \cdot H_2O \ll 1$) als Sensitivität der PA-Messungen interpretiert werden. Ein typischer Wert ist $\frac{a}{m} \approx \frac{1}{2800}$, d.h. bei 100 ppmv beträgt der quadratische Term etwa 4% des linearen.

[1] Grösse des PA-Signals ohne Vorhandensein von Feuchte.

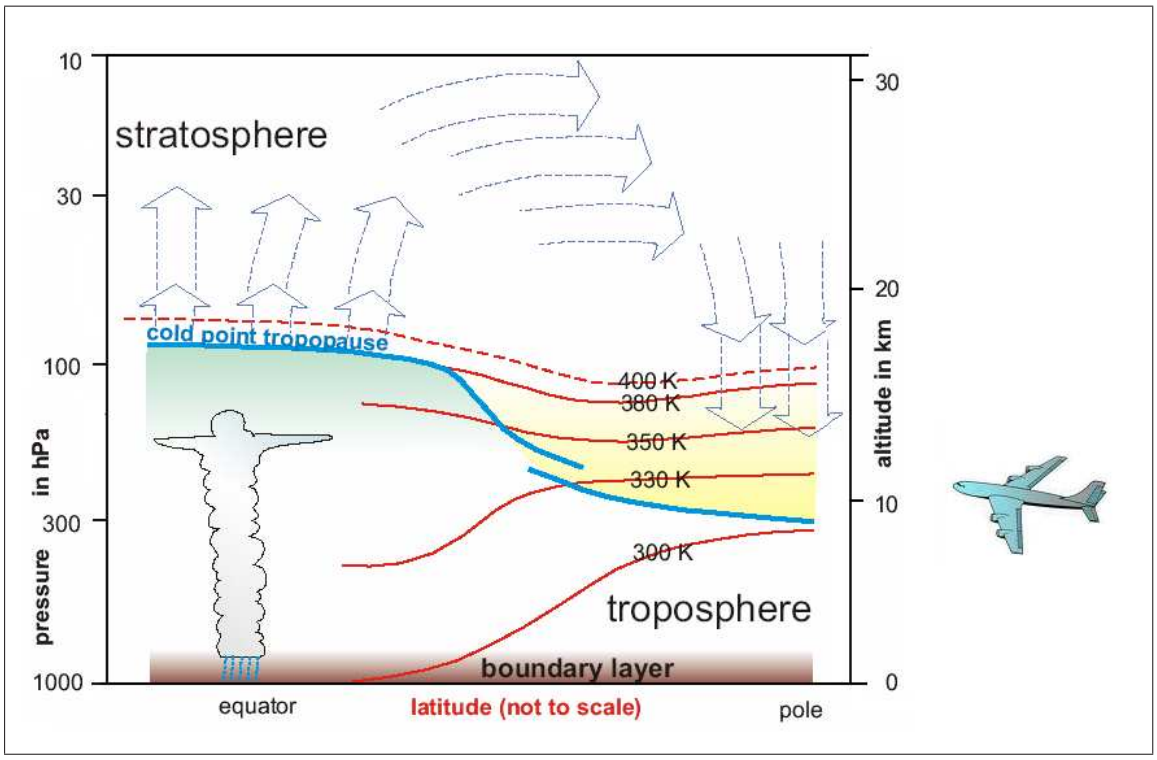

Abb. 6.2: Theoretisches Bild der Atmosphärenschichten mit eingezeichneter Flughöhe.

Diese Vorfaktoren werden in einem iterativen Prozess zur Kalibrierung der PA-Gesamtwassermessungen für jeden Flug neu bestimmt, nämlich durch Auftragung des PA-Signals gegen den in ein Mischungsverhältnis umgerechneten Taupunkt.
Die Kalibrierung der PA-Wasserdampfmessungen erfolgt (nach der Bestimmung der Vorfaktoren für die Gesamtwassermessungen) über das Verhältnis der beiden PA-Signale zu einander (Ratio R):

$$R = \frac{PA_{tot} - b_{tot}}{PA_{gas} - b_{gas}} = \frac{m_{tot}}{m_{gas}} \qquad [6.2]$$

R sollte (instrumentenbedingt) ausserhalb von Wolken nahezu konstant sein, bzw sich nur durch eine Druck- respektive Höhenänderung des Flugzeugs oder eine Laserdrift langsam ändern. Eine im Labor quantifizierte Temperaturabhängigkeit der Sensitivität (Abbildung 6.3) ist bereits in der Auswertungsroutine integriert $\left(\frac{dm_{tot}}{dT} = \frac{dm_{gas}}{dT} = 2.2\%K^{-1}\right)$.
Innerhalb von Wolken steigt R infolge des zusätzlichen Wolkenwassers/-eis sprunghaft an (der Dividend des Bruches wird grösser). R wird für jeden Punkt ausserhalb der Wolke berechnet und aufgetragen. Während der Kalibrierung wird b_{gas} anhand dieser Auftragung so bestimmt, dass das Ratio ausserhalb von Wolken einen möglichst konstanten Verlauf zeigt. Die Berechnung von m_{gas} erfolgt nach:

$$m_{gas} = \frac{PA_{gas} - b_{gas}}{H_2O} \hat{=} \frac{m_{tot}}{R} \qquad [6.3]$$

Am Ende der Kalibrierung sind die korrekten Vorfaktoren (sowohl für PA_{tot} als auch für PA_{gas}) von Gleichung 6.1 bekannt. Durch eine Umformung dieser Gleichung lässt sich das PA-Gesamtwassersignal in ein Mischungsverhältnis umrechnen:

$$H_2O = \frac{\frac{a}{m} \pm \sqrt{\left(\frac{a}{m}\right)^2 - \cdot \frac{a}{m} \cdot \frac{(PA-b)}{a}}}{2 \cdot \frac{a}{m}} \qquad [6.4]$$

Für die Umrechnung des PA-Wasserdampfsignals in ein Mischungsverhältnis wird Gleichung 6.3 umgeformt:

$$H_2O \quad = \quad R \cdot \frac{PA_{gas} - b_{gas}}{m_{tot}} \qquad [6.5]$$

Die einzelnen Schritte der Kalibrierung und Auswertung sind im Folgenden beschrieben.

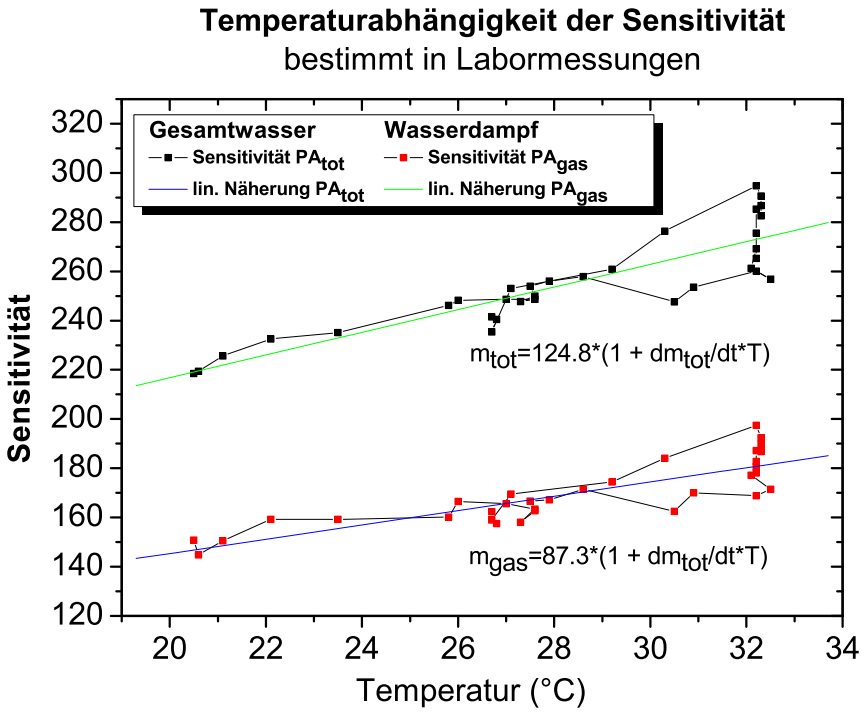

Abb. 6.3: Temperaturabhängigkeit der Sensitivität des PA-Systems, bestimmt über Labormessungen bei 300 hPa und konstanter Feuchte.

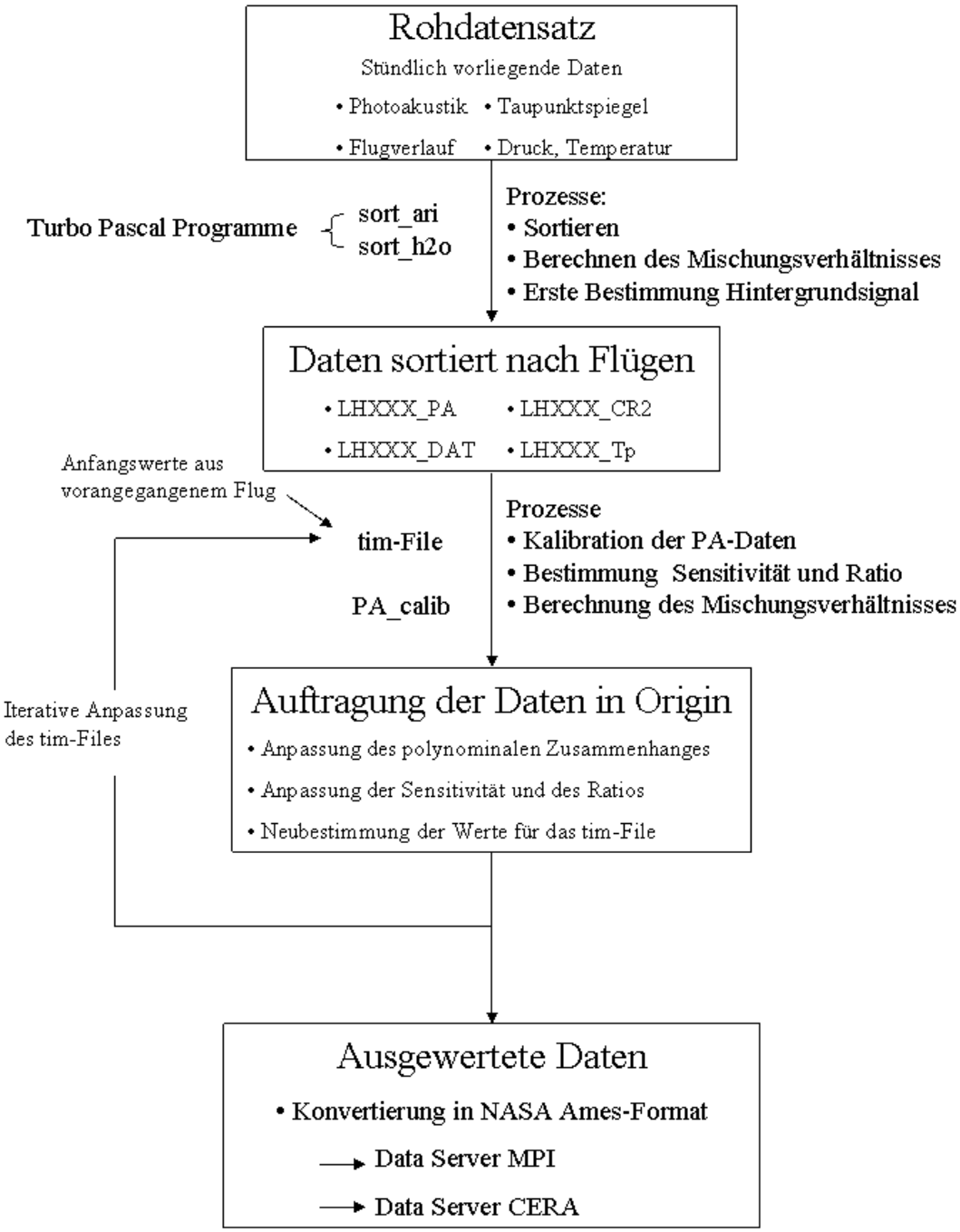

Abb. 6.4: Blockdiagramm zur Verdeutlichung des Kalibrierungsprozesses

6.2.2 Sortieren der Rohdaten

Zunächst fügen die Programme *sort_ari* (für Flugverlauf) und *sort_h2o* (für Wassermessungen) die, während des Fluges abgespeicherten Rohdaten zusammen und eliminieren falsche Datenpunkte bzw. Ausreisser.

Parallel dazu erfolgt die Umrechnung des Taupunkts in ein Mischungsverhältnis. Nach einer Formel von Buck (1981) ergibt sich aus der Taupunkt-/bzw. Frostpunkttemperatur der Sättigungsdampfdruck über Wasser e_w oder Eis e_e:

$$\mathrm{e_w} = 6.1121 \exp\left[\frac{(18.678 - T/234.5)T}{257.14 + T}\right] \text{ für } T > 0 \text{ in } ^\circ\mathrm{C} \quad [6.6]$$

$$\mathrm{e_e} = 6.1115 \exp\left[\frac{(23.036 - T/333.7)T}{279.82 + T}\right] \text{ für } T < 0 \text{ in } ^\circ\mathrm{C} \quad [6.7]$$

Daraus folgt das Mischungsverhältnis:

$$H_2O \text{ Wasser (ppmv)} = \frac{e_w}{p} * 1000000 \text{ für } T > 0 \text{ in } ^\circ\mathrm{C} \quad [6.8]$$

$$H_2O \text{ Eis (ppmv)} = \frac{e_e}{p} * 1000000 \text{ für } T < 0 \text{ in } ^\circ\mathrm{C} \quad [6.9]$$

Den Druck p (in hPa) messen Sensoren in den Messkammern des PA-Spektrometers und des Taupunktspiegels.
Zudem wird ein erstes Hintergrundsignal für die Kalibrierung der PA-Daten bestimmt (Näheres siehe Kapitel 6.2.3).

6.2.3 Kalibrierung der PA-Messungen

Für eine erste Bestimmung der Parameter von Gleichung (6.1) wird das PA-Gesamtwassersignal in einem Datenanalyseprogramm (Origin) über das Mischungsverhältnis aufgetragen und durch eine Funktion genähert (Abbildung 6.5). Dabei zeigt sich deutlich der polynome Zusammenhang. Aus der genäherten Funktion ergeben sich:

- Eine gute Abschätzung der quadratischen Abhängigkeit a_{tot}.
- Ein mittlerer Wert für m_{tot}, der als Startwert für den weiteren Auswertungsprozess (siehe weiter unten) dient.
- ein (gemittelter) Wert für das Hintergrundsignal b_{tot} aus dem y-Achsenabschnitt; er lässt sich aus dieser grobskaligen Auftragung aber nur ungenau bestimmen.

Die genauere Abschätzung des Hintergrundsignals b_{tot} sowie eines Startwertes für b_{gas} erfolgt durch das Auswertungsprogramm *sort_h2o* bereits während des Sortierens (vgl. Kapitel 6.2). Dabei werden alle PA-Signale um die Mischungsverhältnisse 20±5 ppmv und 50±5 ppmv gemittelt[2].
Da bei diesen geringen Mischungsverhältnissen der quadratische Anteil vernachlässigbar ist (vgl. Kapitel 6.2), können die beiden Punktwolken linear genähert werden (zur Verdeutlichung siehe Abbildung 6.6). Das sich aus der Geradengleichung ergebende Hintergrundsignal (Achsenabschnitt der Gleichung) wird im File PA-back.txt abgelegt und dient als Startwert für die weitere Auswertung.
Diese anfänglich bestimmten Parameter a_{tot}, b_{tot} und m_{tot} werden in eine Initialisierungsdatei (tim-File)

[2]Die Mischungsverhältnisse werden während des Sortierens aus der Taupunktstemperatur errechnet (siehe Kapitel 6.2).

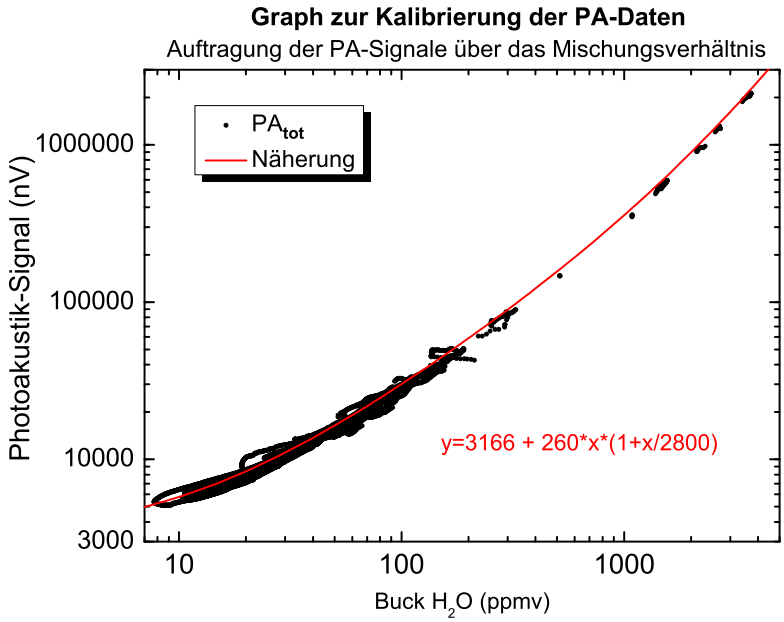

Abb. 6.5: Auftragung des PA-Gesamtwassersignals über das Mischungsverhältnis aus den Taupunktspiegel-Messungen (schwarz). Das Signal ist durch eine Funktion genähert (rot), deren Gleichung ebenfalls im Schaubild zu finden ist.

eingetragen, anschliessend berechnet das Programm *pa_ calib* unter Verwendung der Parameter in der Initialisierungsdatei die Sensitivität der PA-Gesamtwassermessung und das Ratio R. Die Sensitivität der PA-Gesamtwassermessung berechnet sich dabei durch Umstellen von Gleichung 6.1 einmal direkt für jeden Messpunkt und einmal als Mittel über 800 Punkte. Für die Wasserdampfmessungen erfolgt die Berechnung nach Gleichung 6.3.
Der Sensitivitätsverlauf der PA-Gesamtwassermessung wird, ebenfalls in Origin, über den Flugverlauf aufgetragen. Durch einen iterativen Prozess von Variation der Vorfaktoren a_{tot}, b_{tot} und m_{tot}, anschliessender Neuberechnung mit dem Programm *pa_calib* und erneuter Auftragung wird der Sensitivitätsverlauf so angepasst, dass er über den gesamten Flug möglichst konstant ist (Abbildung 6.7)
Parallel dazu wird auch der Verlauf des Ratios aufgetragen (Abbildung 6.8) und durch Anpassung von b_{gas}[3] (ebenfalls iterativ) so verändert, dass auch er möglichst konstant ist (siehe Kapitel 6.2.1).

