
Stratosphärischer Wasserdampf in einem gekoppelten Klima-Chemie-Modell: Simulation, Trends und Bedeutung für die Ozonchemie

Andrea Stenke



München 2005

**Stratosphärischer Wasserdampf in einem
gekoppelten Klima-Chemie-Modell:
Simulation, Trends und Bedeutung
für die Ozonchemie**

Andrea Stenke

Dissertation
an der Fakultät für Physik
der Ludwig–Maximilians–Universität
München

vorgelegt von
Andrea Stenke
aus München

München, 10.11.2005

Erstgutachter: Prof. Dr. R. Sausen

Zweitgutachterin: Prof. Dr. S. Crewell

Tag der mündlichen Prüfung: 31.01.2006

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	vii
1 Einleitung	1
2 Grundlagen	7
2.1 Wasserdampf in der UT/LS	7
2.1.1 Mittlere Verteilung	7
2.1.2 Jahresgang	13
2.1.3 Interannuale Variabilität	14
2.1.4 Langfristige Veränderungen	15
2.2 Wasserdampf als Treibhausgas	17
2.3 Chemische Grundlagen	19
2.3.1 Methanoxidation	19
2.3.2 Stratosphärische Ozonchemie	21
3 Modellbeschreibung	26
3.1 Das Zirkulationsmodell ECHAM4	26
3.2 Das Chemiemodul CHEM	28
3.3 Das Lagrangesche Transportschema ATTILA	30
4 Experimentbeschreibung	33
4.1 Modellevaluierung	33
4.2 Verbesserung von Modelldefiziten – Transportschema	38
4.3 Prozessstudien zum Einfluss der Wasserdampfverteilung auf die Ozonchemie	40
5 Modellklimatologie und ihre Evaluierung	43
5.1 Dynamische Größen	43
5.1.1 Zonal gemittelte Temperaturverteilung	43
5.1.2 Mittlere meridionale Zirkulation	46
5.1.3 Stratosphären-Troposphären-Austausch	50
5.2 Wasserdampfverteilung	52
5.3 Ozonverteilung	63
5.4 Fazit	67

6	Sensitivitätsstudie: Lagrangescher Feuchtetransport mit ATTILA	70
6.1	Wasserdampf und Wolkenwasser	71
6.2	Temperatur und Tropopause	75
6.3	Fazit	78
7	Variabilität und Trends des Wasserdampfs in der UT/LS	80
7.1	Entwicklung von 1960 bis 1999	81
7.1.1	Temperatur	81
7.1.2	Wasserdampf	87
7.1.3	Fazit	96
7.2	Entwicklung von 2000 bis 2019	97
7.2.1	Temperatur	98
7.2.2	Wasserdampf	100
7.2.3	Fazit	103
7.3	Diskussion	103
8	Bedeutung von Wasserdampfänderungen für die Ozonchemie	106
8.1	Kurzfristige Änderung	108
8.2	Langfristige Änderung	113
8.3	Diskussion	123
8.4	Fazit	126
9	Zusammenfassung und Ausblick	128
9.1	Zusammenfassung	128
9.2	Ausblick	135
A	Parametrisierungen	136
A.1	Kumulus-Konvektion	136
A.2	Stratiforme Wolken	137
A.3	Strahlung	138
B	Residuale meridionale Stromfunktion	140
C	Statistische Auswertungsmethoden	142
C.1	Nicht-lineares Regressionsmodell	142
C.2	Mann-Kendall-Test	142
	Abkürzungen	145
	Abbildungsverzeichnis	148
	Tabellenverzeichnis	149
	Literaturverzeichnis	150

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht die mit einem gekoppelten Klima-Chemie-Modell simulierte Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf den verantwortlichen Steuerungsprozessen sowie auf den Auswirkungen, die Veränderungen der Steuerungsmechanismen auf die stratosphärische Wasserdampfverteilung und damit auch auf die Ozonschicht haben. Hierzu wurden verschiedene transiente Modellsimulationen der Zeiträume 1960 bis 1999 und 2000 bis 2019 analysiert, wobei in den Experimenten möglichst viele externe Klimaantriebe wie der Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen sowie der Fluorchlorkohlenwasserstoffe, die quasi-zweijährige Schwingung der Stratosphäre, große Vulkanausbrüche oder der Sonnenfleckenzyklus berücksichtigt wurden. Die Bedeutung von Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts für die Ozonchemie wurde anhand von unterschiedlichen Sensitivitätsexperimenten abgeschätzt.

Ein Vergleich mit Beobachtungen zeigt, dass das Modell die wesentlichen Merkmale der Wasserdampfverteilung im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre zufriedenstellend reproduziert. Verbunden mit einer etwas zu warmen tropischen Tropopause werden die Luftmassen beim Eintritt in die Stratosphäre jedoch nicht ausreichend dehydriert und der stratosphärische Wasserdampfgehalt somit überschätzt. Zusätzlich wird der beobachtete meridionale Wasserdampfgradient in den Subtropen vom Modell unterschätzt, was zu einem ausgeprägten Feuchtefehler in der extratropischen untersten Stratosphäre führt.

Eine im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Sensitivitätsstudie, bei der erstmals ein rein Lagrangesches, numerisch nicht-diffusives Advektionsschema für den Transport von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser in einem Klimamodell eingesetzt wurde, zeigt, dass dieser Feuchtefehler auf die erhebliche numerische Diffusion des operationellen semi-Lagrangeschen Transportschemas zurückzuführen ist. Der Einsatz eines rein Lagrangeschen Advektionsschemas bewirkt einen signifikanten Rückgang des modellierten Feuchtefehlers und damit verbunden eine deutliche Verringerung des systematischen Kältefehlers im Bereich der polaren Tropopause.

Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts sind hauptsächlich auf Veränderungen der tropischen Tropopausentemperatur zurückzuführen. So wird die beobachtete saisonale und interannuale Variabilität der Temperatur an der tropischen Tropopause und die damit verbundenen stratosphärischen Wasserdampfanomalien vom Modell erfolgreich wiedergegeben. Der beobachtete Wasserdampftrend der 1980er und 1990er Jahre wird ebenfalls zufriedenstellend reproduziert, wobei der simulierte Wasserdampfanstieg zu etwa 70% auf eine Erwärmung der tropischen Tropopause zurückzuführen ist. Die restlichen 30% des Wasserdampftrends werden durch eine Zunahme der Methanoxidation verursacht.

Ein Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts bewirkt eine Zunahme der Hydroxylradikale (OH), was zu einem verstärkten Ozonabbau über den HO_x - und ClO_x -Zyklus sowie einem verringerten Ozonabbau durch den NO_x -Zyklus führt. Bei einer räumlich homogenen Wasserdampfstörung dominiert der verstärkte Ozonabbau. Desweiteren führt ein Wasserdampfanstieg zu einer erhöhten Sättigungstemperatur und beeinflusst damit die Bildung von polaren Stratosphärenwolken im antarktischen Polarwirbel, was einen verstärkten heterogenen Ozonverlust im Südfrühling bewirkt. Im nordhemisphärischen Polarwirbel ist dies nicht festzustellen, da aufgrund der höheren Temperaturen die Bildungstemperaturen von polaren Stratosphärenwolken nicht dauerhaft unterschritten werden. Insgesamt deuten die Modellergebnisse darauf hin, dass $\approx 15\%$ des globalen Ozonrückgangs in den letzten 20 Jahren auf Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts zurückzuführen sind.

Kapitel 1

Einleitung

Wetter und Klima besitzen ihr gewohntes Erscheinungsbild nur Dank der einzigartigen Eigenschaft des Wassermoleküls, dass alle drei Phasen — fest, flüssig und gasförmig — in der Atmosphäre koexistieren können. Die gasförmige Phase, der Wasserdampf, spielt in der Atmosphäre in mehrererlei Hinsicht eine entscheidende Rolle: Große Mengen latenter Wärme, die bei Phasenübergängen freigesetzt bzw. gebunden werden, verändern den Energiehaushalt der Atmosphäre und treiben die atmosphärische Zirkulation an. Als Quelle des Hydroxyl-Radikals (OH), welches aufgrund seiner hohen Oxidationskapazität auch als „Waschmittel“ der Atmosphäre bezeichnet wird, ist Wasserdampf in die Chemie sowohl der Troposphäre als auch der Stratosphäre eingebunden. Schließlich ist Wasserdampf als wichtigstes Treibhausgas für den Strahlungshaushalt der Erde maßgeblich: Während Wasserdampf Strahlung im kurzwelligen Spektralbereich nur in geringem Maße absorbiert, besitzt er starke Absorptionsbanden im infraroten Spektralbereich. Durch die Absorption langwelliger Strahlung verhindert Wasserdampf zusammen mit anderen strahlungsrelevanten Gasen wie z.B. Kohlendioxid die Abkühlung der Erde. Ohne die Atmosphäre und deren Treibhauswirkung würde die Temperatur an der Erdoberfläche auf die effektive Strahlungstemperatur der Erde von 255 K (ca. -18°C) absinken.

Die stratosphärische Wasserdampfverteilung ist seit vielen Jahren Gegenstand intensiver Forschung. Bereits im Jahr 1943 unternahmen englische Wissenschaftler im Rahmen des *Meteorological Research Flight Program (MRF)* die ersten Feuchtemessungen in der Stratosphäre (Dobson et al., 1946). Die Messungen erfolgten damals noch manuell mit einem Frostpunkthygrometer von einem Flugzeug aus. Die Messergebnisse zeigten eine rapide Abnahme der Feuchte oberhalb der Tropopause. Dobson et al. (1946) erklärten die Trockenheit der Stratosphäre damit, dass aufsteigende Luftmassen soweit abgekühlt werden, dass der darin enthaltene Wasserdampf sublimiert und als Eispartikel ausfällt. Desweiteren folgerten sie, dass die Dehydrierung der Luftmassen hauptsächlich in äquatorialen Breiten stattfinden müsse, da dort die unterste Stratosphäre am kältesten ist. Diese erste Hypothese zur Dehydrierung der Luft an der tropische Tropopause ist mit dem Begriff „cold trap“ verbunden. Brewer (1949) setzte die Ergebnisse zu einem ersten konsistenten Bild der stratosphärischen Zirkulation zusammen: Luftmassen steigen am Äquator auf, werden in der Stratosphäre polwärts transportiert und sinken über den Polen ab. Die großskalige, meridionale Zirkulation der Stratosphäre wird deswegen auch Brewer-Dobson-Zirkulation genannt.

Zu Beginn der 1960er Jahre fanden die ersten ballongetragenen In-situ-Messungen statt. Die einzelnen Messungen ergaben recht kontroverse Ergebnisse. Während ein Teil der Sondierun-

gen ein konstantes Wasserdampfmischungsverhältnis in der Stratosphäre ergab, zeigten andere Messungen oberhalb der Tropopause eine starke Zunahme des Wasserdampfgehalts mit der Höhe. Erst später verstand man, dass verdampfendes Wasser aus den Ballonsystemen die Messungen verfälschte. Zwischen 1964 und 1979 unternahm Mastenbrook eine Serie von stratosphärischen Feuchtemessungen mit Hilfe eines ballongetragenen Frostpunkthygrometers über Washington, DC, und entdeckte in den Messdaten erstmals einen signifikanten Jahresgang (Mastenbrook, 1968; Mastenbrook, 1971). Als Ursache vermutete er die Variabilität der Temperatur und damit der Dehydrierung an der tropischen Tropopause. Das bemerkenswerteste Ergebnis war für Mastenbrook allerdings die Entdeckung eines Wasserdampftrends. So stieg der Wasserdampfgehalt in sechs Jahren um 50% von 2 auf 3 ppmv an (Mastenbrook, 1971).

Ende der 1970er Jahre unternahm Kley et al. (1979) Ballonflüge mit einem Lyman- α -Hygrometer. Diese Messtechnik nutzt die Fluoreszenz von OH-Radikalen, die bei der Photodissoziation von Wasserdampf entstehen. Bei Messungen über Brasilien entdeckten Kley et al. (1979) die Existenz eines Wasserdampfminimums etwa 2-3 km oberhalb der tropischen Tropopause, die sogenannte Hygropause. Desweiteren zeigten die Messungen eine leichte Zunahme des Wasserdampfmischungsverhältnisses mit der Höhe. Allerdings stießen Kley und seine Kollegen auch auf Widersprüche bei der Auswertung der Messdaten: Die gemessene Tropopausentemperatur lag etwa 4 K oberhalb der Temperatur, die notwendig gewesen wäre, um die Luft auf die beobachteten Wasserdampfwerte von 2.6 ppmv zu dehydrieren. Sie folgerten, dass die Luftmassen nicht über die lokale Tropopause in die Stratosphäre gelangt sein können, denn die Beobachtungen deckten sich nicht mit der „cold trap“-Hypothese. Insbesondere drängte sich die Frage auf, wieso das Wasserdampfminimum 2-3 km oberhalb der Tropopause und nicht direkt an der Tropopause auftritt.

In den folgenden Jahren entwickelte sich eine intensive Diskussion darüber, welcher Prozess für die Dehydrierung der Luftmassen beim Eintritt von der Troposphäre in die Stratosphäre verantwortlich ist. Newell und Gould-Stewart (1981) stellten die Hypothese auf, dass sich der Transport von der Troposphäre in die Stratosphäre auf die Region um den tropischen Westpazifik, Indonesien und Indien beschränkt. In diesen Regionen werden die tiefsten Tropopausentemperaturen beobachtet, tief genug, um das beobachtete Wasserdampfminimum oberhalb der tropischen Tropopause zu erklären. Newell und Gould-Stewart (1981) bezeichneten diese Region als „stratospheric fountain“. Desweiteren wurde der Einfluss von überschießender Konvektion auf die Dehydrierung der untersten tropischen Stratosphäre recht kontrovers diskutiert: Johnston und Solomon (1979) und später Danielsen (1982) vertraten die Hypothese, dass starke konvektive Ereignisse bis in die Stratosphäre vordringen, wobei die Luftmassen bis zur Sättigung abgekühlt werden. Die Dehydrierung der tropischen untersten Stratosphäre erfolgt dann durch rasches Sedimentieren der gebildeten Eiskristalle. Laut Robinson (1980) widersprachen dieser Hypothese jedoch die damals vorhandenen Beobachtungsdaten. Die Frage nach dem hauptverantwortlichen Dehydrierungsmechanismus konnte trotz intensiver Forschung bis heute noch nicht abschließend beantwortet werden.

Seit 1980 werden regelmäßig Ballonsondierungen mit einem Frostpunkthygrometer über Boulder (USA) durchgeführt (Mastenbrook und Oltmans, 1983; Oltmans et al., 2000), die die längste zur Verfügung stehende Wasserdampfzeitreihe der unteren Stratosphäre bilden. Bis zum Jahr 2000 setzte sich der von Mastenbrook (1971) beobachtete Wasserdampfanstieg in der Stratosphäre weiter fort (Oltmans et al., 2000). Seit 2001 zeigen die Messungen allerdings ungewöhnlich niedrige Wasserdampfwerte (s. Abb. 1.1). Somit bleibt abzuwarten, ob sich die Wasserdampfunahme fortsetzt oder nicht.

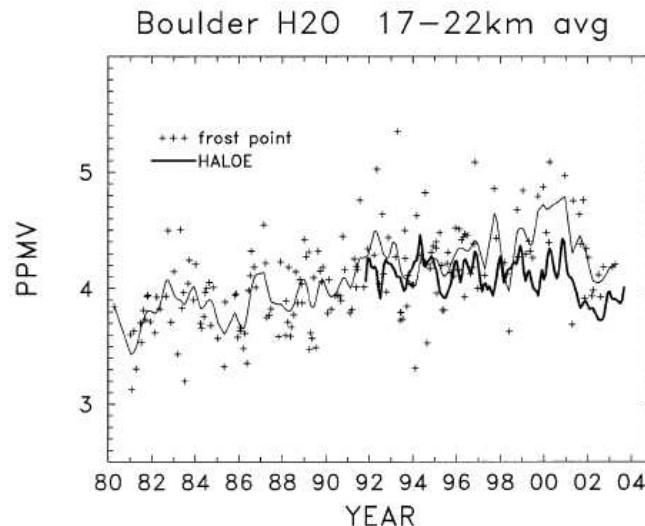


Abbildung 1.1: Wasserdampfmessungen über Boulder (USA) mit einem Frostpunkthygrometer zwischen 1980 und 2002. Die dünne Linie kennzeichnet einen gleitenden Mittelwert. Die fett eingezeichnete Linie zeigt HALOE-Messungen über Boulder zwischen 1991 und 2002. Die Messungen sind über den Höhenbereich zwischen 17 und 22 km gemittelt. Aus Randel et al. (2004).

Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts könnten sich in mehrfacher Weise auf Atmosphäre und Klima auswirken. Verschiedene Studien zeigen, dass eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts auf der einen Seite eine Erwärmung der Erdoberfläche und auf der anderen Seite eine Abkühlung der Stratosphäre zur Folge hätte (WMO, 2003). Unter der Annahme eines globalen Anstiegs des stratosphärischen Wasserdampfgehalts um 0.7 ppmv, berechneten Forster und Shine (1999) eine Abkühlung der unteren Stratosphäre in mittleren und hohen Breiten von mehr als 1 K. Diese Abkühlung ist vergleichbar mit dem Effekt des stratosphärischen Ozonrückgangs zwischen 1979 und 1997. Zusätzlich errechneten Forster und Shine (1999) eine Erwärmung der Erdoberfläche um 0.11 K, was etwa 44% der Erwärmung der Erdoberfläche allein aufgrund des beobachteten CO_2 -Anstiegs zwischen 1979 und 1997 entspricht. Gleichzeitig nimmt der atmosphärische Gehalt des Treibhausgases Wasserdampf in einem sich erwärmenden Klima zu (Clausius-Clapeyron-Gleichung (2.1)), wodurch die Erwärmung weiter verstärkt wird (positive Rückkopplung) (Kley et al., 2000).

Desweiteren ist zu erwarten, dass sich eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts in einem Anstieg der OH-Konzentrationen äußert. Aufgrund unterschiedlicher Rückkopplungsprozesse mit anderen Radikalgruppen hätte dies große Auswirkungen auf die stratosphärische Ozonchemie. Zum einen wäre ein verstärkter katalytischer Ozonabbau durch die HO_x - und die ClO_x -Familie zu erwarten, da das Reservoirgas HCl durch die Reaktion mit OH in reaktive Cl-Radikale überführt wird. Zum anderen sollte der Ozonabbau durch die NO_x -Familie verringert werden, da NO_x durch die Reaktion mit OH in dem Reservoirgas HNO_3 gespeichert wird (Seinfeld und Pandis, 1998). Außerdem zeigten Kirk-Davidoff et al. (1999), dass eine stratosphärische Wasserdampfzunahme zu einer Erhöhung des Temperaturschwellwerts für die Aktivierung halogenhaltiger Radikale führen und dadurch eine Verlängerung des heterogenen Ozonabbaus im Frühling bewirken würde. Somit könnte ein stratosphärischer Wasserdampfanstieg einen bedeutenden Beitrag zum Klimawandel leisten.

Das Zeitalter der Wasserdampfmessungen mit Hilfe von Satelliten begann 1978 mit dem LIMS (Limb Infrared Monitor of the Stratosphere)-Messgerät auf dem Satellit Nimbus 7 (Russell

et al., 1984). Diese ersten globalen Messdaten zeigten in der Stratosphäre ebenfalls eine langsame Zunahme des Wasserdampfgehalts mit der Höhe und bestätigten damit die Ergebnisse der In-situ-Messungen. Zudem wurde die globale Existenz der Hygropause in der tropischen Stratosphäre entdeckt. Die ersten längerfristigen Satellitenmessungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts begannen 1986 mit SAGE II (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II) (McCormick et al., 1993). Leider wurden die Aufzeichnungen nach dem Ausbruch des Pinatubo im Jahr 1991 unterbrochen, da die Wasserdampfmessungen sehr sensibel auf den stratosphärischen Aerosolgehalt reagieren. Seit 1991 stellen HALOE (HALogen Occultation Experiment) für die Stratosphäre und MLS (Microwave Limb Sounder) für die untere Stratosphäre und obere Troposphäre (Russell et al., 1993; Barath et al., 1993) globale Datensätze in guter räumlicher und zeitlicher Auflösung zur Verfügung. Beide Messgeräte befinden sich an Bord des Upper Atmosphere Research Satellite (UARS). Der europäische Satellit ENVISAT liefert seit März 2002 zahlreiche Messdaten, darunter auch Messungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts mit MIPAS (Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding). Ein Überblick über die verfügbaren Wasserdampfmessungen sowie die verschiedenen Messmethoden und deren Vor- und Nachteile ist in Kley et al. (2000) zu finden. Generell stellt Wasserdampf hohe Anforderungen an Messinstrumente. Seine Eigenschaft sich an Oberflächen niederzuschlagen beeinflusst besonders In-situ-Messungen. Starke horizontale und vertikale Gradienten stellen dagegen Fernerkundungsmethoden vor große Schwierigkeiten. Die unvollständige Kenntnis der physikalischen Prozesse hinter dem beobachteten Strahlungsspektrum erschwert zudem die Umrechnung der gemessenen Strahldichten in Mischungsverhältnisse. Und schließlich werden sowohl In-situ-Messungen als auch Fernerkundungstechniken von Wolken beeinflusst.

Dieser kurze Überblick über den Stand des Wissens hinsichtlich der Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre zeigt deutlich, dass auch nach mehr als 50 Jahren intensiver wissenschaftlicher Arbeit viele Fragen noch unbeantwortet sind. Neben der intensiven Analyse der vorhandenen Beobachtungsdaten spielen Modellstudien bei der Beantwortung der offenen Fragen eine bedeutende Rolle. Dabei steht eine Vielzahl verschiedener Modellinstrumente zur Verfügung, deren Einsatz von der jeweiligen Fragestellung abhängt. So werden für Prozessstudien zur Dehydrierung im Bereich der tropischen Tropopause wolkenauflösende Modelle eingesetzt (z.B. Jensen et al., 2001; Jensen und Pfister, 2004; Küpper et al., 2004). Aufgrund ihrer hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung eignen sich diese Modelle nur für einzelne Fallstudien. Dagegen bieten gekoppelte Klima-Chemie-Modelle (engl. chemistry climate model, CCM), die Möglichkeit die komplexen Kopplungsmechanismen zwischen Wasserdampfverteilung, Dynamik und Atmosphärenchemie auf globaler Ebene und auf langen Zeitskalen zu untersuchen.

Die Fortschritte in der Klima-Chemie-Modellierung sowie die rasche Entwicklung der Leistungsfähigkeit moderner Computersysteme ermöglichen neben sogenannten Zeitscheibenexperimenten auch die Durchführung von transienten Modellsimulationen über einen längeren Zeitraum. Bei Zeitscheibenexperimenten bleiben Randbedingungen wie Meeresoberflächentemperaturen oder Kohlendioxidgehalt der Atmosphäre unverändert und repräsentieren somit einen bestimmten Zeitraum, z.B. den Anfang der 1990er Jahre. Die einzelnen Modelljahre stellen verschiedene Realisationen dieses Zeitraums dar, wodurch die interne Jahr-zu-Jahr-Variabilität berücksichtigt wird. Im Gegensatz dazu variieren die Randbedingungen bei transienten Simulationen. So berücksichtigt eine transiente Modellsimulation der Jahre 1960 bis 1999, die vor kurzem am DLR-Institut für Physik der Atmosphäre mit dem gekoppelten Klima-Chemie-Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM durchgeführt wurde, den Anstieg der Treibhausgase und

der Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKWs), die Veränderung der Meeresoberflächentemperaturen, aber auch den Sonnenzyklus, die quasi-zweijährige Schwingung des stratosphärischen Windes (QBO) und große Vulkanausbrüche (Dameris et al., 2005). Durch die Berücksichtigung der erwähnten externen Klimaantriebe wird versucht, die Realität mit Modellen so gut wie möglich abzubilden. Solche Simulationen bieten die einmalige Gelegenheit langfristige Veränderungen zu analysieren und deren Ursachen zu untersuchen, wobei zuvor selbstverständlich die Modellfähigkeiten anhand von Beobachtungsdaten evaluiert werden müssen. Gerade im Fall von Wasserdampf beginnen lange globale Messreihen erst 1991 mit den HALOE-Beobachtungen, während transiente Modellsimulationen globale Datensätze über längere Zeiträume liefern. Natürlich lassen sich transiente Modellsimulationen auch in die Zukunft fortsetzen, so dass Abschätzungen über eine zukünftige Entwicklung des stratosphärischen Wasserdampfgehalts möglich sind.

Die realistische Modellierung der Wasserdampfverteilung stellt hohe Anforderungen an CCMs oder allgemein an Modelle der allgemeinen Zirkulation (engl. general circulation model, GCM) (Mote et al., 1994). Die Wasserdampfverteilung im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre wird maßgeblich von den Austauschprozessen zwischen Troposphäre und Stratosphäre bestimmt, welche sowohl kleinskaliger als auch großskaliger Natur sind. Zusätzlich ist die Wasserdampfverteilung stark von der Temperatur abhängig. Eine realistische Simulation der Wasserdampfverteilung erfordert also, dass Transportprozesse und Temperaturverteilung gleichzeitig korrekt erfasst werden. Kleinskalige Prozesse oder räumliche und zeitliche Temperaturfluktuationen können aber in einem GCM aufgrund der eingeschränkten räumlichen und zeitlichen Auflösung nur parametrisiert werden. Die Bedeutung einer realistischen Modellierung der Wasserdampfverteilung in einem GCM wird sofort deutlich, wenn man sich die vielfältige Rolle des Wasserdampfs in der Atmosphäre vor Augen führt. Die komplexen Kopplungsmechanismen zwischen Dynamik und Wasserdampf führen dazu, dass schon kleine Fehler in der Wasserdampfverteilung große Auswirkungen auf das Modellklima haben können. Trotz dieser Bedeutung der modellierten Wasserdampfverteilung für die Qualität von Klima-Chemie-Simulationen wurde der Wasserdampfverteilung bislang nur wenig Beachtung geschenkt.

Gegenstand dieser Arbeit ist die mit dem Klima-Chemie-Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM modellierte Wasserdampfverteilung im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Im Zentrum der Arbeit stehen dabei folgende Fragen:

- Welche Prozesse kontrollieren die Wasserdampfverteilung?
- Wie gut werden diese Steuerungsprozesse vom Modell reproduziert?
- Wie können etwaige Modelldefizite behoben werden?
- Wie beeinflussen Klimavariationen und Klimaänderungen diese Steuerungsmechanismen und somit die stratosphärische Wasserdampfverteilung?
- Welche Konsequenzen haben Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfs für die Ozonschicht?

Anhand der bereits erwähnten transienten Modellsimulation (Dameris et al., 2005) wird zunächst die modellierte Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre und deren Variabilität analysiert sowie die verantwortlichen Steuerungsmechanismen identifiziert. Der Vergleich mit verschiedenen Beobachtungsdaten gibt Aufschluss über die Fähigkeit des Modellsystems, die beobachtete Wasserdampfverteilung sowie die relevanten Steue-

rungsmechanismen — soweit sie bislang bekannt sind — realistisch nachzuvollziehen. Dabei ist es wichtig vorhandene Modelldefizite und deren Ursachen aufzudecken, um zum einen die Belastbarkeit der weiteren Modellstudien einschätzen und zum anderen Ansätze zur Verbesserung dieser Modellschwächen entwickeln zu können. Auf dieser Basis wird die Wirkung sich verändernder Steuerungsmechanismen auf die stratosphärische Wasserdampfverteilung und damit auch auf die Ozonschicht untersucht. Veränderungen der Wasserdampfverteilung bewirken komplexe Rückkopplungseffekte zwischen Chemie und Dynamik, die nur schwer zu trennen sind. Deswegen wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Methode entwickelt, die eine separate Betrachtung der chemischen Veränderungen aufgrund einer geänderten stratosphärischen Wasserdampfverteilung ermöglicht. Mit Hilfe dieser Methode wird der chemische Effekt unterschiedlicher Wasserdampfstörungen untersucht: Ein kurzzeitiger Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts, wie er durch Vulkanausbrüche hervorgerufen wird, sowie langfristige Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts.

Diese Arbeit ist wie folgt aufgebaut: Das nächste Kapitel beschreibt die Wasserdampfverteilung in Troposphäre und Stratosphäre sowie die für die Entstehung dieser Verteilung verantwortlichen Prozesse. Desweiteren werden in Kapitel 2 die strahlungsrelevanten Eigenschaften von Wasserdampf (Abschnitt 2.2) sowie die für diese Arbeit wichtigen chemischen Grundlagen (Abschnitt 2.3) erläutert. Im Anschluss daran werden in Kapitel 3 die verwendeten Modellwerkzeuge vorgestellt. Dabei handelt es sich um das interaktiv gekoppelte Klima-Chemie-Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM, welches sich aus dem atmosphärischen Zirkulationsmodell ECHAM4.L39(DLR) (Abschnitt 3.1) und dem Chemiemodul CHEM (Abschnitt 3.2) zusammensetzt, und um das Lagrangesche Transportschema ATTILA (Abschnitt 3.3). Die Beschreibung der durchgeführten bzw. analysierten Modellexperimente folgt in Kapitel 4. Kapitel 5 befasst sich mit der Analyse der modellierten Wasserdampfverteilung, einem Vergleich mit Beobachtungsdaten sowie der Identifizierung der Schlüsselprozesse, die für die modellierte Wasserdampfverteilung verantwortlich sind. Die Sensitivität der modellierten Wasserdampfverteilung bezüglich des verwendeten Transportschemas wird in Kapitel 6 untersucht. Kapitel 7 behandelt die simulierte Variabilität sowie langfristige Veränderungen der stratosphärischen Wasserdampfverteilung und deren Ursachen. Desweiteren wird die Bedeutung von Vulkanausbrüchen für die stratosphärische Wasserdampfverteilung anhand einer Sensitivitätsstudie abgeschätzt. Etwaige zukünftige Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts werden in Abschnitt 7.2 diskutiert. Kapitel 8 beschäftigt sich schließlich mit der Frage, welchen Beitrag Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts zu den Veränderungen der Ozonschicht in einem sich ändernden Klima leisten. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse (Abschnitt 9.1) sowie ein Ausblick (Abschnitt 9.2) bilden den Abschluss dieser Arbeit.

Kapitel 2

Grundlagen

Wasserdampf in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre ist aufgrund seiner Eigenschaften als Treibhausgas, als Speicher für große Mengen an latenter Wärme und als Quelle des Hydroxyl-Radikals (OH) für vielerlei atmosphärische Prozesse von zentraler Bedeutung. Zunächst wird nun die beobachtete Verteilung des Wasserdampfs in der Atmosphäre beschrieben. Im Anschluss daran befasst sich dieses Kapitel mit den wichtigsten Prozessen, die zur beobachteten Wasserdampfverteilung führen. Am Ende des Kapitels werden die Strahlungswirksamkeit von Wasserdampf (Abschnitt 2.2) und die für diese Arbeit relevanten chemischen Prozesse (Abschnitt 2.3) erläutert.

2.1 Wasserdampf in der UT/LS

2.1.1 Mittlere Verteilung

Zur Beschreibung der mittleren Wasserdampfverteilung sind Satellitendaten am besten geeignet, da sie globale Datensätze in ausreichender zeitlicher und räumlicher Auflösung bieten. Die zonal gemittelte Wasserdampfverteilung basierend auf HALOE-Satellitenmessungen zwischen 1991 und 2002 ist in Abbildung 2.1 gezeigt. HALOE misst das Mischungsverhältnis von Wasserdampf im Höhenbereich zwischen 10 und 85 km mit einer vertikalen Auflösung von ca. 2.3 km (Russell et al., 1993).

Die Kapazität der Luft Wasserdampf aufzunehmen hängt nach der Clausius-Clapeyron-Gleichung (2.1) stark nicht-linear von der Temperatur ab. Dieses Verhalten spiegelt sich in der Abnahme des Wasserdampfmischungsverhältnisses um mehrere Größenordnungen von 10^4 ppmv an der Erdoberfläche bis 10^1 ppmv in Tropopausennähe wieder. Die Clausius-Clapeyron-Gleichung beschreibt die Abhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks von der Temperatur:

$$\frac{de_s(T)}{dT} = \frac{l_v}{T(\nu_w - \nu_f)} \approx \frac{l_v}{T\nu_w} = \frac{l_v e_s}{R_w T^2}, \quad (2.1)$$

wobei e_s den Sättigungsdampfdruck über Wasser, T die Temperatur, l_v die Verdunstungswärme¹, $R_w = 461 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ die Gaskonstante von Wasserdampf und ν_w bzw. ν_f die spezifischen

¹Die Verdunstungswärme l_v ist temperaturabhängig, $l_v(273 \text{ K})=2.5 \cdot 10^6 \text{ J kg}^{-1}$, $l_v(373 \text{ K})=2.25 \cdot 10^6 \text{ J kg}^{-1}$. Für die meisten Berechnungen wird allerdings in erster Näherung angenommen, dass l_v konstant ist.

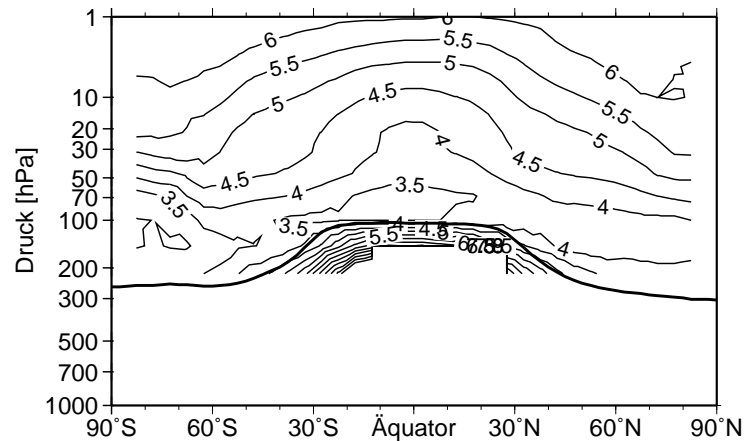


Abbildung 2.1: Vertikalschnitt des zonal gemittelten Wasserdampfmischungsverhältnisses [ppmv]. Die Abbildung basiert auf HALOE-Satellitendaten zwischen 1991 und 2002 und zeigt einen Jahresmittelwert (J.-U. Grooß, FZ Jülich, persönliche Mitteilung). Die fett eingezeichnete Linie markiert die mittlere Höhe der thermischen Tropopause. Zur Berechnung der Tropopausenhöhe wurden Temperaturdaten der ECMWF Re-Analysen verwendet.

Volumina von Wasserdampf und Flüssigwasser bezeichnen. In der Form (2.1) gilt die Gleichung für den Phasenübergang Wasser \leftrightarrow Wasserdampf.

Im Bereich der Tropopause² ist die Wasserdampfverteilung durch einen sehr starken vertikalen Gradienten gekennzeichnet (s. Abb. 2.1). Knapp oberhalb der tropischen Tropopause weist die Wasserdampfverteilung ein Minimum mit Mischungsverhältnissen um 3 ppmv auf, das auch als Hygropause bezeichnet wird (Kley et al., 1979). Ausgehend von diesem Minimum nimmt der Wasserdampfgehalt in der Stratosphäre mit der Höhe und in Richtung der Pole allmählich zu. In der antarktischen untersten Stratosphäre treten ebenfalls sehr geringe Mischungsverhältnisse mit Werten um 2-3 ppmv auf. In diesem Bereich wird der Jahresmittelwert stark von den Winter- und Frühlingsmonaten beeinflusst, in denen aufgrund der niedrigen Temperaturen eine starke Dehydrierung auftritt (s. Abschnitt 2.1.2).

Die Wasserdampfverteilung in der Stratosphäre und oberen Troposphäre wird von verschiedenen Prozessen bestimmt: Die mittlere meridionale Zirkulation, Dehydrierung an der tropischen Tropopause, stratosphärische Chemie, saisonale Dehydrierung in den Polarregionen sowie dem Troposphäre-Stratosphären-Austausch im Bereich der extratropischen Tropopause. Wie bereits in der Einleitung erwähnt wurde, sind die einzelnen Prozesse, die zur beobachteten Wasserdampfverteilung führen, noch nicht restlos verstanden. Dennoch sollen an dieser Stelle die wichtigsten Prozesse, soweit sie verstanden sind, erläutert werden. Ein ausführlicher Überblick über den Stand des Wissens wird in Kley et al. (2000) gegeben.

Stratosphärischer Transport

In Abbildung 2.2 ist die mittlere Meridionalzirkulation bis zur Mesosphäre schematisch dargestellt. In der tropischen Troposphäre wird die Zirkulation durch den meridionalen Temperatur-

²Soweit nicht anders angegeben, bezeichnet die Tropopausenhöhe in dieser Arbeit die thermische Tropopause, die als die unterste Höhe definiert ist, in der der Temperaturgradient über einen Höhenbereich von 2 km größer ist als -2 K/km (WMO, 1992).

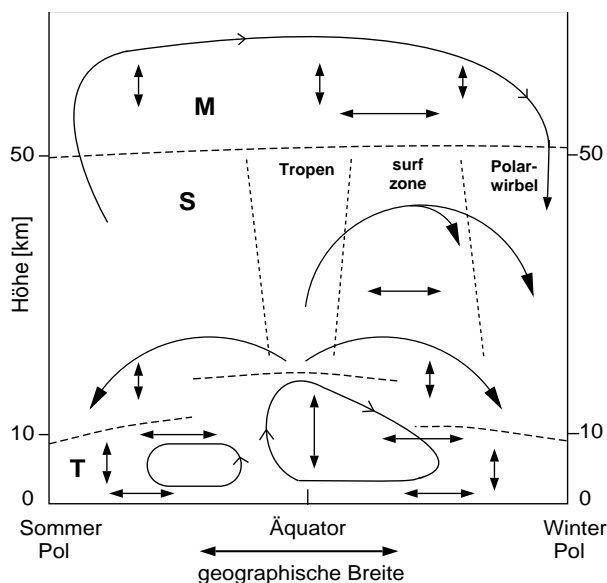


Abbildung 2.2: Darstellung der mittleren Meridionalzirkulation nach WMO (1986) und Plumb (2002). T, S und M bezeichnen Tropo-, Strato- und Mesosphäre. Pfeile kennzeichnen die horizontale und vertikale Diffusion. Die gestrichelten horizontalen Linien bezeichnen die Tropo- und Stratopause, die gestrichelten vertikalen Linien die subtropische Transportbarriere und den Polarwirbelrand.

gradienten zwischen Tropen und höheren Breiten angetrieben. Aufsteigen in den Tropen und Absinken in subtropischen Breiten bestimmen die sogenannte Hadley-Zirkulation. Die mittlere meridionale Zirkulation in der Stratosphäre, die sog. Brewer-Dobson-Zirkulation, ist durch aufsteigende Luftbewegungen in den Tropen, Transport in Richtung Winterpol und Absinken in mittleren und hohen Breiten gekennzeichnet (Dobson et al., 1946; Brewer, 1949). In der Mesosphäre dominiert der Transport vom Sommer- zum Winterpol das großskalige Zirkulationsmuster.

Während der polwärts gerichtete Transport in der Troposphäre durch den meridionalen Temperaturgradienten angetrieben wird, ist der polwärts gerichtete Transport in der Stratosphäre durch den Einfluss troposphärischer Wellen zu erklären, die sich in die Stratosphäre ausbreiten. Die Ausbreitung troposphärischer Wellen ist an vorherrschende stratosphärische Westwinde gekoppelt und somit auf die Winterhemisphäre beschränkt (Charney und Drazin, 1961). Die in der Sommerhemisphäre vorherrschenden stratosphärischen Ostwinde blockieren die Ausbreitung von Wellen aus der Troposphäre. Vereinfacht ausgedrückt induzieren brechende Rossby- und Schwerewellen eine westwärts gerichtete Kraft auf die Grundströmung aus westlicher Richtung. Die daraus resultierende meridionale Strömung ist polwärts gerichtet. Durch diesen Mechanismus werden Luftmassen aus den Tropen in mittlere und hohe Breiten „gepumpt“. Aus Kontinuitätsgründen ist ein Aufsteigen in den Tropen und Absinken in hohen Breiten erforderlich. Dieses Prinzip wurde von Haynes und McIntyre (1987) und Haynes et al. (1991) entdeckt und ist unter den Begriffen „downward control“ und „extratropical suction pump“ bekannt.

Insgesamt kann die Stratosphäre in drei Bereiche eingeteilt werden: Tropen, „surf zone“ (mittlere Breiten) und Polarwirbel. Diese drei Bereiche werden durch sogenannte Transportbarrieren voneinander getrennt, die einen nur sehr langsamen isentropen Transport zwischen den einzelnen Bereichen zulassen. Die „surf zone“ wird polwärts vom Rand des Polarwirbels und äquatorwärts von der subtropischen Transportbarriere begrenzt (Haynes und Shuckburgh, 2000). Inner-

halb der drei Regionen führen isentrope Mischungsprozesse zu horizontal nahezu homogenen Spurenstoffverteilungen, während sich an den Transportbarrieren ausgeprägte Gradienten bilden (s. Plumb, 2002, Abb. 3). In Abbildung 2.1 ist der starke meridionale Gradient im Bereich der Subtropen und der nahezu horizontale Verlauf der Isolinien in mittleren Breiten selbst im zonalen Jahresmittel deutlich zu erkennen.

Dehydrierung an der tropischen Tropopause

In den Tropen erfolgt der Übergang zwischen Troposphäre und Stratosphäre nicht an einer Grenzfläche, sondern innerhalb einer Schicht, der sogenannten tropischen Tropopausenschicht (engl. tropical tropopause layer, TTL). Das Konzept der TTL beruht auf den Arbeiten von Atticks und Robinson (1983) sowie Highwood und Hoskins (1998). Die TTL beschreibt den Übergangsbereich zwischen der konvektiv dominierten Troposphäre und der Stratosphäre, in welcher die Stabilität der Schichtung durch Strahlungsprozesse bestimmt wird. Die TTL erstreckt sich von etwa 10-12 km bis 16-17 km, wobei der Einfluss der Konvektion innerhalb der TTL mit zunehmender Höhe schwächer wird (Gettelman und Forster, 2002).

Es herrscht weitgehend Übereinstimmung darin, dass Luftmassen oberhalb der Hygropause durch die tropische Tropopause in die Stratosphäre gelangt sind und an der Tropopause dehydriert wurden (z.B. Dessler, 1998). Tatsächlich treten nur im Bereich der TTL entsprechend niedrige Temperaturen auf, um die beobachteten Mischungsverhältnisse an der Hygropause zu erklären. Die Hypothese, dass der Transport von Luftmassen aus der Troposphäre in die Stratosphäre auf den tropischen Westpazifik beschränkt ist, der sog. „stratospheric fountain“-Region mit außergewöhnlich tiefen Temperaturen (Newell und Gould-Stewart, 1981), wird durch neuere Arbeiten von Dessler (1998) und Sherwood (2000) stark angezweifelt, u.a. da in diesem Gebiet großskaliges Absinken beobachtet wird.

Feuchte Luftmassen werden aus der Grenzschicht durch hochreichende Konvektion in die TTL transportiert. Beobachtete Wasserdampf Werte am Unterrand der TTL liegen im Bereich von ≈ 18 -19 ppmv, am Oberrand der TTL gerade noch bei ≈ 4 ppmv (z.B. Dessler und Kim, 1999). Ungeklärt ist, welche Prozesse die Dehydrierung in der TTL verursachen. Gegenwärtig werden zwei grundlegende Mechanismen diskutiert: Dehydrierung durch Konvektion und Dehydrierung durch großskaliges Aufsteigen von Luftmassen. Die Hypothese, dass Konvektion die extreme Trockenheit der tropischen untersten Stratosphäre verursacht, wurde als erstes von Danielson (1982; 1993) aufgestellt und in neueren Arbeiten wieder aufgenommen (Sherwood und Dessler, 2000; Sherwood und Dessler, 2001). Luftmassen in überschießenden konvektiven Ereignissen kühlen sich demnach adiabatisch unter die Umgebungstemperatur ab und werden aufgrund einer raschen Eispartikelbildung unter das Umgebungsniveau dehydriert, d.h. die Luft verlässt den konvektiven Bereich bereits vollständig dehydriert. Allerdings wird nur selten beobachtet, dass konvektive Ereignisse die tropische Tropopause überwinden (Gettelman et al., 2002b), was gegen ein Wasserdampfminimum oberhalb der tropischen Tropopause spricht. Desweiteren stimmt die Lage des Wasserdampfminimums nicht mit dem Konvektionsmaximum überein: Im Januar ist das Wasserdampfminimum leicht in die Nordhemisphäre verschoben, während das Konvektionsmaximum südlich des Äquators liegt (Gettelman et al., 2002a).

Aufbauend auf einer Arbeit von Holton und Gettelman (2001) entwickelten Gettelman et al. (2002a) ein Modell, welches die Dehydrierung mit dem horizontalen Transport durch die TTL in Verbindung bringt. Demnach wird die Luft horizontal durch die extrem kalte Region der

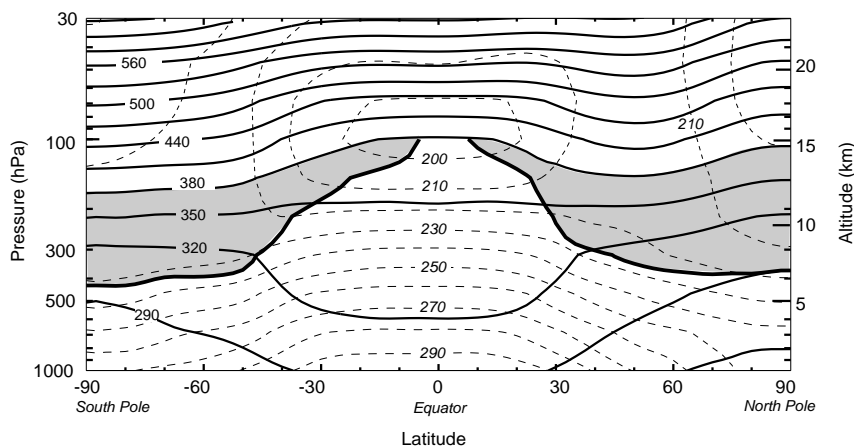


Abbildung 2.3: Vertikalschnitt der zonal gemittelten potentiellen Temperatur (durchgezogene Linien) und Temperatur (gestrichelte Linien) für Januar 1993. Die fett eingezeichnete Linie markiert die 2 PVU Isolinie. Der grau unterlegte Bereich kennzeichnet die unterste Stratosphäre. Aus Holton et al. (1995).

TTL über dem Westpazifik (Newell und Gould-Stewart, 1981) transportiert, dort dehydriert und steigt schließlich stromabwärts in die Stratosphäre auf. Charakteristische Horizontalgeschwindigkeiten in der TTL betragen $\approx 5 \text{ m s}^{-1}$, während vertikale Geschwindigkeiten im Bereich von $\approx 0.5 \text{ mm s}^{-1}$ liegen. Bei den genannten Geschwindigkeiten und einer horizontalen Ausdehnung der kältesten Regionen von $\approx 5000 \text{ km}$ sind die Luftmassen mehrere Tage den tiefen Temperaturen ausgesetzt, so dass die gebildeten Eispartikel sedimentieren können und die Luft irreversibel dehydriert wird. In der Tat werden auch ausgedehnte Regionen dünner Zirren in den Tropen beobachtet (Winkler und Trepte, 1998). Ein aktueller Vergleich zwischen MLS (Microwave Limb Sounder)-Satellitendaten und Rechnungen mit dem Modell von Holton und Gettelman (2001) unterstützt diese Theorie (Read et al., 2004), wobei konvektiver Feuchtetransport in die TTL notwendig ist, um die beobachteten Muster vollständig zu erklären (Sherwood und Dessler, 2003).

Dass Luftmassen durch großskaliges Aufsteigen dehydriert werden können, zeigen auch Modellsimulationen von Jensen et al. (2001) und Jensen und Pfister (2004). Die Effektivität der Dehydrierung hängt dabei von der Anzahl der vorhandenen Kondensationskerne und der Aufstiegsgeschwindigkeit ab. Lokale Temperaturanomalien, die durch konvektiv angeregte Trägheitsschwerewellen (Potter und Holton, 1995) oder Kelvinwellen erzeugt werden, können die Dehydrierung verstärken. Allerdings werden die Luftmassen durch diesen Mechanismus im Allgemeinen nicht bis zur Sättigungsgrenze dehydriert, sondern die erreichten Mischungsverhältnisse sind um einen Faktor 1.1 bis 1.6 höher. Ein Überblick über die wichtigsten Theorien zur Dehydrierung im Bereich der tropischen Tropopause ist in Sherwood und Dessler (2000) zu finden. Der aktuelle Stand des Wissens deutet jedoch darauf hin, dass die Konvektion als hauptverantwortlicher Dehydrierungsmechanismus ausscheidet.

Stratosphären-Troposphären-Austausch in den Extratropen

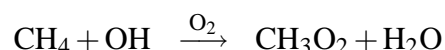
Hoskins (1991) führte anstelle der gewöhnlichen Unterscheidung zwischen Troposphäre und Stratosphäre eine etwas differenziertere Einteilung der Atmosphäre ein, die zur Beschreibung des Stratosphären-Troposphären-Austauschs geeigneter ist. In Abbildung 2.3 ist die zonal gemittelte potentielle Temperatur für den Januar 1993 dargestellt. Der Verlauf der Tropopause

(2 PVU-Isolinie) ist durch die dicke Linie gekennzeichnet. In den Tropen fällt die Tropopause fast genau mit der 380 K-Isentrope zusammen. Im Bereich oberhalb von $\theta=380$ K, der „overworld“, liegen die isentropen Flächen in allen geographischen Breiten in der Stratosphäre. Unterhalb von etwa $\theta=310$ K verbleiben die Isentropen ausschließlich in der Troposphäre. Für diesen Bereich steht der Begriff „underworld“. Im Bereich zwischen $\theta=310$ K und $\theta=380$ K, der „middleworld“, verlaufen die Isentropen je nach geographischer Breite in der Troposphäre oder in der Stratosphäre. Der stratosphärische Anteil der „middleworld“ wird auch als extratropische unterste Stratosphäre (engl. extratropical lowermost stratosphere) bezeichnet (grau unterlegter Bereich in Abbildung 2.3). Im Bereich der „middleworld“ findet der Stratosphären-Troposphären-Austausch entlang von Isentropen statt, d.h. es handelt sich um adiabatische Prozesse. Im Gegensatz dazu sind beim Austausch mit der „overworld“ diabatische Prozesse notwendig, da der Transport quer zu den Isentropen erfolgen muss.

Im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre ist der Wasserdampfgehalt deutlich höher als in der tropischen Stratosphäre, so dass diese Luftmassen nicht über die tropische Tropopause in die Stratosphäre gelangt sein können (Dessler et al., 1995). Eine Möglichkeit besteht darin, dass Luftmassen aus der extratropischen Troposphäre durch starke konvektive Ereignisse direkt in die Stratosphäre gelangen (z.B. Poulida et al., 1996). Allerdings erreicht die Konvektion selten Höhen von mehr als 2 km oberhalb der lokalen Tropopause. Die zweite, wahrscheinlichere Möglichkeit besteht im quasi-isentropen Transport von Luftmassen von der tropischen oberen Troposphäre in die extratropische Stratosphäre durch den subtropischen Tropopausenbruch (z.B. Ray et al., 1999). Solche Austauschprozesse sind mit Tropopausenfaltungen verbunden, die durch synoptische Störungen verursacht werden (Holton et al., 1995). Ein Vergleich zwischen Nord- und Südhemisphäre ergibt, dass die unterste Stratosphäre der Südhemisphäre etwas trockener ist als die der Nordhemisphäre. Dieser Unterschied ist auf den Einfluss des Monsuns, insbesondere des asiatischen Sommermonsuns zurückzuführen. Der asiatische Monsun ist durch ein ausgeprägtes Tief über Nordindien gekennzeichnet. Die obere Troposphäre wird von einem ausgedehnten Hochdruckgebiet über Nordindien und China dominiert. Im Norden schließt dieses Hochdruckgebiet an die Übergangzone zwischen Troposphäre und Stratosphäre in den Extratropen an. Durch den Einfluss extratropischer Tiefdruckgebiete werden feuchte Luftmassen aus der Vorderseite des Hochdruckgebiets entlang von Isentropen in die unterste Stratosphäre transportiert und irreversibel mit trockener stratosphärischer Luft vermischt (Jackson et al., 1998; Dethof et al., 1999; Dethof et al., 2000). Auf der Südhemisphäre fehlt ein vergleichbar intensives Monsunsystem.

Chemische Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre

Die Oxidation von Methan und Wasserstoff stellt eine In-situ-Quelle von Wasserdampf in der Stratosphäre dar, wobei die Oxidation von Wasserstoff weniger bedeutend ist:



Je nach weiterem Verlauf der Methanoxidationskette können dabei pro Methanmolekül bis zu zwei Wassermoleküle entstehen (s. Abb. 2.9). Die Lebenszeit von Methan sinkt von mehr als 100 Jahren in der unteren Stratosphäre auf wenige Monate in 40 km Höhe (Dessler et al., 1994), d.h. die chemische Wasserdampfproduktion gewinnt mit zunehmender Höhe an Bedeutung. Die chemische Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre erklärt die beobachtete Zunahme

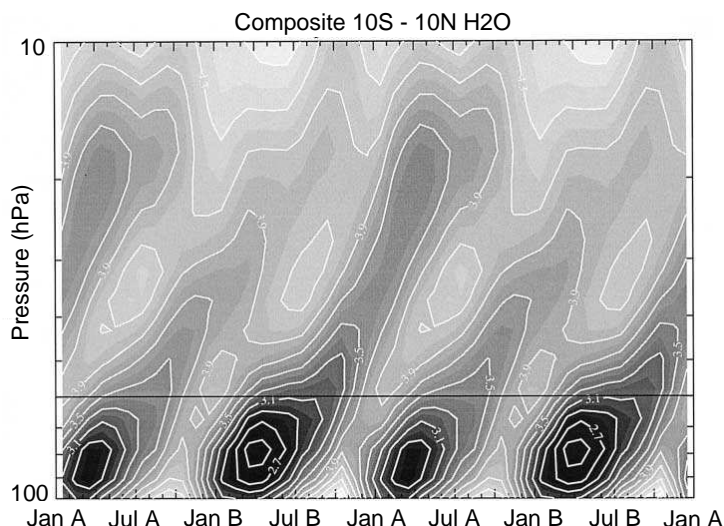


Abbildung 2.4: Vertikalschnitt von HALOE-Wasserdampfmessungen gemittelt über 10°N bis 10°S . Die Abbildung umfasst drei Zyklen der quasi-zweijährigen Oszillation (QBO). A (B) in der Achsenbeschriftung markiert Monate mit abwärts propagierenden Ostwinden (Westwinden). Die horizontale Linie kennzeichnet das 60 hPa-Niveau. Aus Rosenlof (2002).

des Wasserdampfgehalts mit der Höhe und in Richtung der Pole: Luftmassen mit einem hohen Gehalt an Wasserdampf sinken mit der mittleren Meridionalzirkulation in polaren Regionen ab.

2.1.2 Jahresgang

Den größten Anteil an der Variabilität des Wasserdampfs in der unteren Stratosphäre hat der Jahresgang. Je nach Region tragen unterschiedliche Prozesse zum Jahresgang bei.

Verbunden mit dem Jahresgang der tropischen Tropopausentemperatur mit tiefsten Temperaturen zwischen Dezember und Februar und höchsten Temperaturen zwischen Juli und August (z.B. Newell und Gould-Stewart, 1981) zeigt der Wasserdampf in der tropischen unteren Stratosphäre einen starken Jahresgang mit minimalen Werten von 2-3 ppmv zwischen Januar und April und hohen Werten von etwa 5 ppmv zwischen August und November (s. Abb. 2.4). Das Wasserdampfminimum wird mit dem aufsteigenden Ast der Brewer-Dobson-Zirkulation langsam nach oben transportiert: Im Januar liegt die Hygropause bei etwa 100 hPa, im Oktober bereits bei 70 hPa. Aufgrund der geringen horizontalen Vermischung mit extratropischen Luftmassen kann das Minimum ca. 18 Monate verfolgt werden (s. Abb. 2.4). Während dieser Zeit gelangen diese Luftmassen bis in etwa 32 km Höhe. Mote et al. (1996) bezeichneten dieses Phänomen als „tape recorder“.

In der polaren Stratosphäre treten aufgrund der starken Isolation des Polarwirbels und der strahlungsbedingten Abkühlung während der Polarnacht extrem niedrige Temperaturen auf, bei denen die Bildung sogenannter polarer Stratosphärenwolken (engl. polar stratospheric clouds, PSCs) möglich ist (die Entstehung von PSCs ist in Abschnitt 2.3.2 näher erläutert). Die Sedimentation der gebildeten PSC II-Partikeln bewirkt eine Dehydrierung der polaren unteren Stratosphäre während der Winter- und Frühlingsmonate. In Abbildung 2.5 sind Wasserdampfmessungen mit POAM III (Polar Ozone and Aerosol Measurement) (Lucke et al., 1999) in der Südpolarregion zwischen April und Dezember 1998 gezeigt. Die untere Stratosphäre weist wäh-

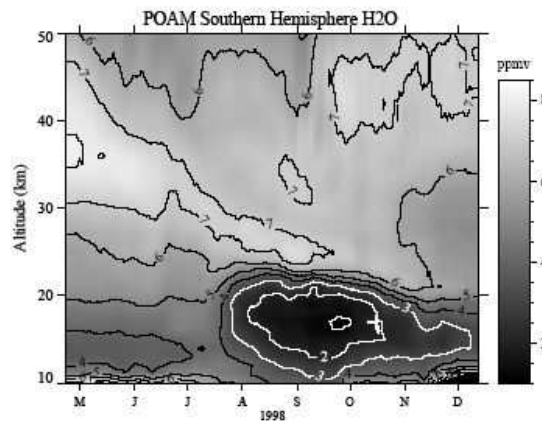


Abbildung 2.5: Wasserdampfmischungsverhältnis [ppmv] zwischen 64°S und 88°S von April bis Dezember 1998, gemessen mit POAM III. Aus Kley et al. (2000).

rend der Wintermonate sehr geringe Wasserdampfwerte von 1-2 ppmv auf. Die Dehydrierung umfasst das Gebiet des Polarwirbels und dauert etwa von Juli bis Dezember. Desweiteren ist in Abbildung 2.5 deutlich das Absinken feuchterer Luftmassen über polaren Breiten zu erkennen. Eine vergleichbar starke Dehydrierung der arktischen Stratosphäre wird nicht beobachtet, was auf die höheren Temperaturen im arktischen Polarwirbel zurückzuführen ist.

Auch in der extratropischen unteren Stratosphäre wird ein Jahresgang beobachtet (z.B. Oltmans und Hofmann, 1995), wobei die Amplitude von ≈ 1.2 ppmv in 90 hPa auf ≈ 0.6 ppmv in 60 hPa abnimmt (Kley et al., 2000). Die höchsten Wasserdampfwerte treten in mittleren Breiten während der Sommermonate auf, die niedrigsten Werte in den Wintermonaten. Der Jahresgang in mittleren Breiten wird sowohl durch den Abwärtstransport von Luftmassen aus der oberen Stratosphäre als auch durch den isentropen Transport von Luftmassen aus der tropischen Troposphäre beeinflusst.

2.1.3 Interannuale Variabilität

Neben dem Jahresgang trägt die quasi-zweijährige Schwingung der Stratosphäre (engl. quasi-biennial oscillation, QBO) zur Variabilität des stratosphärischen Wasserdampfs bei. Unter der QBO versteht man eine unregelmäßige Umkehr des Zonalwindes in der tropischen Stratosphäre mit einer mittleren Periode von 28 Monaten. Die mit der QBO verbundene Temperaturschwingung reicht bis zur tropischen Tropopause hinunter und beeinflusst den Wasserdampfgehalt der Luftmassen beim Eintritt in die Stratosphäre. Die durch die QBO induzierte Sekundärzirkulation verändert zusätzlich die Geschwindigkeit des Vertikaltransports. Die Westwindphase der QBO ist mit feuchteren Luftmassen und langsamerem Vertikaltransport als die Ostwindphase verbunden. Dieses Muster ist auch deutlich in Abbildung 2.4 zu erkennen. Die Amplitude der QBO-induzierten Wasserdampfanomalien beträgt etwa ± 0.4 ppmv (Randel et al., 1998).

Die ENSO-Phase (El Niño/Southern Oscillation) trägt einen Großteil zur interannualen Variabilität in der oberen Troposphäre und der tropischen Tropopausenregion bei. Die südliche Schwingung beschreibt eine unregelmäßige Luftdruckschwankung im äquatorialen Pazifik mit einer Periode zwischen 2 und 7 Jahren und damit verbunden eine Schwankung der Intensität der Walker-Zelle über dem Pazifik. Ein El Niño-Ereignis (warme Phase) ist mit einer schwachen

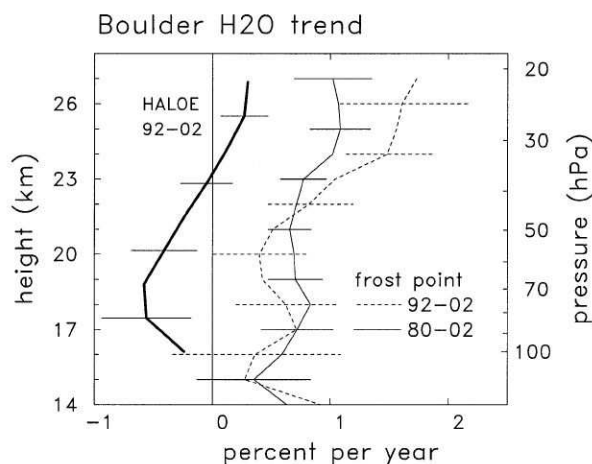


Abbildung 2.6: Linearer Trend des Wasserdampfmischungsverhältnisses [%/yr] in Abhängigkeit von der Höhe über Boulder (USA, 40°N) basierend auf Messungen mit einem Frostpunkthygrometer (1980–2002 bzw. 1992–2002) und HALOE-Satellitenmessungen bei etwa 40°N (1992–2002). Die Fehlerbalken kennzeichnen die statistische Unsicherheiten des linearen Regressionsmodells. Aus Randel et al. (2004).

Walker-Zelle verbunden, was zur Ausbreitung einer warmen Meeresströmung vor der südamerikanischen Westküste und damit starker Konvektion führt. Dagegen tritt während der kalten Phase (La Niña) aufquellendes Tiefenwasser vor der Westküste Südamerikas an die Stelle der warmen Meeresströmung und das Zentrum der konvektiven Aktivität verschiebt sich in den Westpazifik nördlich von Australien. Newell et al. (1997) fanden einen direkten Zusammenhang zwischen den Meeresoberflächentemperaturen (SSTs) vor der Westküste Südamerikas und dem Wasserdampfgehalt in der tropischen oberen Troposphäre: Positive SST-Anomalien treten gleichzeitig mit positiven Wasserdampfanomalien auf und umgekehrt.

2.1.4 Langfristige Veränderungen

Rosenlof et al. (2001) analysierten zehn verschiedene Datensätze von Wasserdampfmessungen zwischen 1954 und 2000 und errechneten einen Wasserdampfanstieg um etwa 1%/yr. Die längste zusammenhängende Zeitreihe bilden die Messungen über Boulder (USA) seit 1981 (Oltmans und Hofmann, 1995; Oltmans et al., 2000). Die Zeitreihe zeigt eine signifikante Zunahme des Wasserdampfmischungsverhältnisses um 0.5–1%/yr (≈ 0.05 ppmv/yr) in allen Höhen zwischen 16 und 28 km (s. Abb. 2.6). Seit Beginn der 1990er Jahre stehen Satellitenmessungen von HALOE und anderen Messgeräten zur Verfügung. Im Gegensatz zu den Boulder-Daten, zeigen HALOE-Satellitendaten zwischen 1992 und 2002 keinen bzw. sogar einen negativen Trend in der unteren Stratosphäre (s. Abb. 2.6). Zu einem vergleichbaren Ergebnis kamen auch Nedoluha et al. (2003): Nach einer deutlichen Wasserdamp fzunahme zwischen 1991 und 1995 zeigen HALOE-Messungen zwischen 1996 und 2000 nahezu keinen Trend in Höhen unterhalb von 60 km. Interessanterweise weisen sowohl die Zeitreihe über Boulder als auch die HALOE-Daten seit 2001 übereinstimmend ungewöhnlich niedrige Wasserdampfwerte auf. Inwieweit sich diese Entwicklung fortsetzt, bleibt abzuwarten. Ungeklärt sind bislang auch noch die Ursachen der unterschiedlichen Wasserdampftrends.

Statistisch belastbare Aussagen bzgl. einer langfristigen Veränderung des Wasserdampfgehalts in der oberen Troposphäre werden durch das Fehlen langer Zeitreihen und die hohe Variabilität

erschwert. Seit 1991 liefert MLS an Bord von UARS Wasserdampfmessungen für die obere Troposphäre und untere Stratosphäre mit einer vertikalen Auflösung von etwa 3 km. Die in Kley et al. (2000) für den Zeitraum 1991 bis 1997 präsentierten MLS-Zeitreihen des Wasserdampfs in der tropischen oberen Troposphäre zeigen keinerlei Trend, allerdings ist dabei zu beachten, dass die obere Troposphäre in diesem Zeitraum stark von El Niño-Ereignissen geprägt ist.