Nach diesem iterativen Prozess sind die Vorfaktoren von Gleichung 6.1 für den jeweiligen Flug bestimmt und die PA-Signale werden mit den Gleichungen 6.4 und 6.3 in ein Mischungsverhältnis umgerechnet. Innerhalb von Wolken nimmt das Ratio durch den Anstieg des Gesamtwasser-Mischungsverhältnisses zu (vgl. Kapitel 6.2.1), die Berechnung der Sensitivität nach Gleichung 6.3 stimmt damit nicht mehr.

[3] Dessen Startwert im Programm *sort_h2o* bestimmt wurde.

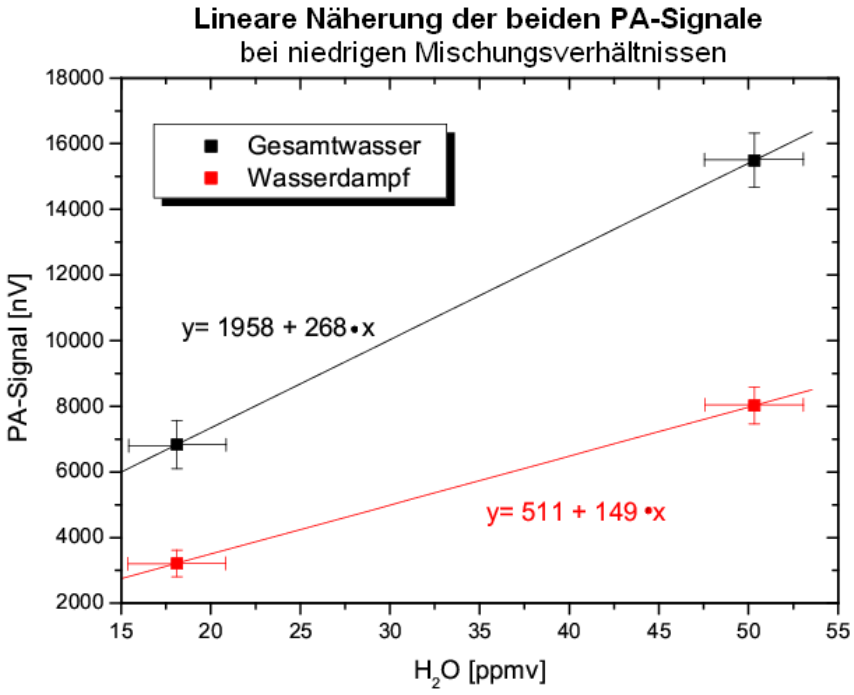

Abb. 6.6: Lineare Näherung der PA-Signale bei niedrigen Mischungsverhältnissen. Die beiden Punkte ergeben sich aus einer Mittelung der PA-Signale in einem festgelegten Feuchtebereich. Die Fehlerbalken stellen die möglichen Abweichungen dar. Mittelung und lineare Näherung werden vom Programm *sort_h2o* durchgeführt. Die y-Achsenabschnitte entsprechen den Hintergrundsignalen b_{tot} und b_{gas}

Für die Sensitivitätsberechnung in der Wolke wird das letzte Ratio verwendet, welches vor Auftreten der Wolke berechnet wurde. Die Entscheidung, ob sich das Flugzeug in einer Wolke befindet oder nicht (und ob die Berechnung nach der einen oder nach der anderen Methode erfolgt), ist an das Verhalten von *R* geknüpft. Übersteigt *R* seinen mittleren Wert um ein bestimmtes Maß wird der nachfolgende Bereich als Wolke behandelt, bis es sich wieder, ebenfalls um ein bestimmtes Maß seinem mittleren Wert vor der Wolke angenähert hat. Die Festlegung der beiden Grenzwerte wird durch Fluktuationen von *R* erschwert: Bis zu welcher Überschreitung ist es noch eine Fluktuation und ab wann liegt tatsächlich eine Wolke vor, bzw. ab wann nicht mehr?

Bisher konnte ein guter Mittelweg gefunden. Bei einzelnen Flügen traten dennoch Probleme auf, in der Form, dass dem Programm nach einer Wolke der „Einstieg “ in die Berechnung ausserhalb der Wolke nicht gelang. Während der verbleibenden Flugzeit wurde die Sensitivität der PA-Wasserdampfmessungen dann mit dem konstanten Ratio berechnet. Dies kann durch die Abhängigkeit der Ratios von Druckänderungen und Laserdriften (Kapitel 6.2.1) zur Berechnung eines falschen Mischungsverhältnisses führen.

Die vollständig ausgewerteten PA-Daten der einzelnen Flüge werden in das NASA Ames-Format konvertiert und in einer Datenbank des MPI Chemie (Mainz) sowie der CERA Datenbank zur Verfügung

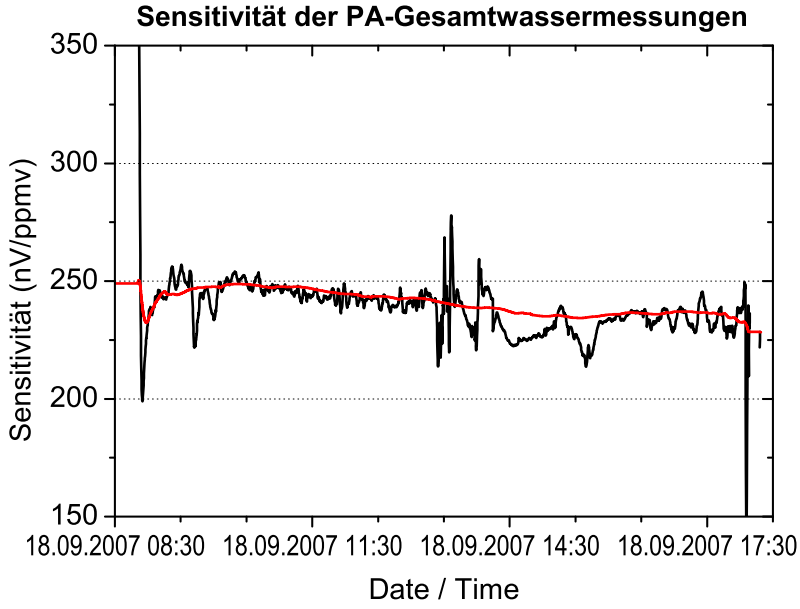

Abb. 6.7: Sensitivitätsverlauf der PA-Gesamtwassermessungen während eines Fluges. Die schwarze Linie beschreibt die (leicht gemittelten) [4]Sensitivitätswerte für die einzelnen Messpunkte. In rot ist die Mittelung der Sensitivität über (in der Regel) 800 Punkte aufgetragen.

gestellt. Die Daten des Taupunktspiegel-Hygrometers werden nur zur Kalibrierung der PA-Daten benutzt und nicht in die Datenbanken eingetragen.

6.2.4 Zukünftig anstehende Verbesserungen des Kalibrierungsprozesses

In den Auswertungen der einzelnen Flüge zeigte sich, dass das Auswertungsprogramm *pa_calib* noch an einigen Stellen zu verbessern ist. So soll z.B. die Druckabhängigkeit der Sensitivität (Abbildung 4.4) und infolge dessen von R in Zukunft im Labor besser quantifiziert und in das Auswertungsprogramm integriert werden.

6.3 Qualität der Daten

Vor der Auswertung soll zusammenfassend die Qualität der Messungen beschrieben werden. In einer Vergleichsmessung mit einem hochpräzisen Taupunktspiegel-Hygrometer (MBW 373-LX der Firma MBW Calibration Ltd., Wettingen, Schweiz) am 25.11.2005 an der AIDA-Kammer zeigte das Taupunktspiegel-Hygrometer eine insignifikante Abweichung von $(0.9 \pm 3)\%$ (Abbildung 6.9).
Seine Auflösung beträgt in Abhängigkeit der Feuchte 30-300 Sekunden. Für das PA-Spektrometer ergab

[4]Da PA-System und Taupunktspiegel-Hygrometer eine unterschiedliche Messfrequenz aufweisen, müssen die beiden Signale über kurze Mittelungen (etwa 10 Sekunden) zusammengeführt werden.

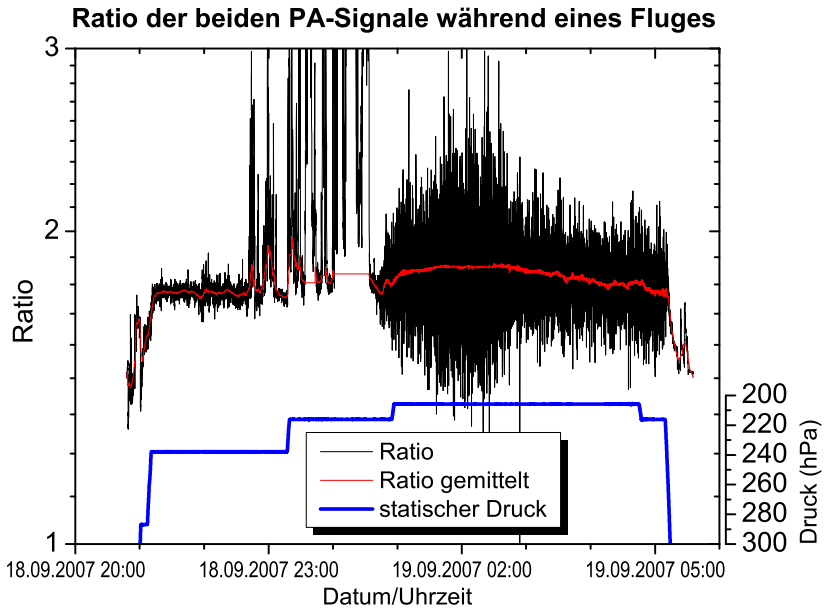

Abb. 6.8: Auftragung des Ratios zwischen den beiden PA-Signalen während des gesamten Fluges. In schwarz der direkte Verlauf (Berechnung für jeden Messpunkt), in rot eine Mittelung der Werte über 100-500 Punkte (in Abhängigkeit des Signals). Bei niedrigem Mischungsverhältnis (niedriges PA-Signal) ist R stark verrauscht (ab 1 Uhr). In blau aufgetragen ist der statische Druck in hPa. Die starke Zunahme des Ratios zwischen 22 und 1 Uhr entsteht durch Wolken. Vor Auftreten der Wolken ist der Mittelwert des Ratios niedriger als danach. Dies ist der Änderung der Flughöhe (Abnahme des Druckes) zuzuschreiben.

sich aus Kalibrierungsmessungen eine Genauigkeit von etwa 0.5 $\frac{\mu mol}{mol}$ bei einer zeitlichen Auflösung von 2.7 Sekunden bei hohem Signal und bis zu 40 Sekunden bei niedrigem Signal [5]. Durch Hinzunahme der mittleren Fluggeschwindigkeit von ≈260 m/s lässt sich die horizontale Auflösung der Messungen berechnen. Sie beträgt für die PA-Messungen 700m -10 km, für den Taupunktspiegel 7-80 km.

Da es sich bei der Messplattform um ein, im regulären Flugverkehr eingesetztes Flugzeug handelt, sind die gewonnenen Daten durch die Regularien der zivilen Luftfahrt geprägt. Die Piloten nutzen häufig die starken Winde im Bereich des Jet-Streams. Daher stammt ein grösserer Anteil der in CARIBIC gemessenen Daten aus der näheren Umgebung des Jet-Streams. Zudem werden in der Regel starke konvektive Zellen und Sturmgebiete weiträumig umflogen. Diese haben jedoch großen Anteil am Luftmassenaustausch, auch in der UT/LS. Für die Wassermessungen bedeutet dies, dass sich das gemittelte Mischungsverhältnis möglicherweise zu trockenen Werten hin verschiebt. Auch im Hinblick auf die Abschätzung übersättigter Regionen kann es zu Fehlern kommen, wenn diese vermehrt stromabwärts von Zyklonen und Sturmgebieten auftreten, wie es Detwiler und Pratt (1984) beschrieben (Gierens et al., 1999).

[5] Bei einem niedrigen Signal wird über mehr Messpunkte integriert als bei einem hohen

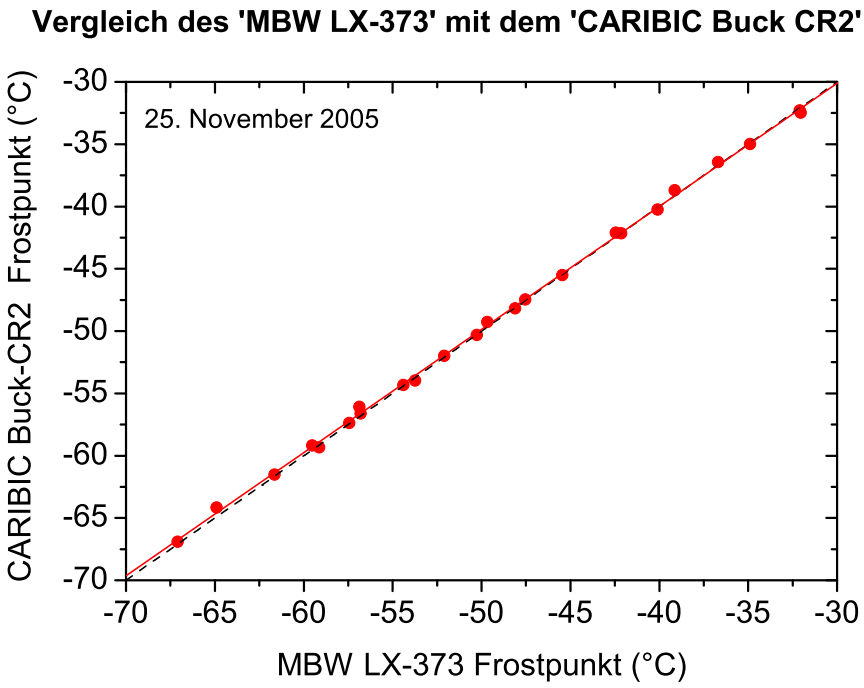

Abb. 6.9: Kalibrierung des CARIBIC Taupunktspiegel-Hygrometers mit dem hochpräzisen Taupunktspiegel-Hygrometer MBW 373-LX der Firma MBW Calibration Ltd. Die Messung wurde bei 1000 hPa durchgeführt. Im Mittel trat eine Abweichung von $(0.9 \pm 3)\%$ auf.

7 Auswertung

Zu Beginn der Auswertung soll an verschiedenen Beispielen gezeigt werden, welche Informationen die ausgewerteten Daten enthalten, und wie die Messungen zu interpretieren sind. Dem schliesst sich ein Überblick über alle bisher nach Asien absolvierten Flüge an, im Hinblick auf die saisonale Variation des Wasserdampfs sowie das Auftreten von übersättigten Regionen und Wolkenbildung. Zwar geht durch die Beschränkung auf die Asienroute nur ein Teil der erhobenen Daten in die Betrachtung mit ein. Allerdings ergibt sich damit ein repräsentativeres Bild der atmosphärischen Feuchteverhältnisse über dem eurasischen Kontinent.
Ein Vergleich der in CARIBIC gewonnenen Daten mit Reanalysen des ECMWF[1] zeigt zum einen mögliche Schwachpunkte des Analysemodells, deckt zum anderen aber auch mögliche Fehlerquellen in den CARIBIC-Daten auf.

7.1 Beschreibung eines typischen Fluges

Einen, nach der Beschreibung in Kapitel 6 ausgewerteten Flug von Guangzhou nach Frankfurt im Winter 2006 zeigt Abbildung 7.1. Die grüne Kurve beschreibt die PA-Wasserdampfmessungen. In blau sind die Ergebnisse der PA-Gesamtwassermessung dargestellt und die rote Kurve zeigt die Gesamtwassermessungen des Taupunktspiegel-Hygrometers. Durch die logarithmische Ordinate werden die Daten im Bereich geringer Mischungsverhältnisse höher aufgelöst.
Ausserhalb von Wolken verlaufen die blaue und grüne Kurve nahezu identisch (d.h. die beiden Mischungsverhältnisse sind gleich), was eindrücklich die hohe Qualität der PA-Messungen dokumentiert.
Der hellgraue Bereich zeigt den Verlauf der Sättigungsfeuchten. An seiner Unterkante ist Sättigung bzgl. Eis erreicht, an der Oberkante liegt Sättigung bzgl. Wasser vor. Befindet sich das Mischungsverhältnis eines Luftpakets innerhalb des grauen Bereiches, so ist das Paket gegenüber Wasser unter- und gegenüber Eis übersättigt. Die Sättigungsfeuchten werden über Gleichung 6.6 aus den Temperaturmessungen des Flugzeugs berechnet. Wolken sind vorhanden, sobald der Gesamtwassergehalt (PA_{tot}) grösser ist als der Wasserdampfgehalt, wie es in Abbildung 7.1 deutlich zu sehen ist. Während das Wasserdampf-Mischungsverhältnis bei 100% Sättigung gegenüber Eis verbleibt, liegt das Gesamtwasser-Mischungsverhältnis deutlich darüber (siehe auch Kapitel 7.2).
Über Subtraktion der beiden Mischungsverhältnisse und Berücksichtigung der Partikelanreicherungen (siehe Kapitel 3.3) ergibt sich direkt der Wasser- bzw. Eisgehalt der durchflogenen Wolken (schwarze

[1] ECMWF-Daten entstammen dem operationellen Archiv (OD)

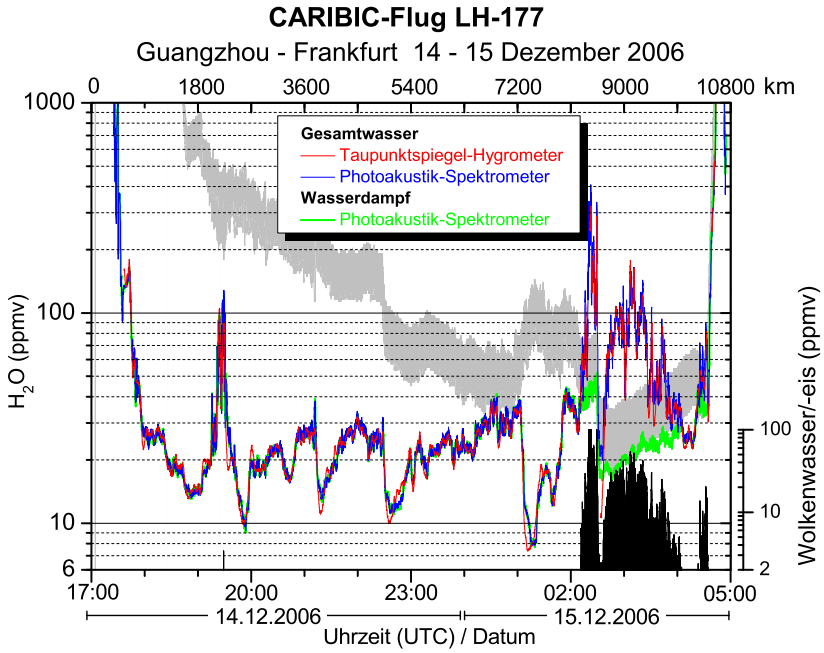

Abb. 7.1: Mischungsverhältnisse von Wasserdampf (grün) und Gesamtwasser (rot und blau) in Abhängigkeit der Zeit während des Fluges LH-177 von Guangzhou nach Frankfurt, 14.-15. Dezember 2006 (Winterflug). Die Oberkante des hellgrauen Bereiches stellt die Sättigungsfeuchte bzgl. Wasser dar, die Unterkante die Sättigungsfeuchte bzgl. Eis. In schwarz aufgetragen ist der Wasser-/Eisgehalt der Wolke (in ppmv). Das maximale Mischungsverhältnis der Wolken beträgt 100 ppmv und ist damit 2.5 mal höher als das von Wasserdampf. Die Temperatur in der Wolke (ausgedehnt über $\sim$ 2200 km, siehe x-Achse oben) betrug dabei $\sim -65°$C (nicht gezeigt). An der Oberseite des Diagrammes ist die zurückgelekte Flugstrecke in km angegeben, errechnet mit einer mittleren Fluggeschwindigkeit von 250 m/s.