Da die Prozesse, die zur beobachteten Wasserdampfverteilung in der Stratosphäre führen, noch nicht restlos verstanden sind, liegt bislang auch noch keine vollständige Erklärung für den beobachteten Wasserdampftrend vor. In der Literatur werden verschiedene mögliche Ursachen diskutiert, die im Folgenden kurz erläutert werden:

- *Anstieg der Tropopausentemperatur:*
Ein Anstieg der Tropopausentemperatur mag die wahrscheinlichste Ursache für einen Wasserdampftrend sein. Aufgrund der starken Nichtlinearität der Clausius-Clapeyron-Gleichung (2.1) haben bereits kleinste Temperaturänderungen einen signifikanten Effekt auf das Sättigungsmischungsverhältnis. Verschiedene Studien zeigen allerdings eine Abkühlung der Tropopausentemperatur um etwa 0.6 K/Dekade (Simmons et al., 1999; Zhou et al., 2001b; Zhou et al., 2001a). In Gegensatz dazu konnten Randel et al. (2004) zeigen, dass Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts generell sehr eng mit Veränderungen der tropischen Tropopausentemperatur verbunden sind und höchstwahrscheinlich auch die Wasserdampfanomalien seit 2001 auf eine anhaltend kalte tropische Tropopause zurückzuführen sind.
- *Anstieg der Wasserdampfemissionen aus dem Flugverkehr:*
Verbunden mit der Flugroutenverteilung erfolgen die Emissionen hauptsächlich in mittleren Breiten der Nordhemisphäre, wobei abhängig von der Tropopausenhöhe zwischen 18 und 44% des Wasserdampfs in der untersten Stratosphäre emittiert werden (Hoinka et al., 1993; Gettelman und Baughcum, 1999). Der Anstieg der Wasserdampfemissionen aufgrund des gestiegenen Flugverkehrsaufkommen in den vergangenen Jahren kann allerdings nur einen Bruchteil ($<1/20$) des über Boulder beobachteten Wasserdampfanstiegs erklären (IPCC, 1999). Überschallflugzeuge hingegen emittieren Wasserdampf aufgrund der größeren Flughöhe vermehrt in der Stratosphäre und könnten so in Zukunft zu einem Wasserdampftrend beitragen.
- *Veränderungen der atmosphärischen Zirkulation:*
Smith et al. (2000) untersuchten jahreszeitliche Unterschiede der Wasserdampfänderungen anhand von HALOE-Daten. Ihre Analysen ergaben einen ausgeprägten Wasserdampfanstieg in der oberen Troposphäre während der Herbstmonate, der möglicherweise auf den Einfluss des asiatischen Sommermonsuns zurückzuführen ist. Eine horizontale Ausdehnung des aufsteigenden Asts der Brewer-Dobson-Zirkulation in den Tropen in Richtung höhere Breiten, also in Gebiete mit wärmerer Tropopause, könnte zu einer Zunahme des Wasserdampfeintrags in die Stratosphäre führen (Zhou et al., 2001a; Rosenlof, 2002). Desweiteren diskutierte Rosenlof (2002) anhand von HALOE Wasserdampf- und Methan-Messungen zwischen 1992 und 2001 eine Zunahme der atmosphärischen Aufenthaltsdauer von Luftmassen oberhalb von 10 hPa, was in diesem Bereich zu einer verstärkten Methanoxidation und somit einem Wasserdampfanstieg führen könnte.
- *Zunahme der anthropogenen Methanemissionen:*
Die Oxidation von Methan stellt in der Stratosphäre eine In-situ-Quelle für Wasserdampf dar. Vorsichtige Abschätzungen ergeben eine Zunahme des stratosphärischen Methan-

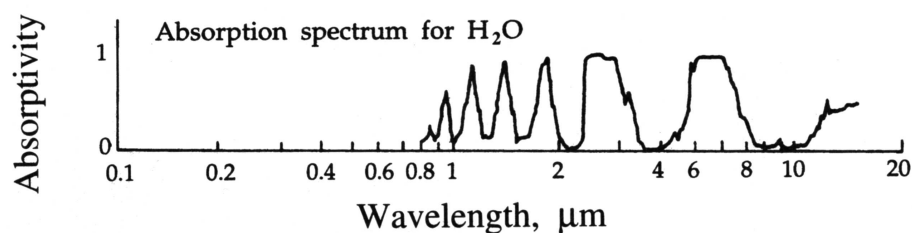


Abbildung 2.7: Absorptionsspektrum für Wasserdampf, aus Seinfeld und Pandis (1998).

gehalts seit 1950 um ≈ 0.5 ppmv (Dlugokencky et al., 1994). Unter der Annahme, dass Methan in der Stratosphäre vollständig oxidiert wird, würde dieser Methananstieg zu einer Wasserdampfungnahme von ≈ 1 ppmv seit 1951 führen (Kley et al., 2000). Da in der unteren Stratosphäre nur ein geringer Teil des Methans oxidiert wird, lassen sich weniger als 50% des Wasserdampfanstiegs über Boulder mit dem Methananstieg erklären.

- *Vulkanausbrüche:*

Starke Vulkanausbrüche führen zu einem direkten Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre (Glaze et al., 1997). Zum anderen emittieren sie große Mengen an Aerosolen, die eine Erwärmung der tropischen Tropopause (Stenchikov et al., 1998) und damit verbunden einen verstärkten Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre verursachen (Considine et al., 2001). Joshi und Shine (2003) zeigten anhand von GCM-Simulationen, dass starke Vulkanausbrüche, die in kurzem zeitlichen Abstand aufeinander folgen, einen Beitrag zum Wasserdampftrend leisten können. Bei einer angenommenen Lebenszeit der Wasserdampfstörung in der Stratosphäre von 5 (10) Jahren betrug der von Joshi und Shine (2003) berechnete Wasserdampftrend 0.22%/Jahr (0.47%/Jahr).

2.2 Wasserdampf als Treibhausgas

Spurengase und Wolken in der Atmosphäre absorbieren die langwellige Ausstrahlung der Erdoberfläche und strahlen diese einerseits in Richtung Weltraum, andererseits in Richtung Erdoberfläche zurück, welche dadurch zusätzlich erwärmt wird. Dieser Prozess wird „natürlicher Treibhauseffekt“ genannt. Der natürliche Treibhauseffekt der Atmosphäre bewirkt eine Erwärmung der Erdoberfläche um ca. 33 K, von im Mittel 255 K (-18°C , Temperatur der Erdoberfläche ohne Atmosphäre) auf 288 K ($+15^{\circ}\text{C}$). Wasserdampf ist für ca. zwei Drittel (20.6 K) des natürlichen Treibhauseffekts verantwortlich (Schönwiese, 1995). Neben Wasserdampf zählen Kohlendioxid, Methan, Distickstoffoxid (Lachgas), die Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKWs) und Ozon zu den wichtigsten Treibhausgasen.

Die Wirkung von Wasserdampf als Treibhausgas beruht auf den Absorptionseigenschaften im langwelligen (terrestrischen) Spektralbereich, der den Wellenlängenbereich von ungefähr 4–100 μm umfasst. Das Absorptionsspektrum von Wasserdampf zwischen der Erdoberfläche und dem Oberrand der Atmosphäre ist in Abbildung 2.7 gezeigt. Bei der Absorption von Strahlung gehen die Elektronen auf ein höheres Energieniveau über. Bei 3-atomigen Molekülen wie dem Wassermolekül sind weitere Energieübergänge möglich: Das Molekül rotiert um seinen Schwerpunkt oder die einzelnen Atome des Moleküls schwingen um ihre Mittellage. Auch

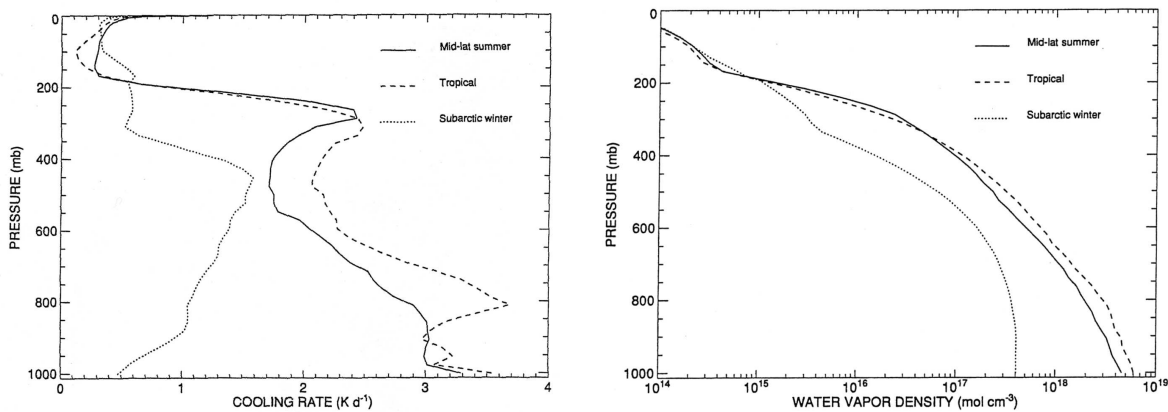


Abbildung 2.8: Vertikalprofile der modellierten Abkühlungsraten [K d^{-1}] (links) für die Tropen, eine subarktische Winter- und eine Sommeratmosphäre in mittleren Breiten sowie die zugrundeliegenden Wasserdampfprofile [molec cm^{-3}] (rechts). Aus Clough et al. (1992).

Kombinationen dieser Energieübergänge sind möglich. Wasserdampf besitzt eine intensive Rotationsbande im Wellenlängenbereich oberhalb von $25 \mu\text{m}$. Neben dieser reinen Rotationsbande existieren eine Rotations-Vibrationsbande bei $6.3 \mu\text{m}$ sowie Rotations-Vibrationsbanden bei $2.7 \mu\text{m}$. Daneben absorbiert Wasserdampf solare Strahlung in Rotations-Vibrationsbanden bei $0.94, 1.1, 1.38$ und $1.87 \mu\text{m}$. Aufgrund der geringen Strahlungsenergie in diesem Bereich des solaren Spektrums, das den Wellenlängenbereich $0.3\text{-}4 \mu\text{m}$ umfasst, kann die Absorption durch Wasserdampf bei Berechnungen des atmosphärischen Energiehaushaltes allerdings vernachlässigt werden. Bei den soeben erwähnten Absorptionsbanden handelt es sich nicht um Bereiche kontinuierlicher Absorption. Diese Banden setzen sich aus vielen einzelnen Absorptionslinien zusammen. Im sogenannten „atmosphärischen Fenster“ zwischen etwa 8 und $12 \mu\text{m}$ Wellenlänge, in dem die Atmosphäre nahezu „durchsichtig“ ist, findet dagegen kontinuierliche Absorption statt, das sogenannte Wasserdampf-Kontinuum. Die Absorption in diesem Wellenlängenbereich erfolgt hauptsächlich durch ein Dimer des Wassermoleküls $(\text{H}_2\text{O})_2$ (Liou, 2002).

Die Abkühlungsrate³, die sich aufgrund der Strahlungswirkung von Wasserdampf ergibt, ist keinesfalls eine konstante Größe. In Abbildung 2.8 sind verschiedene Vertikalprofile der Abkühlungsrate für Wasserdampf sowie die bei der Berechnung zugrunde gelegten Wasserdampfprofile gezeigt. Die Abkühlungsraten wurden mit einem spektral hochaufgelösten Strahlungstransportmodell berechnet (Clough et al., 1992). Es zeigen sich deutliche Unterschiede in den troposphärischen Abkühlungsraten von 1 K d^{-1} und mehr zwischen dem subarktischen Profil und anderen Profilen. Die subarktische Atmosphäre ist im Vergleich zu den übrigen Profilen sehr trocken. Dennoch erreicht die Abkühlungsrate im 450 hPa -Niveau annähernd die Werte eines Wasserdampfprofils in mittleren Breiten. Für eine Erklärung dieses Verhaltens, die in einer spektralen Betrachtung der Abkühlungsraten zu finden ist, sei an dieser Stelle auf Clough et al. (1992) verwiesen. Die Abkühlungsraten für ein tropisches Profil bzw. ein Profil in mittleren Breiten zeigen im Bereich um 200 hPa eine starke Abnahme mit der Höhe. Gerade im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre reagieren die Abkühlungsraten somit besonders sensibel auf Änderungen im Wasserdampfprofil. Dementsprechend empfindlich rea-

³Die infrarote Abkühlungsrate $(\frac{\partial T}{\partial t})_{\text{IR}}$ errechnet sich aus dem Nettoverlust an Strahlungsenergie pro Zeit- und Flächeneinheit zwischen zwei planparallelen Atmosphärenschichten z und $z + \Delta z$: $\Delta F = F(z + \Delta z) - F(z)$, wobei sich die Nettostrahlungsdichte $F(z) = F^{\uparrow}(z) - F^{\downarrow}(z)$ aus der Differenz der aufwärts- und abwärtsgerichteten Strahlungsdichten ergibt. Nach Liou (2002) gilt: $(\frac{\partial T}{\partial t})_{\text{IR}} = -\frac{1}{c_p \rho} \frac{\Delta F}{\Delta z}$.

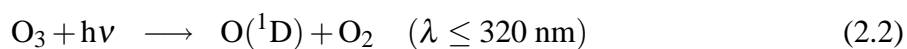
giert die Temperatur in der untersten Stratosphäre. Anhand dieser Ausführungen wird deutlich, welche Bedeutung das exakte Erfassen der Wasserdampfverteilung in einem globalen Zirkulationsmodell für die Temperaturverteilung und somit für die Modelldynamik hat. Umgekehrt ist eine korrekte Beschreibung der dynamischen Prozesse entscheidend für eine richtige Simulation der Wasserdampfverteilung.

2.3 Chemische Grundlagen

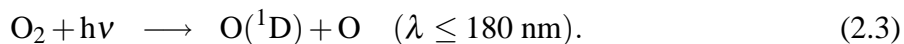
In diesem Abschnitt werden die für diese Arbeit relevanten chemischen Prozesse erläutert. Die Beschreibung der chemischen Reaktionen und Prozesse folgt im Wesentlichen der Arbeit von Seinfeld und Pandis (1998).

Die Oxidation von Wasserdampf durch angeregte Sauerstoffatome stellt sowohl in der Troposphäre als auch in der Stratosphäre eine Quelle für das Hydroxyl-Radikal OH dar. OH reagiert in der Troposphäre mit nahezu allen Spurengasen, wie z.B. CO, CH₄, NO_x, SO₂ oder H₂S, und bildet damit das wichtigste Oxidationsmittel. Desweiteren sind OH bzw. Hydrogen-Oxide im Allgemeinen HO_x (= H + OH + HO₂) an katalytischen Reaktionszyklen beteiligt, die für die stratosphärische Ozonchemie von grundlegender Bedeutung sind.

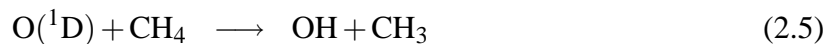
Angeregte Sauerstoffatome entstehen durch die Photolyse von Ozon bei Wellenlängen unter 320 nm



oder durch die Photolyse von molekularem Sauerstoff bei sehr kurzen Wellenlängen unter 180 nm



Ein Großteil der angeregten Sauerstoffatome gelangt durch Stöße mit N₂ oder O₂ schnell wieder in den Grundzustand zurück. Ein geringer Teil reagiert mit anderen chemischen Substanzen, vor allem mit Wasserdampf und Methan, wobei OH gebildet wird:

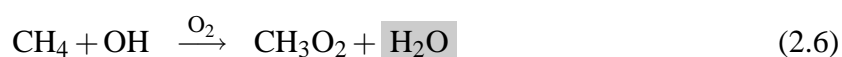


Während in der Stratosphäre beide Reaktionen 2.4 und 2.5 von vergleichbarer Bedeutung sind, stellt Reaktion 2.4 die wichtigste troposphärische Quelle für OH-Radikale dar.

2.3.1 Methanoxidation

Die Reaktion von Methan mit OH stellt in der Stratosphäre eine In-situ-Quelle für Wasserdampf dar (Dessler et al., 1994) und soll deswegen im Folgenden kurz erläutert werden. Der Verlauf der Methan-Oxidationskette ist in Abbildung 2.9 schematisch gezeigt.

Die Methan-Oxidationskette beginnt mit der Reaktion von CH₄ mit OH zu CH₃O₂ und H₂O:



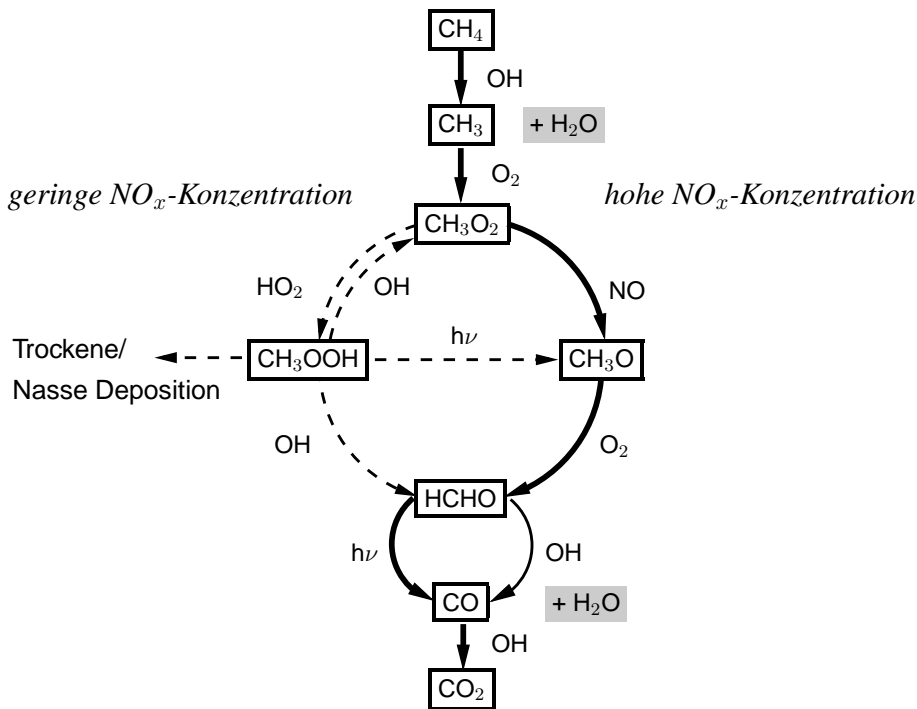
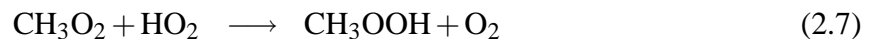


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung der Methan-Oxidationskette, nach Seinfeld und Pandis (1998). Der Verlauf der Methan-Oxidation ist von der atmosphärischen NO_x -Konzentration abhängig. Gestrichelte Pfeile markieren einen Reaktionsweg, der nur in der Troposphäre Bedeutung hat. Die Dicke der Linien repräsentiert die relative Wichtigkeit der einzelnen Reaktionswege.

Bei geringen NO_x ($= \text{NO} + \text{NO}_2$)-Konzentrationen verläuft die Reaktionskette über den linken Zweig in Abbildung 2.9:



CH_3OOH wird entweder photolysiert oder reagiert mit OH wieder zu CH_3O_2 oder zu HCHO (Formaldehyd). Dieser Reaktionszweig ist nur in der Troposphäre von Bedeutung.

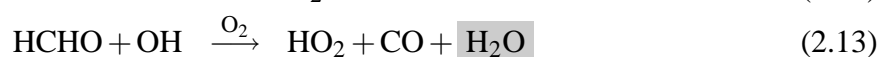
Bei ausreichend hohen NO_x -Konzentrationen verläuft die Methanoxidation über den rechten Zweig in Abbildung 2.9:



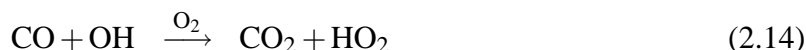
Das bei dieser Reaktion entstehende HO_2 reagiert mit NO wiederum zu OH :



Die beiden wichtigsten Reaktionen von Formaldehyd in der Atmosphäre sind die Photolyse und die Reaktion mit OH .



Beide Reaktionen liefern als Produkt CO, welches schließlich zu CO₂ oxidiert wird.



Mit Reaktion 2.14 endet die Methan-Oxidationskette. Wie bereits erwähnt ist der Verlauf der Reaktionskette von der atmosphärischen NO_x-Konzentration abhängig. Je nach Verlauf entstehen bei der Methanoxidation pro Methanmolekül etwa zwei Wassermoleküle (die entstehenden Wassermoleküle sind in der Reaktionskette und in Abb. 2.9 grau unterlegt).

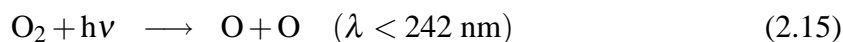
2.3.2 Stratosphärische Ozonchemie

In diesem Abschnitt werden die grundlegenden chemischen Prozesse vorgestellt, die den stratosphärischen Ozonhaushalt bestimmen. Dabei beschränkt sich die Beschreibung auf jene Reaktionen, die für die Diskussion der Ergebnisse in Kapitel 8 von Bedeutung sind, also auf Reaktionen, an denen Mitglieder der HO_x-Familie beteiligt sind.

Chapman-Mechanismus

Die grundlegenden Ozonproduktions- und Destruktionszyklen wurden bereits 1930 von Chapman vorgestellt.

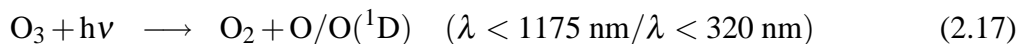
Ozonproduktion:



Als Stoßpartner M fungieren dabei meistens O₂ oder N₂. Das Maximum der Ozonproduktion befindet sich in den Tropen in Höhen oberhalb von etwa 30 km.

Demgegenüber steht folgender Ozonabbauzyklus:

Ozonzerstörung:

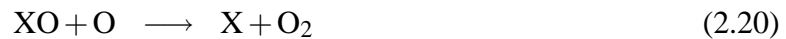


Angeregte Sauerstoffatome werden entweder durch Stoßreaktionen in den Grundzustand überführt oder reagieren mit anderen Spurengasen wie H₂O (Reaktion 2.4), CH₄ (Reaktion 2.5) und N₂O zu den Radikalen H, OH und NO.

Katalytischer Ozonabbau

Unter ausschließlicher Berücksichtigung der Chapman-Reaktionen fällt die berechnete Ozonschichtdicke etwa 30% größer aus als beobachtet (Fabian, 1992). Reaktionen, in denen verschiedene Radikale die Funktion von Katalysatoren übernehmen, liefern einen wichtigen Beitrag zum Ozonabbau. Diese Reaktionszyklen laufen größtenteils nach folgendem Schema ab:

Zyklus 1:



X kann hierbei für H, OH, NO, Cl oder Br stehen. Im zweiten Reaktionsschritt (2.20) wird der Katalysator X zurückgebildet und steht damit für einen neuen Zyklus wieder zur Verfügung.

Daneben existieren für die HO_x-Familie weitere katalytische Abbauzyklen.

Zyklus 2:



Zyklus 3:



Die Bedeutung von Reaktionszyklus 2 liegt in der Entfernung von atomarem Sauerstoff, der an der Bildung von Ozon über den Chapman-Mechanismus beteiligt ist. Dagegen läuft Zyklus 3 ohne atomaren Sauerstoff ab. Das Verhältnis der Konzentrationen von O, OH und HO₂ zueinander bestimmt die Wirksamkeit der einzelnen HO_x-Zyklen.

Je nach beteiligten Substanzen lassen sich die beschriebenen Reaktionszyklen zum HO_x-, NO_x- und ClO_x- (=Cl, ClO) Zyklus zusammenfassen. Der relative Beitrag der einzelnen Reaktionszyklen zum Ozonabbau ist sehr unterschiedlich und hängt unter anderem von der Höhe ab (s. Abb. 2.10). In der unteren Stratosphäre, die durch eine geringe Konzentration von atomarem Sauerstoff gekennzeichnet ist, dominieren bis etwa 20 km die direkten Reaktionen von HO_x mit O₃ (Zyklus 1 mit OH als Katalysator und Zyklus 3) den Ozonabbau, wobei Zyklus 3 in der untersten Stratosphäre für 30-50% des gesamten photochemischen Ozonabbaus verantwortlich ist. Der Anteil des NO_x-Zyklus beträgt in diesem Bereich etwa 20%. Zwischen 20 und etwa 40 km überwiegt der NO_x-Zyklus, wobei oberhalb von 25 km auch der ClO_x-Zyklus wesentlich zum Ozonabbau beiträgt. Oberhalb von 40 km gewinnen Zyklus 1 (mit H als Katalysator) und Zyklus 2 an Bedeutung, da in diesem Höhenbereich die Konzentration der Sauerstoffatome die Ozonkonzentration überwiegt.

Kopplungsmechanismen und Bildung von Reservoirgasen

Neben den soeben beschriebenen katalytischen Ozonabbauzyklen existieren weitere Reaktionszyklen, die verschiedene Radikalfamilien miteinander verknüpfen. Von besonderer Bedeutung

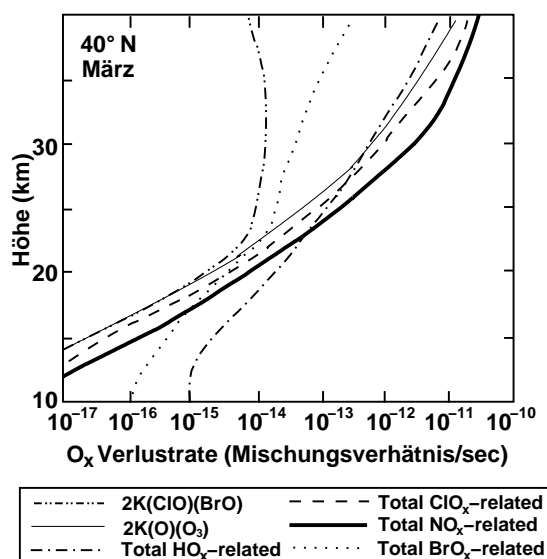
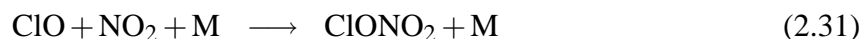


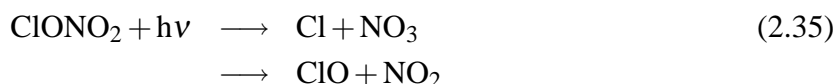
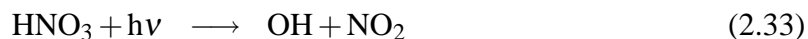
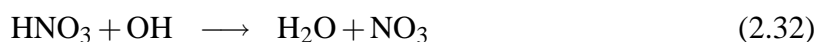
Abbildung 2.10: Berechnete tägliche Verlustraten der O_x-Familie [Mischungsverhältnis/s] für verschiedene Reaktionszyklen, März, 40°N. Nach Garcia und Solomon (1994).

sind dabei Kopplungsmechanismen, die den katalytischen Ozonabbau unterbrechen oder zur Bildung sogenannter Reserviorgase führen, die sich Ozon gegenüber inert verhalten. So sorgen diese Rückkopplungen dazu, dass die Zunahme eines bestimmten Radikals nicht notwendigerweise zu einem verstärkten katalytischen Ozonabbau führen muss.

Durch die Kopplung von HO_x-/NO_x-Zyklus, HO_x-/ClO_x-Zyklus und ClO_x-/NO_x-Zyklus werden die Reserviorgase HNO₃, HCl und ClONO₂ gebildet:



Unter Einfluss des Sonnenlichts oder durch die Reaktion mit OH werden die Reserviorgasubstanzen wieder in reaktive Radikale überführt:



Die Rückbildung der Radikale durch Photolyse erfolgt nur im sonnenbeschienenen Teil der Atmosphäre. Tagsüber wächst also die Konzentration der Radikale auf Kosten der Reserviorgase an, während nachts das Umgekehrte zutrifft.

Neben den erwähnten Interaktionen zwischen HO_x-, NO_x- und ClO_x-Zyklus existieren weitere Kopplungen zwischen BrO_x- und ClO_x-Zyklus, die hier nicht weiter erläutert werden sollen.

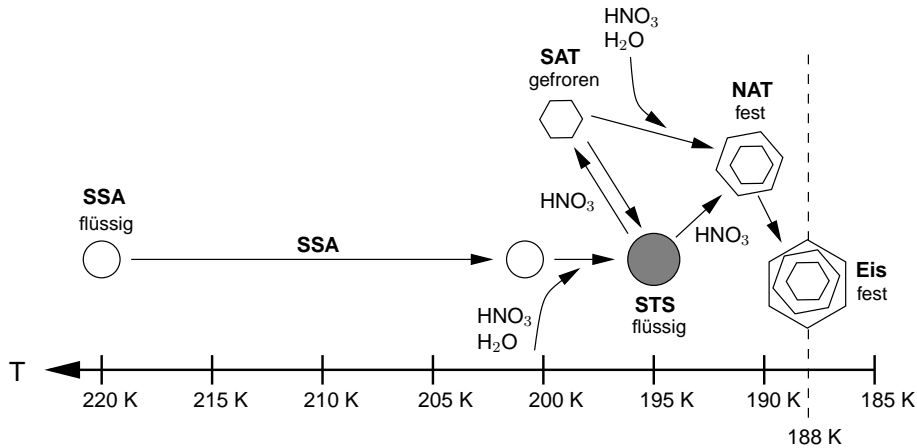


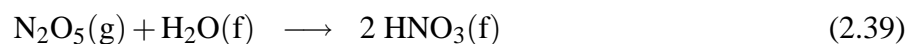
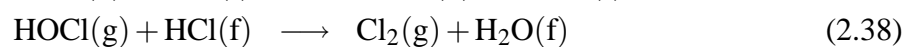
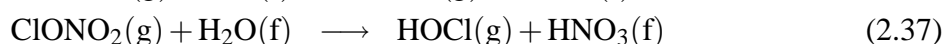
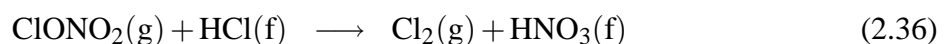
Abbildung 2.11: Schematische Darstellung der PSC-Bildungsmechanismen, nach Zellner (1999).

Polare Ozonchemie

Mit den bisher erläuterten Mechanismen lässt sich der dramatische Ozonrückgang während des polaren Frühlings auf der Südhemisphäre, das sogenannte Ozonloch, nicht erklären. Chemische Prozesse an den Oberflächen polarer Stratosphärenwolken (PSCs) sind für diesen Ozonrückgang verantwortlich. PSCs entstehen bei extrem niedrigen Temperaturen, wie sie in der winterlichen Stratosphäre vorkommen. Die genauen Vorgänge bei der PSC-Bildung sind noch nicht geklärt. Die derzeitige Theorie ist in Abbildung 2.11 schematisch dargestellt.

Flüssige Partikel, die aus Schwefelsäure H_2SO_4 und Wasser bestehen (engl. stratospheric sulfate aerosol, SSA), sind der Ausgangspunkt für die Bildung von PSCs. Unterhalb von etwa 193 K nimmt SSA große Mengen an HNO_3 auf. Dabei bilden sie eine ternäre Lösung, d.h. eine Lösung die aus drei Bestandteilen besteht ($\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$). Die Lösung ist stark unterkühlt (engl. supercooled ternary solution, STS). STS wird auch als PSC Typ Ib bezeichnet. Wenn sich die Temperatur um einige Kelvin erwärmt, verdampft die enthaltene Salpetersäure und die verbleibende Lösung gefriert zu Schwefelsäure-Tetrahydrat ($\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$, engl. sulphuric acid tetrahydrate, SAT). SAT kann nun entweder als Kondensationskeim für Salpetersäure-Trihydrat ($\text{HNO}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$, engl. nitric acid trihydrate, NAT) dienen, das auch als PSC Typ 1a bezeichnet wird, oder möglicherweise auch durch die Adsorption von HNO_3 wieder schmelzen und STS bilden. Bei fortschreitender Abkühlung nehmen STS-Teilchen HNO_3 auf. Dabei entstehen quasi-binäre $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen, die zu NAT ausfrieren können. Unterhalb des Frostpunkts (188 K) bilden sich durch Nukleation von H_2O auf NAT Eisteilchen, die auch als PSC Typ II bezeichnet werden.

An den Oberflächen der PSCs sowie an Sulfataerosolen laufen Reaktionen ab, bei denen die Reservoirgase in reaktive Substanzen überführt werden:



Dabei stehen die Abkürzungen (g) für Gasphase und (f) für flüssige oder feste Phase. Da diese Reaktionen nicht mehr komplett in der Gasphase ablaufen, werden sie als heterogene Reaktionen bezeichnet. Neben der Konvertierung der chlorhaltigen Reservoirgase in die Verbindungen

Cl_2 und HOCl bewirken die heterogenen Reaktionen eine Denoxifizierung der polaren Stratosphäre, d.h. Stickoxide werden der Gasphase entzogen. Bei Auflösung der PSCs werden die Stickoxide der Gasphase wieder zugeführt. Wachsen die PSC-Partikel durch Koagulation oder Aufnahme von Wasser und Salpetersäure soweit an, dass sie sedimentieren, werden die in ihnen enthaltenen Stickoxide irreversibel aus der Gasphase entfernt. Dieser Prozess wird Denitrifizierung genannt. Die Denitrifizierung der polaren Stratosphäre verschiebt das Verhältnis zwischen Stickoxiden und Chlorverbindungen stark zugunsten der Chlorverbindungen, da das stickstoffhaltige Reservoirgas ClONO_2 nicht mehr gebildet werden kann und somit vermehrt die labileren Verbindungen Cl_2 und HOCl auftreten. Die geringen Strahlungsintensitäten bei Sonnenaufgang am Ende der Polarnacht genügen, um Cl_2 und HOCl zu photolysieren. Die dabei freigesetzten Cl -Radikale bewirken einen effektiven katalytischen Ozonabbau. Prozesse, die die Bildung bzw. das Wachstum der PSC-Partikel fördern, wie z.B. eine Abkühlung der Stratosphäre oder ein Anstieg des Wasserdampfgehalts, begünstigen die Denitrifizierung der polaren Stratosphäre und verstärken damit den katalytischen Ozonabbau.

Aus dynamischen Gründen kommen in der nordhemisphärischen polaren Stratosphäre seltener so extrem tiefe Temperaturen vor wie in der antarktischen Stratosphäre. Daraus folgt eine geringere PSC-Bildung sowie eine schwächere Denitrifizierung der arktischen Stratosphäre. Der Ozonabbau im nordhemisphärischen Frühling fällt somit im Allgemeinen geringer aus als im südhemisphärischen Frühling.

Kapitel 3

Modellbeschreibung

Im Folgenden werden die in dieser Arbeit verwendeten Modellwerkzeuge kurz vorgestellt. Dabei handelt es sich um das gekoppelte Klima-Chemie-Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM, das sich aus der 39-Schichten-Version des globalen atmosphärischen Zirkulationsmodells ECHAM4 und dem Chemiemodul CHEM zusammensetzt, sowie um das Lagrangesche Transportschema ATTILA, das in ECHAM4 alternativ zum operationellen semi-Lagrangeschen Advektionsschema verwendet werden kann.

3.1 Das Zirkulationsmodell ECHAM4

Das 3-dimensionale Zirkulationsmodell ECHAM wurde am meteorologischen Institut der Universität Hamburg in Zusammenarbeit mit dem Max-Planck-Institut für Meteorologie entwickelt. Es basiert auf dem spektralen Wettervorhersagemodell des European Centre of Medium-Range Weather Forecasts (**ECMWF** Modell, **HAMB**urger Version). Um das Vorhersagemodell für Klimarechnungen nutzen zu können, mussten grundlegende Änderungen, insbesondere der Parametrisierungen subskaliger Prozesse, vorgenommen werden. In der vorliegenden Arbeit wurde mit ECHAM4 die vierte Generation des Klimamodells ECHAM verwendet. Eine detaillierte Beschreibung von ECHAM4 findet sich in Roeckner et al. (1992; 1996).