Fläche in Abbildung 7.1). Die Detektion von Wolken wird weiter unten noch einmal detaillierter diskutiert.

Zu Beginn und am Ende des Fluges nimmt das Mischungsverhältnis stark ab bzw. zu. Diese Daten entstammen dem Auf- bzw. Abstieg des Flugzeugs und zeigen einen vertikalen bis diagonalen Schnitt durch die Atmosphäre. Sie wurden bisher noch nicht genau ausgewertet.

Aus Modelldaten des ECMWF lässt sich der Verlauf der dynamischen Tropopause während des Fluges bestimmen (Abbildung 7.2). Daran ist zu erkennen, dass der Flug (magenta) die meiste Zeit im Tropopausenbereich (rot-gelber Farbverlauf) erfolgte. Gegen 20 und 1 Uhr dringt stratosphärische Luft bis in den durchflogenen Bereich vor. Infolge dieses Eintrags trockener Luft nimmt das Mischungsverhältnis im Bereich der Intrusionen ab, wie in Abbildung 7.1 deutlich zu sehen ist (z.B. zwischen 1 Uhr und 1:30 Uhr)

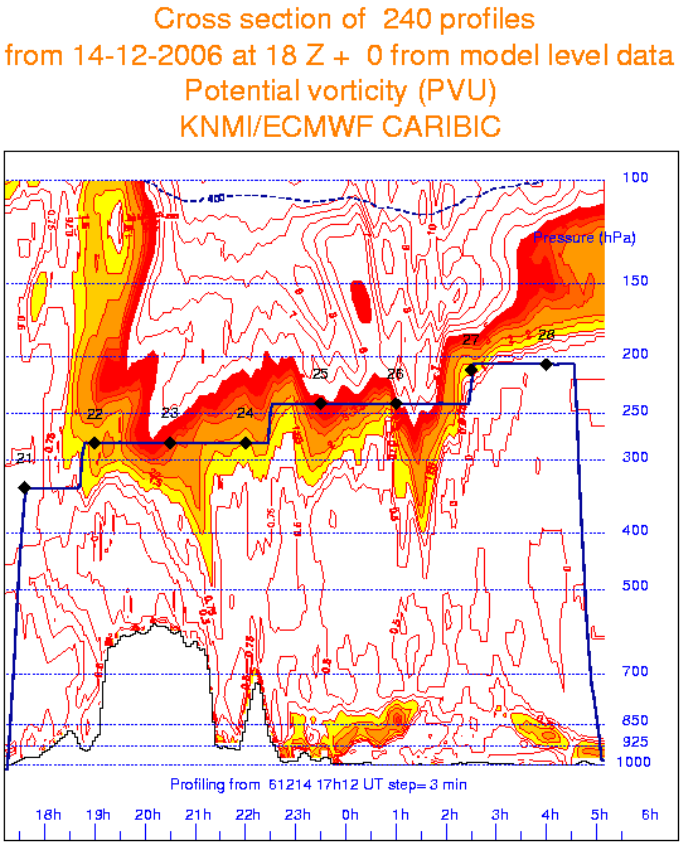

Abb. 7.2: Querschnitt der Atmosphäre mit dem Verlauf der PV-Isoplethen (rote Linien, unterhalb der Tropopause in 0.25 PVU, darüber in 1 PVU-Schritten) und der Tropopausenregion (1-5 PVU rot-gelber Farbverlauf) während des Fluges LH-177. Der Flugverlauf (in Abhängigkeit des Druckes) ist in dunkelblau eingezeichnet. Die Skalierung der x-Achse (Zeit) entspricht der in Abbildung 7.1. Quelle: http://www.knmi.nl/samenw/campaign_support/CARIBIC/index.html

Das Resultat eines Sommerfluges zeigt Abbildung 7.3. Im Vergleich zum eben diskutierten Winterflug treten im Sommer höhere Mischungsverhältnisse auf, insbesondere im ersten Flugabschnitt bis 21 Uhr. Diese hohen Mischungsverhältnisse lassen sich möglicherweise mit Luftmassen in Zusammenhang bringen, die im Zuge der starken Monsunaktivität zu Beginn des August 2007 in die UT/LS-Region eingetragen wurden. In das Bild passt auch die starke Abnahme des Mischungsverhältnisses nach 21:15 Uhr. Gettelman et al. (2006a) fanden in Daten des AIRS-Satelliten[2] auf der Westseite des asiatischen Monsuns im Juli und August ebenfalls Luftmassen mit sehr geringen relativen Feuchten.

Die plötzliche starke Abnahme des Mischungsverhältnisses zu Flugbeginn kommt durch ein Eintrag stratosphärischer Luft in Form einer Tropopausenfalte zu Stande, wie sich anhand des Tropopausenverlaufs aus den Modelldaten (Abbildung 7.4) zeigt. Gegen 21 Uhr senkt sich die Tropopause ab, gleichzeitig

[2] AIRS: Atmospheric Infrared Sounder, Satellit auf sonnensynchroner, polumlaufender Bahn. Arbeitet mit Nadir-Sondierung und liefert vertikal hochaufgelöste, globale Messungen der Feuchteverhältnisse in der Atmosphäre.

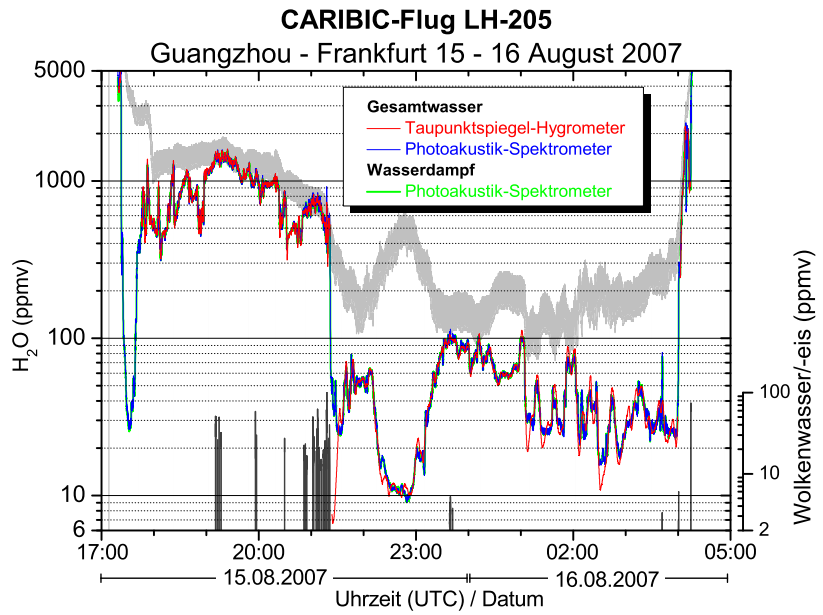

Abb. 7.3: Mischungsverhältnisse von Wasserdampf und Gesamtwasser während des Fluges LH-205 von Guangzhou nach Frankfurt, 15.-16. August 2007 (Sommerflug). Die Auftragung ist analog zu der in Abbildung 7.1 beschriebenen.

nimmt die Flughöhe zu, wodurch eine kältere, trockene Luftmasse durchflogen wird. Dies zeigt sich im Mischungsverhältnis durch eine deutliche Abnahme um fast 470 ppmv. Etwa um 22 Uhr nimmt das Mischungsverhältnis noch einmal um knapp 50 ppmv ab, was wieder auf den deutlichen Eintrag stratosphärischer Luft zurückzuführen ist (Abbildung 7.4).

Mit Gleichung 2.2 kann die relative Feuchte (RH) berechnet werden, um übersättigte Regionen innerhalb und ausserhalb von Wolken zu identifizieren, siehe Abbildung 7.5 für Flug LH-177 (Abbildung 7.1). Im Bereich der Wolken (ab etwa 2 Uhr) liegt die relative Feuchte wie erwartet um 100% bzgl. Eis.

7.2 Das Auftreten von Wolken

Innerhalb von Wolken ist der gemessene Gesamtwassergehalt um die in der Wolke enthaltene Menge an Wasser und Eis gegenüber dem Wasserdampfgehalt erhöht. Je nach Typ der Wolke (Wasser-, Eis-Gemischtphasenwolke) und der relativen Feuchte resultiert ein unterschiedlicher Verlauf der Kurven. Drei Beispiele sollen die verschiedenen Fälle beleuchten (Abbildung 7.6).

- Abbildung 7.6 a:
  Beide Signale nähern sich der Sättigungsgrenze bzgl. Eis. Sobald das Mischungsverhältnis dem Sättigungswert entspricht oder leicht darüber ansteigt, verbleibt die Wasserdampfkonzentration

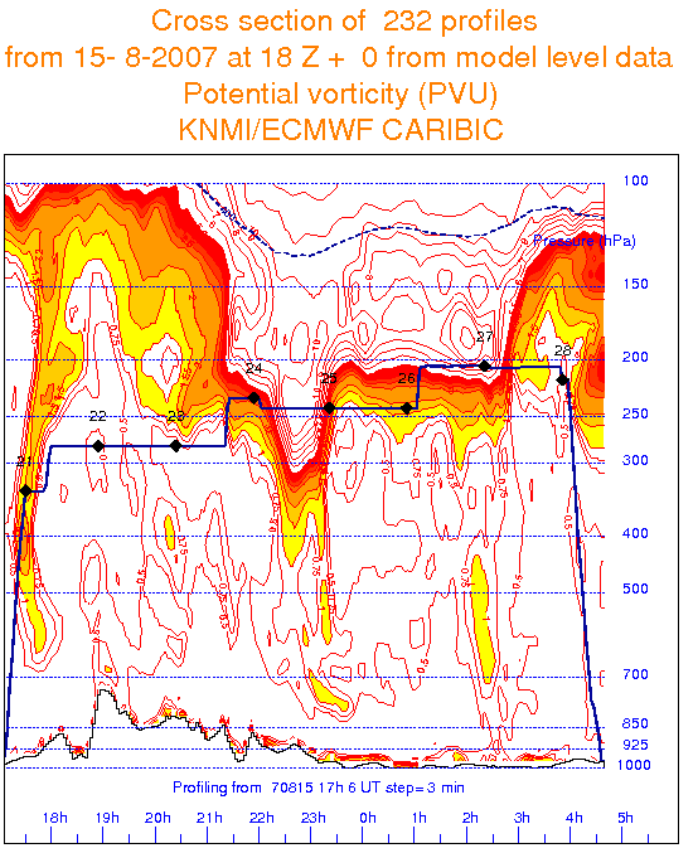

Abb. 7.4: Querschnitt der Atmosphäre mit dem Verlauf der PV-Isoplethen (rote Linien, unterhalb der Tropopause in 0.25 PVU, darüber in 1 PVU-Schritten) und der dynamischen Tropopause (rot-gelber Farbverlauf) während des Fluges LH-205. Der Flugverlauf (in Abhängigkeit des Druckes) ist in dunkelblau eingezeichnet. Die Skalierung der x-Achse (Zeit) entspricht der in Abbildung 7.3. Quelle: http://www.knmi.nl/samenw/campaign_support/CARIBIC/index.html

nahe der Sättigung bzgl. Eis. Der Gesamtwassergehalt nimmt weiter zu. Dies bedeutet, dass sich hier bei Erreichen des Sättigungsmischungsverhältnisses Eiskristalle bilden. Sie wachsen weiter an, was das Erreichen von höheren Übersättigungen verhindert.

Gegen 19:20 Uhr steigt auch das Wasserdampf-Mischungsverhältnis für eine kurze Zeit über die Sättigung gegenüber Eis an. Scheinbar ist die Konzentration der vorhandenen Partikel zu gering um ausreichend Wasserdampf zu resublimieren. Das die Nukleation hier bereits bei Erreichen des Sättigungsmischungsverhältnisses bzgl. Eis eingesetzt hat, lässt vermuten, dass es sich um einen heterogenen Nukleationsprozess handelte. Die Temperatur während des beobachteten Zeitraumes betrug 223 - 228 K, nach Abbildung 2.5 (Kapitel 2.6.1) wäre es erst bei Übersättigungen um 50% zur homogenen Eispartikelbildung gekommen. Die maximal errechnete Übersättigung betrug jedoch nur 23%.

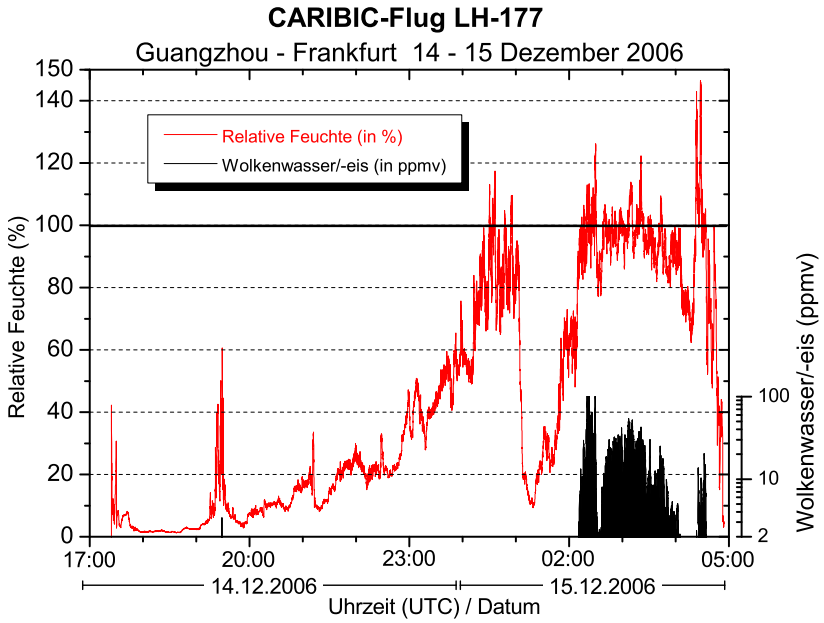

Abb. 7.5: Verlauf der relativen Feuchte für den Flug im Dezember 2006.

- Abbildung 7.6 b:
  Hier setzt die Bildung von Wolkenpartikeln erst deutlich oberhalb des Sättigungsmischungsverhältnisses bzgl. Eis ein. Die erste deutliche Abweichung der beiden Signale tritt gegen 21:02 Uhr auf. Zu diesem Zeitpunkt herrschte eine Übersättigung um 22% (maximal von 25%) bei einer Temperatur von $\sim$235 K. Nach einer, zu Abbildung 2.5 ähnlichen Auftragung (Abbildung 7.11, Kapitel 7.4.1) reicht dies für die (im Labor bestimmte) homogene Nukleation durch Molekülcluster nicht aus. Die Partikel müssen über heterogene Nukleation entstanden sein.
  Für die Entstehung der Übersättigung gibt es mehrere mögliche Gründe:
  - Die vorliegenden Aerosolparikel benötigen eine gewisse Eisübersättigung um aktiviert[3] zu werden.
  - Die Partikel sind in ihrem Wachstum gehemmt, oder ihre Konzentration ist zu gering, wodurch die Resublimationsrate zu niedrig ist.
  - Es handelt sich um eine Mischphasenwolke (bei welchen das Mischungsverhältnis i.d.R. nahe der Sättigung bzgl. Wasser ist) die gerade gefriert. Die Eispartikel wachsen auf Kosten der Wassertröpfchen, das Wasserdampf-Mischungsverhältnis nähert sich der Sättigung gegenüber Eis.

[3] Beginnt die Nukelation an den Aerosolpartikeln und wachsen sie daraufhin an, so bezeichnet man die Aerosolpartikel als „aktiviert“ .

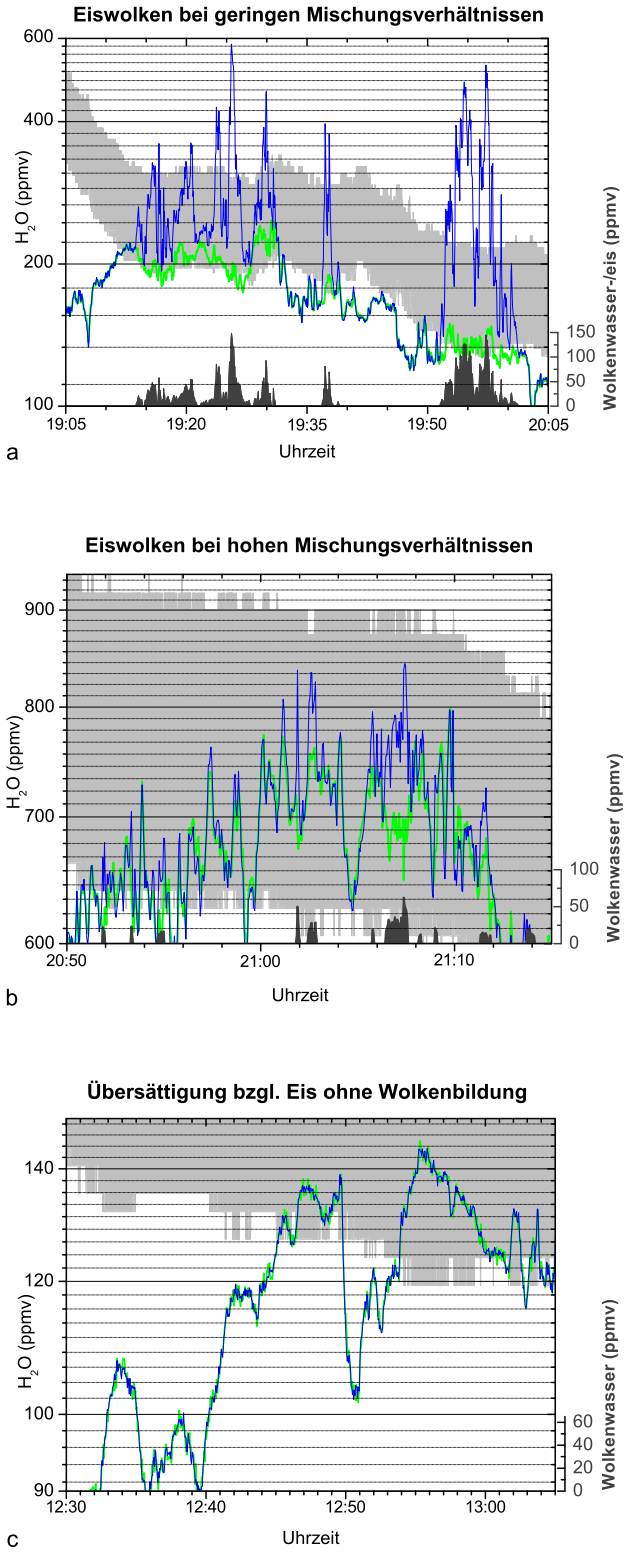

Abb. 7.6: Verschiedene Erscheinungen im Bereich der Sättigungsmischungsverhältnisse, die unterschiedliche Wolken beschreiben. Die blaue Kurve stellt das Gesamtwasser-Mischungsverhältnis dar, die grüne das Wasserdampf-Mischungsverhältnis. Der graue Bereich beschreibt, analog zu Abbildung 7.1 den Verlauf des Sättigungsmischungsverhältnisses

- Abbildung 7.6 c: Trotz einer Übersättigung von bis zu 20% bilden sich hier keine Wolkenpartikel. Bei einer Umgebungstemperatur von 220 K reicht die Übersättigung nach Abbildung 7.11 für eine homogene Nukleation nicht aus. Für die heterogene Nukleation fehlten scheinbar entsprechende Aerosolpartikel, so dass sich bis zum Zeitpunkt der Messung noch keine Wolkenpartikel bilden konnten.

Bei allen hier vorgestellten Wolken müsste es sich auf den ersten Blick, bedingt durch die niedrigen Temperaturen von unter 238 K um reine Eiswolken handeln (Korolev und Isaac, 2006). Im Falle von Mischphasen- oder reinen Wasserwolken würde sich das Wasserdampfmischungsverhältnis an den Bereich der Sättigung bzgl. Wasser annähern. Da die Betrachtungen nur einen aktuellen, i. allg. im Nicht-Gleichgewicht befindlichen Zeitpunkt zeigen, sind Aussagen über die Vorgeschichte der Wolke nicht möglich. Es kann durchaus sein, dass die Wolke durch Vertikalbewegungen erwärmt oder abgekühlt wurde, was sich direkt auf das Sättigungsmischungsverhältnis auswirkt, oder es sich um eine gefrierende Mischphasenwolke handelt.

7.3 Saisonale Variation der Wasserdampfverteilung

Bis jetzt wurden nur einzelne Flüge diskutiert. Erst die Zusammenschau aller gewonnenen Daten eröffnet das eigentliche Potential der CARIBIC-Daten: Die Darstellung jahreszeitlicher Variationen der Wasserdampfverteilung im Bereich der UT/LS, die Untersuchung der extratropischen Tropopausen-Mischungsschicht sowie der Feuchteverhältnisse in diesem Atmosphärenbereich.

Unter Verwendung aller CARIBIC-Wasserdampfdaten von März 2006 bis März 2008 ergibt sich die in Abbildung 7.7 dargestellte saisonale Variation des Wasserdampf-Mischungsverhältnisses entlang der Flugstrecke Frankfurt-Guangzhou. Als Höhenkoordinate für die, im Folgenden präsentierten Messergebnisse dient der Abstand zur thermischen Tropopause. Dieser ergibt sich durch einen Vergleich der CARIBIC-Ozonmessungen mit einer langjährigen Ozon-Zeitreihe des Observatoriums Hohenpeissenberg. Die Zeitreihe stellt eine saisonale Variation des Ozon-Mischungsverhältnisses in Abhängigkeit der Höhe zur thermischen Tropopause zur Verfügung. Anhand dieser Zeitreihe werden die in CARIBIC gemessenen Ozonkonzentrationen einer Höhe zugeordnet, welche dann wiederum für die Auswertung der anderen CARIBIC-Daten herangezogen werden kann.

Zu Jahresbeginn (hier Februar) nimmt das Mischungsverhältnis, oberhalb der thermischen Tropopause stetig ab, bis auf < 6 ppmv in 2 km oberhalb der Tropopause. Unterhalb der Tropopause treten Mittelwerte um 30 ppmv auf. Diese niedrigen Mischungsverhältnisse in den Wintermonaten und die erneute Abnahme im März beruhen auf dem Transport trockener stratosphärischer Luft in die Troposphäre. Zudem sind sie konform zur Temperaturverteilung in der UT/LS mit den geringsten Temperaturen im März (Hoinka, 1999). Ab April nimmt das Mischungsverhältnis bis in den Sommer kontinuierlich zu. Oberhalb

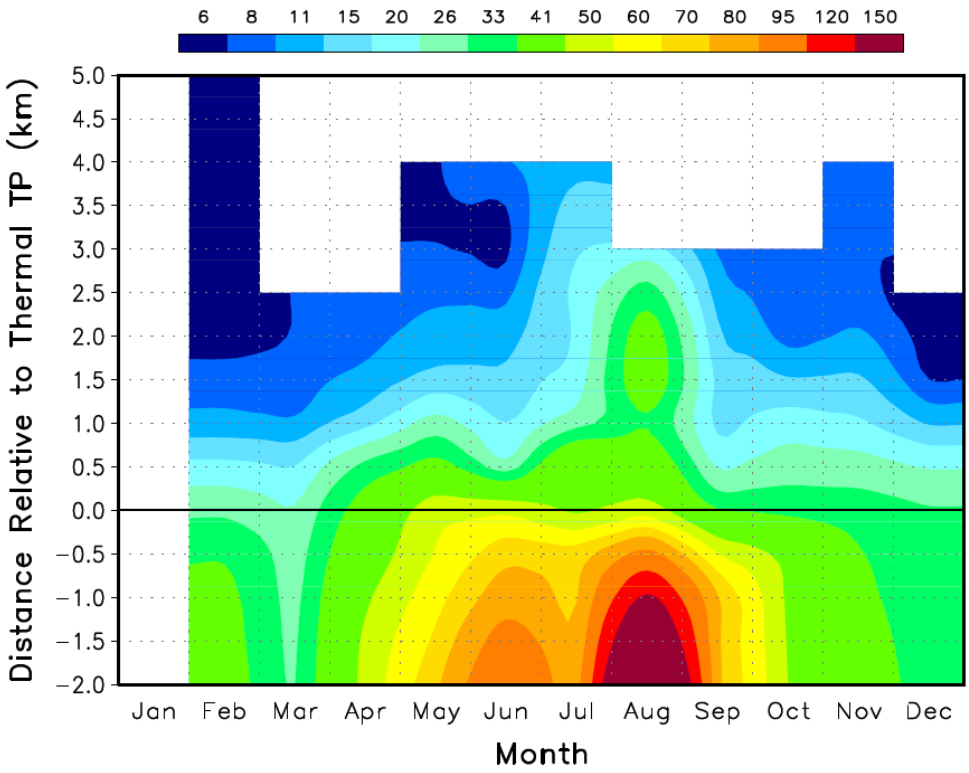

Abb. 7.7: Saisonale Variation der Wasserdampfverteilung, erstellt aus den CARIBIC-Wasserdampfdaten. Die Farbskala entspricht einem gemittelten Volumenmischungsverhältnis (ppmv), die Zahlenwerte sind am Farbbalken am oberen Rand aufgetragen. Aufgetragen sind jeweils die Mittelwerte eines Monats. Die weißen Flächen entsprechen fehlenden Daten.

der Tropopause setzt sich diese Zunahme wesentlich langsamer durch. Hier dominiert bis zum Ende des Frühjahrs die eingetragene trockene stratosphärische Luft. Die zu dieser Jahreszeit gehemmte Permeabilität der Tropopause verhindert ein Einmischen feuchter troposphärischer Luft (siehe auch Kapitel 2.3). Erst gegen Juni/Juli kommt es zu einem deutlichen Eintrag feuchter, troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre. Dadurch steigt das Mischungsverhältnis zwischen Juli und September auf Werte von bis zu 40 ppmv in 2 km oberhalb der Tropopause an. Auch darüber zeigt sich eine deutliche Zunahme. Im September setzt sich von oben herab wieder eine Abnahme des Mischungsverhältnisses durch. Bis etwa 2 km oberhalb der Tropopause verbleibt das Mischungsverhältnis bis in den November hinein auf ähnlichen Werten wie im Frühjahr. Erst ab der zweiten Novemberhälfte sinkt es auf das winterliche Niveau ab. Unterhalb der Tropopause treten ebenfalls von Juli bis September die höchsten Mischungsverhältnisse auf. Ab Mitte Oktober setzen sich hier jedoch bereits Mischungsverhältnisse mit winterlichem Niveau durch. Ein Vergleich der Ausbreitungsgeschwindigkeit unter- und oberhalb der Tropopause zeigt, dass die Feuchteänderungen in der oberen Troposphäre bis etwa 500m unter die Tropopause fast gleichzeitig eintreten. Dies ist der starken Durchmischung in der Troposphäre zuzuschreiben. In der unteren Stratosphäre dauert es länger bis sich die, über die Tropopause eingetragene Luft verteilt.

Im Wesentlichen entspricht die aus den CARIBIC-Daten abgeleitete Verteilung der in Kapitel 2.5 präsentierten und von Krebsbach et al. (2006) anhand von SPURT-Messungen erstellten. Sie verwenden für ihre Darstellung die PV als Höhenkoordinate. Die Lage der dynamischen Tropopause bestimmten sie über verschiedene Vertikalaufstiege zu etwa 2 bis 2.5 PVU. Damit lassen sich die in Abbildung 2.4 gezeigten Jahreszyklen für das 0-1 PVU-Niveau (grau) der Troposphäre zuschreiben. Die Daten aus der Schicht zwischen 1 und 3 PVU (blau) stellen die Verhältnisse im Bereich der Tropopause dar. Alle Werte mit mehr als 3 PVU sind der untersten Stratosphäre zuzuschreiben.
Qualitativ weisen beide Datensätze einen ähnlichen Verlauf auf[4]. Die minimalen Mischungsverhältnisse treten in den Wintermonaten und zu Beginn des Frühjahrs auf. In der unteren Stratosphäre bleibt es bis zum Ende des Frühjahrs eher trocken. Das maximale Mischungsverhältnis stellt sich im August ein. Ein Unterschied zeigt sich im Herbst. In den SPURT-Daten nimmt das Mischungsverhältnis in der Stratosphäre ab Oktober kontinuierlich ab und erreicht bereits im November typische Winterwerte (vgl. Mischungsverhältnisse im Januar). Krebsbach et al. (2006) erklären diese niedrigen Mischungsverhältnisse (im Niveau von 6-9 PVU zwischen 10 und 5 ppmv) mit einem Luftmasseneintrag aus der subtropischen und tropischen Tropopausenregion, wo die Luft infolge sehr tiefer Temperaturen stark dehydriert wird (Kapitel 2.4). Die CARIBIC-Daten beschreiben zwar eine Abnahme des Mischungsverhältnisses zwischen September und Oktober, der aber einer nahezu konstante Konzentration bis zum Dezember folgt. Zudem liegt das Mischungsverhältnis höher als im Winter (Januar/Februar). Damit zeigen die CARIBIC-Daten den von Krebsbach et al. (2006) beschriebenen Transportweg nicht. Ein quantitativer Vergleich der SPURT- und CARIBIC-Daten steht noch aus.
Für beide Datensätze gilt, dass die vorliegende Datendichte (noch) nicht ausreicht, um signifikante Ergebnisse abzuleiten. Während die SPURT-Daten jeweils einem Monat eines einzelnen Jahres entstammen, beinhaltet der CARIBIC-Datensatz etwa zwei Jahre mit je einer Flugsequenz pro Monat. In beiden Fällen können die Daten intersaisonale Schwankungen enthalten. So sind auch die verschiedenen kleinräumigeren Variationen im CARIBIC-Datensatz, z.B. im Juni und September auch nicht direkt auf eine saisonale Variation zurückzuführen. Erst die in den nächsten Jahren hinzukommenden CARIBIC-Daten können zu einer zunehmenden Signifikanz der gefundenen Verteilung führen.

Es existiert noch eine weitere Möglichkeit, die saisonale Verteilung des Wasserdampfes darzustellen, welche einen besseren Einblick in den Troposphären-Stratosphären-Austausch gibt: Durch die logarithmische Auftragung des gemessenen Mischungsverhältnisses gegenüber dem Abstand zur Tropopause der Extratropen (Abbildung 7.8) tritt die Einmischung feuchter troposphärischer Luft in die Stratosphäre deutlich in Erscheinung. Unterhalb der Tropopause weist die Verteilung des Mischungsverhältnisses einen schwachen Gradienten auf, bedingt durch die gute Durchmischung. Oberhalb der Tropopause nimmt die Wasserdampfkonzentration mit der Höhe ab. Besonders deutlich ist diese Abnahme im Win-

[4]Die troposphärischen Mischungsverhältnisse sind in SPURT generell höher als in CARIBIC. Die SPURT-Daten umfassen Mischungsverhältnisse aus der gesamten Troposphäre, während die CARIBIC-Daten nur Mischungsverhältnisse der oberen Troposphäre beinhalten.

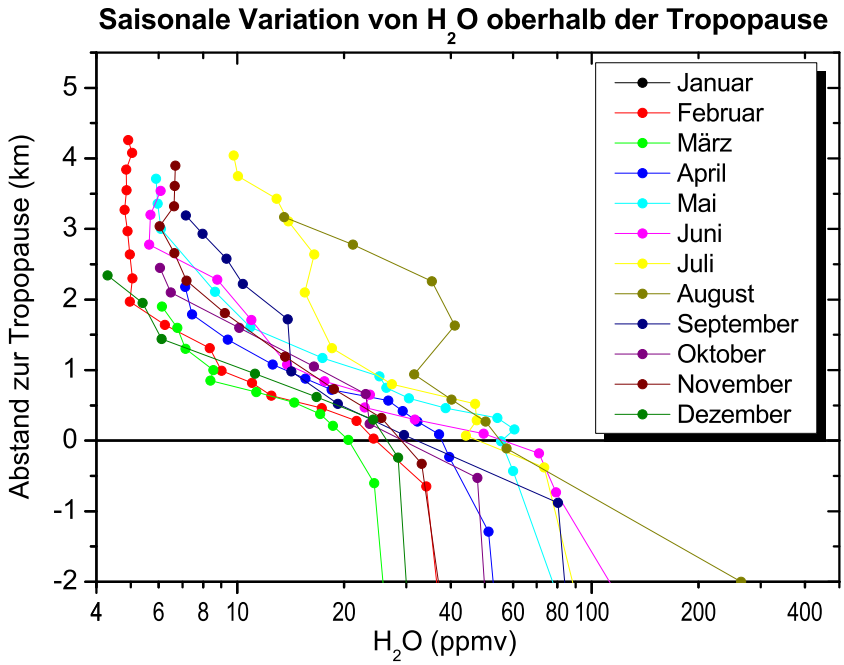

Abb. 7.8: Saisonale Verteilung des Wasserdampf-Mischungsverhältnisses relativ zur Tropopause in anderer Darstellungsweise. Die einzelnen Kurven stellen den unterschiedlich starken Eintrag von wasserdampfreicher, troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre dar.

ter (Dezember, Februar März), wo bereits 2 km über der Tropopause nur noch Mischungsverhältnisse < 6 ppmv auftreten. Es kommt damit im Winter zwar zu einem Eintrag feuchter, troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre, wie der Gradient des Mischungsverhältnisses zeigt, die eingetragene Luft verbleibt jedoch in der untersten Schicht der Stratosphäre und kann nicht weiter aufsteigen. Im Juli und August dringt die feuchte Luft weiter in die Stratosphäre vor (bis in eine Höhe von 4 km oberhalb der Tropopause), es werden Mischungsverhältnisse zwischen 20-60 ppmv erreicht. Die Mischungsverhältnisse an der Tropopause sind mit 20-80 ppmv je nach Jahreszeit deutlich höher als die, an der tropischen und subtropischen Tropopause auftretenden (siehe z.B. Hoinka, 1999).