Die Grundlage des Modells ECHAM4 bilden die Bewegungsgleichungen der Atmosphäre, die sog. „primitiven Gleichungen“. Die numerische Integration der Gleichungen liefert die räumliche und zeitliche Entwicklung der prognostischen Variablen Vorticity, Divergenz, Temperatur, Logarithmus des Bodendrucks, spezifische Feuchte und Wolkenwasser (flüssige und feste Phase). Standardmäßig können bis zu 21 passive Spurenstoffe transportiert werden, wobei die Massenmischungsverhältnisse der Spurenstoffe ebenfalls prognostische Variablen sind.

ECHAM4 ist ein spektrales Modell. Die Verteilung der prognostischen Variablen (Wasserdampf, Wolkenwasser und Spurenstoffe ausgenommen) auf einer zur Erdoberfläche konzentrischen Kugelschale wird in Reihen von Kugelflächenfunktionen entwickelt. Je nach gewünschter horizontaler Auflösung erfolgt eine Dreiecksabschneidung an den Großkreiswellenzahlen 21 (T21), 30 (T30), 42 (T42) bzw. 106 (T106). Die in dieser Arbeit verwendete horizontale Auflösung von T30 entspricht einer Auflösung von etwa 6° im Ortsraum. Spektrale Methoden können bei starken horizontalen Gradienten negative Konzentrationen hervorrufen (Gibbssches Phänomen). Aus diesem Grund werden Wasserdampf, Wolkenwasser und Spurenstoffe sowie

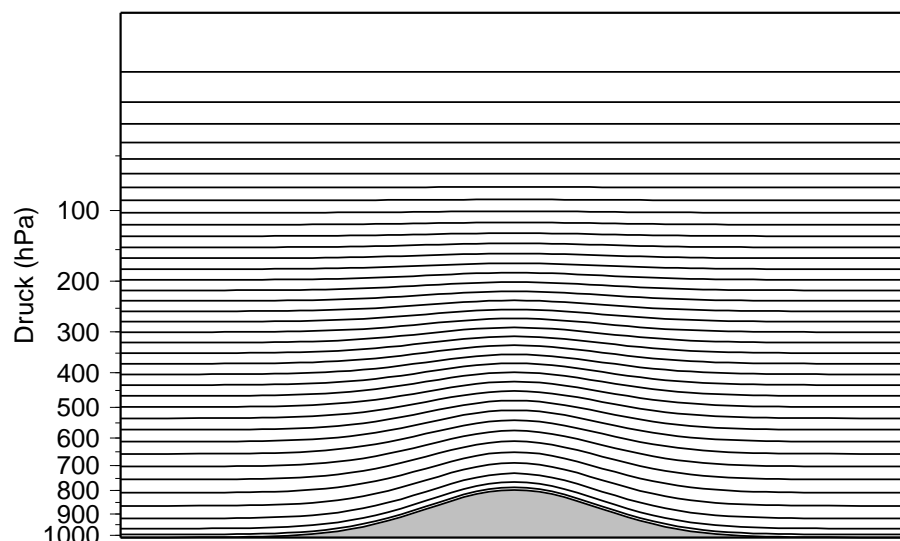


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Verteilung der vertikalen Modellschichten in der Modellversion ECHAM4.L39(DLR).

alle nicht-linearen Terme und diabatischen Prozesse im Gitterpunktraum behandelt. Die Transformation vom Spektral- in den Gitterpunktraum erfolgt mittels einer Fast-Fourier- und einer Legendre-Transformation. Das entsprechende Gaußsche Gitter besitzt bei T30 in zonaler sowie in meridionaler Richtung eine Auflösung von ungefähr 3.75° .

Die vertikale Auflösung der Modellatmosphäre erfolgt in einem hybriden σ - p -Koordinatensystem. In Bodennähe folgen die Modellschichten der Orographie. Mit zunehmender Höhe erfolgt ein stetiger Übergang in reine Druckflächen (s. Abb. 3.1). In der Standardversion ist die Atmosphäre vertikal in 19 nicht-äquidistante Schichten unterteilt. Die oberste Modellschicht ist um 10 hPa (ungefähr 30 km Höhe) zentriert. Die in dieser Arbeit verwendete Modellversion ECHAM4.L39(DLR) (im Folgenden mit E39 abgekürzt) besitzt 39 vertikale Schichten, wobei auch hier die oberste Modellschicht um 10 hPa zentriert ist (Land, 1999; Land et al., 1999). Diese Modellversion bietet gegenüber der Standardversion den Vorteil, dass sich die Vertikalauflösung im Tropopausenbereich von etwa 2 km auf ungefähr 700 m erhöht. Die Arbeit von Land (1999) hat gezeigt, dass E39 im Vergleich zur Standardversion verbesserte Transporteigenschaften und eine deutlich geringere numerische Diffusion aufweist.

Die Advektion von Wasserdampf, Wolkenwasser und Spurenstoffen erfolgt mit dem semi-Lagrangeschen Transportschema von Williamson und Rasch (1994). Semi-Lagrangesche Verfahren gehören zu den Eulerschen Methoden, bei denen die Spurenstoffkonzentrationen auf einem festen Gitter vorliegen. Die Advektion der Spurenstoffe erfolgt durch die Berechnung von Rückwärtstrajektorien: Zu jedem Zeitschritt wird für jeden Gitterpunkt ein „Startpunkt“ berechnet, bei dem ein Luftpaket starten muss, um innerhalb des nächsten Zeitschritts am gewählten Gitterpunkt anzukommen. Die Spurenstoffkonzentration am Gitterpunkt zum nächsten Zeitschritt ist dann die zum dazugehörigen Startpunkt interpolierte Spurenstoffkonzentration zum aktuellen Zeitschritt. Da dieses Advektionsschema nicht massenerhaltend ist, muss ein Massenfizer eingesetzt werden, um Massenerhaltung zu garantieren. Ein Nachteil dieses Transportschemas ist die nicht zu vernachlässigende „numerische Diffusion“, d.h. stark inhomogene Verteilungen werden künstlich geglättet. Viele atmosphärische Spurenstoffe, wie z.B. Ozon, besitzen gerade an der Tropopause starke vertikale Gradienten. Wie Rasch und Lawrence (1998) gezeigt haben, ist die durch den vertikalen Gradienten bedingte numerische Diffusion des Trans-

portschemas von der vertikalen Auflösung des Modells abhängig. In der Modellversion E39 ist die vertikale Auflösung im Tropopausenbereich fein genug, so dass die numerische Diffusion im Fall von Ozon unerheblich ist (Grewe et al., 2002).

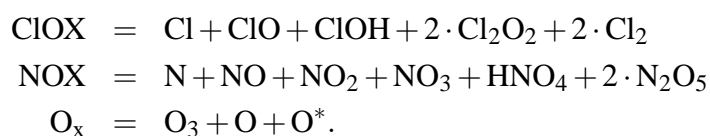
Die zeitliche Integration wird nach dem semi-impliziten Bocksprungverfahren (engl. leap-frog) berechnet. Der Zeitschritt beträgt bei der gewählten Auflösung (T30) 30 min, wobei die Strahlung im 2-Stunden Intervall berechnet wird. Ein Zeitfilter (Asselin, 1972) verhindert das Anwachsen unerwünschter numerischer Moden.

In ECHAM4 werden Land-Meer-Verteilung, Orographie, Meeresoberflächentemperaturen sowie Meereisbedeckung, Bodenalbedo, Vegetationsbedeckung und Rauigkeitlänge als untere Randbedingung vorgegeben. Prozesse, deren Größenskalen unter der Auflösungsgrenze des Modells liegen, müssen parametrisiert werden, d.h. sie werden in Abhängigkeit von großskaligen Variablen beschrieben. ECHAM4 enthält Parametrisierungen für Strahlung, stratiforme und konvektive Wolken- und Niederschlagsbildung, Prozesse in der planetaren Grenzschicht, horizontale Diffusion und für verschiedene Prozesse an Landoberflächen. Die Parametrisierung der stratiformen Wolkenbildung, der Konvektion und der Strahlung sind im Anhang A kurz beschrieben, da diese Prozesse die Wasserdampfverteilung wesentlich beeinflussen bzw. von dieser beeinflusst werden.

3.2 Das Chemiemodul CHEM

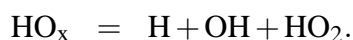
Das Chemiemodul CHEM basiert auf einem 2-dimensionalen Chemietransportmodell (Brühl und Crutzen, 1993) und wurde am Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz für den Einsatz in globalen atmosphärischen Zirkulationsmodellen entwickelt (Steil et al., 1998; Steil, 1999).

CHEM berücksichtigt eine Vielzahl von Spurenstoffen mit sehr unterschiedlichen Lebensdauern. Schnell ablaufende Reaktionen können bei einem verwendeten Zeitschritt von 30 min nicht explizit aufgelöst werden. Aus diesem Grund wird in CHEM das sogenannte Familienkonzept verwendet. Das Familienkonzept unterteilt die Spurenstoffe in drei Gruppen: Langlebige Spurenstoffe werden explizit transportiert und chemisch integriert. Zur dieser Gruppe gehören CH_4 , N_2O , HCl , H_2O_2 , CO , $\text{CH}_3\text{O}_2\text{H}$, ClONO_2 , HNO_3 + PSC Typ I (NAT) und H_2O + PSC Typ II (Eis). Die zweite Gruppe bilden Stoffgruppen, die Substanzen mit unterschiedlichen Lebensdauern beinhalten. Diese Substanzen werden zu Familien zusammengefasst, wobei entscheidend ist, dass die Familie als Ganzes eine längere Lebenszeit besitzt als die Einzelsubstanzen. Die Verteilung der einzelnen Familienmitglieder bleibt beim Transport unverändert. Die Umverteilung der Spurenstoffe erfolgt nach dem Transport durch chemische Integration der längerlebigen Spurenstoffe und unter der Annahme eines photochemischen Gleichgewichts für die kürzerlebigen Familienmitglieder. In CHEM werden folgende Substanzen zu Familien zusammengefasst:



Die dritte Gruppe bilden chemische Substanzen, zwischen denen es starke Wechselwirkungen gibt, die jedoch als Familie immer noch eine zu kurze Lebensdauer haben. Solche Spurenstoffe

werden in einer Familie zusammengefasst, aber nicht advehiert. Die Verteilung dieser Substanzen wird durch Gleichgewichtsbedingungen berechnet. Zu dieser dritten Gruppe gehört die HO_x -Familie:



Dieses Konzept macht CHEM zu einem numerisch sehr effizienten Modul, da nur noch 12 Substanzen bzw. Familien rechenzeitaufwendig transportiert werden müssen und der Zeitschritt groß gehalten werden kann.

CHEM beinhaltet die wichtigsten chemischen Prozesse zur Beschreibung der stratosphärischen Ozonchemie und der troposphärischen O_3 -, CH_4 -, CO -, HO_x - und NO_x - ($= \text{NO} + \text{NO}_2$) Hintergrundchemie. Es berücksichtigt vier heterogene Reaktionen an polaren Stratosphärenwolken und an Sulfataerosolen. In der aktuellen Modellversion ist die Bromchemie noch nicht berücksichtigt. Insgesamt werden 107 Gasphasenreaktionen und 37 chemische Spezies berücksichtigt. Eine ausführliche Beschreibung mit einer Liste aller berücksichtigten Gasphasen-, heterogenen und photolytischen Reaktionen findet sich in Steil et al. (1998).

Die Beschreibung von PSCs erfolgt in CHEM nach einem einfachen Schema ohne genaue mikrophysikalische Vorgänge (Hanson und Mauersberger, 1988). Dabei wird zwischen polaren Stratosphärenwolken des Typs I (NAT) und II (Eis) unterschieden. Die Parametrisierung verwendet neben der Temperatur auch die simulierten Mischungsverhältnisse von H_2O und HNO_3 . Die Bildung von PSCs wird in CHEM nur auf stratosphärischen Modellschichten sowie polwärts von 40° zugelassen. Die Sedimentationgeschwindigkeit der PSC-Teilchen ist abhängig vom Partikelradius. Das Ausfallen von reinen NAT-Partikeln ist an die Anwesenheit von Eisteilchen gebunden. Da der Radius reiner NAT-Partikel und damit auch die Fallgeschwindigkeit ist zu gering, um während des Südpolarwinters zu sedimentieren, wird im Modell angenommen, dass NAT-Teilchen mit halb so großer Geschwindigkeit fallen wie die vorhandenen Eisteilchen.

Die Mischungsverhältnisse von Methan, Distickstoffoxid (Lachgas) und Kohlenmonoxid, sowie die Stickoxidemissionen aus Industrie (Benkovitz et al., 1996), Verkehr (Matthes, 2003b), Biomassenverbrennung (Hao et al., 1990) und Böden (Yienger und Levy, 1995) werden in CHEM als untere Randbedingungen vorgegeben. Zusätzlich werden Stickoxidemissionen aus Blitzen (Grewe et al., 2001) und aus dem Flugverkehr (Schmitt und Brunner, 1997) berücksichtigt. Die Mischungsverhältnisse des anorganischen Chlors CIX ($= \text{ClOX} + \text{HCl} + \text{ClONO}_2$) und der NO_y -Familie ($= \text{NOX} + \text{HNO}_3 + \text{NAT}$) werden am Modelloberrand vorgeschrieben. Die Mischungsverhältnisse der wichtigsten FCKWs F11 (CF_2Cl_2), F12 (CFCl_3), Tetrachlorkohlenstoff (CCl_4), Methylchlorid (CH_3Cl) und Methylchloroform (CH_3CCl_3) werden als Funktion der Jahreszeit, der Höhe und der geographischen Breite vorgegeben.

Das Klima-Chemie-Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM (im Folgenden mit E39/C abgekürzt) bietet die Möglichkeit einer interaktiven Kopplung zwischen Chemie und Dynamik. Dabei wirken sich die im Chemiemodul berechneten Verteilungen der strahlungsrelevanten Gase Ozon, Wasserdampf, Methan, Distickstoffoxid (Lachgas) und der FCKWs auf den lang- und kurzwelligen Strahlungshaushalt und somit die Dynamik aus (Hein et al., 2001). Desweiteren wird die chemische Produktion von Wasserdampf durch die Methanoxidation berücksichtigt. In Abbildung 3.2 sind die wichtigsten Kopplungsmechanismen, die in E39/C berücksichtigt werden, schematisch dargestellt. Im Fall einer ausgeschalteten Rückkopplung werden in den Strahlungsroutinen klimatologische Verteilungen der strahlungsrelevanten Gase vorgeschrieben (s. Anhang A.3). Ebenso wird die chemische Wasserdampfproduktion durch die Methanoxidation mittels einer vorgegebenen Klimatologie parametrisiert.

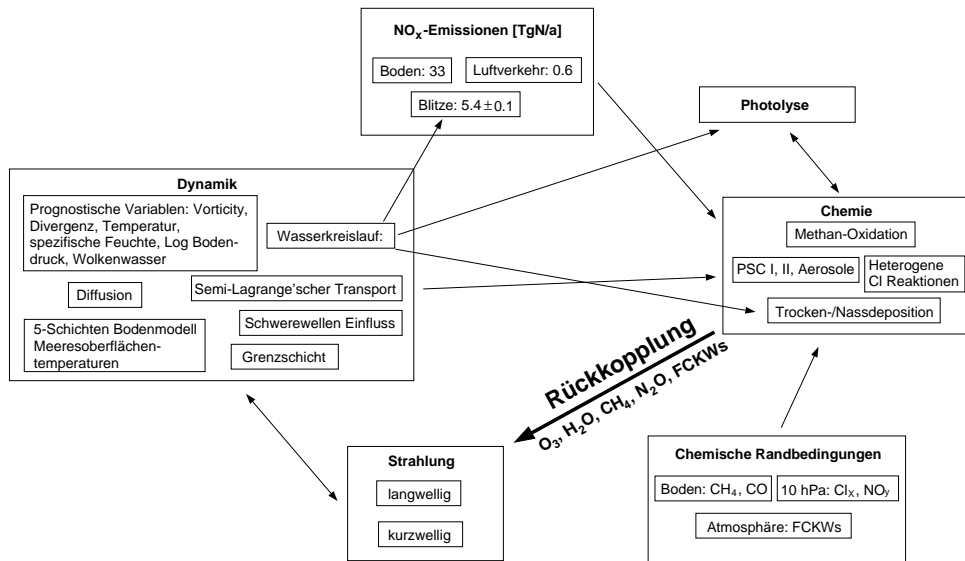


Abbildung 3.2: Schema der berücksichtigten Prozesse in ECHAM4.L39(DLR)/CHEM, sowie der Rückkopplung zwischen Chemie und Dynamik über den Strahlungshaushalt. Aus Hein et al. (2001).

Das gekoppelte Klima-Chemie-Modell E39/C wurde bereits in vielfältigen Studien zur Chemie-Transport- und Klima-Chemie-Wechselwirkung eingesetzt (z.B. Grewe et al., 2001; Lauer et al., 2002; Schnadt et al., 2002; Stenke und Grewe, 2003; Grewe et al., 2004). Aufgrund seiner numerischen Effizienz ist es möglich mit E39/C interaktiv gekoppelte Langzeitsimulationen über mehrere Dekaden durchzuführen. Solche Langzeitsimulationen sind notwendig um z.B. belastbare Aussagen über Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts machen zu können. Die in dieser Arbeit verwendete Modellversion zeichnet sich durch eine erhöhte vertikale Auflösung im Tropopausenbereich aus und hebt sich damit von anderen Klima-Chemie-Modellen (z.B. Shindell et al., 1998; Austin et al., 2000; Steil et al., 2003) ab. Wie im vorangegangenen Kapitel erläutert wurde, wird die Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre entscheidend von Prozessen im Tropopausenbereich bestimmt, so dass die hohe Vertikalauflösung in diesem Bereich für diese Arbeit von großer Bedeutung ist.

3.3 Das Lagrangesche Transportschema ATTILA

ATTILA (**A**tmospheric **T**racer **T**ransport **I**n a **L**agrangian **M**odel) ist ein rein Lagrangesches Transportschema für passive Spurenstoffe. ATTILA kann alternativ zum operationellen semi-Lagrangeschen Transportschema im Klimamodell ECHAM4 eingesetzt werden. Im Lagrangeschen Ansatz wird die Verteilung der Spurenstoffe ebenso wie im Eulerschen Ansatz durch Konzentrationen an gewissen Punkten in der Atmosphäre beschrieben. Während im Eulerschen Ansatz diese Punkte ortsfest sind, bewegen sich die Punkte (auch Luftpakete oder Partikel genannt) im Lagrangeschen Ansatz mit dem Wind entlang berechneter Trajektorien. Eine detaillierte Beschreibung des Transportschemas ATTILA sowie dessen Transporteigenschaften findet sich in Reithmeier (2001) und Reithmeier und Sausen (2002).

Wie bereits in Kapitel 3.1 erläutert, neigen viele nicht-Lagrangesche Advektionsschemata bei stark inhomogenen Verteilungen dazu, negative Konzentrationen zu erzeugen („numerische Dispersion“) oder Gradienten zu stark abzuschwächen („numerische Diffusion“). Ein Lagrange-

ches Transportschema dagegen ist absolut massenerhaltend und numerisch nicht-diffusiv, da das Advektionsschema nicht die Konzentrationen selbst, sondern den Ort der Konzentrationen, also die Position der Luftpakete, ändert. Die Wasserdampfverteilung weist im Tropopausenbereich einen sehr starken vertikalen Gradienten auf. Inwieweit numerische Effekte des semi-Lagrangeschen Advektionsschemas die Wasserdampfverteilung im Modell beeinflussen, wird in Kapitel 6 untersucht.

Bei der in dieser Arbeit verwendeten räumlichen Auflösung von T30 und 39 vertikalen Schichten ist die Modellatmosphäre in $373248 (=2^9 \cdot 3^6)$ Luftpakete¹ gleicher Masse unterteilt. Die Masse eines Luftpakets ergibt sich aus der Gesamtmasse der Atmosphäre geteilt durch die Anzahl der Luftpakete. Die Spurenstoffkonzentrationen sind auf den Mittelpunkten der Luftpakete gegeben, repräsentieren aber das gesamte Paket. Zu Beginn einer Modellsimulation werden die Luftpakete zufällig in der Atmosphäre verteilt, wobei die Anzahl der Pakete in einem Kontrollvolumen mit dessen Masse korrespondiert. Zu jedem Modellzeitschritt werden die Mittelpunkte der Luftpakete advehiert. Dazu wird der von ECHAM errechnete skalige Wind verwendet. Die Berechnung der neuen Positionen der Luftpakete erfolgt nach einem Runge-Kutta-Verfahren 4. Ordnung. Dabei wird das 3-dimensionale Windfeld sowohl räumlich als auch zeitlich interpoliert. Die horizontale Interpolation erfolgt linear, die vertikale Interpolation kubisch Hermitesch. Pakete, die die Modelldomäne durch den Ober- bzw. Unterrand verlassen, werden durch vertikale Spiegelung an der jeweiligen Grenzfläche wieder in die Modellatmosphäre gesetzt.

Subskalige turbulente Schwankungen des Windfeldes, die aufgrund der begrenzten Modellauflösung nicht erfasst werden können, werden mittels eines einfachen Ansatzes parametrisiert, bei dem zur berechneten neuen Position des Luftpakets eine zufällige Komponente addiert wird („random walk“). Untersuchungen mit ATTILA haben allerdings gezeigt, dass der horizontale Anteil der subskaligen Turbulenz nur sehr wenig Einfluss auf die Modellergebnisse hat. Aus diesem Grund und aufgrund der allgemeinen Unsicherheiten bezüglich der Größenordnung der horizontalen und vertikalen Diffusivität der Atmosphäre werden subskalige turbulente Windschwankungen oberhalb der Grenzschicht in der aktuellen Version von ATTILA nicht berücksichtigt. Die turbulente Durchmischung innerhalb der planetaren Grenzschicht wird in ATTILA dadurch parametrisiert, dass zu jedem Zeitschritt alle Luftpakete innerhalb der Grenzschicht vertikal per Zufall neu verteilt werden. Um eine Anhäufung der Luftpakete in der Grenzschicht zu verhindern, werden die Pakete innerhalb einer etwas mächtigeren Schicht als der Grenzschicht vertikal neu verteilt. Somit ist ein Fluss an Luftpaketen von der Grenzschicht in die freie Atmosphäre gewährleistet.

Wie bereits erwähnt sind die Spurenstoffkonzentrationen auf den Mittelpunkten der Luftpakete gegeben und man nimmt an, dass die dort gegebenen Konzentrationen repräsentativ für das komplette Luftpaket sind. Diese Luftpakete deformieren sich aber im Laufe der Zeit, so dass die am Mittelpunkt gegebene Konzentration nicht mehr charakteristisch für die umgebende Luftmasse ist. Um eine solche Entwicklung zu verhindern, werden benachbarte Luftpakete kontrolliert miteinander vermischt. Dazu wird zu jedem Zeitschritt die Spurenstoffkonzentration c in einem Luftpaket einer Hintergrundkonzentration \bar{c} durch die Addition des Terms $(\bar{c} - c) \cdot d$ angenähert. Die Hintergrundkonzentration \bar{c} wird als Durchschnitt über alle Pakete innerhalb einer ECHAM-Gitterbox berechnet. Die Stärke des Austausches bestimmt ein dimensionsloser Mischungsparameter d . In der Troposphäre wird für d pauschal ein Wert von 10^{-3} vorgeschrieben, in der Stratosphäre ein Wert von $5 \cdot 10^{-4}$. Alternativ zur pauschalen Festlegung von d , die relativ

¹Der Begriff „Luftpaket“ ist an dieser Stelle etwas irreführend, da es sich bei den Luftpaketen in ATTILA genau genommen um Massenpunkte handelt, d.h. die Luftpakete besitzen kein Volumen.

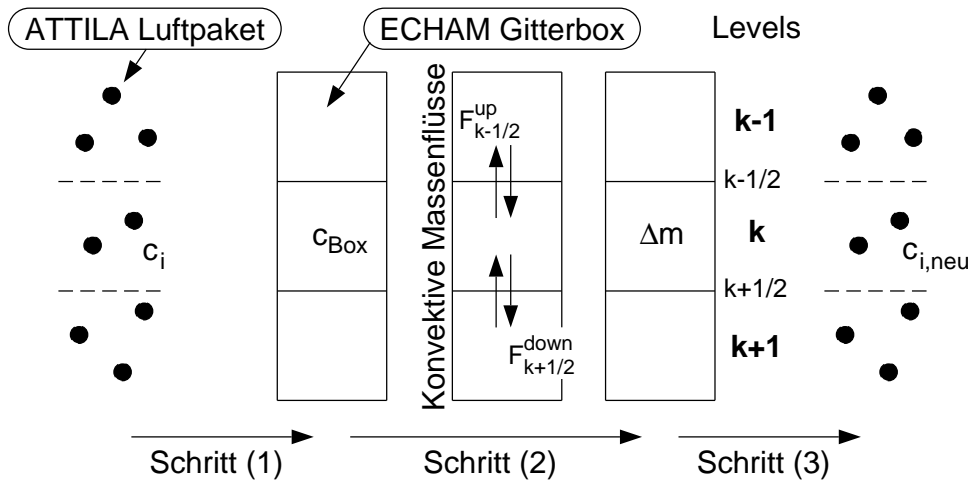


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Konvektion in ATTILA. c_i bezeichnet die Spurenstoffkonzentration auf einem Luftpaket, c_{box} die Konzentration in einer Gitterbox, F^{up} und F^{down} die auf- und abwärtsgerichteten konvektiven Massenflüsse, k den Modelllevel, Δm die Änderung der Spurenstoffmasse in einer Gitterbox, nach Reithmeier und Sausen (2002).

willkürlich ist und den aktuellen Zustand der Atmosphäre unberücksichtigt lässt, gibt es noch weitere Ansätze, die den Diffusionskoeffizienten d u.a. in Abhängigkeit von der horizontalen Windscherung beschreiben. Modellexperimente zum Spurenstofftransport haben allerdings gezeigt, dass die berechneten Verteilungen relativ unempfindlich auf Änderungen von d reagieren.

Die subskalige Konvektion wird in der vorliegenden ATTILA Version nach demselben Verfahren berechnet wie im semi-Lagrangeschen Transportschema. Dazu werden zu jedem Zeitschritt die folgenden drei Schritte durchgeführt (s. Abb. 3.3):

1. Zunächst werden die Spurenstoffkonzentrationen von den Luftpaketen auf das ECHAM-Modellgitter übertragen, indem die Gesamtmasse des in einer Gitterbox vorhandenen Spurenstoffs c_{box} durch die Masse der Gitterbox geteilt wird.
2. Die nun auf dem Modellgitter zur Verfügung stehenden Konzentrationen dienen als Input für das Konvektionsschema in ECHAM (Anhang A.1). Das Konvektionsschema berechnet auf- und abwärtsgerichtete konvektive Spurenstoffmassenflüsse (F^{up} und F^{down}), die in eine Änderung der Spurenstoffmasse Δm für jede Gitterbox umgerechnet werden.
3. Die so berechneten Tendenzen Δm werden anschließend auf die Luftpakete übertragen.

Ein Problem stellen dabei „leere“ Gitterboxen dar, d.h. Gitterboxen, in denen sich zu einem gegebenen Zeitschritt kein Luftpaket befindet. Im Fall einer leeren Gitterbox werden alle konvektiven Massenflüsse aus und in diese Box (F^{up} und F^{down}) auf Null gesetzt. Diese Methode garantiert Massenerhaltung in den leeren Gitterboxen ($\Delta m = 0$), verhindert allerdings konvektiven Transport durch solche Gitterboxen. Da leere Gitterboxen hauptsächlich in hohen Breiten sowohl am Boden als auch in den obersten Modellschichten auftreten, also in Gebieten, in denen subskalige Konvektion sehr selten ist, ist der zu erwartende Effekt klein. Es sei angemerkt, dass bei dieser Parametrisierung der subskaligen Konvektion die Positionen der Luftpakete nicht verändert werden.

Kapitel 4

Experimentbeschreibung

Wie bereits in der Einleitung erwähnt wurde, befasst sich diese Arbeit mit verschiedenen Fragestellungen bezüglich der Wasserdampfverteilung in dem gekoppelten Klima-Chemie-Modell E39/C. Zu deren Beantwortung werden die in Kapitel 3 beschriebenen Modellwerkzeuge je nach Fragestellung in unterschiedlichen Konfigurationen eingesetzt. Insgesamt können drei Anwendungsbereiche unterschieden werden: Beurteilung des Modellsystems hinsichtlich seiner Fähigkeiten die Prozesse und Eigenschaften der realen Atmosphäre zu reproduzieren (Modellevaluierung), Verbesserung von Modelldefiziten (Transportschema) sowie Prozessstudien zum Einfluss einer veränderten Wasserdampfverteilung auf die stratosphärische Ozonchemie. Im Folgenden werden die verwendeten Modellkonfigurationen und die damit durchgeführten Modellexperimente näher beschrieben (vgl. Tabelle 4.1).

4.1 Modellevaluierung

Im Rahmen der Modellevaluierung in Kapitel 5 und der Analyse der Variabilität des stratosphärischen Wasserdampfs in Kapitel 7 werden die Modellergebnisse auch mit Beobachtungsdaten verglichen. Um eine verlässliche Aussage über die Modellfähigkeiten und mögliche Unzulänglichkeiten machen zu können, ist es notwendig eine Modellkonfiguration zu verwenden, die die atmosphärischen Prozesse möglichst realitätsnah simuliert. So beruhen die Modellergebnisse, die in den Kapiteln 5 und 7 vorgestellt werden, auf zwei transienten Modellsimulationen der Jahre 1960 bis 1999 bzw. 2000 bis 2019 in denen natürliche und anthropogene Klimaantriebe so realistisch wie möglich berücksichtigt wurden. Diese Simulationen wurden mit der interaktiv gekoppelten Version des Klima-Chemie-Modells E39/C durchgeführt (s. Abschnitt 3.2). Zusätzlich beinhaltet die verwendete Modellkonfiguration eine Parametrisierung der Photolyse bei Sonnenzenitwinkeln größer als 87.5° (maximal 93°), um den Einfluss der Dämmerung auf die stratosphärische Ozonchemie zu berücksichtigen (Lamago et al., 2003).

Bei transienten Modellsimulationen passen sich die vorgeschriebenen Randbedingungen den beobachteten zeitlichen Veränderungen der realen Atmosphäre an. Die Randbedingungen für die Vergangenheitssimulation (im Folgenden als **CNTL_1999** bezeichnet) basieren auf Beobachtungsdaten. Im Fall der transienten Simulation der Jahre von 2000 bis 2019 (**CNTL_2019**) beziehen sich die verwendeten Randbedingungen auf das sogenannte A2-Szenario (IPCC, 2001). Neben dem Anstieg der Treibhausgase und der NO_x -Emissionen wurden die Variation der ein-

Tabelle 4.1: Experimentübersicht.

Kurzbezeichnung	Kurzbeschreibung
Modellevaluierung und Trendanalyse:	
CNTL_1999	Transiente Simulation der Jahre 1960 bis 1999; Modellevaluierung
NOVOLC_1999	Transiente Simulation der Jahre 1982 bis 1999, ohne die Vulkane El Chichon und Pinatubo; Sensitivitätsstudie zum Einfluss der Vulkanausbrüche auf den stratosphärischen Wasserdampftrend
CH4_1990	Zeitscheibenexperiment Jahr 1990 mit Wasserdampfproduktionsraten der Jahre 1980 bis 1999 aus CNTL_1999, Sensitivitätsstudie zum Beitrag der Methanoxidation zum stratosphärischen Wasserdampftrend
CNTL_2019	Transiente Simulation der Jahre 2000 bis 2019; Abschätzung der zukünftigen Entwicklung der stratosphärischen Wasserdampfverteilung
Verbesserung von Modelldefiziten – Transportschema:	
E4/SLT	Feuchtetransport mit semi-Lagrangeschem Transportschema (SLT)
E4/ATTILA	Feuchtetransport mit rein Lagrangeschem Transportschema ATTILA
Einfluss der Wasserdampfverteilung auf den Ozonhaushalt:	
CNTL	Kontrolllauf Jahr 2000, ohne H ₂ O-Störung
VOLC	Zeitscheibenexperiment Jahr 2000, +2 ppmv H ₂ O-Störung (kurzfristig, Vulkanausbruch)
H2O_1	Zeitscheibenexperiment Jahr 2000, +1 ppmv H ₂ O-Störung (langfristig)
H2O_5	Zeitscheibenexperiment Jahr 2000, +5 ppmv H ₂ O-Störung (langfristig)

gestrahlten Sonnenenergie im ca. 11-jährigen Sonnenfleckenzyklus, die QBO sowie die drei größten Vulkanausbrüche der vergangenen 40 Jahre, Agung (1963), El Chichon (1982) und Pinatubo (1991) berücksichtigt, um das Verhalten der Atmosphäre in diesem Zeitraum möglichst realistisch zu simulieren. Die Simulation CNTL_1999 ist die erste Simulation mit einem gekoppelten Klima-Chemie-Modell der Troposphäre und der Stratosphäre, in der auch die natürlichen Variationen realitätsnah beschrieben sind. Eine detaillierte Beschreibung sowie ausgewählte Ergebnisse dieses Modellexperiments sind in Dameris et al. (2005) zu finden.