Neben Wasserdampf wird auch die Ozonverteilung in der UT/LS durch unsere Arbeitsgruppe gemessen. Die Photolyse von O_3 und die nachfolgende Reaktion des produzierten $O(^1D)$ mit H_2O (Gleichung 7.1) stellt die stärkste Quelle des Hydroxylradikals (OH) dar.

$$\begin{aligned} O_3 + h\nu &\longrightarrow O_2 + O(^1D) \\ O(^1D) + H_2O &\longrightarrow 2\,OH \end{aligned} \qquad [7.1]$$

Das Hydroxylradikal ist aufgrund seiner stark oxidativen Wirkung an vielen chemischen Prozessen in der Atmosphäre beteiligt. Die sehr genaue und räumlich hochaufgelöste, simultane Messung von H_2O und O_3 erlaubt eine entsprechend genaue Ableitung der Produktion von OH durch diese Quelle. Eine zusätzlich benötigte Ozon-Photolyserate entstammt dem 3D-Modell MESSy[5]. Die jahreszeitliche Variation der OH-Produktion zeigt Abbildung 7.9. In der Tropopausenregion variiert die Produktion von OH mit

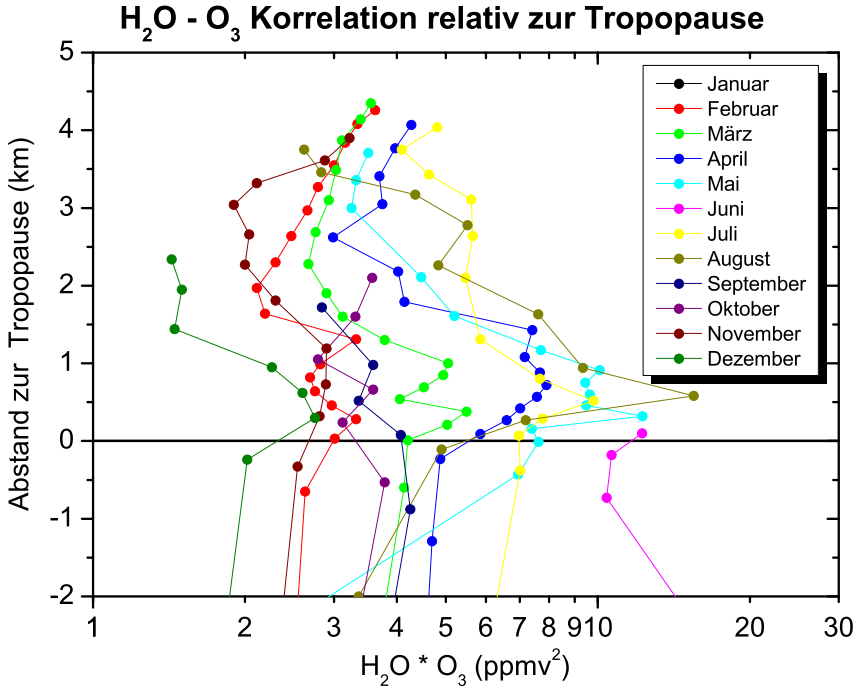

Abb. 7.9: Saisonale Variation der Korrelation zwischen O3 und H_2O relativ zur Tropopause.

der Jahreszeit. Sie erreicht ihr Maximum im Sommer (Mai-September), die minimale Produktion findet im Frühwinter (Dezember) statt. Etwa 4 km oberhalb der Tropopause ist die saisonale Variation gering. Der vertikale Gradient der Verteilung ist relativ schwach. Im Sommer ist er leicht negativ, im Winter ist die Produktion auf allen Höhenniveaus nahezu konstant. Dies beruht darauf, dass die H_2O-Abnahme mit der Höhe durch eine Zunahme von O_3 kompensiert wird.

Vergleich mit ECMWF Reanalyse-Daten

Die Wasserdampfmessungen in CARIBIC haben eine hohe Qualität (Kapitel 6.3). Damit bieten sie eine Möglichkeit, die durch das ECMWF berechnete Wasserdampfverteilung mit In-Situ-Daten zu vergleichen. Dazu wird für den Bereich oberhalb von 500 hPa, also in der mittleren bis oberen Troposphäre,

[5]Modular Earth Submodel System, entwickelt am MPI für Chemie in Mainz und basierend auf dem ECHAM5 Modell des MPI für Meteorologie in Hamburg.

die Differenz zwischen den ECMWF- und den CARIBIC-Mischungsverhältnissen als Häufigkeitsverteilung in Abhängigkeit des Mischungsverhältnisses aufgetragen (Abbildung 7.10). Bei hohen Mischungsverhältnissen ($>$ 3000 ppmv) zeigen die CARIBIC-Daten eine höhere Konzentration als die ECMWF-Daten. Allerdings treten Mischungsverhältnisse in der Grössenordnung in CARIBIC hauptsächlich während der Auf- und Abstiege des Flugzeugs auf. Diese sind noch ungenügend auf ihre Qualität überprüft (siehe Kapitel 7.1). Zudem ist die Zuordnung der ECMWF-Daten infolge des grossen vertikalen Gradienten von H_2O und der vertikalen Auflösung der ECMWF-Daten (0.5 - 1km) mit grösseren Fehlern behaftet als in konstanter Flughöhe. Im Grossen und Ganzen zeigt die Verteilung für alle Mischungs-

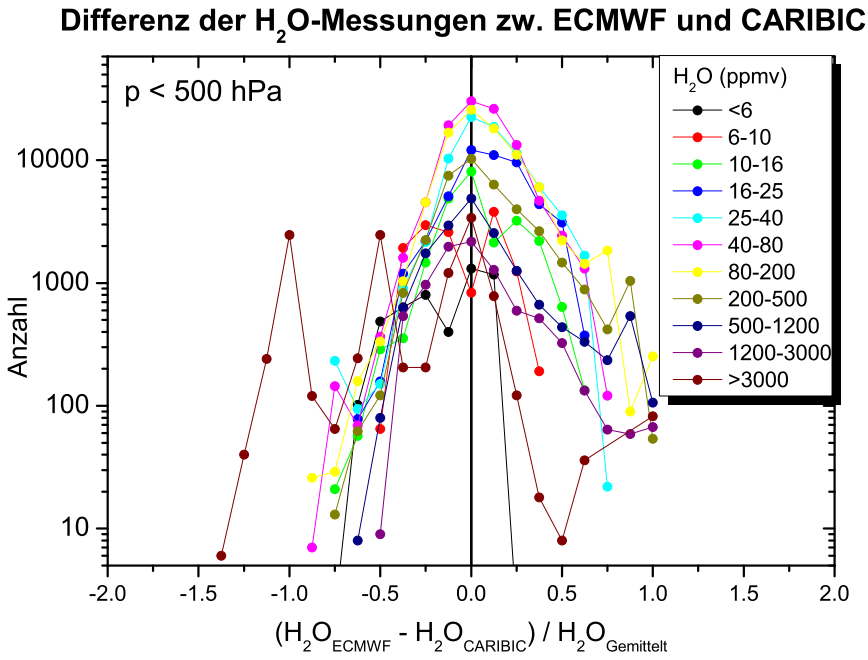

Abb. 7.10: Differenz des Mischungsverhältnisses aus der ECMWF-Analyse und des in CARIBIC gemessenen. Aufgetragen ist die Auftrittshäufigkeit (y-Achse) der prozentualen Abweichung (Differenz zwischen ECMWF und CARIBIC dividiert durch den Mittelwert) des Mischungsverhältnisses (x-Achse).

verhältnisse über 10 ppmv eine gute Übereinstimmung (Das Maximum der Verteilung liegt bei Null). Dennoch sind die Mischungsverhältnisse aus ECMWF etwas grösser als die aus CARIBIC (Verteilung dehnt sich in den positiven Bereich etwas deutlicher aus). Unterhalb von 10 ppmv scheinen dagegen die Mischungsverhältnisse aus CARIBIC etwas höher zu sein.

7.4 Relative Feuchte

Im Folgenden werden die in CARIBIC berechneten relativen Feuchten näher betrachtet. Es gehen dabei alle Daten aus einem Bereich zwischen 40° und 60°N ein, die oberhalb von 500 hPa ($\sim 5,5$km) aufgezeichnet wurden und eine Ozonkonzentration zwischen 10 und 100 ppbv aufweisen. Die Daten aus der Stratosphäre werden damit nicht berücksichtigt.

7.4.1 Relative Feuchte in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur

Vor Beginn der Analyse soll eine, von Koop et al. (2000) anhand von Experimenten erstellte Theorie zur notwendigen Übersättigung für die Bildung von Eiswolken gezeigt werden (Abbildung 7.11). Es ist

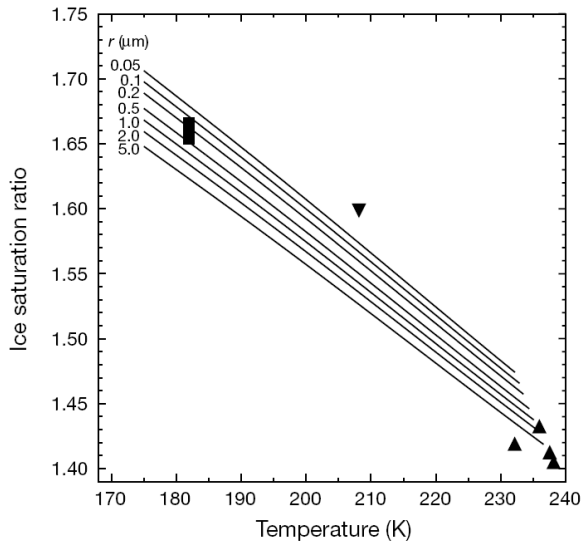

Abb. 7.11: Temperaturabhängigkeit des Nukleationsgrenzwertes für die Bildung von Eispartikeln für verschieden grosse Molekülcluster (Koop et al., 2000).

deutlich zu erkennen, dass für die Bildung von Eispartikeln umso grössere Übersättigungen bzgl. Eis erreicht werden müssen, je tiefer die Temperatur ist. Je grösser die Molekülcluster, desto kleiner ist die, zur homogenen Nukleation notwendige Übersättigung. Dass diese Theorie zu atmosphärischen Bedingungen konsistent ist, zeigen verschiedene Messungen in der Atmosphäre. Die nach oben gerichteten Dreiecke entstammen LIDAR- und In-situ-Messungen der relativen Feuchte in Cirruswolken auf etwa 8 km Höhe. Das nach unten gerichtete Dreieck resultiert aus einer In-situ-Messung innerhalb einer orographisch induzierten Cirruswolke in 13 km Höhe. LIDAR-Messungen in polaren stratosphärischen Eiswolken führten zu den eingezeichneten Rechtecken bei 182 K. Diese Messungen stehen in guter Übereinstimmung zur Theorie und deuten darauf hin, dass die beobachteten Wolken über homogene Nukleation entstanden sind (Koop et al., 2000).

Temperatur	**203 K**	**213 K**	**223 K**	**233 K**	**243 K**	**253 K**	**263 K**
Mittelwert (%)	94.7	72.3	61.5	65.8	71.7	56.5	47.5
Flugstunden (h)	1.9	30.6	27.8	5.8	5.1	0.9	0.1
RH > 100% (%)	34	12	7	16	17	11	0

Tab. 7.1: Mittelwerte der gemessenen relativen Feuchten und Anteil der Übersättigungen bzgl. Eis bei verschiedenen Temperaturen ausserhalb von Wolken (aus CARIBIC).

Mit diesem Wissen widmen wir uns nun der Analyse der während CARIBIC gemessenen relativen Feuchten. In Abbildung 7.12 ist die Häufigkeit des Auftretens von relativen Feuchten (Frequenz) bei verschiedenen Temperaturen ausserhalb von Wolken aufgetragen. Während zwischen 253 K und 233 K

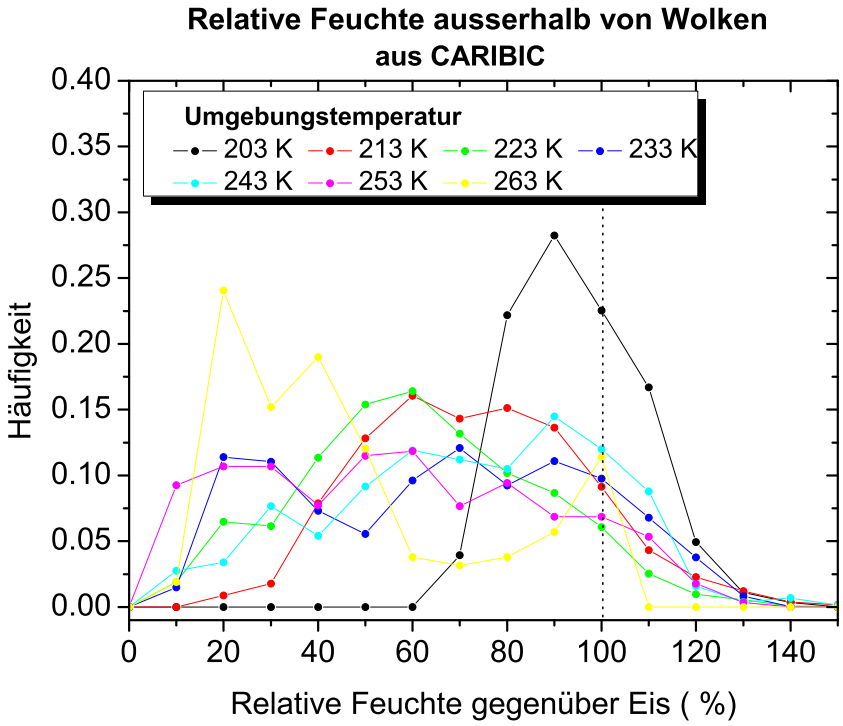

Abb. 7.12: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten bei verschiedenen Temperaturen.

nahezu alle Feuchtebereiche ähnlich häufig auftreten, werden bei 213 K kaum relative Feuchten unterhalb 30% gemessen. Die geringste aufgetretene Feuchte bei 203 K liegt bereits bei 70%. Am häufigsten treten bei diesen niedrigen Temperaturen relative Feuchten zwischen 80 und 90% auf, mit einem Mittelwert von 94.7% bei 203 K und 72.3% bei 213 K (Tabelle 7.1). Aufgrund der niedrigen Temperatur ist die Luftmasse schon bei geringen Mischungsverhältnissen nahezu gesättigt. Das Maximum für 223 K und 243 K liegt dagegen bei einer relativen Feuchte von 60%, der Mittelwert leicht darüber. Bei 233 K und auch bei 253 K treten oft relative Feuchten von 10-20% auf. Dies lässt sich über einen Eintrag subtropi-

RH	203 K	213 K	223 K	233 K	243 K	253 K	263 K
Auftrittshäufigkeit (%)	42.9	14.8	9.7	9.4	3.4	0.5	1.3
Flugstunden (h)	1.4	5.3	2.6	0.6	0.2	0	0

Tab. 7.2: Auftrittshäufigkeit von Wolken in Abhängigkeit der Temperatur (aus CARIBIC).

scher Luftmassen erklären, die (bedingt durch die Neigung der Tropopause) aus einer höheren, kälteren Region der Troposphäre stammen. Durch die allgemeine troposphärische Zirkulation gelangen sie in die Extratropen und sinken dabei ab. Während des Absinkens erwärmen sie sich adiabatisch, wodurch ihre relative Feuchte stark abnimmt. Als trockene, warme Luftmassen kommen sie dann in den Extratropen an. Aber auch eingemischte stratosphärische Luft kann zu diesen niedrigen relativen Feuchten beitragen. Dies erklärt auch, dass bei tiefen Temperaturen keine niedrigen relativen Feuchten auftreten[6].
Mit zunehmender Temperatur kann die Luftmasse mehr Feuchtigkeit aufnehmen, die relative Feuchte nimmt ab, wie das Verhalten des Mittelwertes zeigt. Eisübersättigungen treten vor allem bei tiefen Atmosphärentemperaturen auf. Dies ist ebenfalls konsistent zu den, von Koop et al. (2000) durchgeführten Labormessungen. Bereits bei geringen Mischungsverhältnissen stellt sich bei diesen Temperaturen eine Sättigung bzw. Übersättigung gegenüber Eis ein, es kommt zu Übersättigungen. Für die Bildung von Eispartikeln (homogene Nukleation) reicht die Übersättigung jedoch noch nicht aus. So kann sich zunächst kein Gleichgewicht einstellen und die Übersättigung bleibt bestehen. Die CARIBIC-Daten zeigen kaum Übersättigungen, die grösser sind als 40%. Nach der Theorie liegt bei einer Umgebungstemperatur von 200 K der Nukleationsgrenzwert für Molekülcluster $\leq 5\mu m$ jedoch bei rund 55%. Aus diesem Grund ist anzunehmen, dass während der CARIBIC-Messungen die Nukleation heterogen und damit bereits bei geringeren Übersättigungen eintrat. Oder das entsprechend grosse Molekülcluster existierten, die einen niedrigeren Nukleationsgrenzwert aufwiesen.
Wie häufig übersättigte Regionen beobachtet wurden, zeigt sich bei Hinzunahme der Flugstundenanzahl. Bei 203 K waren 34% Prozent der durchflogenen Luftmassen übersättigt bzgl. Eis (Tabelle 7.1), nur noch 12% waren es bei 213 K. Am seltensten waren Luftmassen mit einer Temperatur von 223 K gegenüber Eis übersättigt, bei 263 K traten keine eisübersättigten Regionen auf. Insgesamt wiesen $\sim$11% der durchflogenen Luftmassen eine Übersättigung gegenüber Eis auf.

Innerhalb von Wolken sieht die Verteilung der relativen Feuchte anders aus. Wie in Abbildung 7.13 zu sehen, wurden Wolken nur bei einer Umgebungstemperatur von 223 K und darunter signifikant beobachtet. Bei höheren Temperaturen ist die Anzahl der Messpunkte zu gering, um eine statistisch aussagekräftige Verteilung zu liefern (siehe auch Tabelle 7.2).

[6] Die niedrigen relativen Feuchten entstehen durch die adiabatische Erwärmung des Luftpakets, wodurch Temperaturen von unter 223 in der Regel nicht mehr erreicht werden können.

Es handelt es sich damit bei den betrachteten Wolken weitgehend um Eiswolken, denn unter 223 K kommen unterkühlte Wasserwolken nicht vor. Korolev und Isaac (2006) fanden nur bis 238 K Umgebungstemperatur Wasser- und Mischphasenwolken vor.
Während der Flüge traten vor allem in kalten Atmosphärenbereichen Wolken auf, bei 203 K in knapp 43% der durchflogenen Luftmassen. Je wärmer die Luft desto seltener wurden Wolken beobachtet (Tabelle 7.2). Insgesamt wurden während ∼17% der gesamten Flugzeit Wolken durchflogen.