Zusätzlich zu den beiden genannten transienten Simulationen CNTL_1999 und CNTL_2019 wurden zwei Sensitivitätsexperimente durchgeführt:

- Die Simulation **NOVOLC_1999** dient als Sensitivitätsexperiment zum Einfluss der Vulkanausbrüche auf den stratosphärischen Wasserdampftrend (s. Kapitel 7). NOVOLC_1999 ist eine transiente Simulation der Jahre 1982 bis 1999, die sich von CNTL_1999 einzig und allein darin unterscheidet, dass die Ausbrüche der Vulkane El Chichon 1982 und Pinatubo 1991 **nicht** berücksichtigt wurden. Die übrigen Randbedingungen sowie Klimaantriebe sind in CNTL_1999 und NOVOLC_1999 identisch.

- Ziel des zweiten Sensitivitätsexperiments **CH4_1990** ist es, den Beitrag der ansteigenden Methanemissionen auf den stratosphärischen Wasserdampfgehalt in CNTL_1999 zu quantifizieren. Zu diesem Zweck wurden die Wasserdampfproduktionsraten aufgrund der Methanoxidation in CNTL_1999 für die Jahre 1980 bis 1999 archiviert und in CH4_1990 als Randbedingungen vorgeschrieben. Nach 10 Jahren Einschwingzeit mit konstanter Wasserdampfproduktion steigen die Wasserdampfproduktionsraten in den folgenden 20 Modelljahren jährlich gemäß den Ergebnissen der Simulation CNTL_1999 an. Die Simulation CH4_1990 wurde im quasi-stationären Zustand integriert (Zeitscheibenexperiment), d.h. die übrigen Randbedingungen wurden über den gesamten Integrationszeitraum konstant gehalten und repräsentieren das Jahr 1990. Für die Simulation CH4_1990 wurde die **nicht**-interaktiv gekoppelte Modellversion von E39/C verwendet.

Im folgenden werden die in den Klimasimulationen verwendeten Randbedingungen und berücksichtigten Klimaantriebe näher beschrieben:

Treibhausgase und stratosphärischer Chlorgehalt

In Abbildung 4.1 ist der zeitliche Verlauf der wichtigsten Treibhausgase CO₂, N₂O und CH₄, des stratosphärischen anorganischen Chlorgehalts Cl_y (= ClO_x + HCl + ClONO₂ + FCKWs) sowie verschiedener anthropogener und natürlicher NO_x-Emissionen für die Jahre von 1960 bis 2019 dargestellt. Die Zunahme der Treibhausgase folgt den Angaben in IPCC (2001). Die Abschätzungen des zukünftigen stratosphärischen Chlorgehalts basieren auf den Vereinbarungen zur Reduzierung der FCKW-Emissionen (Kopenhagen-Protokoll 1992) (WMO, 1999). Zwischen 1999 und 2019 nimmt der stratosphärische Chlorgehalt um etwa 17% ab.

Anthropogene NO_x-Emissionen

In den Modellsimulationen werden verschiedene natürliche und anthropogene Stickoxidquellen berücksichtigt. Die Basis für die vorgeschriebenen NO_x-Emissionen aus Industrie und Verkehr bildet der Global Emission Inventory Activity (GEIA)-Datensatz für das Jahr 1985 mit einer globalen NO_x-Emissionsrate von 21 Tg(N)/yr (Benkovitz et al., 1996). Nach Matthes (2003b) beträgt dabei der Anteil des Straßenverkehrs etwa 30%. Die globalen Wachstumsraten folgen den Angaben in IPCC (2001). Da der GEIA-Datensatz keine globalen Informationen zu den NO_x-Emissionen aus dem Schiffsverkehr enthält, basieren die verwendeten Schiffsemissionen auf einem Datensatz nach Corbett et al. (1999), wobei für den Zeitraum 1970 bis 2000 die Wachstumsraten aus Köhler (2003) verwendet wurden. Für die Zukunft wurde angenommen, dass die Anzahl der Schiffe weiterhin leicht zunimmt. Wie in Abbildung 4.1 zu erkennen ist, nehmen die Stickoxidemissionen aus dem Schiffsverkehr ab 2008 wieder leicht ab. Dieses Verhalten ist auf Maßnahmen zur Reduzierung der NO_x-Emissionen zurückzuführen (H. W. Köhler, persönliche Mitteilung). Die durch den Flugverkehr entstehenden NO_x-Emissionen basieren auf Emissionsdatensätzen für die Jahre 1990 und 2015 (Schmitt und Brunner, 1997). Für die Zeit vor 1990 wurden die Stickoxidemissionen aus dem Flugverkehr gemäß IPCC (1999) extrapoliert, während die Emissionen für den Zeitraum zwischen 1990 und 2015 bzw. für die Periode nach 2015 exponentiell interpoliert bzw. extrapoliert wurden.

Natürliche NO_x-Emissionen

Die Verbrennung von Biomasse führt zur Emission zahlreicher Spurenstoffe wie CO, N₂O, Kohlenwasserstoffe und NO, wobei im Modell nur die Stickoxidemissionen berücksichtigt werden. Die vorgeschriebenen NO_x-Emissionen aus der Biomassenverbrennung basieren auf den Abschätzungen von Hao et al. (1990). Zwischen 1960 und 2020 steigen die Stickoxidemissio-

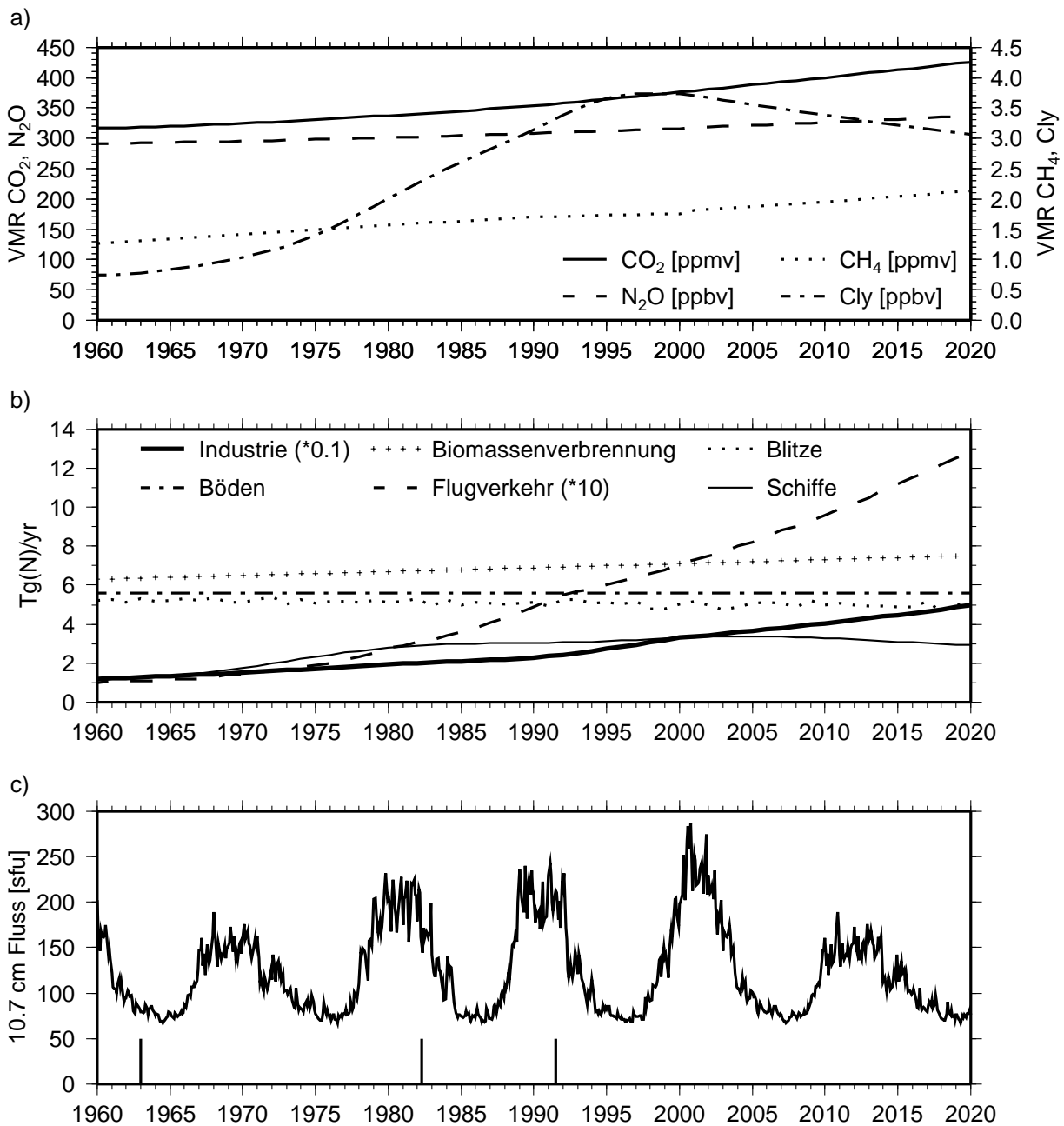


Abbildung 4.1: Zeitreihe der verschiedenen Randbedingungen in den transienten Simulationen von 1960 bis 2019. a) Volumenmischungsverhältnisse der Treibhausgase CO_2 [ppmv], CH_4 [ppmv] und N_2O [ppbv] sowie des anorganischen Chlors in der Stratosphäre Cl_y [ppbv]. b) Stickoxidemissionen aus verschiedenen natürlichen und anthropogenen Quellen [Tg(N)/yr]. Die Flugverkehrsemissionen sind zur besseren Darstellung um den Faktor 10 überhöht, Industrieemissionen um den Faktor 10 erniedrigt. c) Sonnenaktivität dargestellt als Stärke des solaren 10.7 cm Flusses [sfu] (solar flux unit, $1 \text{ sfu} = 1 \times 10^{-22} \text{ m}^{-2} \text{ Hz}^{-1}$). Die vertikalen Linien markieren den Zeitpunkt des Ausbruchs der Vulkane Agung (1963), El Chichon (1982) und Pinatubo (1991).

nen aus der Biomassenverbrennung von 6.3 Tg(N)/yr auf 7.5 Tg(N)/yr an, was einer Wachstumsrate von etwa 0.3%/yr entspricht (IPCC, 1999). Eine weitere wichtige NO_x-Quelle bilden Blitze. In der verwendeten Modellversion erfolgt die Parametrisierung der Blitze nach Grewe et al. (2001), die die Blitzrate an den vertikalen Massenaustausch innerhalb einer konvektiven Wolke gekoppelt haben. Dabei wurde die Parametrisierung soweit angepasst, dass die mittlere Stickoxidproduktion 5.16 Tg(N)/yr beträgt. Die Berechnung der aktuellen Stickoxidemissionen aus Blitzen erfolgt direkt während der Modellsimulation. Zu den natürlichen Stickoxidquellen gehören neben Biomassenverbrennung und Blitzen auch mikrobiologische Prozesse in Böden. Für deren globale NO_x-Produktion wird der konstante Wert 5.6 Tg(N)/yr angenommen (Yienger und Levy, 1995).

Meeresoberflächentemperaturen

Die Meeresoberflächentemperaturen sowie die Meereisbedeckung werden als Monatsmittelwerte vorgeschrieben und basieren für die Jahre 1960 bis 1999 auf dem globalen Datensatz HadISST1 des UK Met Office Hadley Centre, der verschiedene Satelliten- und In-situ-Messdaten zusammenfasst (Rayner et al., 2003). Für die Jahre 2000 bis 2019 stammen die Meeresoberflächentemperaturen aus einer Langzeitsimulation der Jahre 1860 bis 2100 mit dem gekoppelten Ozean-Atmosphären-Modell des Hadley Centre (Williams et al., 2001). Dabei wurden die Modellergebnisse an die verfügbaren Beobachtungen angepasst, indem die simulierten Anomalien zu den Beobachtungsdaten addiert werden (Anomaliekopplung). Dadurch wird ein möglichst gleichmäßiger Übergang zwischen Beobachtungen und „Vorhersagen“ gewährleistet.

QBO

Die Parametrisierung der QBO erfolgt durch beobachtete Zonalwinde in der äquatorialen unteren Stratosphäre. Dabei wird der simulierte Zonalwind im Bereich zwischen 20°N und 20°S und zwischen 90 hPa und dem Modelloberrand mittels eines linearen Relaxationsverfahrens („nudging“) an die Beobachtungen angenähert. Die Relaxationszeit beträgt dabei 7 Tage. Für die Zukunftssimulation CNTL_2019 werden die beobachteten Zonalwinde der Jahre 1965 bis 1984 für die Parametrisierung der QBO verwendet. Dieser Zeitraum wurde ausgewählt, um einen Sprung in der QBO-Phase zwischen den Jahren 1999 und 2000 zu vermeiden. Außerdem ist der Zeitraum 1965 bis 1984 nur sehr wenig von Vulkanausbrüchen beeinflusst.

Sonnenaktivität

Die Variation der eingestrahnten Sonnenenergie mit einer Periode von 11 Jahren, der sogenannte Sonnenfleckenzyklus, beeinflusst den Strahlungshaushalt und somit die Dynamik der Atmosphäre. Die Parametrisierung der Sonnenaktivität erfolgt in den beiden transienten Modellsimulationen CNTL_1999 und CNTL_2019 anhand des solaren 10.7 cm Flusses (Daten: <http://www.drao.nrc.ca/icarus/www/maver.txt>). Für die Zukunftssimulation wurde die Zeitreihe zwischen den Jahren 1957 und 1977 wiederholt. Bei der Fortsetzung dieser Zeitreihe wurde darauf geachtet, dass zwischen 1999 und 2000 kein plötzlicher Sprung in der Stärke des solaren 10.7 cm Flusses auftritt und dass nach Möglichkeit Sonnenaktivitätszyklen mittlerer Stärke für die Zukunftssimulation verwendet werden (s. Abb. 4.1c).

Vulkanausbrüche

Vulkanausbrüche emittieren große Mengen an SO₂ (Schwefeldioxid) direkt in die untere Stratosphäre, welches schnell in Sulfat-Aerosole umgewandelt wird. Dieser zusätzliche Aerosolgehalt bewirkt eine verstärkte Absorption terrestrischer sowie solarer Strahlung im nahen Infrarotbe-

reich und führt damit zu einer Erwärmung der unteren Stratosphäre. Außerdem wird die Chemie der Stratosphäre beeinflusst, da mehr Aerosol-Oberflächen für heterogene Reaktionen (s. Abschnitt 2.3.2) zur Verfügung stehen. In den Modellsimulationen wird der Einfluss der Vulkanausbrüche auf die Atmosphäre in Form von zusätzlichen Heizraten und Aerosol-Oberflächen parametrisiert. Die Heizraten stammen aus einer Modellsimulation der beiden Jahre nach dem Ausbruch des Pinatubo im Jahr 1991 mit dem GCM ECHAM4, wobei beobachtete Aerosolverteilungen verwendet wurden (Kirchner et al., 1999). Verschiedene Studien deuten darauf hin, dass die stratosphärischen Temperatursignale der drei genannten Vulkanausbrüche von vergleichbarer Stärke waren (z.B. Labitzke, 1994). Deswegen und aufgrund der wenigen verfügbaren Informationen über die beiden früheren Vulkanausbrüche, wurden die für den Pinatuboausbruch berechneten Heizraten unverändert auch für die Ausbrüche des Agung und des El Chichon verwendet.

Der verwendete Datensatz für die Oberflächendichte der Sulfat-Aerosole basiert auf verschiedenen Satellitenmessungen und umfasst die Jahre 1979 bis 1995 (WMO, 2003), d.h. der Ausbruch des Vulkans Agung im Jahr 1963 ist in diesem Datensatz noch nicht enthalten. Um diese Lücke zu schließen, wurden die Beobachtungen der Jahre 1982 bis 1985 nach dem Ausbruch des El Chichon für die fehlenden Jahre 1963 bis 1966 verwendet, wobei die unterschiedliche geographische Lage der beiden Vulkane, die Höhe der Eruptionswolke und der unterschiedliche stratosphärische Aerosol-Hintergrund berücksichtigt wurden. Für die restlichen fehlenden Jahre vor 1979 wurde die Verteilung für 1979 verwendet, für die fehlenden Jahre nach 1995 die Verteilung des Jahres 1995, um einen geschlossenen Datensatz für den Zeitraum 1960-1999 zu erhalten. Die Jahre 1979 und 1995 wurden zum Auffüllen der Datenlücken ausgewählt, da der stratosphärische Aerosolgehalt in diesen Jahren der Hintergrundverteilung am ähnlichsten war. In der Zukunftssimulation wurden keine Vulkanausbrüche berücksichtigt.

4.2 Verbesserung von Modelldefiziten – Transportschema

Kapitel 6 beschäftigt sich mit der Frage, inwieweit die numerische Eigenschaften des verwendeten Advektionsschemas die simulierte Wasserdampfverteilung beeinflussen. Dazu werden zwei Modellsimulationen miteinander verglichen, die sich nur in der Advektion von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser unterscheiden. In der Simulation **E4/SLT** wurde der Transport von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser mit dem operationellen semi-Lagrangeschen Transportschema nach Williamson und Rasch (1994) durchgeführt, während in der Simulation **E4/ATTILA** spezifische Feuchte und Wolkenwasser mit dem rein Lagrangeschen Advektionsschema ATTILA transportiert wurden. Bei Fragestellungen, die wie in diesem Fall rein technischer Natur sind und bei denen die Bewertung der Ergebnisse nicht in erster Linie über einen Vergleich mit Beobachtungsdaten erfolgt, ist die Verwendung eines Basismodells, das die grundlegenden atmosphärischen Vorgänge erfasst, ausreichend. Erweiterungen zum Basismodell, wie sie in den transienten Simulationen verwendet wurden, benötigen zum einen sehr viel Rechenzeit und führen unter Umständen zu unerwünschten Rückkopplungseffekten. Aus diesen Gründen wurde für die Simulationen E4/SLT und E4/ATTILA die Standardversion des Klimamodell E39 ohne Chemie verwendet.

Um spezifische Feuchte und Wolkenwasser Lagrange transportieren zu können, waren zunächst einige Erweiterungen in ATTILA notwendig, die nun kurz beschrieben werden. Wie in Abschnitt 3.3 bereits erwähnt wurde, erfolgt die Berechnung der Konvektion in ATTILA analog

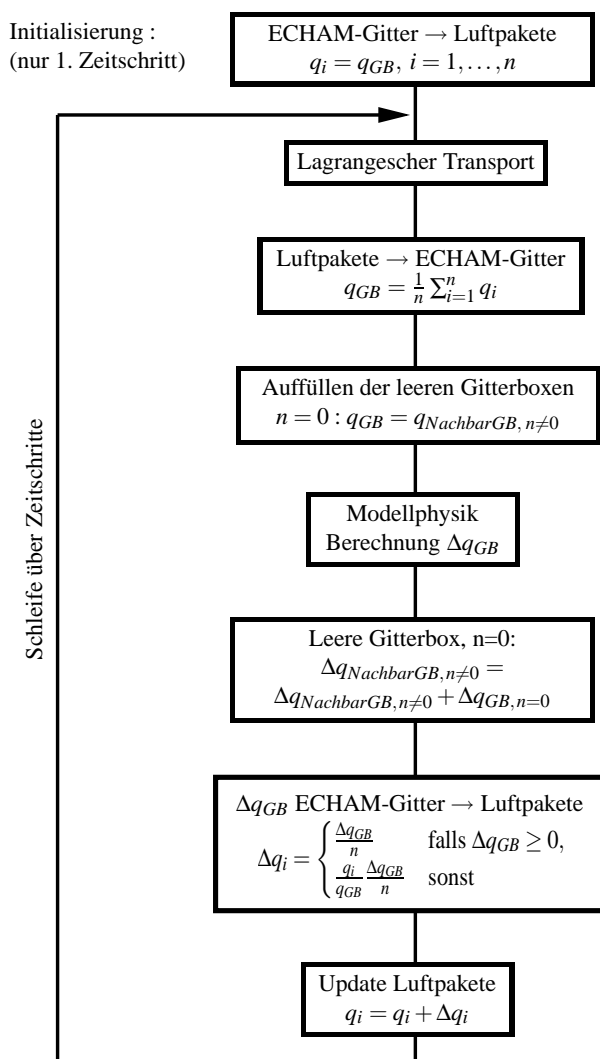


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Lagrangeschen Behandlung der Feuchteadvektion mit ATTILA. Die Indizes i und GB bezeichnen die Luftpakete bzw. die ECHAM-Gitterboxen, n ist die Anzahl der Luftpakete in der Gitterbox GB , q und Δq bezeichnen die spezifische Feuchte bzw. deren Tendenzen.

zum semi-Lagrangeschen Transportschema, d.h. die Spurenstoffkonzentrationen in den Luftpaketen werden auf das ECHAM-Modellgitter übertragen. Im Fall von Wasserdampf und Wolkenwasser erfolgt zusätzlich die Berechnung der Wolkenphysik und der Strahlung auf dem ECHAM-Modellgitter. Während bei passiven Spurenstoffen leere Gitterboxen bei der Berechnung der physikalischen Prozesse kein Problem darstellen, sind leere Gitterboxen im Fall von Wasserdampf physikalisch sinnlos und müssen deswegen „aufgefüllt“ werden. Im Gegenzug müssen die Änderungsraten, die von der Physikroutine berechnet werden, auch vollständig umgesetzt werden, da sonst künstliche Quellen und Senken in das Modell eingebaut werden. Spezifische Feuchte und Wolkenwasser erfordern somit eine etwas andere Behandlung als passive Spurenstoffe. Soweit es nicht gesondert erwähnt wird, sind die vorgenommenen Änderungen für Wolkenwasser und spezifische Feuchte identisch. In Abbildung 4.2 ist die Feuchteadvektion mit ATTILA schematisch dargestellt.

Zur Initialisierung der Luftpakete wird jedem Luftpaket die spezifische Feuchte der Gitterbox, in der es sich gerade befindet, zugeschrieben. Nachdem der Transport der Luftpakete erfolgt ist,

wird die spezifische Feuchte auf das ECHAM-Gitter übertragen. Der Feuchtegehalt einer Gitterbox bestimmt sich aus dem Mittelwert über alle in dieser Gitterbox befindlichen Luftpakete. Gitterboxen, in denen sich kein Luftpaket befindet, müssen „aufgefüllt“ werden. Dazu wird einer leeren Gitterbox die spezifische Feuchte der nächsten „vollen“ Gitterbox zugeschrieben. Durch einen geeigneten Algorithmus wird verhindert, dass gerade in der untersten Troposphäre zu viel Feuchte von mittleren Breiten in die Polargebiete transportiert wird. Das Problem der leeren Gitterboxen tritt hauptsächlich in den polaren Breiten der Troposphäre als auch der Stratosphäre auf (Reithmeier und Sausen, 2002). Da in diesen Gebieten der Wolkenwassergehalt eher gering ist, werden leere Gitterboxen im Fall von Wolkenwasser **nicht** aufgefüllt. So wird eine künstliche Wolkenwasserquelle im Modell unterdrückt. Die Änderungsraten (Tendenzen) für die spezifische Feuchte müssen im Anschluss an die Berechnung der Modellphysik vom ECHAM-Gitter auf die Luftpakete übertragen werden. Aus Kontinuitätsgründen werden die Änderungsraten, die sich auf eigentlich leere Gitterboxen beziehen, zu den Änderungsraten der nächsten vollen Gitterbox addiert. Schließlich werden die Änderungsraten auf die einzelnen Luftpakete innerhalb einer Gitterbox aufgeteilt: Positive Änderungsraten werden gleichmäßig auf die einzelnen Luftpakete verteilt, negative Tendenzen proportional zum Verhältnis zwischen der spezifischen Feuchte des Luftpakets und der Gitterbox, um das Auftreten negativer spezifischer Feuchten in den Luftpaketen zu verhindern. Die Aktualisierung der Feuchtwerte in den Luftpaketen beendet einen Integrationszeitschritt.

Die beiden Modellsimulationen E4/SLT und E4/ATTILA wurden im quasi-stationären Zustand, d.h. unter Festhaltung der Randbedingungen, integriert (sogenannte Zeitscheibenexperimente). Die Simulationsdauer beträgt jeweils 16 Jahre, wobei die ersten 4 Jahre Einschwingzeit sind und zur Auswertung nicht herangezogen werden. Im Gegensatz zu transienten Simulationen stellen die einzelnen Modelljahre bei Zeitscheibenexperimenten verschiedenen Realisationen eines Jahres dar, wodurch die inter-annuale (Jahr zu Jahr) Variabilität berücksichtigt wird. Die verwendeten Randbedingungen repräsentieren die Atmosphäre zu Beginn der 1990er Jahre. Die vorgeschriebenen Treibhausgasmischungsverhältnisse betragen 353 ppmv CO₂, 1.72 ppmv CH₄ und 310 ppbv N₂O. Für die Strahlungsrechnungen wird eine modellinterne Ozonverteilung verwendet, die aus Gesamtozonsäulen nach London et al. (1976) und der Höhe des Ozonmaximums nach Wilcox und Belmont (1977) abgeleitet wird. Die vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen folgen Gates (1992).

4.3 Prozessstudien zum Einfluss der Wasserdampfverteilung auf die Ozonchemie

In Kapitel 8 wird der Einfluss eines sich verändernden Wasserdampfgehalts auf die stratosphärische Ozonchemie untersucht. Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts beeinflussen den stratosphärischen Ozonhaushalt in zweifacher Hinsicht: Zum einen greift ein veränderter stratosphärischer HO_x-Gehalt direkt in die stratosphärische Ozonchemie ein. Zum anderen wird aufgrund der Strahlungswirkung von Wasserdampf die atmosphärische Zirkulation verändert, was zusätzlich eine dynamisch induzierte Veränderung der Ozonverteilung zur Folge hat. Bei einem Modellexperiment wie der transienten Modellsimulation CNTL_1999, die mit der interaktiv gekoppelten Version von E39/C gerechnet wurde, ist es somit nicht möglich den Anteil an der Veränderung des stratosphärischen Ozongehalts zu bestimmen, der allein durch die veränderte Chemie von einer Wasserdampfänderung verursacht wird. Um ein

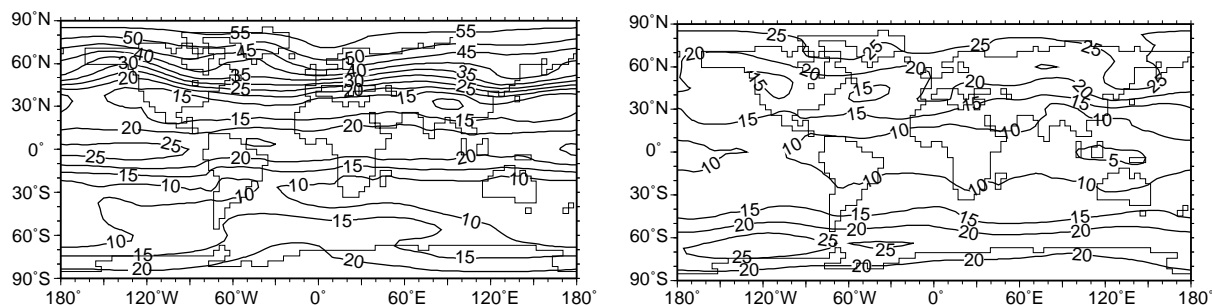


Abbildung 4.3: Differenz des klimatologisch gemittelten simulierten Gesamt Ozons zwischen der nicht-interaktiv gekoppelten und der interaktiv gekoppelten Modellversion von ECHAM4.L39(DLR)/CHEM, Einheit: DU. Links: Nicht-interaktiv gekoppelte Version mit fehlerbehafteter modellinterner Ozonverteilung O_3_{intern} , rechts: nicht-interaktiv gekoppelte Version mit verbesserter Ozonverteilung O_3_{extern} .

besseres Verständnis der Kopplungsprozesse zwischen atmosphärischer Dynamik und Chemie zu erlangen, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Methode entwickelt, mit der Ozonveränderungen aufgrund einer stratosphärischen Wasserdampfstörung bei unveränderter Meteorologie untersucht werden können. Diese Methode beruht auf der Unterscheidung zweier Wasserdampf-felder: Hintergrund und Störung. Die Strahlungsrechnungen erfolgen mit der ungestörten Hintergrundverteilung, die in den verschiedenen Simulationen unverändert bleibt. Zur Berechnung der chemischen Reaktionen wird ein gestörtes Wasserdampffeld verwendet:

$$\begin{aligned} H_2O_{Dynamik} &= H_2O_{Hintergrund} \\ H_2O_{Chemie} &= H_2O_{Hintergrund} + H_2O_{Störung} \end{aligned}$$

Die Wasserdampfstörung wird dabei als gewöhnlicher Tracer transportiert. Um eine Wasserdampfstörung möglichst realistisch zu simulieren, muss sie dieselben physikalischen Quellen und Senken durchlaufen wie die Hintergrundverteilung. Dazu gehören Konvektion, Kondensation bzw. Verdunstung, Niederschlag und turbulenter Vertikalaustausch. Hierzu wird ein linearer Ansatz gewählt, d.h. wenn 10% des Hintergrundwasserdampfs durch Niederschlag aus einer Gitterbox entfernt werden, werden analog 10% der Wasserdampfstörung aus der Gitterbox entfernt. Mit Hilfe dieser Methode wird der Einfluss unterschiedlicher Wasserdampfstörungen auf die Ozonchemie untersucht. Alle Simulationen wurden mit der **nicht**-interaktiv gekoppelten Version von E39/C durchgeführt.

Um auch mit der nicht-interaktiv gekoppelten Modellversion möglichst realitätsnahe Ergebnisse zu erreichen, wurde die chemische Wasserdampfproduktion aufgrund der Methanoxidation mittels einer vorgeschriebenen Klimatologie parametrisiert. Ebenso wurde für die Strahlungsrechnungen anstatt der fehlerbehafteten modellinternen Ozonverteilung (O_3_{intern}), die auf Gesamtozonsäulen nach London et al. (1976) und einer Vertikalverteilung nach Wilcox und Belmont (1977) basiert, eine realistischere Ozonverteilung verwendet (O_3_{extern}), welche der mit dem interaktiv gekoppelten Modell simulierten Ozonverteilung entspricht (s. Abb. 5.17). In Abbildung 4.3 ist die Differenz des Gesamt Ozons zwischen der nicht-interaktiv gekoppelten und der interaktiv gekoppelten Modellversion von E39/C gezeigt, wobei sich die links gezeigte Differenz bei Verwendung der modellinternen Standardozonverteilung O_3_{intern} für die Strahlungsrechnungen ergibt und die rechts gezeigte Differenz bei Verwendung der verbesserten Ozonverteilung O_3_{extern} . Im Fall der Standardozonverteilung O_3_{intern} ergeben sich deutliche Unterschiede zwischen der interaktiv und der nicht-interaktiv gekoppelten Modellversion: In mittleren und hohen Breiten überschätzt die nicht-interaktiv gekoppelte Modellversion die mit

Tabelle 4.2: Stickoxidemissionen für das Jahr 2000, Wachstumsraten gemäß IPCC (2001).

Quelle	Globale Quellstärke (Tg(N)/yr)	Referenz
Flugzeuge	0.7	Schmitt und Brunner (1997)
Blitze	~5	Grewe et al. (2001)
Industrie und Verkehr	33.0	Benkovitz et al. (1996)
Böden	5.6	Yienger und Levy (1995)
Biomassenverbrennung	7.1	Hao et al. (1990)

der interaktiv gekoppelten Modellversion simulierten Gesamtozonwerte um 20 bis etwa 60 DU, wobei die Abweichungen zum Nordpol hin zunehmen. In den Tropen sowie auf der Südhemisphäre fallen die Abweichungen mit 10 bis 20 DU geringer aus. Die Verwendung der realitätsnahen Ozonverteilung O_3_{extern} bewirkt eine deutlich bessere Übereinstimmung der Gesamtozonwerte zwischen der interaktiv und der nicht-interaktiv gekoppelten Modellversion, insbesondere auf der Nordhemisphäre. Insgesamt liegen die Unterschiede zwischen beiden Modellversionen nur noch zwischen 10 und 25 DU. Mit den oben erwähnten Erweiterungen zur nicht-interaktiv gekoppelten Modellversion wie Parametrisierung der Methanoxidation und Verwendung einer externen, realitätsnahen Ozonverteilung für die Strahlungsrechnungen lassen sich nun zur interaktiv gekoppelten Modellversion konsistente Ergebnisse erzielen. Eine Evaluierung der mit der interaktiv gekoppelten Modellversion simulierten Ozonverteilung findet sich in Kapitel 5.3.

Idealisierte Wasserdampfstörungen

Es wurden drei unterschiedliche idealisierte Wasserdampfstörungen simuliert, zwei langfristige Störungen und eine kurzfristige Störung, wobei die Wasserdampfstörungen auf die Region oberhalb von 200 hPa beschränkt sind. In den Modellsimulationen **H2O_1** und **H2O_5** wurde während der kompletten Simulationsdauer von 11 Jahren eine Wasserdampfstörung von 1 ppmv bzw. 5 ppmv in der tropischen unteren Stratosphäre zwischen 30°N und 30°S und zwischen 95 hPa und 60 hPa fixiert und somit eine langfristige Wasserdampfänderung in der unteren Stratosphäre simuliert (s. Abb. 8.6).

Die Simulation **VOLC** hingegen dient der Untersuchung eines kurzfristigen Anstiegs des stratosphärischen Wasserdampfgehalts wie er z.B. nach einem Vulkanausbruch beobachtet wird. Dazu wurde ein Ensemble von 5 1-Jahres-Simulationen gerechnet, wobei jede Simulation im Juli beginnt. Während der Monate Juli und August wurde in der tropischen unteren Stratosphäre eine Wasserdampfstörung von 2 ppmv fixiert. In den verbleibenden 10 Monaten wurde die weitere Emission von Wasserdampf in der unteren Stratosphäre gestoppt. Die Lebensdauer, d.h. die Zeit bis eine solche Wasserdampfstörung nur noch zu dem Bruchteil $1/e$ vorhanden ist, beträgt etwa zwei Monate (s. Abb. 8.2).