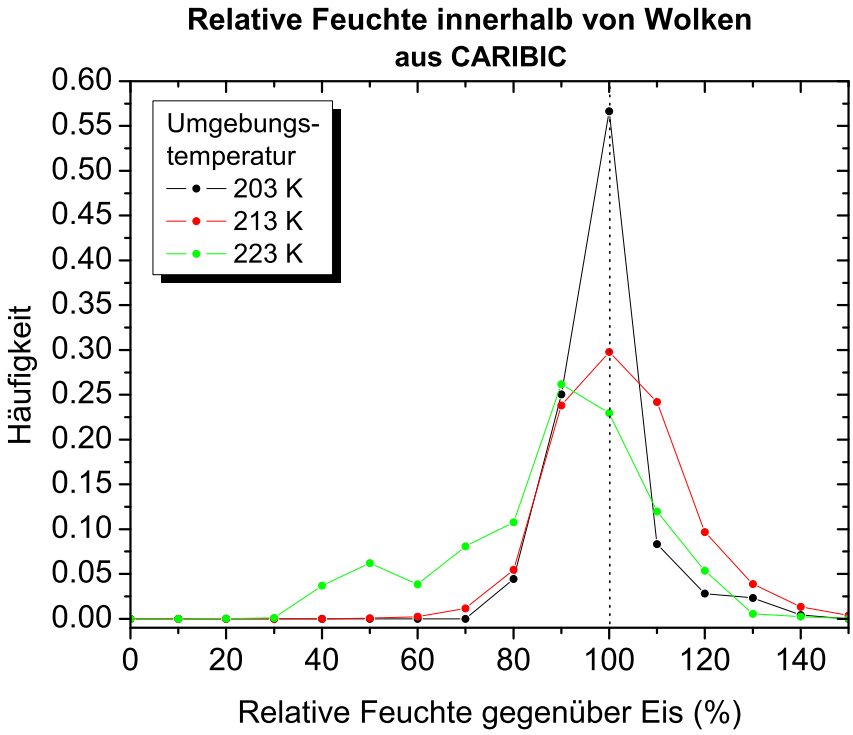

Abb. 7.13: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten bei verschiedenen Temperaturen, innerhalb von Wolken (aus CARIBIC).

Bei 223 K Umgebungstemperatur liegt das Maximum der in den Wolken gemessenen relativen Feuchten bei etwa 90% (Abbildung 7.13). Die relativen Feuchten unter 80% bei 223 K sind möglicherweise auf einen Fehler bei der Auswertung zurückzuführen. Zwar fanden Korolev und Isaac (2006) Eiswolken in untersättigten Regionen vor (Abbildung 7.14), allerdings nur bis 80% RH. In CARIBIC treten jedoch auch relative Feuchten unter 80% auf.
Die häufigste Übersättigung trat bei 213 K auf. Etwa 39% der Luft in Wolken war hier gegenüber Eis übersättigt. Als mögliche Ursache dafür kommt die gehemmte Bildung von Eispartikeln in Betracht. Es können sich zwar Eispartikel bilden, sie sind aber z.B. durch den Gehalt von HNO_3 in den Nukleationskeimen in ihrem Wachstum gehemmt (Gao et al., 2004). Ebenso kann ein kleiner Anteil an heterogenen Nukleationskeimen eine Rolle spielen. Aus ihnen können sich bereits unterhalb des Grenzwertes für

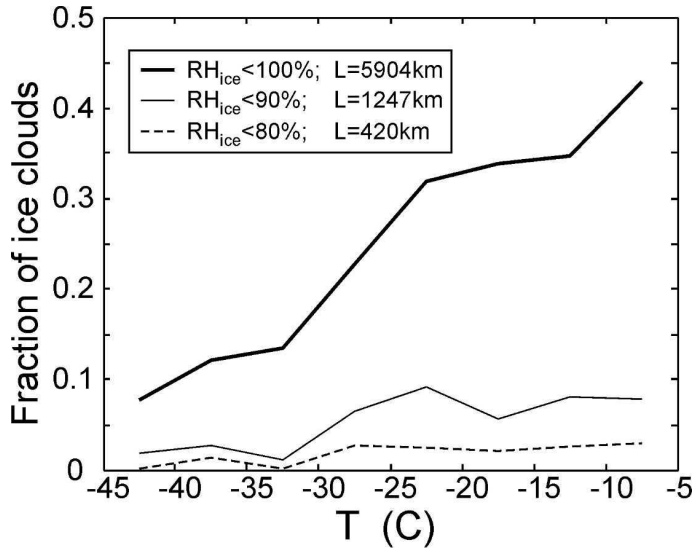

Abb. 7.14: Anteil an Eiswolken, die bei Messkampagnen gegenüber Eis untersättigt waren (Korolev und Isaac, 2006).

die homogene Nukleation Wolkenpartikel bilden, wodurch sich Wolken mit niedrigem Wolkenpartikel-Gehalt bilden. Durch die geringe Partikeldichte ist die weitere Resublimation von Wasserdampf zu langsam um den Gleichgewichtszustand zu erreichen. Dies wäre auch konsistent zu den, während CARIBIC gefundenen relativen Feuchten ausserhalb von Wolken, die nie grösser als 140% waren und wie erwähnt damit auf eine eventuelle heterogene Nukleation hindeuten.
Bei einer Umgebungstemperatur von 203 K hat die Häufigkeitsverteilung ihr Maximum im Bereich von 100%. Dies zeigt, dass sich die vermessenen Wolken bereits in einem Gleichgewicht befanden.
Bei Umgebungstemperaturen oberhalb 200K stimmen die CARIBIC-Messungen mit den Randbedingungen der „klassischen“ Eispartikelbildung überein. Die gefundenen Übersättigungen liegen unterhalb oder im Bereich des Grenzwertes für die homogene Nukleation. Grosse Übersättigungen, wie sie z.T. bei Umgebungstemperaturen unterhalb von 200 K vorkommen können, wurden nicht beobachtet. Für den Bereich unterhalb 200 K liegen aus CARIBIC keine Ergebnisse vor.

Während eines internationalen UTH-Workshops[7] zeigte Herman Smit eine, aus MOZAIC-Daten abgeleitete Häufigkeitsverteilung, wonach etwa 30% der oberen Troposphäre im Bereich des Nordatlantik zwischen 40° und 60° nördlicher Breite übersättigt sind.
Dagegen zeigen die CARIBIC-Daten mit rund 11% eine geringeres Auftreten von Übersättigungen. Allerdings stammen diese vorwiegend aus Regionen des eurasischen Kontinents.
Satellitenmessungen (AIRS) zeigten Übersättigungen in der oberen extratropischen Troposphäre während etwa 10-30% der Zeit bei Mittelung über das gesamte Jahr gemittelt (Gettelman et al., 2006b).

[7] 12.-15.06.2007 in Karlsruhe

7.4.2 Vergleich mit ECMWF Reanalyse-Daten

Für die Qualität der errechneten relativen Feuchten und der daraus bestimmten Übersättigungen sind genaue Temperaturmessungen wichtig. Da die Berechnung des Sättigungsdampfdruckes exponentiell von der Temperatur abhängt, können bereits kleine Abweichungen in der Temperatur zu einer Veränderung der Sättigungsgrenze führen (Clausius-Clapeyron-Gleichung, Gleichung 2.1).
In CARIBIC basiert die Berechnung der relativen Feuchte auf den flugzeugeigenen Temperaturmessungen (Rosemount-Sensor). Im Vergleich mit der Temperatur aus den ECMWF Reanalyse-Daten (Abbildung 7.15) liegt die Temperatur aus CARIBIC im Mittel um 1 K höher. Für Temperaturen zwischen 263 und 243 K ist die Temperatur aus CARIBIC zeitweise auch 4-6 K geringer als die der ECMWF Reanalyse. Aufgetragen ist die Häufigkeit von verschiedenen Temperaturdifferenzen zwischen Flugzeug-

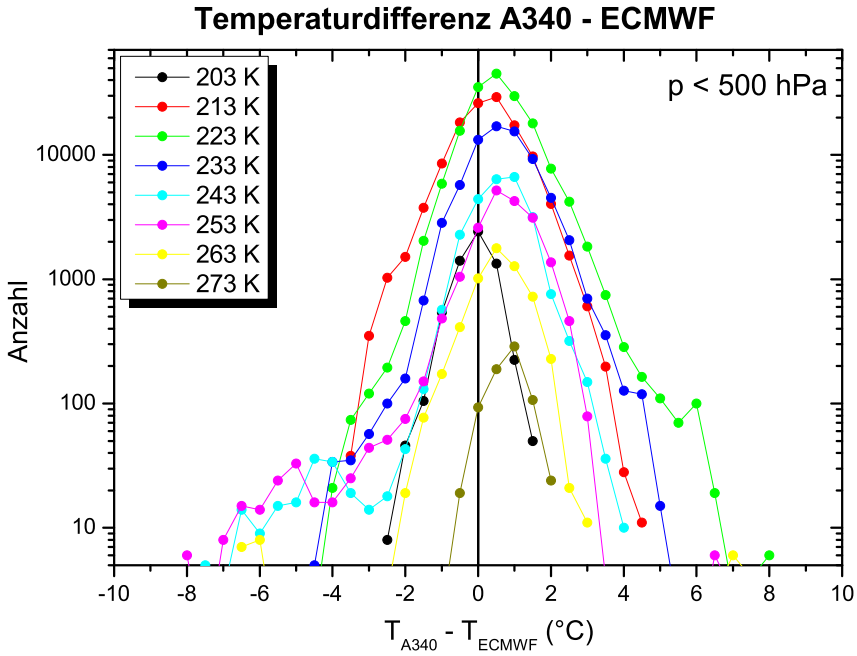

Abb. 7.15: Häufigkeitsverteilung der Temperaturdifferenz zwischen ECMWF Reanalyse-Daten und der in CARIBIC vom flugzeugeigenen Temperatursensor gemessenen.

und Modelldaten in Abhängigkeit der gemessenen Temperatur. Generell ist die Häufigkeitsverteilung zu positiven Werten verschoben, im Mittel um 1K.

Verteilung der relativen Feuchte im Vergleich

Die Häufigkeitsverteilung der relativen Feuchte aus der ECMWF Reanalyse (Abbildung 7.16) zeigt deutliche Abweichungen auf, verglichen mit der Verteilung aus CARIBIC (Abbildung 7.12). Bei Temperaturen von 253 K und 243 K ähnelt sich der Kurvenverlauf. Ab 233 K beginnen die Verteilungen zunehmend

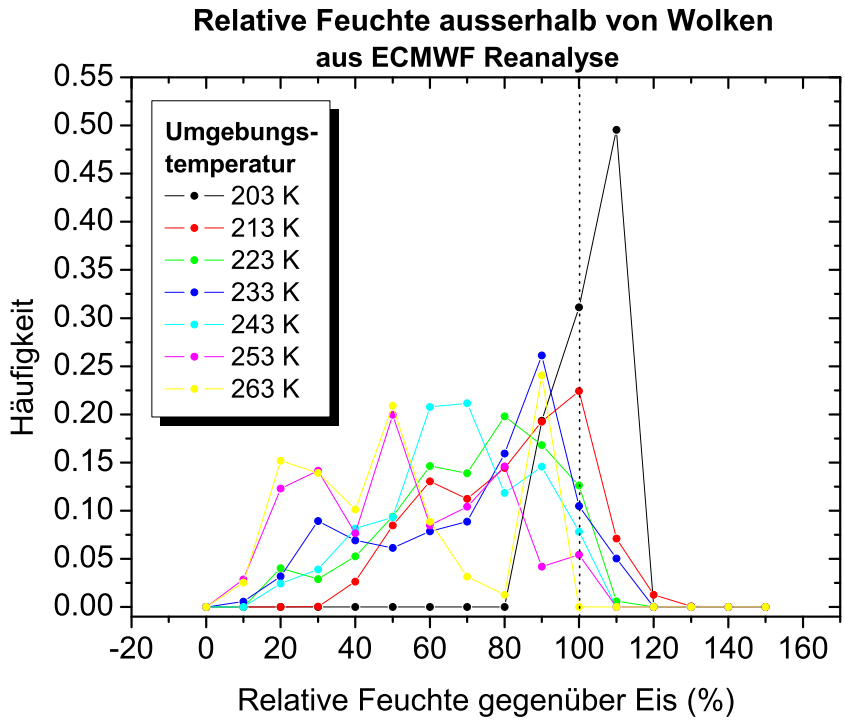

Abb. 7.16: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten bei verschiedenen Temperaturen, ausserhalb von Wolken (aus ECMWF).

von einander abzuweichen. Während bei 233 K in CARIBIC ein sekundäres Maximum bei geringen Feuchten auftrat (10-20 % RH, vgl. Kapitel 7.4.1), liegt das Maximum in der ECMWF-Verteilung bei 90%. Diese Verschiebung der Häufigkeitsverteilung zu höheren relativen Feuchten setzt sich mit abnehmenden Temperaturen weiter fort, tritt dabei aber nicht mehr so deutlich in Erscheinung wie bei 233 K. Für 213 K liegt das Maximum der Häufigkeitsverteilung bei 100%. Bei 203 K scheinen am häufigsten RH-Werte mit einer leichten Übersättigung bzgl. Eis aufzutreten. Zudem zeigen sich hier generell mehr RH-Werte $> 100\%$. Dies ist auch konsistent zur Temperaturdifferenz zwischen CARIBIC und der ECMWF Reanalyse. Bei den etwas geringeren Temperaturen aus der Reanalyse stellt sich die Sättigung schneller ein, die berechneten relativen Feuchten sind höher.

7.4.3 Jahreszeitliche Variation der relativen Feuchte

Neben der Betrachtung in Abhängigkeit der Temperatur ist die relative Feuchte auch als saisonale Variation darstellbar (Abbildung 7.17). Allerdings ist die Anzahl der Flugstunden für die einzelnen Jahreszeiten sehr unterschiedlich (vgl. Tabelle 7.3) In den Wintermonaten treten zeitweise geringe relative Feuchten (um 20%) auf, sie sind dem Einfluss stratosphärischer Luftmassen zuzuschreiben. Die im Mittel höchsten relativen Feuchten werden im Frühjahr erreicht, die niedrigsten sind, bedingt durch die hohe Temperatur,

Monat	DJF	MAM	JJA	SON
RH > 100% (%)	13	15	12	10
Flugstunden (h)	8.23	5.09	11.78	47.20
Mittelwert (%)	64	75	63	70

Tab. 7.3: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten und Übersättigungen in Abhängigkeit der Jahreszeit (aus CARIBIC).

im Sommer zu verzeichnen. Zudem ist hier die Verteilung am breitesten gestreut. Zum Herbst erhöht sich die mittlere relative Feuchte wieder. Übersättigte Regionen treten das ganze Jahr in einer ähnli-

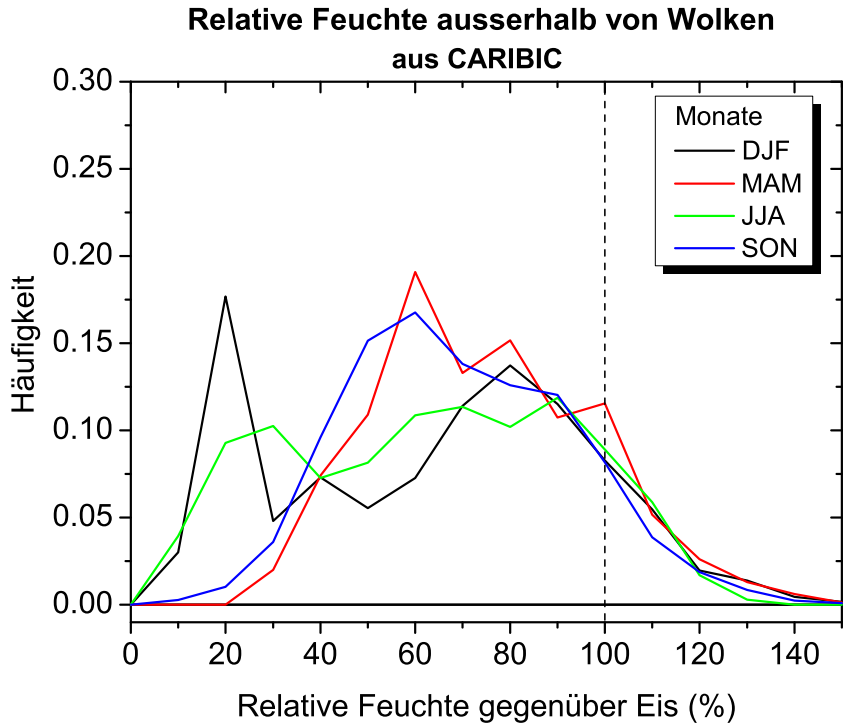

Abb. 7.17: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Jahreszeit. Relative Feuchte aus CARIBIC.

chen Häufigkeit auf, ein schwaches Maximum ist im Frühjahr zu verzeichnen. Im Mittel waren 11% der durchflogenen Luftmassen übersättigt. Diese Verteilung basiert jedoch nur auf 5 Flugstunden und ist daher wenig aussagekräftig.

Die jahreszeitliche Verteilung der ECMWF Reanalyse unterscheidet sich teilweise deutlich von der aus CARIBIC erstellten (Abbildung 7.18). Generell sind die relativen Feuchten aus ECMWF etwas höher als die aus CARIBIC (wie auch schon bei der vorangegangenen temperaturabhängigen Betrachtung).

Monat	DJF	MAM	JJA	SON
RH > 100% (%)	21	1	5	16
Mittelwert (%)	74	71	66	80

Tab. 7.4: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten und Übersättigungen in Abhängigkeit der Jahreszeit (aus ECMWF).

Während sich die beiden Verteilungen im Sommer ähneln (bei beiden tritt hier die geringste mittlere relative Feuchte auf), weichen sie vor allem im Herbst und Frühjahr von einander ab. In der ECMWF-Verteilung werden im Frühjahr häufig relative Feuchten um 40% beobachtet. Dadurch ist die mittlere relative Feuchte hier niedriger als im Herbst und Winter (vgl. Tabelle7.4). In der CARIBIC-Verteilung tritt dagegen im Mittel die höchste relative Feuchte auf. Das Maximum in der ECMWF-Verteilung stellt sich im Herbst ein.