Als Kontrollexperiment dient die Simulation **CNTL**, welche ohne Wasserdampfstörung durchgeführt wurde. Alle 4 Modellexperimente wurden im quasi-stationären Zustand über 11 Modelljahre integriert, wobei die ersten 5 Jahre als Einschwingzeit verwendet wurden. Die modellierte Meteorologie der Störungsexperimente ist mit der des Kontrollexperiments identisch. Die vorgeschriebenen Treibhausgasmischungsverhältnisse für das Jahr 2000 betragen 375 ppmv CO_2 , 1.76 ppmv CH_4 und 316 ppbv N_2O . Der stratosphärische Chlorgehalt beträgt 2.7 ppbv. Die vorgeschriebenen Stickoxidemissionen sind in Tabelle 4.2 aufgeführt.

Kapitel 5

Modellklimatologie und ihre Evaluierung

Um mit einem Klimamodell belastbare Aussagen über die zukünftige Klimaentwicklung oder über den Einfluss verschiedener Faktoren, wie z.B. den Emissionen aus dem Luftverkehr, auf das Klimasystem machen zu können, ist es notwendig, das Modellsystem hinsichtlich seiner Fähigkeit zu untersuchen, die relevanten dynamischen und chemischen Prozesse zu reproduzieren, und etwaige Modelldefizite aufzudecken. Hierzu werden in diesem Kapitel Modellergebnisse mit verschiedenen Beobachtungsdaten verglichen bzw. mit den Ergebnissen anderer Modelle diskutiert. Eine grundlegende Evaluierung des Modellsystems E39/C wurde bereits in Hein et al. (2001) durchgeführt. Teile davon werden in diesem Kapitel kurz wiedergegeben, da im weiteren Verlauf der Arbeit darauf Bezug genommen wird. Der Schwerpunkt der vorliegenden Modellevaluierung liegt auf der Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (UT/LS) sowie auf den dafür relevanten dynamischen und chemischen Prozessen. Soweit nicht anders erwähnt, beziehen sich die vorgestellten Modellergebnisse auf die letzten 10 Jahre (1990-1999) der transienten Modellsimulation CNTL_1999 (s. Kapitel 4.1).

Der folgende Abschnitt beschäftigt sich zunächst mit der Dynamik der Modellatmosphäre in Form der Temperaturverteilung (Abschnitt 5.1.1), der residualen Meridionalzirkulation (Abschnitt 5.1.2) sowie des Stratosphären-Troposphären-Austausches (Abschnitt 5.1.3). Die Wasserdampfverteilung im UT/LS-Bereich wird anschließend in Abschnitt 5.2 mit HALOE- und MLS-Daten verglichen. Desweiteren werden die für die modellierte Wasserdampfverteilung verantwortlichen Prozesse vorgestellt. Abschnitt 5.3 beinhaltet schließlich eine kurze Zusammenfassung der Modellvalidierung von Hein et al. (2001) bzw. Schnadt (2001) hinsichtlich der modellierten Ozonverteilung. Die Validierung der modellierten Ozonverteilung erfolgt in Zusammenhang mit den in dieser Arbeit durchgeführten Studien zur Bedeutung einer veränderten Wasserdampfverteilung für die stratosphärische Ozonchemie (Kapitel 8).

5.1 Dynamische Größen

5.1.1 Zonal gemittelte Temperaturverteilung

In Abbildung 5.1 wird die langjährig und zonal gemittelte modellierte Temperaturverteilung für die Monate Januar und Juli mit Beobachtungsdaten verglichen. Als Beobachtungen werden Reanalysedaten des ECMWF (ERA) verwendet (Gibson et al., 1997). Die ERA-Daten bil-

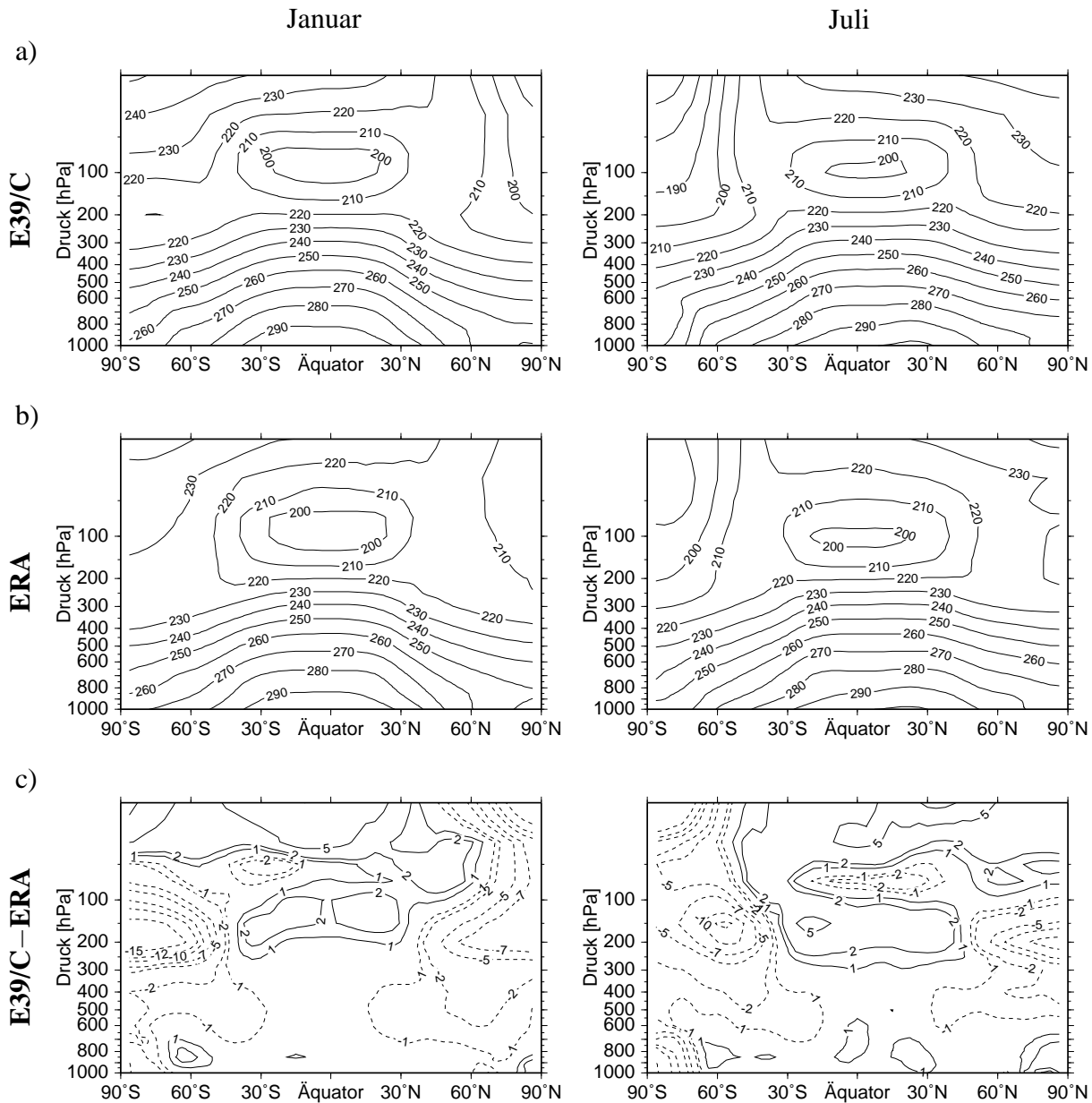


Abbildung 5.1: Zonal und klimatologisch gemittelte Temperaturverteilung für Januar (links) und Juli (rechts), Einheit: K. a) E39/C, b) Beobachtung (ERA), c) Differenz Modell-Beobachtung. Positive (negative) Differenzen bezeichnen eine zu warme (kalte) Modellatmosphäre.

den einen globalen Datensatz von dynamischen Größen wie der Temperatur oder des Windfeldes, mit dem es möglich ist, globale Zirkulationsmodelle zu validieren. Aufgrund der äußerst aufwendigen Assimilation von Beobachtungsdaten, die im ECMWF-Modell nach dem besten Stand des Wissens betrieben wird, stellen die Reanalysen eine bestmögliche Beschreibung der Atmosphäre dar. In Regionen mit geringer Beobachtungsdichte, also über den Ozeanen, in den Tropen oder in polaren Breiten der Südhemisphäre, sind die ERA-Daten allerdings als kritisch zu betrachten, da die Analysen in diesen Gebieten hauptsächlich aus den Simulationsergebnissen des ECMWF-Modells bestehen.

Qualitativ wird die mittlere Temperaturverteilung vom Modell gut wiedergegeben. Die höchsten Temperaturen treten verbunden mit der größten solaren Einstrahlung in den Tropen am

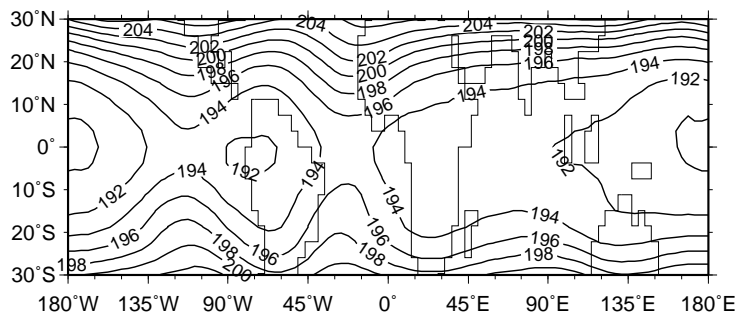


Abbildung 5.2: Klimatologisch gemittelte Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause für Januar in E39/C. Das Konturintervall beträgt 2 K.

Erdboden auf. In Richtung der Pole und mit zunehmender Höhe nimmt die Temperatur ab. Im Bereich der tropischen Tropopause erstreckt sich ein relatives Minimum von etwa 30°S bis 30°N mit Temperaturen von weniger als 200 K. In der jeweiligen Sommerhemisphäre sowie in tropischen bis mittleren Breiten der Winterhemisphäre nehmen die Temperaturen oberhalb des Temperaturminimums mit der Höhe zu. Die winterliche polare Stratosphäre kennzeichnet dagegen ein ausgeprägtes Temperaturminimum, das auf fehlende solare Einstrahlung während der Polarnacht zurückzuführen ist.

In der Troposphäre sind die Abweichungen zwischen Modell- und Reanalysedaten größtenteils geringer als 2 K. Im Bereich der tropischen UT/LS zeigt das Differenzbild nahezu ein vertikales Dipolmuster. In der oberen Troposphäre ist das Modell um etwa 2 K zu warm, während die modellierten Temperaturen im Höhenbereich zwischen 100 hPa und 50 hPa um etwa 2 K zu niedrig sind. Im Vergleich mit den Reanalysedaten liegt demnach die mittlere tropische Modelltropopause zu hoch.

Gerade im Bereich der tropischen Tropopause spielt die Temperatur für die Dehydrierung der in die Stratosphäre eintretenden Luftmassen und damit für den stratosphärischen Wasserdampfgehalt eine wichtige Rolle. Die niedrigsten Temperaturen an der tropischen Tropopause treten im Modell in Übereinstimmung mit Beobachtungen im Nordwinter auf. In Abbildung 5.2 ist die modellierte Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause für Januar gezeigt. Die Cold Point-Tropopause bezeichnet das Temperaturminimum in der vertikalen Säule und wird im Folgenden auch mit CPT abgekürzt. In Übereinstimmung mit Beobachtungsdaten (Newell und Gould-Stewart, 1981; Zhou et al., 2001b) zeigen sich die tiefsten Temperaturen im äquatorialen Westpazifik und an der Westküste Südamerikas. Verglichen mit ERA-Analysen (Zhou et al., 2001b) ist das Modell in der Lage, die tiefsten Temperaturen mit Werten um 190 bis 192 K zu reproduzieren, wobei die Ausdehnung der Kaltgebiete vom Modell etwas unterschätzt wird. Allerdings sind in Zhou et al. (2001b) nur die ERA-Daten von Januar 1991 gezeigt. Wie Abbildung 5.1c zeigt, ist die zonal gemittelte Temperatur an der tropischen CPT (≈ 80 hPa) im langjährigen Mittel gegenüber den ERA-Daten im Januar um 1 bis 2 K zu warm. Dies wird auch durch einen Vergleich der modellierten Temperatur an der tropischen CPT mit einer auf Radiosondenmessungen basierenden, tropischen Tropopausenklimatologie von Seidel et al. (2001) bestätigt: Das Modell reproduziert zwar den beobachteten Jahresgang der tropischen Tropopausentemperatur, allerdings ist die modellierte Temperatur generell um etwa 1–2 K zu warm.

In polaren Breiten ist die Modellatmosphäre in der UT/LS-Region generell deutlich zu kalt. Dieser Temperaturfehler, der im Allgemeinen als „Cold Bias“ bezeichnet wird, ist in der Süd-

hemisphäre stärker ausgeprägt als in der Nordhemisphäre und zudem im jeweiligen Sommer stärker als im Winter. Die maximalen Abweichungen zu den Analysedaten betragen in der Nordhemisphäre -12 K im Sommer und -9 K im Winter. In der Südhemisphäre ist die polare untere Stratosphäre im Sommer um 18 K und im Winter um 12 K zu kalt. Das Phänomen des Cold Bias tritt in nahezu allen Zirkulationsmodellen in unterschiedlicher Form auf (Gates et al., 1999), wobei die Ursachen noch weitgehend unbekannt sind und höchstwahrscheinlich von Modell zu Modell variieren. Studien von Roeckner et al. (2004) zeigen, dass der Cold Bias in ECHAM5 durch eine Erhöhung der vertikalen bzw. horizontalen Auflösung verringert wird, wobei eine einfache Erhöhung der horizontalen Auflösung bei gleichbleibender vertikaler Auflösung nicht ausreicht, sondern die vertikale Auflösung ebenfalls angepasst werden muss. Aufgrund der Strahlungswirksamkeit von Wasserdampf im langwelligen Spektralbereich ist auch ein Einfluss der modellierten Wasserdampfverteilung auf den Cold Bias nicht auszuschließen. Erste Simulationsergebnisse mit E39 zeigen, dass der Einsatz einer beobachteten Wasserdampfverteilung (HALOE-Daten) im Strahlungsteil des Modells zu einer deutlichen Reduzierung des Cold Bias führt (M. Ponater, persönliche Mitteilung). Defizite hinsichtlich der modellierten Wasserdampfverteilung werden in Abschnitt 5.2 eingehend diskutiert.

In der Sommerhemisphäre ist die Modellstratosphäre ebenso wie in den mittleren Breiten der jeweiligen Winterhemisphäre um $1-2$ K zu warm, wobei die Differenzen bis zum Modelloberrand auf über $+5$ K anwachsen. Diese positive Temperaturabweichung steht in Zusammenhang mit den im Vergleich zu Beobachtungsdaten überschätzten Ozonmischungsverhältnissen in diesem Höhengniveau (Hein et al., 2001) und der damit erhöhten Absorption solarer Strahlung im ultravioletten Spektralbereich.

Im Gegensatz dazu ist in der jeweiligen Winterhemisphäre die Modellstratosphäre ebenso wie der Tropopausenbereich deutlich zu kalt, wobei die negativen Temperaturabweichungen zum Modelloberrand hin anwachsen. Auf der Südhemisphäre betragen die maximalen Abweichungen mehr als -20 K, auf der Nordhemisphäre immerhin noch -12 K. Diese Differenzen lassen sich zumindest teilweise mit der Lage der obersten Modellschicht bei 10 hPa erklären. Eine dadurch hervorgerufene unterschätzte Absinkbewegung von Luftmassen könnte dazu führen, dass die durch das Absinken verursachte adiabatische Erwärmung die diabatische Abkühlung der Atmosphäre nicht in dem Maße kompensiert wie in der realen Atmosphäre.

Da der Sättigungsdampfdruck nicht-linear von der Lufttemperatur abhängt (Gleichung 2.1), ist zu erwarten, dass sich die soeben beschriebenen Temperaturabweichungen im Modell direkt auf die modellierte Wasserdampfverteilung auswirken. In der Tat wird die Dehydrierung der polaren Stratosphäre insbesondere im Südwinter vom Modell deutlich überschätzt (s. Abschnitt 5.2).

5.1.2 Mittlere meridionale Zirkulation

Wie in Kapitel 2.1 erläutert wurde, wird die Wasserdampfverteilung in der UT/LS maßgeblich durch die mittlere Meridionalzirkulation (Brewer-Dobson-Zirkulation) und den Stratosphären-Troposphären-Austausch geprägt. Die meridionale Zirkulation kann mit Hilfe der mittleren residualen Meridionalzirkulation ($[v^*]$, $[\omega^*]$) approximativ diagnostiziert werden (Rosenlof, 1995). Die Definition der residualen Meridional- bzw. Vertikalgeschwindigkeit $[v^*]$ bzw. $[\omega^*]$ sowie der aus diesen Größen abgeleiteten residualen Massenstromfunktion F_m ist in Anhang B aufgeführt. Die Beschreibung der zonal gemittelten Zirkulation durch $[v^*]$ und $[\omega^*]$ berücksichtigt die Tatsache, dass in der zonal gemittelten Energieerhaltungsgleichung für quasi-geostrophische

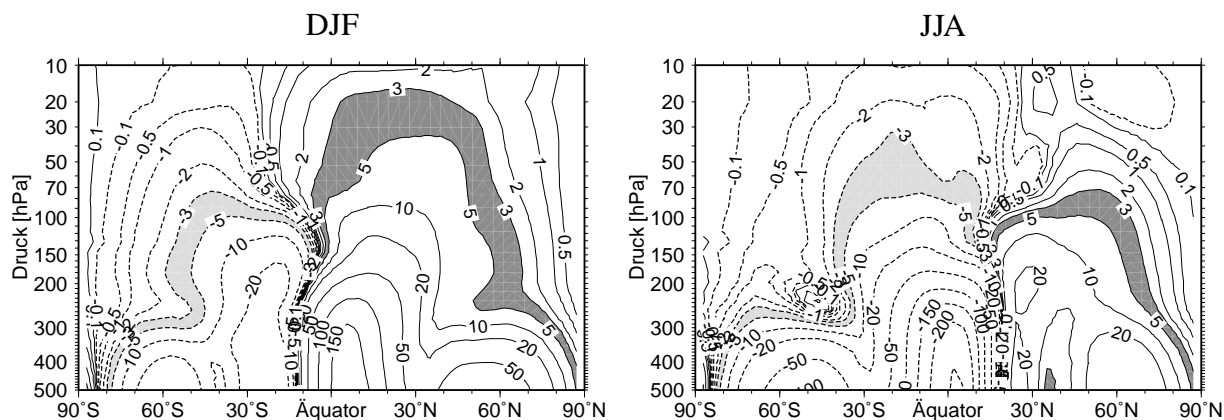


Abbildung 5.3: Residuale Massenstromfunktion F_m [10^9 kg/s] aus E39/C für DJF (links) und JJA (rechts). Werte zwischen $-(+)$ 5 und $-(+)$ 3 $\cdot 10^9$ kg/s sind hell (dunkel) unterlegt.

Bewegungen die adiabatische Abkühlung nahezu durch die von Wellen und Wirbeln hervorgerufene Wärmeflusskonvergenz kompensiert wird. Die Änderung der zonal gemittelten Temperatur erfolgt hauptsächlich durch diabatische Erwärmung bzw. Abkühlung. Im Mittel steigt ein Luftpaket somit nur dann zu einer größeren Gleichgewichtshöhe auf, wenn seine potentielle Temperatur durch diabatische Erwärmung erhöht wird. $[\omega^*]$ bestimmt also die mittlere Vertikalgeschwindigkeit und gleichzeitig den mittleren meridionalen Massenfluss (Holton, 1992).

In Abbildung 5.3 ist die modellierte mittlere residuale Massenstromfunktion F_m für den Nordwinter (DJF) und -sommer (JJA) gezeigt. In dieser Abbildung ist nur der Bereich oberhalb von 500 hPa dargestellt, da das Hauptaugenmerk auf der Zirkulation im Bereich der UT/LS liegt (für weitere Details siehe Land (1999)). Der aufsteigende Ast der Meridionalzirkulation liegt in E39/C im Nordwinter südlich des Äquators bei etwa 15°S und im Nordsommer nördlich des Äquators bei etwa 20°N . Diese jahreszeitliche Verschiebung ist in Übereinstimmung mit der jahreszeitabhängigen Lage der innertropischen Konvergenzzone (engl.: Inter Tropical Convergence Zone, ITCZ). Der aufsteigende Ast setzt sich in der Stratosphäre bis zum Modelloberrand fort. In der Winterhemisphäre findet in den obersten Modellschichten ein polwärts gerichteter Transport von den Tropen zu den mittleren Breiten statt. In hohen Breiten sinken die Luftmassen ab. Der absinkende Ast der Zirkulation erstreckt sich in der oberen Stratosphäre im DJF bis etwa 60°N und im JJA bis 45°S (erkennbar an der Lage der Stromlinie mit dem Wert $3\cdot 10^9$ kg/s). Insgesamt stimmt das beschriebene Muster der Massenstromfunktion qualitativ mit Ergebnissen verschiedener Studien basierend auf Satellitenmessungen (Rosenlof, 1995; Eluszkiewicz et al., 1996) und Modellrechnungen (Manzini und McFarlane, 1998) überein.

Es ist davon auszugehen, dass ein Modell mit einem Modelloberrand bei 5 hPa die residuale Zirkulation nur bis zu einem gewissen Grad realistisch reproduzieren kann, da der Einfluss brechender Schwerewellen in der Mesosphäre auf die Dynamik der tieferliegenden Atmosphärenschichten (s. Kapitel 2.1.1) in solchen Modellen nicht berücksichtigt wird. Arbeiten von Garcia und Boville (1994) zeigen, dass die Nichtberücksichtigung von Schwerewellen zu einer schwächeren Absinkbewegung in der polaren Stratosphäre und aufgrund der dadurch hervorgerufenen schwächeren adiabatischen Erwärmung zu tieferen Temperaturen in diesem Bereich führt. Nach Garcia und Boville (1994) ist dieser Effekt besonders im Südwinter und zu Beginn des Nordwinters wichtig für die polare Stratosphäre, da zu diesen Zeiten der Einfluss planetarer Wellen relativ schwach ist. Im Nordwinter kompensieren dagegen brechende planetare Wellen

den fehlenden Effekt der Schwerewellen, so dass zum einen die modellierte Absinkbewegung und zum anderen die modellierten Temperaturen in der nordhemisphärischen polaren Stratosphäre besser mit Beobachtungen übereinstimmen (s. Abb. 5.1). Auf der Südhemisphäre ist der Einfluss brechender planetarer Wellen auf die Meridionalzirkulation viel geringer als auf der Nordhemisphäre, weshalb die Nichtberücksichtigung der Schwerewellen nicht in dem Maße kompensiert werden kann und somit die interhemisphärischen Unterschiede hinsichtlich der Qualität der simulierten Temperatur und Meridionalzirkulation erklärt.

In Abbildung 5.4 ist die residuale Massenstromfunktion F_m in 100 und 70 hPa in Abhängigkeit von der geographischen Breite dargestellt. Die residuale Vertikalgeschwindigkeit $[\omega^*]$ ändert ihr Vorzeichen bei jener geographischen Breite φ_{max} , bei der der Absolutbetrag der Stromfunktion $|\Psi|$ und somit auch $|F_m|$ maximal wird. Diese Breite markiert die Grenze zwischen Tropen und Extratropen. In Abbildung 5.4 ist zu erkennen, dass sich der aufsteigende Ast in den Tropen in 100 hPa im Nordwinter zwischen 20°S und 15°N erstreckt und im Nordsummer zwischen 10°S und 30°N . Die Tatsache, dass $|\Psi(\varphi_{max})|$ in der jeweiligen Winterhemisphäre größer ist als in der Sommerhemisphäre, zeigt, dass die Zirkulationszelle der Winterhemisphäre stärker ausgeprägt ist als die der Sommerhemisphäre. Außerdem ist $|\Psi(\varphi_{max})|$ sowohl in 100 hPa als auch in 70 hPa und darüber auf der Nordhemisphäre im DJF größer als der entsprechende Wert auf der Südhemisphäre im JJA. Dies zeigt, dass die Zirkulationszelle auf der Nordhalbkugel insgesamt stärker ausgeprägt ist als auf der Südhalbkugel. Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung damit, dass die Ausbreitung troposphärischer Wellen in die Stratosphäre, die die Meridionalzirkulation antreibt, im Nordwinter am stärksten ausgeprägt ist (s. Kapitel 2.1.1).

Mit Hilfe der soeben gezeigten residualen Massenstromfunktion lässt sich der Massenfluss quer zu einer isobaren Fläche berechnen. Nach Rosenlof und Holton (1993) berechnet sich der abwärtsgerichtete Massenfluss polwärts einer gegebenen geographischen Breite φ aus

$$F_m = \pm \frac{2\pi a}{g} \Psi(\varphi), \quad (5.1)$$

wobei a den Erdradius und g die Schwerebeschleunigung bezeichnet. Der gesamte abwärtsgerichtete Massenfluss in den Extratropen ergibt sich somit aus $\Psi(\varphi_{max})$, wobei wie eben erwähnt φ_{max} die geographische Breite ist, bei der $|\Psi|$ maximal ist. Das positive Vorzeichen in Gleichung 5.1 bezieht sich auf die Südhemisphäre, das negative auf die Nordhemisphäre, so dass der Abwärtstransport mit einem negativen Vorzeichen definiert ist. Der aufwärtsgerichtete

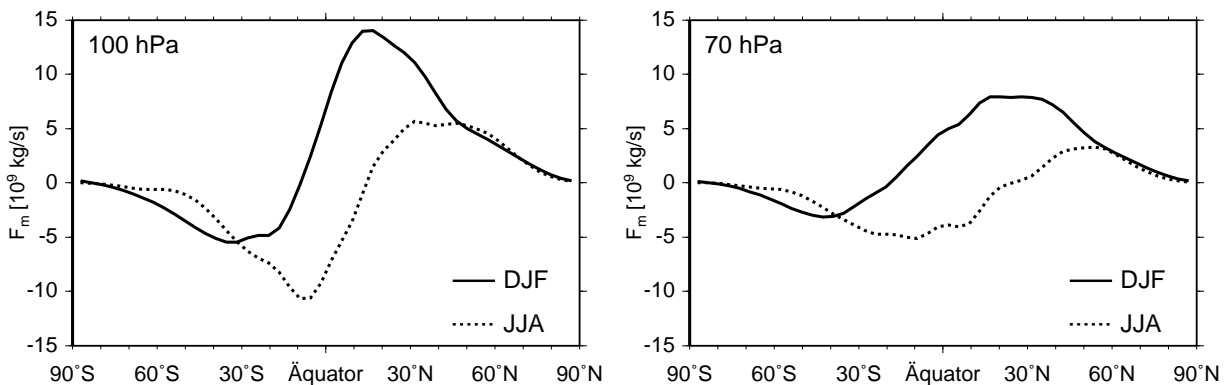


Abbildung 5.4: Residuale Massenstromfunktion F_m [10^9 kg/s] aus E39/C in 100 hPa (links) und 70 hPa (rechts) für DJF und JJA als Funktion der geographischen Breite.

Tabelle 5.1: Abwärtsgerichteter Massenfluss [10^9 kg/s] in 100 hPa in den Extratropen der Nord- bzw. Südhemisphäre. In Klammern ist die jeweilige geographische Breite angegeben, in der $|\Psi|$ maximal wird.

	Nordhemisphäre			Südhemisphäre		
	E39/C	UKMO ^a	MLS ^b	E39/C	UKMO	MLS
DJF	14.0 (15°N)	8.1 (15°N)	10.3	5.4 (35°S)	3.3 (15°S)	1.4
JJA	5.7 (30°N)	2.6 (15°N)	0.5	10.7 (10°S)	3.0 (30°S)	6.4

^a Rosenlof und Holton (1993)

^b Eluszkiewicz et al. (1996)

Tabelle 5.2: Aufwärtsgerichteter Massenfluss [10^9 kg/s] in 100 hPa in den Tropen.

	E39/C	UKMO ^a	CCM2L35 ^b	CCM2L44 ^b	CCM2L75 ^b
DJF	19.4	11.4	15.7	16.2	13.0
JJA	16.4	5.6	9.0	7.9	9.8

^a Rosenlof und Holton (1993)

^b Mote et al. (1994)

Massenfluss in den Tropen ergibt sich nach Rosenlof und Holton (1993) aus der Summe der abwärtsgerichteten Massenflüsse beider Hemisphären.

Der modellierte abwärtsgerichtete Massenfluss in den Extratropen wird in Tabelle 5.1 mit verschiedenen Beobachtungen verglichen. Verbunden mit dem Ergebnis, dass die Meridionalzirkulation im Nordwinter am stärksten ausgeprägt ist, tritt der maximale Abwärtsfluss sowohl im Modell als auch in den Beobachtungen im Nordwinter auf. Allgemein ist der Abwärtsfluss im Winter stärker als im Sommer, wobei er auf der Nordhemisphäre stärker ausfällt als auf der Südhemisphäre. In den Sommermonaten unterscheidet sich die Stärke des Abwärtstransports zwischen Nord- und Südhemisphäre kaum. Das Modell ist also in der Lage den beobachteten Jahresgang des Massenflusses zu reproduzieren. Generell übertrifft aber der modellierte Massenfluss die Werte aus den Beobachtungen. Im Nordwinter überschätzt das Modell die Beobachtungen um etwa 50%, während der modellierte Massenfluss im Nordsommer im Mittel etwa dreimal so groß ist. Die modellierten Werte für die Südhalbkugel sind etwa doppelt so hoch wie der Mittelwert aus den Beobachtungen. Allerdings zeigt Tabelle 5.1 deutlich, dass es auch zwischen den verschiedenen Beobachtungen große Unterschiede gibt (siehe auch Land (1999)). Aus Kontinuitätsgründen muss im Modell der aufwärtsgerichtete Massenfluss in den Tropen sowie der polwärtsgerichtete Transport auch stärker sein als beobachtet (siehe Tabelle 5.2).

Mote et al. (1994) untersuchten den Einfluss der vertikalen Auflösung auf den aufwärtsgerichteten Massenfluss in den Tropen in dem globalen Zirkulationsmodell CCM2¹. In Tabelle 5.2 ist der aufwärtsgerichtete Massenfluss im Modell CCM2 für 35, 44 und 75 vertikale Modellschichten angegeben. Das Modell CCM2 überschätzt den Massenfluss in ähnlicher Weise wie E39/C, ist aber ebenfalls in der Lage, die saisonale Variabilität wiederzugeben. Wie die Werte in Tabelle 5.2 zeigen, führt eine erhöhte Vertikalauflösung nicht unweigerlich zu einer Verbesserung des

¹Mote et al. (1994) verwendeten für diese Studie die Mittelatmosphären-Version des Modells CCM2 mit einem Modelloberrand bei 75 km.

modellierten Massenflusses. Allerdings scheint die Lage des Modelloberrandes Einfluss auf die Stärke des Massenflusses zu haben. Das CCM2 Modell mit einem Oberrand bei 75 km simuliert unabhängig von der vertikalen Auflösung geringere Massenflüsse als E39/C.

Neben der Höhe des Modelloberrandes scheint sich die Berücksichtigung der QBO positiv auf die simulierten Massenflüsse auszuwirken. So zeigt die Simulation CNTL_1999, in der die QBO berücksichtigt wurde, deutlich geringere Massenflüsse als Studien von Land (1999) mit E39, in denen die QBO nicht berücksichtigt wurde. Die für die Simulation CNTL_1999 in Tabelle 5.1 angegebenen Werte für den abwärtsgerichteten Massenfluss in 100 hPa sind um etwa 20% niedriger als die in Land (1999) angegebenen Werte. Die QBO beeinflusst die mittlere meridionale Zirkulation und somit den Aufwärtstransport. Die Ostwindphase der QBO ist mit niedrigeren Temperaturen im tropischen Tropopausenbereich und einem schnelleren Aufwärtstransport verbunden, während die Westwindphase der QBO mit höheren Temperaturen und einem verlangsamten Aufwärtstransport einhergeht. Modelle, in denen die QBO nicht berücksichtigt ist, simulieren ausschließlich die mit schnellerem Aufstieg und höheren Massenfluss verbundenen Ostwinde und unterschätzen somit auch die Variabilität des Aufwärtstransports.

5.1.3 Stratosphären-Troposphären-Austausch

Im vorangegangenen Abschnitt wurde der Massenfluss durch einzelne isobare Flächen erörtert. Mit Hilfe dieser Größe lässt sich der Luftmassenaustausch zwischen Troposphäre und Stratosphäre allerdings nicht adäquat beschreiben, da Luftmassen im Bereich der subtropischen Tropopausenbrüche durch quasi-adiabatische Prozesse aus der tropischen oberen Troposphäre in die extratropische unterste Stratosphäre gelangen können. Dieser Prozess ist ein entscheidender Faktor für die Wasserdampfverteilung in der UT/LS (s. Abschnitt 2.1.1). Abbildung 5.5 zeigt das zonale Integral des modellierten sowie des von Grewe und Dameris (1996) aus ECMWF-Daten berechneten großskaligen Massenflusses durch die thermische Tropopause². Die Massenflüsse wurden nach der Formel von Wei (1987) berechnet: Der Massenfluss durch die Tropopause ergibt sich aus der großskaligen Bewegung der Luft relativ zur Tropopause, wobei deren Neigung gegen die Horizontale berücksichtigt wird. Kleinskalige Prozesse, die ebenfalls zum Stratosphären-Troposphären-Austausch beitragen, werden in der Formel von Wei (1987) hingegen nicht berücksichtigt. Der Stratosphären-Troposphären-Austausch weist einen Jahresgang auf und ist im Nordwinter aufgrund der stärkeren Wellenaktivität am größten (Rosenlof, 1995). Aus diesem Grund beschränkt sich die weitere Diskussion auf diese Jahreszeit.