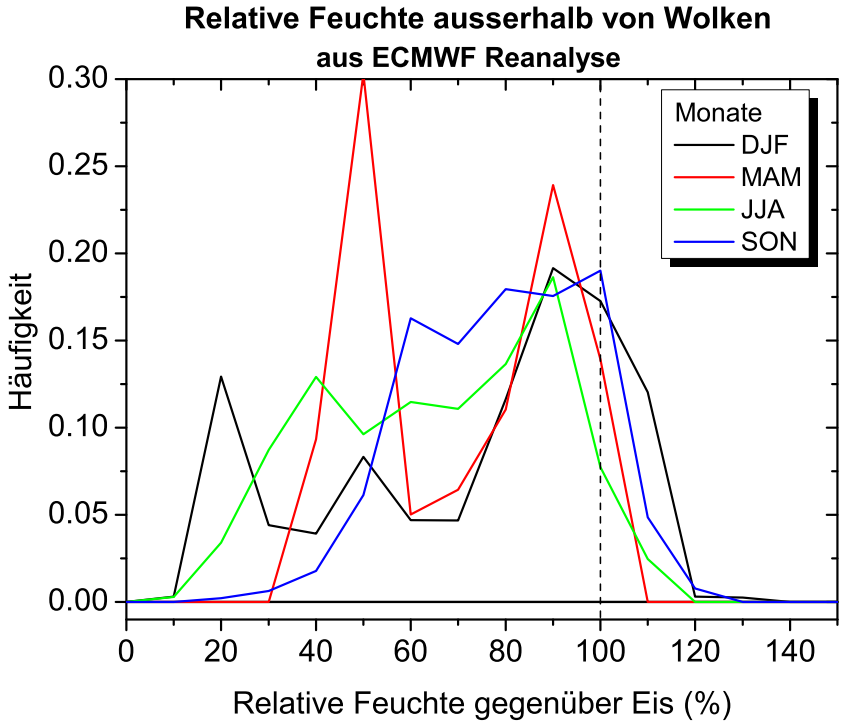

Abb. 7.18: Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Jahreszeit (aus ECMWF).

Das Auftreten von Übersättigungen ist bei beiden Verteilungen sehr unterschiedlich. In CARIBIC waren über das gesamte Jahr hinweg 10-15% der durchflogenen Luftmassen übersättigt gegenüber Eis. Dagegen zeigt die Übersättigung in der ECMWF Reanalyse einen deutlichen Jahresgang mit einem Maximum von 21% in den Wintermonaten und einem Minimum ($\sim$1%) im Frühjahr.

Da die CARIBIC-Verteilung im Frühjahr nur auf rund 5 Flugstunden basiert, sind die gefundenen Abweichungen statistisch nicht aussagekräftig. Durch hinzukommende Daten in den nächsten Jahren sollte sich ein klareres Bild der Unterschiede zwischen der relativen Feuchte aus dem ECMWF Modell und der in CARIBIC gemessenen ergeben.

8 Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit widmet sich den Messungen von Wasserdampf und Gesamtwasser in der UT/LS, die seit 2005 im Rahmen des Forschungsprojekts CARIBIC auf einem Passagierflugzeug durchgeführt werden. Sie umfasst zwei Teile:

- einen experimentellen Teil, mit der Beschreibung des Messinstruments und seiner Komponenten, sowie der Präsentation eines neuen Systems
- einen wissenschaftlichen Teil mit der Datenauswertung und -analyse

Das CARIBIC Wasserinstrument setzt sich aus zwei Komponenten zusammen, einem robusten und schnellen 2-Kanal-Photoakustik-Laserspektrometer (PA-System) und einem präzisen Taupunktspiegel-Hygrometer. Letztgenanntes dient zur Kalibrierung des PA-Systems, welches kein absolut messendes Instrument darstellt.
Für das Taupunktspiegel-Hygrometer wurde das Messverhalten optimiert. Während der bis Mitte 2007 durchgeführten Flüge zeigte das Instrument zeitweise ein deutliches Einschwingverhalten bei plötzlichen Feuchteänderungen, welches die Kalibrierung des PA-Systems negativ beeinflusste. Die Steuerung des Taupunktspiegel-Hygrometers basiert auf einem Regelkreis mit PID-Regler. Durch eine systematische Variation der Beiwerte (des Proportional-, Differential- und Integralanteils) wurde eine Parameterkombination gefunden, bei welcher sich das System schnell und nahezu ohne Einschwingverhalten auf einen neuen Wert einstellt. Ein Vergleich zweier Flüge, vor und nach Optimierung der Parameter, zeigt das verbesserte Messverhalten deutlich.
Da ein Photoakustik-Laserspektrometer (PA-System) erstmalig in der Atmosphärenforschung auf einem Flugzeug zum Einsatz kam, wurden das zugrunde liegende Messprinzip und die Systemeigenschaften detailiert beschrieben. Das seit 2005 zur Wassermessung in CARIBIC eingesetzte Instrument stellt einen Prototyp dar. Der operationelle Einsatz des Instruments während der vergangenen drei Jahre zeigte mehrere Punkte auf, die zu verbessern sind, um in Zukunft noch präzisere Messungen durchführen zu können. So entstand im Vorfeld dieser Arbeit der Plan, das CARIBIC Wasserinstrument komplett neu aufzubauen und zu optimieren.
Für das neue CARIBIC Wasserinstrument sollte das PA-System durch ein neueres, etwa viermal empfindlicheres System ausgetauscht werden. Im Rahmen der vorgelegten Arbeit wurde das neue PA-System charakterisiert und getestet. Für den Einsatz in CARIBIC waren mehrere Veränderungen am System und an seinem Messverhalten notwendig. Zudem traten zu Beginn der Testphase immer wieder Schwierigkeiten mit der Software des Systems auf. In enger Zusammenarbeit mit den Entwicklern, der Firma Hilase

aus Szeged (Ungarn) war es möglich, die Probleme weitgehend zu beheben und die erforderlichen Modifikationen durchzuführen. Vor allem durch den stärkeren Laser, aber auch durch einen optimierten Messprozess (z.B. Messung bei unterschiedlichen Intensitäten in Abhängigkeit der Druckes) verspricht das neue System für die Zukunft noch exaktere Feuchtemessungen in der UT/LS.
Der erste Einsatz des neuen CARIBIC Wasserinstruments sollte bei einer internationalen Vergleichskampagne[1] an der Aerosolkammer des IMK (AIDA) stattfinden. Verschiedene technische Schwierigkeiten, hauptsächlich mit dem Steuerungscomputer verhinderten allerdings die erfolgreiche Teilnahme. Diese Probleme dürften durch einen Austausch des Steuerungscomputers Mitte 2008 behoben werden.

Einen Hauptteil der Arbeit bildete die Auswertung der im Zeitraum März 2006 - März 2008 in CARIBIC gesammelten Wasserdampf- und Wolkendaten. Entscheidend für die Qualität der Messungen ist die korrekte Kalibrierung der PA-Daten anhand der Messungen des Taupunktspiegel-Hygrometers. Besonders im Bereich von Wolken traten bei der Kalibrierung immer wieder Probleme auf (die beiden Mischungsverhältnisse wichen auch ausserhalb von Wolken z.T. deutlich von einander ab). Während der Auswertung wurde mit verschiedenen Ansätzen an die Kalibrierung herangegangen. Die besten Resultate (klare Abgrenzung von Wolken und ein nahezu identischer Verlauf der beiden PA-Signale ausserhalb von Wolken) wurden mit der hier vorgestellten Kalibrierung erreicht. Sie soll in Zukunft durch eine bessere Parametrisierung der Druckabhängigkeit der Messempfindlichkeit weiter verbessert werden.
Bei der Betrachtung einzelner Flüge wurde deutlich, welche Informationen der CARIBIC Datensatz bereithält. Aus dem Verlauf der Mischungsverhältnisse von Gesamtwasser und Wasserdampf ist das Auftreten von Wolken erkennbar. Das Wolkenwasser/-eis kann als Differenz der beiden Mischungsverhältnisse errechnet werden. Durch die Berechnung des Sättigungsmischungsverhältnisses gegenüber Eis und Wasser kann eine Aussage über die relative Feuchte in der durchflogenen Luftmasse getroffen werden. Das KNMI (Königliche Niederländische Meteorologische Institut) stellt für jeden einzelnen Flug aufgearbeitete Daten aus der ECMWF Reanalyse bereit[2]. Anhand einer daraus entnommenen PV-Verteilung wurde deutlich, wie die in CARIBIC gemessene Feuchteverteilung von atmosphärischen Austauschprozessen beeinflusst wird. Tropopausenfalten, die zu einem Eintrag stratosphärischer Luft in die Troposphäre führen, zeichnen sich in den CARIBIC-Daten durch eine deutliche Abnahme des Mischungsverhältnisses ab.
Alle bisher ausgewerteten Daten wurden zu einer saisonalen Variation des Mischungsverhältnisses zusammengefügt. Die gefundene Verteilung mit geringen Mischungsverhältnissen im Winter und einem Maximum im Sommer deckt sich qualitativ weitgehend mit einer, im Rahmen von SPURT (Krebsbach et al., 2006) erstellten Verteilung. Im Herbst weichen die Verteilungen leicht voneinander ab. Ein quantitativer Vergleich der beiden Verteilungen steht noch aus.
In einer Auftragung der Verteilung relativ zur Tropopause lassen sich die Austauschprozesse zwischen Troposphäre und Stratosphäre untersuchen. In den Wintermonaten überwiegt der Eintrag von Luftmassen

[1] AquaVIT, 8.-26.Oktober 2007.
[2] *http://www.knmi.nl/samenw/campaign_support/CARIBIC/#LH*

aus der mittleren und oberen Stratosphäre in die „lowermost stratosphere“. Der Eintrag von Wasserdampf beschränkt sich auf die untersten zwei Kilometer der Stratosphäre. Zum Sommer hin kann der troposphärische Wasserdampf in grössere Höhen aufsteigen, im August ist noch in 4 km oberhalb der Tropopause ein Mischungsverhältnis > 10 ppmv messbar.

Unter Hinzunahme der hochaufgelösten Ozon-Messungen aus CARIBIC und der Ozon-Photolyserate aus einem 3-d Modell (MESSy) wurde eine Produktionsrate des äusserst reaktiven Hydroxylradikals erstellt. Während diese Produktionsrate im Bereich der Tropopause eine deutliche jahreszeitliche Variation zeigt, ist sie 4 km oberhalb der Tropopause nahezu konstant.

Basierend auf den Temperaturmessungen des Flugzeugs wurde die relative Feuchte der durchflogenen Luftmassen (innerhalb und ausserhalb von Wolken) abgeleitet und einem Vergleich mit der relativen Feuchte aus der ECMWF Reanalyse unterzogen. Die beiden Verteilungen unterscheiden sich leicht voneinander. Dies hängt auch damit zusammen, dass die in CARIBIC gemessenen Temperaturen im Mittel 1 K höher liegen als die der ECMWF Reanalyse.

Rund 11% der während CARIBIC durchflogenen Luftmassen waren gegenüber Eis übersättigt. Damit traten in CARIBIC deutlich seltener Übersättigungen auf als bei Wasserdampfmessungen im Rahmen von MOZAIC. Hier wiesen, nach einer Analyse von Herman Smit, rund 30% der durchflogenen Luftmassen eine Übersättigung gegenüber Eis auf (Peter et al., 2008).

Bisher wurden die Daten der Wassermessungen in der UT/LS für einen Zeitraum von zwei Jahren ausgewertet. Die daraus abgeleiteten saisonalen Variationen sind statistisch noch insignifikant, da sie von intersaisonalen Variationen überlagert sein können. In den nächsten sieben Jahren (das Projekt CARIBIC läuft bis 2014) kommen weitere Daten über die Wasserdampf- und Wolkenverteilung in der UT/LS hinzu. Dadurch werden zunehmend signifikantere Aussagen über die saisonale Variation der Feuchteverhältnisse möglich. Durch das neue Wasserinstrument und die optimierte Kalibrierung sollten die zukünftigen Messungen von Wasserdampf und Gesamtwasser in CARIBIC noch detailliertere Aussagen über die Feuchteverhältnisse in der UT/LS ermöglichen.

9 Literaturverzeichnis

Appenzeller, C., J. Holton und K. Rosenlof (1996). Seasonal variation of mass transport across the tropopause. *J. Geophys. Res. 101*, 15,071 – 15,078.

Bell, A. (1880). On the Production and Reproduction of Sound by Light. *American Journal of Sciences 20*, 305–324.

Bimberg, D. (2004). *Methoden der Angewandten Physik: Signalverarbeitung mit Lock-In-Verstärker*. Technische Universität Berlin.

Bozóki, Z., M. Szakáll, A. Mohácsi, G. Szabó und Z. Bor (2003). Diode laser based photoacoustic humidity sensors. *Sensors Actuators B 91*, 219–226.

Brenninkmeijer, C. A. M., P. Crutzen, F. Boumard, T. Dauer, B. Dix, R. Ebinghaus, D. Filippi, H. Fischer, H. Franke, U. Frieß, J. Heintzenberg, F. Helleis, M. Hermann, H. H. Kock, C. Koeppel, J. Lelieveld, M. Leuenberger, B. G. Martinsson, S. Miemczyk, H. P. Moret, H. N. Nguyen, P. Nyfeler, D. Oram, D. O'Sullivan, S. Penkett, U. Platt, M. Pupek, M. Ramonet, B. Randa, M. Reichelt, T. S. Rhee, J. Rohwer, K. Rosenfeld, D. Scharffe, H. Schlager, U. Schumann, F. Slemr, D. Sprung, P. Stock, R. Thaler, F. Valentino, P. van Velthoven, A. Waibel, A. Wandel, K. Waschitschek, A. Wiedensohler, I. Xueref-Remy, A. Zahn, U. Zech und H. Ziereis (2007). Civil aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container: The new caribic system. *Atmos. Chem. Phys. 7*, 4953–4976. URL `http://www.atmos-chem-phys.net/7/4953/2007/`.

Buck, A. L. (1981). New equations for computing vapor pressure and enhancement factor. *J. Appl. Meteorol. 20*, 1527–1532.

Buetow, J. (2001). *Model CR-2 Hygrometer Operating Manual*. Buck Research Instuments L.L.C, Boulder,Colorado, USA.

Chen, P. (1995). Isentropic cross-tropopause mass exchange in the extratropics. *J. Geophys. Res. 100*, 16,661 – 16,673.

Detwiler, A. und R. Pratt (1984). Clear air seeding: opportunities and strategies. *J. Weather Modification 16*, 46–60.

Gao, R., P. Popp, D. Fahey, T. Marcy und R. Herman (2004). Evidence Thath Nitric Acid Increases Relative Humidity in Low-Temperature Cirrus Clouds. *Science 303*, 516 – 520.

Gettelman, A., W. Collins, E. Fetzer, A. Eldering, F. Irion, P. Duffy und G. Bala (2006a). Climatology of upper tropospheris relative humidity from the atmospheric infrared sounder and implications for climate. *J. Climate 19*, 2104–2121.

Gettelman, A., E. Fetzer, A. Eldering und F. Irion (2006b). The global distribution of supersaturation in the upper troposphere from the atmospheric infrared sounder. *J. Climate 19*, 2089–2103.

Gettelman, A., W. Randel, F. Wu und S. Massie (2002). Transport of water vapor in the tropical tropopause layer. *Geophys. Res. Lett. 29*, 1–4.

Gierens, K., U. Schumann, M. Helten, H. Smit und A. Marenco (1999). A distribution law for relative humidity in the upper troposphere and lower stratosphere derived from three years of MOZAIC measurements. *Ann. Geophysicae 17*, 1218–1226.

Gierens, K., U. Schumann, M. Helten, H. Smit und P. Wang (2000). Ice-supersaturated regions and subvisible cirrus in the northern midlatitude upper troposphere. *J. Geophys. Res. 105*, 22,743–22,753.

Hintsa, E., E. Weinstock, A. E. Dessler, J. Anderson, M. Loewenstein und J. Podolske (1994). SPADE H_2O measurements and the seasonal cycle of stratospheric water vapor. *Geophys. Res. Lett. 21*, 2559–2562.

Hoinka, K. (1999). Temperature, Humidity and Wind at the Global Tropopause. *Mon. Wea. Rev 127*, 2248–2265.

Holton, J., M. Haynes, P.H. andMcIntyre und A. Douglas (1995). Stratosphere-Troposphere-Exchange. *Rev. Geophys. 33*, 403–439.

Hoor, P., C. Gurk, D. Brunner, M. Hegglin, H. Wernli und H. Fischer (2004). Seasonality and extent of extratropical TST derived from in-situ CO measurements during SPURT. *Atmos. Chem. Phys 4*, 1427–1442.

Hoskins, B. (1991). Towards a pv-θ view of the general circulation. *Tellus, Ser. A 43*, 27–35.

Jensen, E., J. Smith, L. Pfister, J. Pittman und E. Weinstock (2005). Ice superasturations exceeding 100 percent at the cold tropical tropopause: implications for cirrus formation and dehydration. *Atmos. Chem.Phys 5*, 851–862.

Koop, T., B. Luo, A. Tsias und T. Peter (2000). Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions. *Nature 406*, 611–614.

Korolev, A. und G. Isaac (2006). Relative Humidity in Liqiud, Mixed Phase, and Ice Clouds. *J. Atmos. Sci. 63*, 2865–2880.

Kraft, S. (2006). *Vom Atomchip zur Mikroatomik: Einzelatomnachweis in Mikrofallen durch Photoionisation*. Dissertation, Eberhard-Karls-Universität Tübingen.

Kraus, H. (2004). *Die Atmosphäre der Erde*. Springer.

Krebsbach, M., C. Schiller, D. Brunner, G. Günther, M. I. Hegglin, D. Mottaghy, M. Riese, N. Spelten und H. Wernli (2006). Seasonal cycles and variability of O3 and H2O in the UT/LMS during SPURT. *Atmos. Chem. Phys. 6*, 109–125.

Miklós, A. und P. Hess (2000). Modulated and Pulsed Photoacoustics in Trace Gas Analysis. *Anal. Chem. 72*, 30A–37A.

Miklós, A., P. Hess und Z. Bozóki (2001). Application of acoustic resonators in photoacoustic trace gas analysis and metrology. *Rev. Sci. Instrum. 72*, 1937–1955.

Möller, D. (1998). *Einführung in die Chemie der Atmosphäre, Teil 2: Atmosphärische Multiphasenchemie*. Lehrstuhl Luftchemie und Luftreinhaltung, Brandenburgische Technische Universität Cottbus.

Müller, T. (2004). Anleitung zum Praktikumsversuch Mess- und Regeltechnik. Techn. Ber., Ludwig-Maximilians-Universität München.
URL: `http://thor.tech.chemie.tu-muenchen.de/index.php?option=com_docman&task=cat_view&gid=51`.

Moros, R., F. Luft und H. Papp (2008). Grundlagen Regelung. Techn. Ber., Chemgapedia, Fachinformationszentrum Chemie GmbH, Berlin.
URL: `http://www.chemgapedia.de/vsengine/vlu/vsc/de/ch/7/tc/regelung/grundlagen/regelung_grundlagen.vlu.html`.

Murray, B. und A. Bertram (2007). Strong dependence of cubic ice formation on droplet ammonium to sulfate ratio. *Geophys. Res. Lett. 34*.

Ovarlez, J., J. Gayet, K. Gierens, J. Ström, H. Ovarlez, F. Auriol, R. Busen und U. Schumann (2002). Water vapor measurements inside cirrus clouds in Northern and Southern hemispheres during INCA. *Geophys. Res. Lett. 29*, 1813.

Peter, T., M. Krämer und O. Möhler (2008). Upper Tropospheric Humidity: A Report on an International Workshop. *SPARC Newsletter 30*, 9–15.

Peter, T., C. Marcolli, P. Spichtinger, T. Corti, M. Baker und T. Koop (2006). When dry air is to humid. *Science 314*, 1399–1402.

Pilgrim, J. und D. Bomse (2003). Wavelegth modulated photoacoustic spectrometer. United States Patent Patent No.: US 6.552.792 B1, Southwest Sciences Incorporated, Santa Fe, NM (US). URL `http://www.swsciences.com/technology/patents`.

Plumb, R. und J. Eluszkiewicz (1999). The Brewer-Dopson-Circulation: Dynamics of the tropical upwelling. *J. Atmos. Sci. 56*, 868–890.

Quaas, J. (2008). Arbeitsgruppe Wolken-Klima-Wechselwirkungen. Homepage des MPI für Meteorologie, Hamburg.

Rosencwaig, A. und A. Gersho (1976). Theory of the photoacoustic effect with solids. *J. Appl. Phys. 47*, 64–69.

Schönwiese, C.-D. (1995). *Klimaänderungen. Daten, Analysen, Prognosen*. Springer, Belin.

Stenke, A. (2005). *Stratosphärischer Wasserdampf in einem gekoppelten Klima-Chemie-Modell: Simulation, Trend und Bedeutung für die Ozonchemie*. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München.

Stohl, P., A. Bonasoni, P. Cristofanelli und W. Collins (2003). Stratosphere-troposphere exchange: A review, and what we have learned from STACCATO. *J. Geophys. Res. 108*, 8516.

Szakáll, M., Z. Bozóki, M. Krämer, N. Spelten, O. Möhler und U. Schurath (2001). Evaluation of a Photoacoustic Detector for Water Vapor Measurements under Simulated Tropospheric/Lower Stratospheric Conditions. *Environ. Sci. Technol. 35*, 4881–4885.

Szakáll, M., Z. Bozóki, A. Mohácsi, A. Varga und G. Szabó (2004). Diode Laser Based Photoacoustic Water Vapor Detection System for Atmospheric Research. *Appl. Spectrosc. 58*, 792–798.

Szakáll, M., J. Csikós, Z. Bozóki und G. Szabó (2007). On the temperature dependent characteristics of a photoacoustic water vapor detector for airborne application. *Infrared Physics and Technology 51*, 113–121.

Zahn, A., C. Brenninkmeijer und P. van Velthoven (2004). Passenger aircraft project CARIBIC 1997 - 2002, Part II: the ventilation of the lowermost stratosphere. *Atmos. Chem. Phys. Discuss. 4*, 1119–1150.

A Abbildungsverzeichnis

2.1 Schemazeichnung der Atmosphäreneinteilung 6
2.2 Stratosphären-Troposphären-Austausch 7
2.3 Dampfdruckkurve 10
2.4 Saisonale Variation von H_2O während SPURT 13
2.5 Nukleationsgrenzwerte aus Labormessungen 15
2.6 Schemazeichnung für verschiedene Nukleationsprozesse 16
2.7 Jahreszeitlich gemittelte Verteilung der relativen Feuchte aus Satellitenmessungen 18
2.8 Jahreszeitlich gemittelte Verteilung von Eis-Übersättigungen aus Satellitenmessungen . . 18

3.1 Einlass-System 22
3.2 Schemazeichnung des Wasserinstrumentes mit Zuleitungen 23
3.3 CARIBIC Wasserinstrument 24

4.1 Komponenten eines Photoakustik-Laserspektrometers 29
4.2 Prinzip der Wellenlängenmodulation 29
4.3 Zellblock des CARIBIC Photoakustik-Laserspektrometers 32
4.4 Druckabhängigkeit der Sensitivität 33
4.5 Anregung des Line-Lock-Signals 35
4.6 Absorptionslinien und Line-Lock 36
4.7 Rampenartige und quasistatische Stromveränderung 38
4.8 Kalibrierungskurve des neuen PA-Systems 39
4.9 Temperaturdrift des Lasers 40
4.10 Frequenzabhängigkeit des Photoakustik-Signals 41

5.1 Blockdiagramm des Taupunktspiegel-Hygrometers 44
5.2 Verhaltensweisen unterschiedlicher Regler 46
5.3 Variation des Differentialanteils des PID-Reglers 48
5.4 Verlauf der Balance bei Variation des D-Teils 49
5.5 Verhalten des Reglers bei verschieden gewählten PID-Anteilen 49
5.6 Vergleich zweier Flüge vor und nach der Optimierung 50

6.1 Flugrouten 52
6.2 Atmosphäreneinteilung und Flughöhe 53

6.3 Temperaturabhängigkeit der Sensitivität 54
6.4 Flussdiagramm des Auswertungsprozesses 55
6.5 Zusammenhang zwischen PA-Signal und Mischungsverhältnis 57
6.6 Linear genäherter Zusammenhang bei niedrigen Mischungsverhältnissen 58
6.7 Sensitivitätsverlauf der PA-Gesamtwassermessungen während eines Fluges 59
6.8 Ratio der beiden PA-Signale 60
6.9 Kalibrierung des CARIBIC Taupunktspiegel-Hygrometers 61

7.1 CARIBIC-Flug LH-177 14.-15.12.2006 64
7.2 Tropopause während Flug LH-177 65
7.3 CARIBIC-Flug LH-205 15.-16.08.2007 66
7.4 Tropopause während Flug LH-205 67
7.5 Relative Feuchte während Flug LH-177 68
7.6 Verschiedene Formen von Wolken 69
7.7 Saisonale Variation der Wasserdampfverteilung aus CARIBIC 71
7.8 Saisonale Verteilung des Wasserdampfmischungsverhältnisses 73
7.9 Korrelation zwischen O_3 und H_2O 74
7.10 Differenz der Mischungsverhältnisse aus CARIBIC und ECMWF 75
7.11 Temperaturabhängigkeit des Nukleationsgrenzwertes 76
7.12 Häufigkeitsverteilung von relativen Feuchten ausserhalb von Wolken 77
7.13 Häufigkeitsverteilung von relativen Feuchten innerhalb von Wolken 79
7.14 Untersättigte Eiswolken während Feldmessung 80
7.15 Temperaturvergleich A340-ECMWF 81
7.16 Häufigkeitsverteilung von relativen Feuchten ausserhalb von Wolken, aus ECMWF . . . 82
7.17 Häufigkeitsverteilung von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Jahreszeit 83
7.18 Häufigkeitsverteilung von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Jahreszeit, aus ECMWF 84

B Tabellenverzeichnis

7.1 Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Temperatur 77
7.2 Auftrittshäufigkeit von Wolken 78
7.3 Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Jahreszeiten 83
7.4 Auftrittshäufigkeit von relativen Feuchten in Abhängigkeit der Jahreszeit, aus ECMWF . 84

C Flüge in CARIBIC II

Abkürzung der Zielflughäfen

FRA	Frankfurt	Deutschland
CAN	Guangzhou	China
DEN	Denver	Colorado, USA
GRU	Sao Paulo	Brasilien
IAH	Houston	Texas, USA
MNL	Manila	Philippinen
SCL	Santiago	Chile
YYZ	Toronto	Kanada

Flight-No.	Destination	Date of take-off	Date of landing
2005	x x	x x	2005
110	FRA - CAN	19.05.2005	20.05.2005
111	CAN - MNL	20.05.2005	20.05.2005
112	MNL - CAN	20.05.2005	20.05.2005
113	CAN - FRA	20.05.2005	21.05.2005
114	FRA - GRU	20.06.2005	21.06.2005
115	GRU - SCL	21.06.2005	21.06.2005
116	SCL - GRU	21.06.2005	21.06.2005
117	GRU - FRA	21.06.2005	22.06.2005
118	FRA - GRU	27.07.2005	28.07.2005
119	GRU - SCL	28.07.2005	28.07.2005
120	SCL - GRU	28.07.2005	28.07.2005
121	GRU - FRA	28.07.2005	29.07.2005
122	FRA - GRU	30.08.2005	31.08.2005
123	GRU - SCL	31.08.2005	31.08.2005
124	SCL - GRU	31.08.2005	31.08.2005
125	GRU - FRA	31.08.2005	01.09.2005
126	FRA - GRU	04.10.2005	05.10.2005
127	GRU - SCL	05.10.2005	05.10.2005
128	SCL - GRU	05.10.2005	05.10.2005
129	GRU - FRA	05.10.2005	06.10.2005
130	FRA - CAN	14.11.2005	15.11.2005
131	CAN - MNL	15.11.2005	15.11.2005
132	MNL - CAN	15.11.2005	15.11.2005
133	CAN - FRA	15.11.2005	16.11.2005
134	FRA - GRU	14.12.2005	15.12.2005
135	GRU - SCL	15.12.2005	15.12.2005
136	SCL - GRU	15.12.2005	15.12.2005
137	GRU - FRA	15.12.2005	16.12.2005

Flight-No.	Destination	Date of take-off	Date of landing
2006	x x	x x	2006
138	FRA - GRU	20.02.2006	21.02.2006
139	GRU - SCL	21.02.2006	21.02.2006
140	SCL - GRU	21.02.2006	21.02.2006
141	GRU - FRA	21.02.2006	22.02.2006
142	FRA - GRU	20.03.2006	21.03.2006
143	GRU - SCL	21.03.2006	21.03.2006
144	SCL - GRU	21.03.2006	21.03.2006
145	GRU - FRA	21.03.2006	22.03.2006
146	FRA - CAN	27.04.2006	28.04.2006
147	CAN - MNL	28.04.2006	28.04.2006
148	MNL - CAN	28.04.2006	28.04.2006
149	CAN - FRA	28.04.2006	29.04.2006
150	FRA - CAN	29.05.2006	30.05.2006
151	CAN - MNL	30.05.2006	30.05.2006
152	MNL - CAN	30.05.2006	30.05.2006
153	CAN - FRA	30.05.2006	31.05.2006
154	FRA - CAN	05.07.2006	06.07.2006
155	CAN - MNL	06.07.2006	06.07.2006
156	MNL - CAN	06.07.2006	06.07.2006
157	CAN - FRA	06.07.2006	07.07.2006
158	FRA - CAN	31.07.2006	01.08.2006
159	CAN - MNL	01.08.2006	01.08.2006
160	MNL - CAN	01.08.2006	01.08.2006
161	CAN - FRA	01.08.2006	02.08.2006
162	FRA - CAN	07.09.2006	08.09.2006
163	CAN - MNL	08.09.2006	08.09.2006
164	MNL - CAN	08.09.2006	08.09.2006
165	CAN - FRA	08.09.2006	09.09.2006

Flight-No.	Destination	Date of take-off	Date of landing
166	FRA - CAN	19.10.2006	20.10.2006
167	CAN - MNL	20.10.2006	20.10.2006
168	MNL - CAN	20.10.2006	20.10.2006
169	CAN - FRA	20.10.2006	21.10.2006
170	FRA - CAN	14.11.2006	15.11.2006
171	CAN - MNL	15.11.2006	15.11.2006
172	MNL - CAN	15.11.2006	15.11.2006
173	CAN - FRA	15.11.2006	16.11.2006
174	FRA - CAN	13.12.2006	14.12.2006
175	CAN - MNL	14.12.2006	14.12.2006
176	MNL - CAN	14.12.2006	14.12.2006
177	CAN - FRA	14.12.2006	15.12.2006
2007	x x	x x	2007
178	FRA - CAN	05.02.2007	06.02.2007
179	CAN - MNL	06.02.2007	06.02.2007
180	MNL - CAN	06.02.2007	06.02.2007
181	CAN - FRA	06.02.2007	07.02.2007
182	FRA - CAN	06.03.2007	07.03.2007
183	CAN - MNL	07.03.2007	07.03.2007
184	MNL - CAN	07.03.2007	07.03.2007
185	CAN - FRA	07.03.2007	08.03.2007
186	FRA - CAN	18.04.2007	19.04.2007
187	CAN - MNL	19.04.2007	19.04.2007
188	MNL - CAN	19.04.2007	19.04.2007
189	CAN - FRA	19.04.2007	20.04.2007
190	FRA - CAN	22.05.2007	23.05.2007
191	CAN - MNL	23.05.2007	23.05.2007
192	MNL - CAN	23.05.2007	23.05.2007
193	CAN - FRA	23.05.2007	24.05.2007
194	FRA - CAN	21.06.2007	22.06.2007
195	CAN - MNL	22.06.2007	22.06.2007
196	MNL - CAN	22.06.2007	22.06.2007
197	CAN - FRA	22.06.2007	23.06.2007

Flight-No.	Destination	Date of take-off	Date of landing
198	FRA - CAN	17.07.2007	18.07.2007
199	CAN - MNL	18.07.2007	18.07.2007
200	MNL - CAN	18.07.2007	18.07.2007
201	CAN - FRA	18.07.2007	19.07.2007
202	FRA - CAN	14.08.2007	15.08.2007
203	CAN - MNL	15.08.2007	15.08.2007
204	MNL - CAN	15.08.2007	15.08.2007
205	CAN - FRA	15.08.2007	16.08.2007
206	FRA - YYZ	17.09.2007	17.09.2007
207	YYZ - FRA	17.09.2007	18.09.2007
208	FRA - IAH	18.09.2007	18.09.2007
209	IAH - FRA	18.09.2007	19.09.2007
210	FRA - CAN	24.10.2007	25.10.2007
211	CAN - MNL	25.10.2007	25.10.2007
212	MNL - CAN	25.10.2007	25.10.2007
213	CAN - FRA	25.10.2007	26.10.2007
214	FRA - CAN	13.11.2007	14.11.2007
215	CAN - MNL	14.11.2007	14.11.2007
216	MNL - CAN	14.11.2007	14.11.2007
217	CAN - FRA	14.11.2007	15.11.2007
218	FRA - DEN	17.12.2007	17.12.2007
219	DEN - FRA	18.12.2007	18.12.2007
2008	x x	x x	2008
220	FRA - CAN	25.02.2008	26.02.2008
221	CAN - MNL	26.02.2008	26.02.2008
222	MNL - CAN	26.02.2008	26.02.2008
223	CAN - FRA	26.02.2008	27.02.2008
224	FRA - CAN	26.03.2008	27.03.2008
225	CAN - MNL	27.03.2008	27.03.2008
226	MNL - CAN	27.03.2008	27.03.2008
227	CAN - FRA	27.03.2008	28.03.2008

Danksagung

An erster Stelle gebührt mein Dank Dr. Andreas Zahn für die Betreuung meiner Diplomarbeit. Egal wie viel Arbeit anstand, er hatte immer ein offenes Ohr für meine Fragen. Besonders in den letzen Wochen vor der Abgabe habe ich durch ihn eine grosse Unterstützung und wertvolle Hinweise erhalten, die maßgeblich zum Gelingen der Arbeit beitrugen. Vielen Dank!!!
Ebenso möchte ich mich bei der gesamen Arbeitgruppe, namentlich Christoph Dyroff, Daniel Fütterer, Detlev Sprung, Joel Brito und Josef Weppner für die ständige Unterstützung und Hilfsbereitschaft bedanken.
Für die Übernahme des Referats danke ich Herrn Prof. Dr. Fischer, der so die Arbeit erst möglich machte. Bei ihm möchte ich mich auch dafür bedanken, dass ich auf zwei Konferenzen Teile meiner Arbeit präsentieren konnte.
Bei Frau Prof. Dr. Jones möchte ich mich herzlich für die Übernahme des Korreferats bedanken.
Ein weiteres dickes Dankeschön geht an Helga Huszar, Doktorandin bei Hilase (Szeged, Ungarn) die mir bei den Arbeiten am neuen Photoakustik-Laserspektrometer stets zur Seite stand.
Für die motivierenden Gespräche und den Erfahrungsaustausch während der Diplomarbeit möchte ich mich bei meinen Komilitonen Christian, Daniel, Julia, Max und Tobias bedanken. Vielen Dank euch auch für den Zusammenhalt während des gesamten Studiums und die gemeinsame Bewältigung von Höhen und Tiefen. Die letzten fünf Jahre mit euch waren sehr schön!!!

Besonders möchte ich mich bei meinen Eltern für ihre bedingungslose Unterstützung in allen Lebensbereichen bedanken. Vor allem in den letzten Wochen brachten sie mir grosses Verständnis entgegen und fanden immer wieder die richtigen Worte mich aufzubauen und mir neue Kraft zu geben. Und auch bei meinem Freund Wolfgang möchte mich bedanken, dafür dass er einfach immer für mich da war.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbst verfasst und nur die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.
Ich bin damit einverstanden, dass die Arbeit in die Bibliothek eingestellt wird und vervielfältigt werden darf.

Karlsruhe, den 18.Juni 2007 Julia Henriette Keller