Sowohl Modell als auch Beobachtungen zeigen in den Subtropen beider Hemisphären einen Fluss von der Stratosphäre in die Troposphäre, wobei der modellierte Massenfluss stärker ist als beobachtet. In den Beobachtungen ist der Abwärtstransport in der Südhemisphäre nur etwa halb so stark wie in der Nordhemisphäre. Im Modell fällt der interhemisphärische Unterschied deutlich schwächer aus. Desweiteren ist der maximale Abwärtsfluss auf der Nordhemisphäre im Modell um etwa 10° in Richtung Äquator verschoben.

Die Beobachtungsdaten zeigen sowohl in den Tropen als auch in mittleren Breiten beider Hemisphären einen Aufwärtsfluss von der Troposphäre in die Stratosphäre. Dagegen sind die aufwärtsgerichteten Massenflüsse im Modell auf schmale Bereiche bei 25°S und 45°S und

²Soweit nicht anders angegeben, folgt der Berechnung der Tropopausenhöhe in dieser Arbeit nachstehender Definition: Die thermische Tropopause beschreibt die unterste Höhe, in der der Temperaturgradient über einen Höhenbereich von 2 km größer ist als -2 K/km (WMO, 1992).

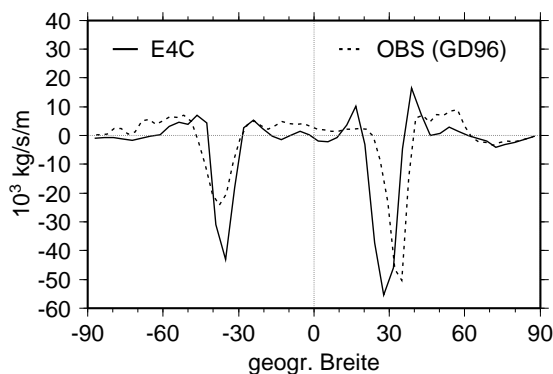


Abbildung 5.5: Zonal integrierter Massenfluss durch die thermische Tropopause im Nordwinter (DJF) aus E39/C (durchgezogene Linie) und aus ECMWF-Daten („OBS (GD96)“) (Grewe und Dameris, 1996). Die Massenflüsse wurden mit Hilfe der Formel nach Wei (1987) berechnet.

15°N und 40°N beschränkt. In höheren Breiten findet im Modell nahezu kein Stratosphären-Troposphären-Austausch statt. Der Luftmassenaustausch von der Troposphäre in die Stratosphäre in den Tropen kann durch den polwärts gerichteten Ast der Hadley-Zelle erklärt werden, wodurch Luftmassen durch die Tropopausenbrüche in die untere Stratosphäre der Subtropen gelangen und von dort aufgrund der Absinkbewegung von der Stratosphäre in die Troposphäre transportiert werden (Grewe und Dameris, 1996).

Der Massenfluss entlang eines Breitenkreises ist keinesfalls konstant wie es vielleicht in Abbildung 5.5 suggeriert wurde, sondern weist eine hohe räumliche Variabilität auf (Abb. 5.6). In den Tropen wechseln sich Zonen mit auf- und abwärts gerichtetem Massenfluss ab. Insbesondere im Nordwinter (DJF) ist die Walker-Zirkulation mit aufsteigender Luft im Westpazifik („W+“) und absteigender Luft im Ostpazifik („W-“) deutlich erkennbar. Aber auch über Südamerika und Afrika sind solche Zirkulationszellen zu erkennen. Im Nordsommer (JJA) zeigt sich eine ausgeprägte Zirkulationszelle über Afrika und dem Indischen Ozean. Im DJF zeigen die Subtropen beider Hemisphären ein nahezu ungestörtes Band mit Abwärtstransport. Polwärts schließen in beiden Hemisphären Gebiete mit Aufwärtstransport an, wobei auf der Nordhalb-

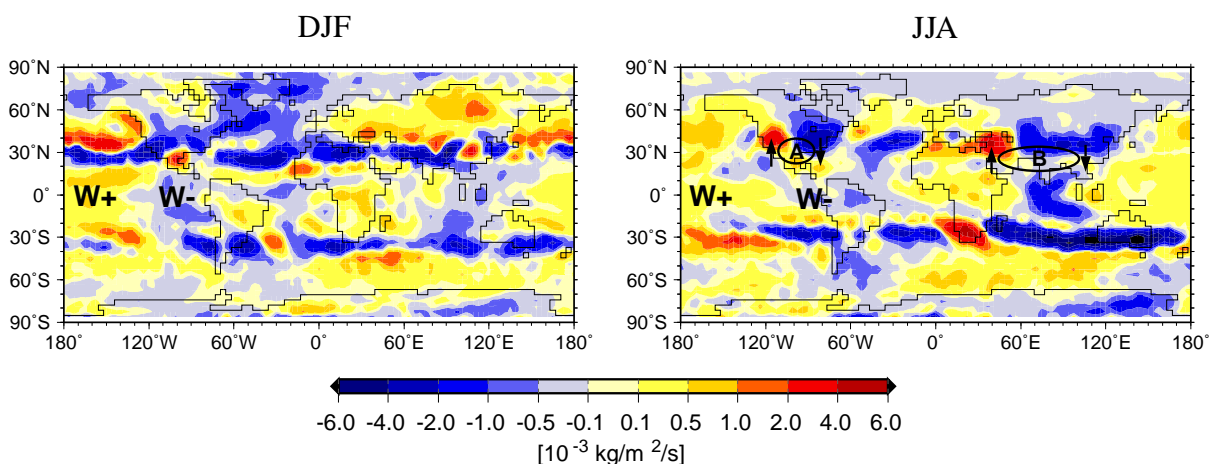


Abbildung 5.6: Horizontale Verteilung des Massenflusses nach Wei (1987) [$10^{-3} \text{ kg/m}^2/\text{s}$] durch die thermische Tropopause in E39/C für DJF (links) und JJA (rechts). Gezeigt sind Mittelwerte über den Zeitraum 1990 bis 1999. „W+“ und „W-“ markieren den auf- bzw. absteigenden Ast der Walker-Zirkulation. „A“ und „B“ markieren zwei Regionen, die im Text näher beschrieben werden.

kugel die longitudinale Variabilität deutlich höher ist als auf der Südhalbkugel. Im JJA sieht die horizontale Verteilung der Massenflüsse anders aus. Die zonal symmetrischen Bänder mit Abwärtstransport in den Subtropen beider Hemisphären sind unterbrochen von Regionen mit starkem Aufwärtstransport, wie z.B. über dem Westen der USA, über Vorderasien oder über Südafrika und dem Südpazifik zwischen 180° und 120° W. Die Dipolstruktur über den USA mit Abwärtstransport über dem Westen der USA und Aufwärtstransport über dem Osten der USA (Region „A“ in Abb. 5.6) ist mit einer ausgeprägten Antizyklone in der oberen Troposphäre über dem Süden der USA verbunden (s. Abb. 5.11). Mit der südwärts gerichteten Strömung an der Ostseite der Antizyklone werden Luftmassen aus der extratropischen Stratosphäre in die tropische obere Troposphäre transportiert. An der Westseite der Antizyklone erfolgt der Transport mit der nordwärts gerichteten Strömung von der tropischen Troposphäre in die extratropische Stratosphäre. Nach demselben Mechanismus führt die mit dem asiatischen Sommermonsun verbundene Antizyklone nördlich von Indien (s. Abb. 5.11) zu der über Vorderasien und dem Himalaja beobachteten Dipolstruktur im Massenfluss (Region „B“ in Abb. 5.6).

5.2 Wasserdampfverteilung

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt die für diese Arbeit wichtigen dynamischen Größen wie Temperatur und Meridionalzirkulation vorgestellt wurden, befasst sich dieser Abschnitt mit der modellierten Wasserdampfverteilung. Dabei soll vor allem geklärt werden, ob das Modell in der Lage ist, die für die Wasserdampfverteilung in der UT/LS-Region verantwortlichen Prozesse — soweit sie bislang bekannt sind — richtig zu erfassen.

Obere Troposphäre

Auch wenn bislang noch nicht geklärt ist, inwieweit konvektive Ereignisse eine Rolle bei der Dehydrierung der Luftmassen im Bereich der TTL spielen, so herrscht doch Übereinstimmung darin, dass Konvektion der dominierende Prozess ist, mit dem Wasserdampf in die tropische obere Troposphäre gelangt (Kley et al., 2000). In Abbildung 5.7 und 5.8 wird die modellierte Wasserdampfverteilung in 147 und 215 hPa mit einer beobachteten Wasserdampfverteilung basierend auf MLS-Messungen zwischen September 1991 und Juni 1997 verglichen (Chen et al., 1999). Dabei ist zu beachten, dass die Schichtdicke der MLS-Messungen ungefähr 3 km beträgt, während die Modelldaten auf die entsprechenden Druckniveaus interpoliert wurden.

Zunächst soll die Wasserdampfverteilung in 215 hPa erörtert werden. In den Wintermonaten (DJF) werden drei Zentren mit erhöhten Wasserdampfwerten über dem Amazonasgebiet, dem Kongobecken sowie einem langgestreckten Bereich über Indonesien, Australien und dem äquatorialen Pazifik beobachtet. In der modellierten Wasserdampfverteilung sind diese drei Maxima ebenfalls zu erkennen, wobei die maximalen Wasserdampfwerte im Schnitt um 40 bis 60 ppmv geringer ausfallen als beobachtet. Ein Vergleich mit der geographischen Verteilung der konvektiven Ereignisse (Abb. 5.9) bzw. der konvektiven Wolkenobergrenzen (Abb. 5.10) in E39/C ergibt eine klare räumliche Übereinstimmung der Wasserdampfmaxima mit den konvektiven Zentren über den tropischen Kontinenten.

In den Sommermonaten (JJA) verschieben sich die konvektiven Zentren verbunden mit dem Sonnenstand nach Norden. Dementsprechend zeigen die MLS-Beobachtungen im JJA die höch-

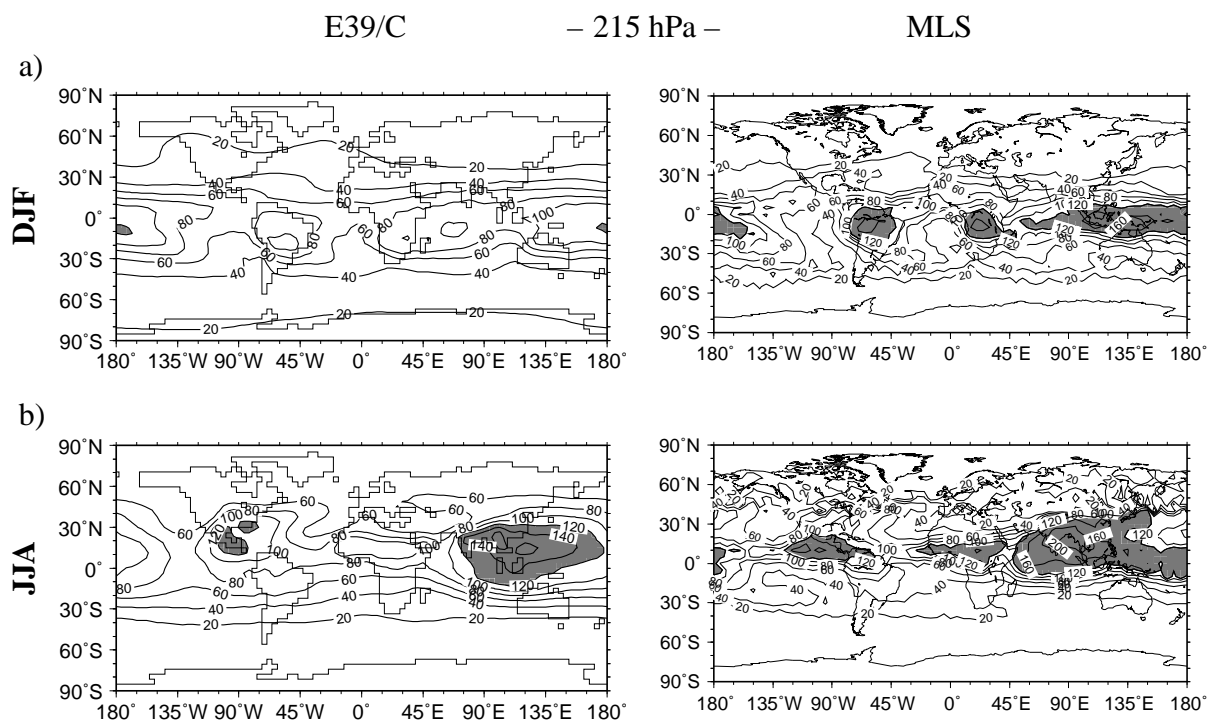


Abbildung 5.7: Klimatologisch gemittelte Wasserdampfverteilung [ppmv] in 215 hPa, E39/C (links) und MLS-Daten (rechts) (Chen et al., 1999). a) DJF, b) JJA. Werte oberhalb von 120 ppmv sind grau unterlegt.

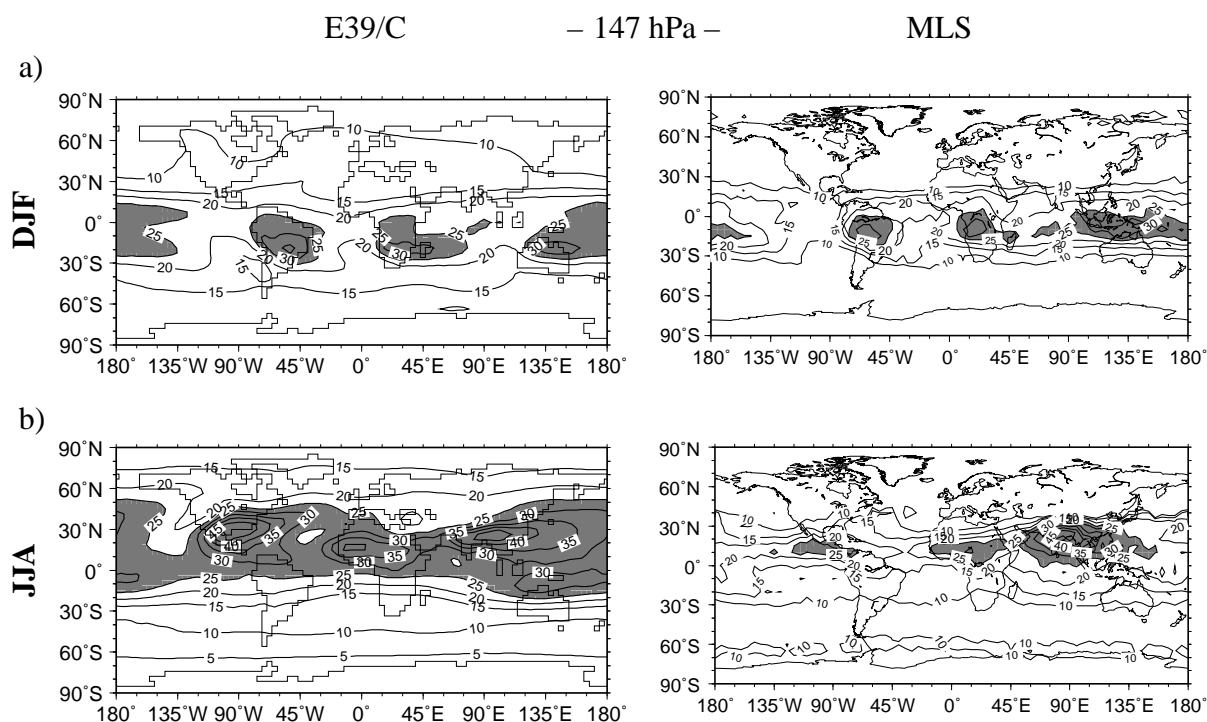


Abbildung 5.8: Klimatologisch gemittelte Wasserdampfverteilung [ppmv] in 147 hPa, E39/C (links) und MLS-Daten (rechts) (Chen et al., 1999). a) DJF, b) JJA. Werte oberhalb von 25 ppmv sind grau unterlegt.

sten Wasserdampfwerte etwas nördlich des Äquators über Mittelamerika, Zentralafrika sowie über dem Golf von Bengalen. Das Modell ist in der Lage auch diese Maxima zu reproduzie-

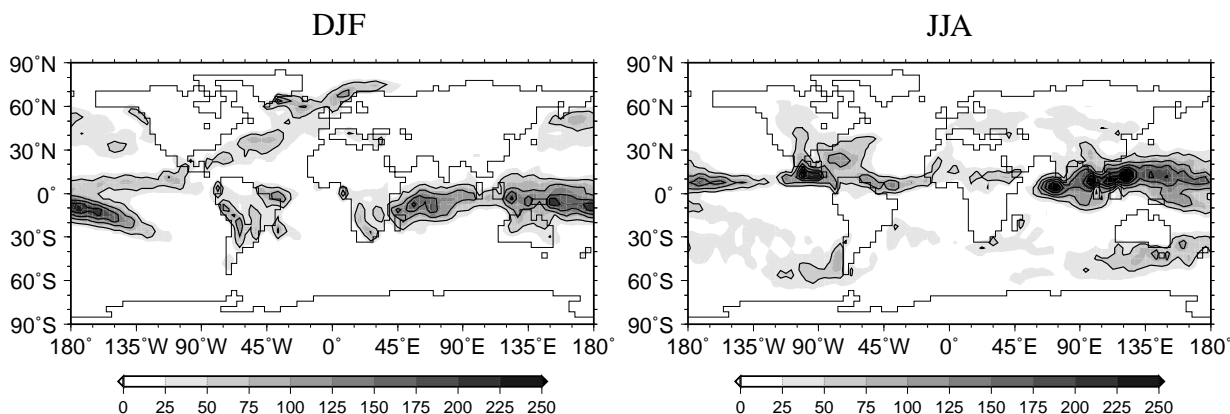


Abbildung 5.9: Anzahl der konvektiven Ergebnisse pro Monat in E39/C. Links: DJF, rechts: JJA. Eingezeichnete Isolinien: 50, 100, 150, 200, 250.

ren. Das Wasserdampfmaximum über Mittelamerika ist gegenüber den Beobachtungen etwas nach Norden verschoben. Zusätzlich zeigt sich ein kleines Maximum über Florida. Die Stärke des mittelamerikanischen Maximums wird vom Modell nur leicht unterschätzt. Wie in Abbildung 5.9 zu erkennen ist, wird über Mittelamerika eine sehr große Anzahl konvektiver Ereignisse simuliert, während über dem Süden bzw. dem Südosten der USA sehr hochreichende Konvektion simuliert wird (s. Abb. 5.10), die das dortige Wasserdampfmaximum verursacht. Die Lage des Zentrums über Zentralafrika wird vom Modell sehr gut wiedergegeben, allerdings ist es etwas schwächer als in den MLS-Daten. In diesem Bereich simuliert E39/C ebenso wie über den USA wenige, aber dafür hochreichende konvektive Ereignisse. Das Wasserdampfzentrum über dem Golf von Bengalen ist im Modell nach Osten verschoben und fällt wiederum schwächer aus als beobachtet. Im Bereich des äquatorialen Indik und Pazifik simuliert E39/C viele konvektive Ereignisse, die zudem sehr hochreichend sind. Offensichtlich spielt weniger die Anzahl als die Intensität der konvektiven Ereignisse eine wichtige Rolle für die Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die in Abbildung 5.10 gezeigten konvektiven Wolkenobergrenzen ein Mittel über alle konvektive Ereignisse darstellen. Die Unterschiede zwischen modellierter und beobachteter Wasserdampfverteilung in 215 hPa lassen darauf schließen, dass die Konvektion über den tropischen Kontinenten in E39/C zu schwach ausgeprägt ist und dadurch zu wenig Wasserdampf in die obere Troposphäre transportiert wird. Ein Vergleich von E39/C-Modellergebnissen mit ISCCP (International Satellite Cloud Climatology Project)-Daten von Kurz und Grewe (2002) deutet ebenso auf Defizite der modellierten Konvektion hin, insbesondere über Südamerika und Zentralafrika in den Wintermonaten und über den mittleren Breiten der USA und Europas während der Sommermonate.

In 147 hPa (Abb. 5.8) zeigen die MLS-Beobachtungen während der Wintermonate (DJF) dasselbe Muster wie in 215 hPa mit erhöhten Wasserdampferten über Brasilien, dem Kongo-becken und Indonesien bzw. Nordaustralien. Das Modell reproduziert diese Wasserdampfmaxima auch in diesem Höhenbereich. Interessanterweise werden in 147 hPa auch die absoluten Werte vom Modell sehr gut wiedergegeben, obwohl sie in 215 hPa unterschätzt wurden. Dies ist höchstwahrscheinlich auf einen zu schwachen vertikalen Temperaturgradienten in diesem Höhenbereich in E39/C zurückzuführen. In Abbildung 5.1 ist zu erkennen, dass die modellierten Temperaturen in den Tropen zwischen 100 und 200 hPa im Vergleich zu den ERA-Daten um mehr als 2 K zu warm sind, während die Temperaturdifferenz unterhalb von 200 hPa weniger als 1 K beträgt. Aufgrund des geringeren vertikalen Temperaturgradienten ist auch der verti-

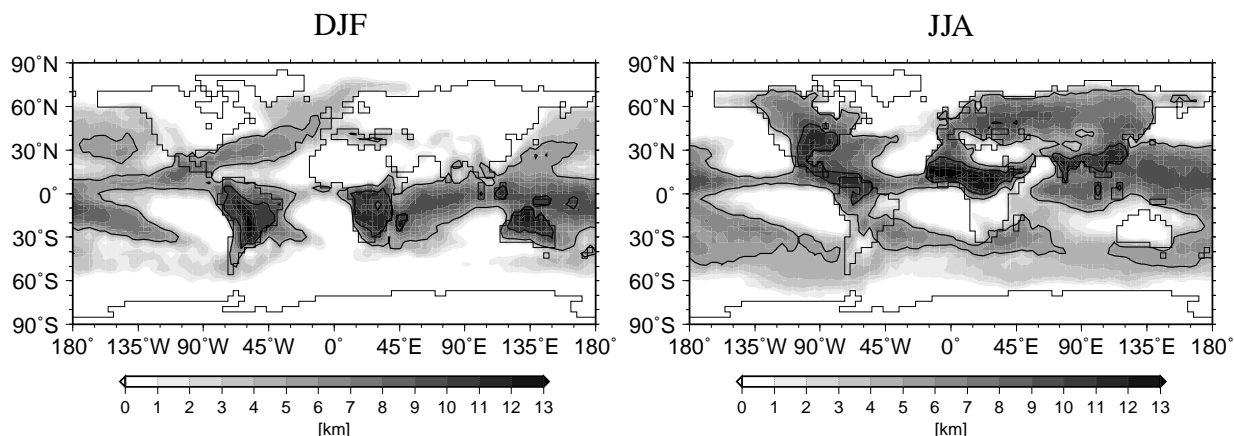


Abbildung 5.10: Mittlere Höhe der konvektiven Wolkenobergrenze [km] in E39/C. Links: DJF, rechts: JJA. Eingezeichnete Isolinien: 5, 10, 15 km.

kale Wasserdampfgradient in E39/C geringer, so dass die modellierten Wasserdampfwerte in 147 hPa besser mit den MLS-Beobachtungen übereinstimmen als in 215 hPa.

In den Sommermonaten (JJA) werden in 147 hPa wiederum die beiden Maxima über Mittelamerika und Zentralafrika beobachtet. Das Maximum über dem Golf von Bengalen tritt in diesem Höhenbereich nördlich von Indien auf. Das Modell reproduziert das Wasserdampfmaximum über Zentralafrika sowie das langgezogene Maximum nördlich von Indien. Zwei weitere Maxima werden nördlich von Australien und im Süden der USA simuliert, die beide in den MLS-Daten nicht zu beobachten sind. Insgesamt überschätzt das Modell im Vergleich zu den MLS-Daten die Wasserdampfwerte in den Tropen um 5 bis 10 ppmv. Dies ist höchstwahrscheinlich wiederum auf den zu schwachen vertikalen Temperaturgradienten zurückzuführen. Wie in Abbildung 5.1 zu erkennen ist, ist die Temperaturdifferenz in der tropischen oberen Troposphäre im Sommer noch stärker ausgeprägt als im Winter, was auch erklärt, warum das Modell die Beobachtungen im Winter gut wiedergibt und im Sommer überschätzt.

Das in den MLS-Daten erkennbare langgestreckte Wasserdampfmaximum nördlich von Indien ist mit dem asiatischen Sommermonsun verbunden (s. Abschnitt 2.1.1). Während der Monsunzeit ist die obere Troposphäre von einer langgezogenen Antizyklone über Nordindien und China gekennzeichnet, an deren Vorderseite feuchte Luftmassen entlang von Isentropen in die extratropische unterste Stratosphäre transportiert werden (Dethof et al., 1999; Dethof et al., 2000).

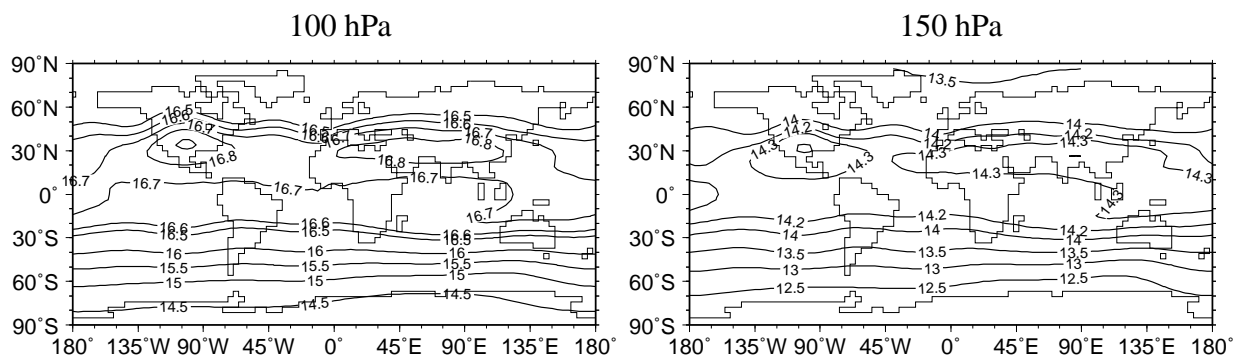


Abbildung 5.11: Geopotentielle Höhe [gpkm] des 100 hPa (links) und 150 hPa-Niveaus (rechts) in E39/C für Juli. Gezeigt ist ein Mittelwert über 10 Modelljahre.

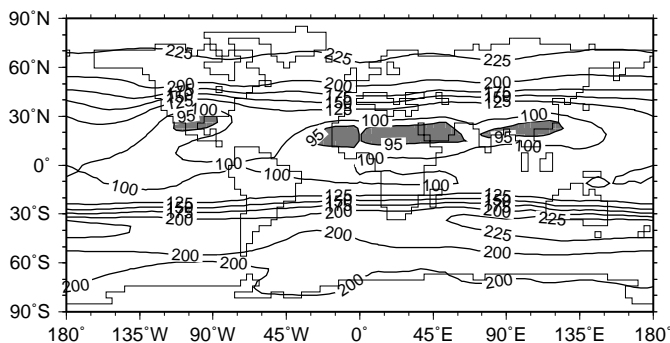


Abbildung 5.12: Mittlere Höhe der modellierten thermischen Tropopause [hPa] im den Sommermonaten JJA. Werte oberhalb von 95 hPa sind grau schraffiert.

Wie in Abbildung 5.11 zu erkennen ist, zeigt auch das Modell eine langgestreckte Antizyklone nördlich von Indien, die sich sogar bis nach Afrika erstreckt. Ein Vergleich des modellierten Zonalwindes als auch der Niederschlagsmenge mit Beobachtungen lässt allerdings darauf schließen, dass der asiatische Sommermonsun im Modell zu schwach repräsentiert ist (Roekner et al., 1996). Deswegen fällt das modellierte Wasserdampfmaximum nördlich von Indien schwächer aus als beobachtet.

Neben dem eben erwähnten Hochdruckgebiet über Indien und Afrika simuliert E39/C eine ausgeprägt Antizyklone in der oberen Troposphäre über dem Süden der USA (s. Abb. 5.11). Im Bereich dieser Antizyklone liegt das Wasserdampfmaximum, das auch noch in 80 und 100 hPa zu erkennen ist (nicht gezeigt). Diese Antizyklone führt zu einer erhöhten Tropopause über dem Süden der USA und Mexiko (s. Abb. 5.12). Ein Teil des Maximums lässt sich damit erklären, dass aufgrund der hohen Tropopause feuchte troposphärische Luftmassen in große Höhen gelangen. Desweiteren zeigt Abbildung 5.10, dass im Modell während der Sommermonate über der Mitte und dem Südosten der USA hochreichende Konvektion auftritt, die in einigen Fällen auch die lokale Tropopause durchdringt. Ray et al. (2004) zeigten kürzlich anhand von Flugzeugmessungen, dass hochreichende Konvektion über der Mitte und dem Osten der USA eine signifikante Menge troposphärischer Luft in die unterste Stratosphäre einträgt, die dann durch die antizyklonale Strömung des nordamerikanischen Monsuns in Richtung Süden transportiert wird. Offensichtlich ist das Modell in der Lage, die dynamischen Prozesse zu reproduzieren, allerdings wohl deutlich stärker als beobachtet. Den Beitrag der erhöhten Tropopause bzw. der Konvektion in mittleren Breiten zum Wasserdampfmaximum über dem Süden der USA zu quantifizieren ist hier nicht möglich.

Nachdem sowohl beim asiatischen Sommermonsun als auch im Bereich des Hochdruckgebiets über dem Süden der USA die Luftmassen nicht über die TTL in die Stratosphäre gelangt, sondern außerhalb der TTL, spricht man in diesem Zusammenhang auch von einem „air bypass“ (Gettelman et al., 2004). In der zonal gemittelten Wasserdampfverteilung in Abbildung 5.13 macht sich dieses Phänomen als „Nase“ höherer Wasserdampfwerte bemerkbar, die im Sommer bei etwa 30°N in die Stratosphäre hineinreichen. In den HALOE-Daten ist dieses Phänomen aufgrund der vertikalen Auflösung von etwa 3 km nur noch ansatzweise zu erkennen. Während die beobachtete Wasserdampfnase durch den asiatischen Sommermonsun hervorgerufen wird, dominiert in E39/C das Wasserdampfmaximum über dem Süden der USA. Auf der Südhemisphäre fehlt ein entsprechendes Gegenstück zum asiatischen oder nordamerikanischen Monsun und somit auch zur subtropischen Wasserdampfnase im Südsommer.

Extratropische unterste Stratosphäre

Wie in Abbildung 5.7 und 5.8 zu erkennen ist, weichen die modellierten Wasserdampfverhältnisse im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre deutlich von den beobachteten Werten ab. In 215 hPa (Abb. 5.7) wird der Wasserdampfgehalt in den Extratropen der jeweiligen Sommerhemisphäre um Faktor 2–3 überschätzt, während die modellierten Wasserdampfwerte in den Extratropen der jeweiligen Winterhemisphäre quantitativ gut mit den MLS-Beobachtungen überein stimmen. Im 147 hPa-Niveau (Abb. 5.7) liegen die modellierten Wasserdampfwerte polwärts von 30°N/S in den Wintermonaten (DJF) etwa 10 ppmv oberhalb den MLS-Beobachtungen, was gegenüber den MLS-Daten ungefähr einer Verdopplung des Wasserdampfgehalts in der extratropischen untersten Stratosphäre entspricht. In den Sommermonaten (JJA) werden die beobachteten Wasserdampfwerte in den nördlichen Extratropen vom Modell noch deutlicher überschätzt als im Nordwinter. Auf der Südhemisphäre sind die modellierten Wasserdampfwerte in den Subtropen ebenfalls höher als beobachtet, in den hohen Breiten wird die unterste Modellstratosphäre aufgrund des Kältefehlers jedoch zu stark dehydriert, so dass der Wasserdampfgehalt in diesen Regionen unterschätzt wird. Insgesamt ist das Modell nicht in der Lage den ausgeprägten meridionalen Wasserdampfgradienten im Bereich der Subtropen zu reproduzieren. In diesem Zusammenhang ist generell der Verlauf des Wasserdampfgradienten im Tropopausenbereich bemerkenswert: Während sich der vertikale Wasserdampfgradient in den Beobachtungen gerade im Bereich der Subtropen und auch in mittleren und hohen Breiten dem Tropopausenverlauf anpasst, folgt der vertikale Wasserdampfgradient im Modell etwa polwärts von 30°N/S nicht mehr der Tropopause, sondern verläuft nahezu horizontal im Höhenbereich von etwa 120 hPa (s. auch Abb. 5.13).

Untersuchungen zum globalen Spurenstofftransport in ECHAM4 mit verschiedenen passiven Spurenstoffen wie z.B. ^{14}C haben gezeigt, dass die Spurenstoffverteilung im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre stark vom verwendeten Transportschema abhängt (Reithmeier, 2001). Das operationell in E39/C verwendete semi-Lagrangesche Transportschema ergab polwärts von etwa 40° deutlich höhere Spurenstoffkonzentrationen als das rein Lagrangesche Transportschema ATTILA. Dieses Ergebnis ist darauf zurückzuführen, dass die numerische Diffusion des semi-Lagrangeschen Transportschemas die horizontalen Gradienten glättet und somit für eine höhere Spurenstoffkonzentration in den Extratropen sorgt. Da Radon eine mit Wasserdampf vergleichbare horizontale Verteilung mit hohen Konzentrationen in der tropischen oberen Troposphäre und niedrigen Konzentrationen in der extratropischen untersten Stratosphäre zeigt, liegt die Hypothese nahe, dass im Fall von Wasserdampf auch das verwendete Transportschema die Ursache für die erhöhten Wasserdampfwerte in der extratropischen untersten Stratosphäre sein könnte. In der Tat kann diese Hypothese bestätigt werden, wie in Kapitel 6 gezeigt wird.

Stratosphärischer Wasserdampfgehalt

Abbildung 5.13 vergleicht die zonal und klimatologisch gemittelte Wasserdampfverteilung in E39/C mit HALOE-Satellitendaten von 1991 bis 2002. Unterhalb von etwa 200 hPa liefert HALOE keine Messdaten, so dass sich der Vergleich an dieser Stelle auf den Bereich oberhalb der tropischen Tropopause beschränkt. Generell ist das Modell in der Lage die wesentlichen Merkmale der Wasserdampfverteilung im gezeigten Höhenbereich wiederzugeben. Die modellierte Wasserdampfverteilung zeigt einen ausgeprägten vertikalen Gradienten in der Troposphäre, der auf die Temperaturabnahme mit der Höhe zurückzuführen ist. Verbunden mit

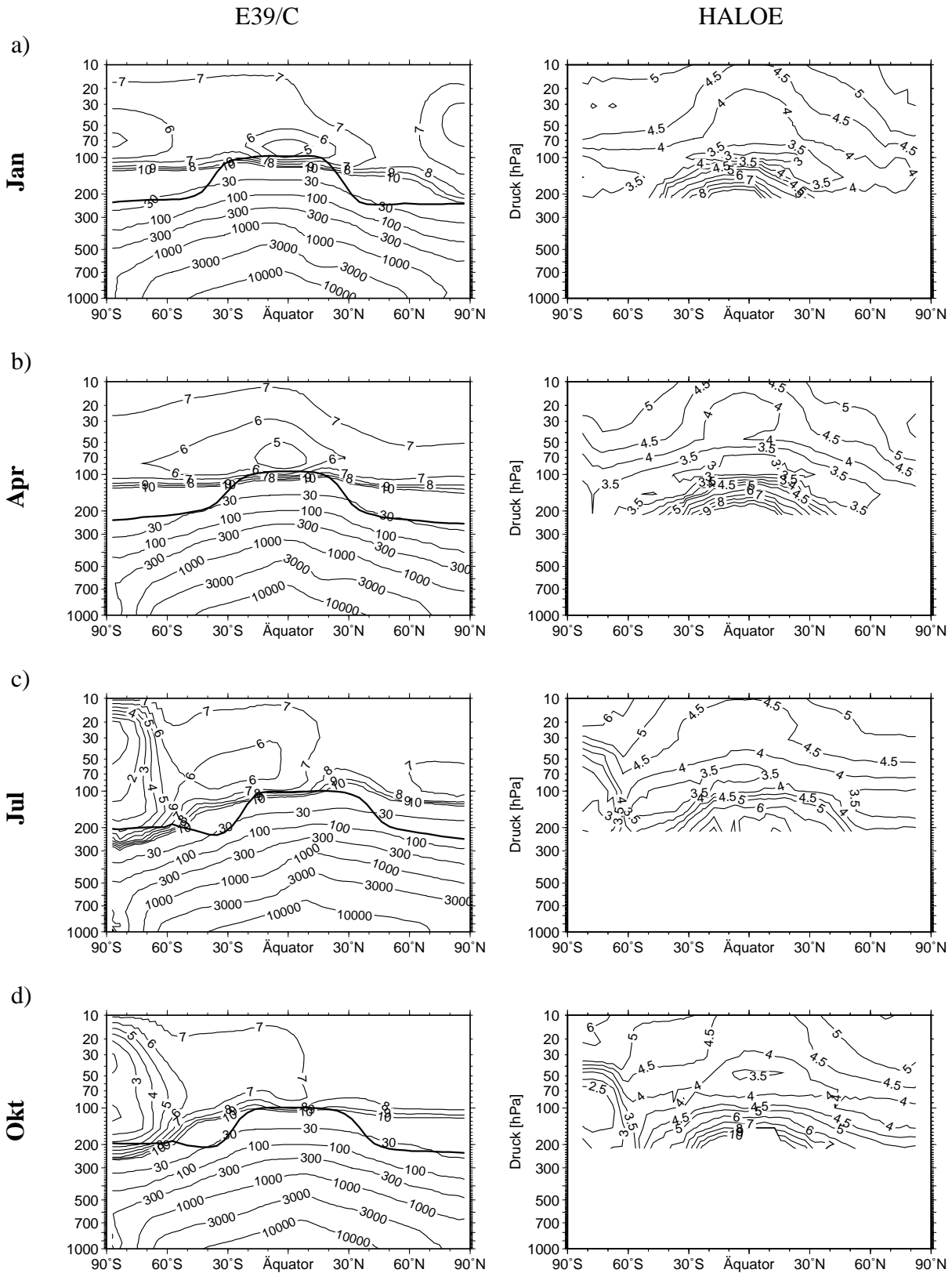


Abbildung 5.13: Zonal und klimatologisch gemittelte Verteilung des Wasserdampfmischungsverhältnisses [ppmv] aus E39/C (links) und HALOE-Satellitendaten (rechts). a) Januar, b) April, c) Juli und d) Oktober. Die fett eingezogene Linie markiert die für den jeweiligen Monat klimatologisch gemittelte Höhe der thermischen Modelltropopause.

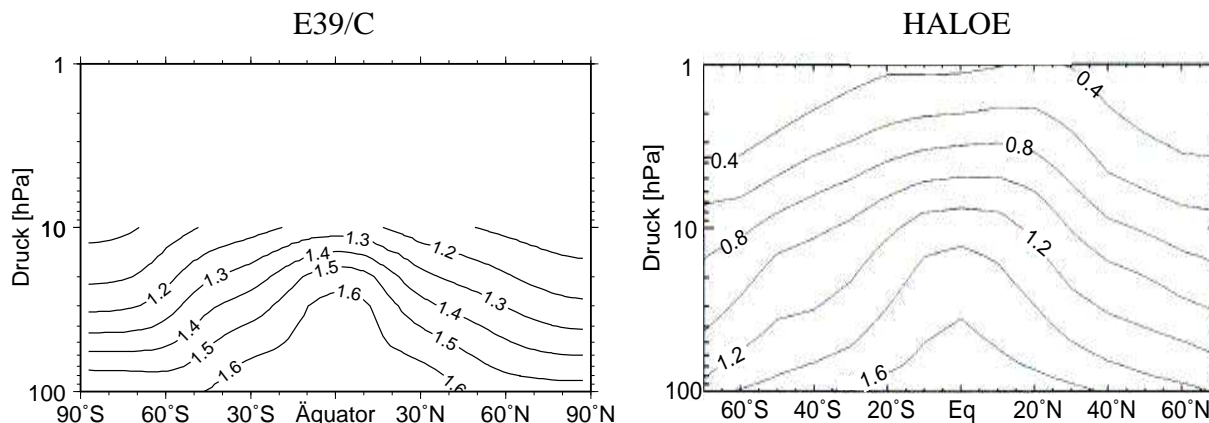


Abbildung 5.14: Zonal und klimatologisch gemittelt Volumenmischungsverhältnis von Methan, Einheit: ppmv. Links: E39/C, rechts: HALOE-Daten (Rosenlof, 2002). Dargestellt ist ein Jahresmittelwert.

dem Temperaturminimum tritt oberhalb der tropischen Tropopause im Modell analog zu den Beobachtungen ein lokales Wasserdampfminimum auf. Oberhalb dieses Minimums nimmt der Wasserdampfgehalt mit zunehmender Höhe und in Richtung der hohen Breiten aufgrund der Methanoxidation zu. Trotz der qualitativ guten Übereinstimmung gibt es einige Unterschiede zwischen der modellierten und der beobachteten Wasserdampfverteilung, die im Folgenden erläutert werden.

Wie in Abbildung 5.13 deutlich zu erkennen ist, wird der stratosphärische Wasserdampfgehalt im Modell gegenüber den HALOE-Beobachtungen systematisch um etwa 2 ppmv überschätzt. So beträgt z.B. im Januar das modellierte Wasserdampfminimum oberhalb der tropischen Tropopause 5 ppmv, während die Satellitenbeobachtungen Wasserdampfwerte um 3 ppmv zeigen. In 10 hPa ist der Unterschied zwischen der modellierten Verteilung mit Werten um 7 ppmv und den HALOE-Daten mit Werten um 5 ppmv ähnlich groß.

Generell ist der modellierte Wasserdampfgehalt in der Nordhemisphäre höher als in der Südhemisphäre. Im Jahresmittel beträgt der Unterschied zwischen den mittleren Breiten beider Hemisphären in 50 hPa etwas mehr als 1 ppmv, in 10 hPa nur noch etwa 0.3 ppmv (s. auch Abb. 7.7a). Der interhemisphärische Unterschied nimmt also mit zunehmender Höhe ab. In den HALOE-Beobachtungen ist ein ähnlich ausgeprägter Unterschied zwischen Nord- und Südhemisphäre nicht festzustellen (s. auch Abb. 2.1).

Methanoxidation als in situ-Quelle für Wasserdampf

Da die Oxidation von Methan eine in situ-Quelle für Wasserdampf in der Stratosphäre darstellt (s. Abschnitt 2.1.1), kann eine Überschätzung der stratosphärischen Methankonzentrationen zu dem erhöhten stratosphärischen Wasserdampfgehalt in E39/C beitragen. In Abbildung 5.14 wird die zonal und klimatologisch gemittelte Methanverteilung in E39/C mit HALOE-Satellitendaten (Rosenlof, 2002) verglichen. Methan wird am Erdboden emittiert und gelangt bis auf etwa 10%, die bereits in der Troposphäre abgebaut werden, fast vollständig in die Stratosphäre. In der Stratosphäre nimmt die Methankonzentration mit zunehmender Höhe aufgrund der Methanoxidation ab, wobei der Hauptteil der Methanoxidation oberhalb von etwa 30 km stattfindet. Das Modell überschätzt die beobachteten Werte insbesondere in mittleren und hohen Breiten um 0.2 bis 0.3 ppmv ($\approx 25\%$ bis 40%). In den Tropen ist die Übereinstimmung mit den Beobachtungen deutlich besser. Informationen darüber, wieviel Methan im Modell oxidiert wird und ob die Höhenabhängigkeit der chemischen Lebensdauer von Methan richtig simuliert wird,

lassen sich aus dem vertikalen Methangradienten gewinnen. In den Tropen fällt der simulierte vertikale Methangradient im Vergleich zu den Beobachtungen etwas zu stark aus. Während der Methangehalt in den Tropen in 100 hPa etwas höher ausfällt als beobachtet, stimmen die modellierten Methanwerte am Modelloberrand gut mit Beobachtungen überein. Daraus lässt sich folgern, dass in E39/C zum Modelloberrand hin der chemische Methanabbau in den Tropen etwas überschätzt wird, was möglicherweise eine Folge des erhöhten Wasserdampfgehalts und einer dadurch überschätzten OH-Konzentration ist. In hohen Breiten zeigt das Modell einen schwächeren vertikalen Gradienten, was hauptsächlich auf den etwas zu schwachen Abwärts-transport in den oberen Modellschichten zurückzuführen ist.

Ergebnisse früherer Studien (Kley et al., 2000) deuteten auf eine chemische Wasserdampfproduktion von 1.5 bis 2 Molekülen Wasserdampf pro oxidiertem Methanmolekül hin. Nach neueren Untersuchungen von Dessler et al. (1994) entstehen pro oxidiertem Methanmolekül etwa zwei (1.94 ± 0.27) Wassermoleküle. Eine Analyse der chemischen Methanabbau- und Wasserdampfproduktionsraten in E39/C zeigt, dass im Modell oberhalb von 100 hPa im Mittel nur etwa 1.3 Wassermoleküle pro oxidiertem Methanmolekül entstehen. Dabei ist zu berücksichtigen, dass bei dieser Abschätzung die chemische Wasserdampfproduktion nicht nur die Methanoxidation, sondern auch den Anteil der Oxidation von Wasserstoffmolekülen enthält. Der Wert 1.3 stellt somit eine obere Abschätzung für die Größe dH_2O/dCH_4 dar, die eher am unteren Rand der oben genannten Messergebnisse liegt. Somit wird der etwas erhöhte chemische Methanabbau durch ein geringeres Verhältnis dH_2O/dCH_4 wieder kompensiert. Eine erhöhte Methanoxidation kann somit nicht die alleinige Ursache der um etwa 2 ppmv höheren stratosphärischen Wasserdampfwerte in E39/C sein.

„Entry Value“ $[H_2O]_e$

Ein entscheidender Faktor für den stratosphärischen Wasserdampfgehalt ist die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause. Ein Vergleich der modellierten Wasserdampfverteilung in der unteren Stratosphäre (z.B. 80 hPa, nicht gezeigt) und der tropischen Cold Point-Temperatur für Januar verdeutlicht diesen Zusammenhang: Die niedrigsten Wasserdampfwerte treten in Übereinstimmung mit den Temperaturminima über dem äquatorialen Westpazifik und vor der Westküste Südamerikas auf (s. Abb. 5.2). Als Maßstab für den Wasserdampfgehalt der Luftpakete beim Eintritt in die Stratosphäre wird das sogenannte „entry level“-Mischungsverhältnis $[H_2O]_e$ (auch „entry value“) verwendet. Für gewöhnlich wird der Wert $[H_2O]_e$ aus gleichzeitigen Methan- und Wasserdampfmessungen bestimmt, allerdings kann er auch aus dem mittleren Wasserdampfmischungsverhältnis knapp oberhalb der tropischen Tropopause berechnet werden (Kley et al., 2000). Im Jahresmittel beträgt das Wasserdampfmischungsverhältnis an der tropischen Cold Point-Tropopause ($20^\circ N$ – $20^\circ S$) in E39/C 5.99 ppmv. Im Januar beträgt $[H_2O]_e = 4.84$ ppmv und im Juli aufgrund der höheren Cold Point-Temperatur $[H_2O]_e = 6.75$ ppmv. Die in Kley et al. (2000) aufgeführten beobachteten $[H_2O]_e$ -Werte für die 1990er Jahre variieren zwischen 3.6 und 4.1 ppmv im Jahresmittel. Somit liegt das modellierte „entry level“-Mischungsverhältnis etwa 2 ppmv über den Beobachtungen, was den vom Modell überschätzten stratosphärischen Wasserdampfgehalt erklärt. Als Ursache für das erhöhte „entry level“-Mischungsverhältnis in E39/C ist die zu warme tropische Cold Point-Temperatur zu nennen (s. Abschnitt 5.1.1).

Selbst bei einer korrekten Wiedergabe der mittleren Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause ist nicht gewährleistet, dass die Variabilität der Cold Point-Temperatur im Modell richtig reproduziert wird. Bereits kleine Temperaturänderungen können sich stark auf den stra-

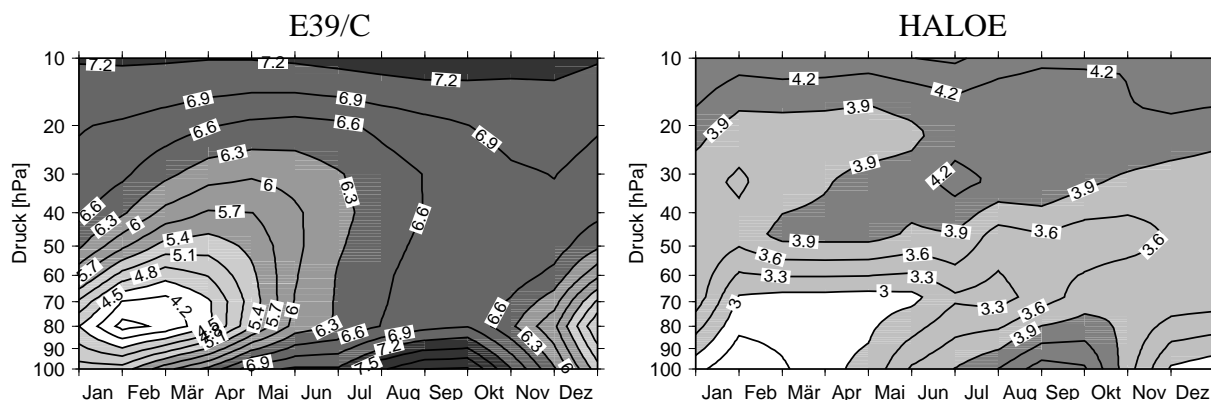


Abbildung 5.15: Mittlerer Jahresgang des Wasserdampfverhältnisses zwischen 10°N und 10°S in Abhängigkeit von der Höhe, „Tape Recorder“, links: E39/C, rechts: HALOE. Einheit: ppmv.

tosphärischen Wasserdampfgehalt auswirken. So zeigt die Arbeit von Stuber (2001), dass die in der Stratosphäre enthaltene Wasserdampfmasse bereits bei einer mittleren Erwärmung der tropischen Cold Point-Temperatur von 0.5 K um 5% zunimmt.

An dieser Stelle sei abschließend noch angemerkt, dass in E39/C – ausgenommen bei der Bildung polarer Stratosphärenwolken – per definitionem keine Übersättigungen auftreten können (s. Anhang A.2). Eine Berücksichtigung von Eisübersättigungen bis zu 120% relativer Feuchte bzgl. Eis führt aber z.B. im globalen Zirkulationsmodell WACCM zu einer Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfverhältnisses um bis zu 15% (A. Gettelman, persönliche Mitteilung).

Tape recorder

Verbunden mit der etwas zu hohen tropischen Modelltropopause (s. Abschnitt 5.1.1) liegt das tropische Wasserdampfminimum im Modell etwa 10 bis 20 hPa (entspricht in diesem Höhenbereich 1–1.5 km) höher als in den Beobachtungen. In Übereinstimmung mit den Satellitendaten treten die niedrigsten Wasserdampfwerte verbunden mit den tiefsten Tropopausentemperaturen im Januar auf. Im Laufe des Jahres wandert das Wasserdampfminimum mit der Zirkulation langsam nach oben. Abbildung 5.15 zeigt den zeitlichen Verlauf des tropischen Wasserdampfverhältnisses in Abhängigkeit von der Höhe für Modelldaten als auch für Beobachtungsdaten. In den Beobachtungsdaten lässt sich das Wasserdampfminimum länger als 12 Monate verfolgen. So ist im Februar bzw. Juli bei etwa 30 hPa das Signal des Vorjahresminimums bzw. -maximums noch deutlich zu erkennen. Insgesamt lassen sich die Wasserdampfanomalien über einen Zeitraum von ungefähr 18 Monaten verfolgen. In dieser Zeit erreichen sie bei typischen Vertikalgeschwindigkeiten von 0.3 mm/s eine Höhe von etwa 32 km (Rosenlof, 1995; Mote et al., 1998). In den Modelldaten breitet sich das Wasserdampfsignal deutlich schneller nach oben aus. Das Vorjahresminimum bzw. -maximum ist nicht mehr zu erkennen. Die mittlere residuale Vertikalgeschwindigkeit in den Tropen liegt mit 0.4-0.5 mm/s im Modell über den beobachteten Werten.

Neben dem Vertikaltransport können aber auch horizontale Vermischungsprozesse dafür verantwortlich sein, dass das Wasserdampfminimum im Verlauf eines Jahres im Modell nicht mehr zu identifizieren ist. Allgemein ist der modellierte meridionale Wasserdampfgradient in der Stratosphäre im Vergleich zu Beobachtungen zu schwach ausgeprägt. Aufgrund der langen

chemischen Lebenszeit von Methan mit ≈ 100 Jahren in der unteren Stratosphäre (≈ 20 km) und immerhin noch mehreren Monaten in 40 km Höhe, lassen sich aus der Methanverteilung auch Rückschlüsse auf die Transportvorgänge in der Stratosphäre ziehen. Abbildung 5.14 zeigt die zonal und klimatologisch gemittelte Methanverteilung in E39/C und aus HALOE-Satellitendaten (Rosenlof, 2002). Beide Verteilungen zeigen in den Tropen nach oben gestülpte Isolinien, die sich in Richtung der Pole abwärts neigen. Dieses Muster ist unmittelbar mit der mittleren Meridionalzirkulation verbunden: Methanreiche Luftmassen aus der Troposphäre werden in den Tropen nach oben und methanarme Luftmassen aus der oberen Stratosphäre in hohen Breiten abwärts transportiert. Aufgrund der zu starken modellierten Meridionalzirkulation wäre es zu erwarten, dass der Meridionalgradient im Modell stärker ausgeprägt ist als in den Beobachtungen. Dies ist aber nicht der Fall. Im Gegenteil, das Modell zeigt einen deutlich schwächeren Meridionalgradienten als beobachtet wird. Offensichtlich findet im Modell eine zu starke horizontale Vermischung von tropischen und extratropischen Luftmassen statt, wodurch sich der meridionale Methangradient verringert. In der realen Atmosphäre ist der horizontale Luftmassenaustausch zwischen Tropen und Extratropen durch die subtropische Transportbarriere eingeschränkt. Beobachtungen von Ozon oder N_2O zeigen aber, dass fingerförmige Strukturen, die aus den Tropen in die Extratropen hineinreichen, sogenannte „Streamer“, zu einem signifikanten Luftmassenaustausch zwischen Tropen und Extratropen beitragen. Studien von Eyring et al. (2003) zeigen, dass E39/C generell in der Lage ist diese dynamischen Strukturen zu reproduzieren. Allerdings geben diese Ergebnisse noch keine Auskunft darüber, ob die Stärke des Luftmassenaustausches vom Modell richtig erfasst wird.

Vermutlich trägt auch das verwendete Transportmodell teilweise zu der unrealistisch starken horizontalen Vermischung zwischen niederen und hohen Breiten in E39/C bei. Studien zum Alter der stratosphärischen Luft von Land (1999) und Reithmeier (2001) zeigen, dass das beobachtete Alter der Luft vom Modell im Allgemeinen unterschätzt wird, wobei das Lagrangesche Transportschema ATTILA deutlich bessere Ergebnisse liefert als das operationell verwendete semi-Lagrangesche Transportschema. Dies lässt darauf schließen, dass die subtropische Transportbarriere in E39/C generell etwas unterschätzt wird und zusätzlich die numerische Diffusion zu einem künstlichen Massenaustausch zwischen Tropen und Extratropen beiträgt.

Dehydrierung der polaren Stratosphäre

Verbunden mit der starken Isolation des Polarwirbels und der strahlungsbedingten Abkühlung während der Polarnacht, zeigen sowohl Modell als auch Beobachtungen im Zeitraum Juli bis Oktober eine Dehydrierung der antarktischen Stratosphäre (Abb. 5.13). Im Nordwinter wird die polare Modellstratosphäre nur geringfügig dehydriert, während in den Satellitendaten keine Dehydrierung zu beobachten ist. Der interhemisphärische Unterschied lässt sich darauf zurückführen, dass die Temperaturen in der polaren Stratosphäre im Winter auf der Nordhemisphäre höher sind als auf der Südhemisphäre (s. Abb. 5.1a und b).

Der zeitliche Verlauf der Dehydrierung der polaren Stratosphäre in E39/C ist in Abbildung 5.16 dargestellt. Dabei zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen Nord- (links) und Südhemisphäre (rechts). Auf der Nordhemisphäre beginnt im Dezember ein langsamer Rückgang der Wasserdampferte in der polaren Stratosphäre unterhalb von 20–30 hPa. Der Wasserdampfgehalt erreicht im Januar/Februar mit Werten um 5.5 ppmv sein Minimum, wobei sich die niedrigsten Werte auf den Höhenbereich 60–80 hPa beschränken. Ende März haben die Wasserdampferte ihr ursprüngliches Niveau wieder erreicht. Auf der Südhemisphäre beginnt bereits im Mai eine

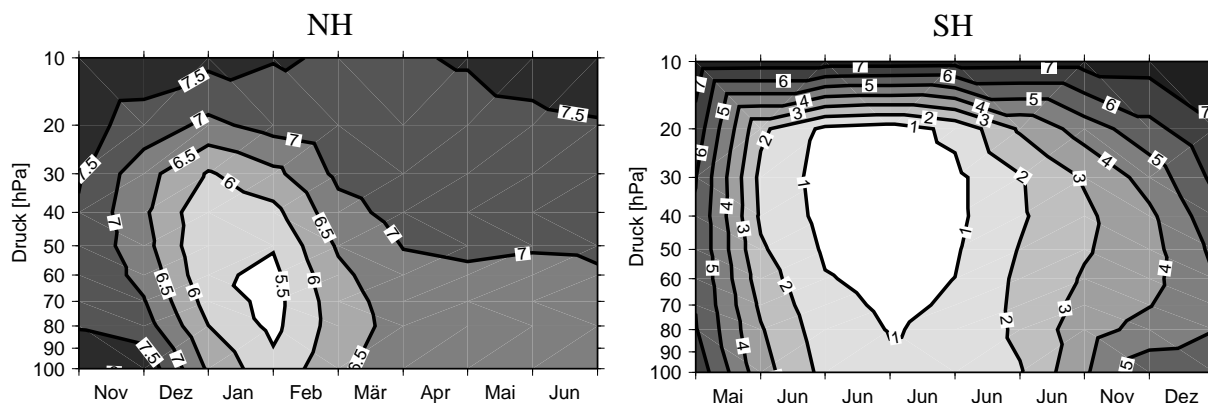


Abbildung 5.16: Zeitlicher Verlauf des modellierten Wasserdampfmischungsverhältnisses während der Winter- und Frühlingsmonate am Nordpol (links) und Südpol (rechts) in Abhängigkeit von der Höhe. Einheit: ppmv.

drastische Dehydrierung der polaren Stratosphäre. Im Gegensatz zur Nordhemisphäre ist davon fast die gesamte Modellstratosphäre betroffen. In den Monaten Juli und August fallen die Wasserdampferte zwischen 20 und 60 hPa unter 1 ppmv. Zwischen Juli und September liegen die Wasserdampferte im gesamten Bereich unterhalb von 20 hPa konstant unter 2 ppmv. Erst Anfang Dezember erreichen die Wasserdampferte wieder das Niveau von Anfang Mai. Beobachtungsdaten zeigen einen deutlich anderen Verlauf der Dehydrierung der antarktischen Stratosphäre (s. Abb. 2.5): Erst Anfang August beginnt der Wasserdampfgehalt in der polaren Stratosphäre unterhalb von etwa 22 km (≈ 40 hPa) zurückzugehen. Im August und vor allem September fällt das Wasserdampfmischungsverhältnis auf Werte unter 2 ppmv, wobei sich die Dehydrierung auf die Region zwischen 15 (≈ 120 hPa) und 20 km (≈ 50 hPa) beschränkt. Damit wird nicht nur die Stärke der Dehydrierung, sondern auch deren räumliche und zeitliche Ausdehnung vom Modell deutlich überschätzt. Desweiteren beginnt die Dehydrierung im Modell weitaus früher als beobachtet wird. Dieses Verhalten ist auf den Kältefehler des Modells in der polaren Stratosphäre zurückzuführen (s. Abschnitt 5.1.1).

5.3 Ozonverteilung

Eines der Ziele dieser Arbeit ist es, den Einfluss einer veränderten Wasserdampfverteilung auf die stratosphärische Ozonchemie zu quantifizieren (Kapitel 8). Zur richtigen Interpretation der Modellergebnisse muss das Modellsystem zuvor hinsichtlich seiner Fähigkeit untersucht werden, die für die Ozonverteilung ausschlaggebenden physikalischen und chemischen Prozesse zu reproduzieren. Eine detaillierte Evaluierung der modellierten Ozonschicht sowie aller relevanten chemischen und physikalischen Prozesse wurde bereits in Hein et al. (2001) und Schnadt (2001) durchgeführt. Im Folgenden werden die wichtigsten Ergebnisse kurz zusammengefasst.

In Abbildung 5.17 ist ein Vergleich der saisonalen Entwicklung der Gesamtozonsäule zwischen TOMS-Satellitendaten der Jahre 1980 bis 1999 und einem klimatologischen Mittelwert der entsprechenden Jahre aus der Simulation CNTL_1999 dargestellt. In den nördlichen Extratropen sowie den Tropen stimmen die Modellergebnisse qualitativ gut mit den Beobachtungsdaten überein. Das Modell reproduziert den Jahresgang der Gesamtozonsäule auf der Nordhemisphäre mit den höchsten Werten in den Monaten Februar und März und den niedrigsten Werten

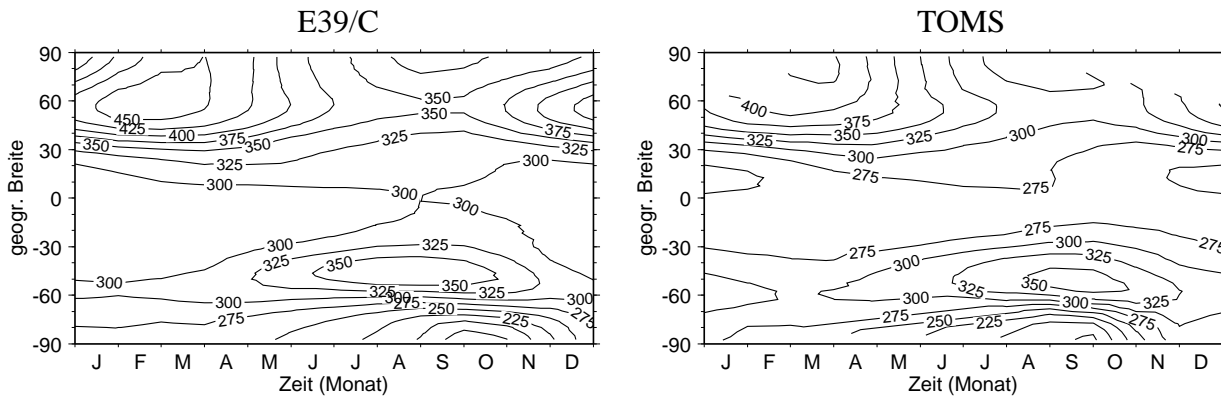


Abbildung 5.17: Gesamtozonsäule in Abhängigkeit von der Jahreszeit und der geographischen Breite, 1980–1999. Einheit: DU. Links: E39/C, rechts: TOMS-Satellitendaten.

im Herbst. Allerdings werden die Absolutwerte vom Modell um etwa 50 DU überschätzt. In den mittleren Breiten der Südhemisphäre wird in den Monaten September und Oktober ein Maximum der Gesamtozonsäule mit Werten um 350 DU beobachtet. Im Modell tritt dieses Maximum etwa einen Monat zu früh auf. Auch in dieser Region werden die Absolutwerte vom Modell leicht überschätzt. Das Auftreten des antarktischen Ozonlochs im Oktober wird vom Modell dagegen richtig erfasst, allerdings liegen die minimalen Ozonwerte unter denjenigen der gezeigten Beobachtungen. Desweiteren erstreckt sich das modellierte Ozonloch über einen längeren Zeitraum als beobachtet.

Neben der sowohl qualitativ als auch quantitativ guten Reproduktion der beobachteten Gesamtozonsäule ist das Modell auch in der Lage, die vertikale Ozonverteilung qualitativ richtig zu erfassen, wie ein Vergleich mit einer hauptsächlich auf Radiosondenmessungen basierenden Ozonklimatologie von Fortuin und Kelder (1998) zeigt (Hein et al., 2001). Aufgrund der zu hoch liegenden Modelltropopause werden die modellierten Ozonmischungsverhältnisse im Bereich der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre im Vergleich zu den Beobachtungen generell unterschätzt. Dagegen sind die modellierten stratosphärischen Ozonmischungsverhältnisse oberhalb von 60 hPa in hohen Breiten sowie oberhalb von 40 hPa in den Tropen etwa 0.5–1 ppmv höher als beobachtet.

Dynamik der Stratosphäre

Die modellierte zonal gemittelte Temperaturverteilung (Abschnitt 5.1.1) sowie die modellierte residuale Meridionalzirkulation (Abschnitt 5.1.2) wurden bereits in vorangegangenen Abschnitten diskutiert. An dieser Stelle sollen noch einige spezielle, ozonrelevante Aspekte der Dynamik der Stratosphäre erwähnt werden.

In der Stratosphäre treten auf der jeweiligen Sommerhemisphäre oberhalb von etwa 50 hPa Ostwinde auf, während auf der jeweiligen Winterhemisphäre Westwinde vorherrschen. Die winterliche Stratosphäre ist durch ein Tiefdruckgebiet über den Polargebieten gekennzeichnet, dem stratosphärischen Polarwirbel, an dessen Rand sich der stratosphärische Strahlstrom bildet. Dabei treten auf der Südhalbkugel aufgrund des stabileren Polarwirbels höhere Windgeschwindigkeiten im Strahlstrom auf als auf der Nordhalbkugel. Im Vergleich zu den ERA-Daten unterschätzt das Modell die sommerlichen Ostwinde in mittleren und polaren Breiten der Nordhemisphäre. Auf der Südhemisphäre wird in mittleren und hohen Breiten generell keine Windumkehr

zu sommerlichen Ostwinden simuliert. Die Lage der stratosphärischen Strahlströme wird vom Modell dagegen gut wiedergegeben, wobei die modellierten Windgeschwindigkeiten in beiden Hemisphären überschätzt werden. Die ausbleibende Windumkehr in der Südhemisphäre ist auf den Kältefehler der Temperatur (s. Abb. 5.1) in polaren Breiten zurückzuführen, wodurch insbesondere der südhemisphärische Polarwirbel zu stabil ist, sich zu früh bildet und länger bestehen bleibt. Die überschätzte Stabilität des Polarwirbels beeinflusst den heterogenen Ozonabbau im antarktischen Frühling (s. Kapitel 2.3.2) und führt dazu, dass das modellierte Ozonloch länger bestehen bleibt als beobachtet wird (s. Abb. 5.17).

Im Inneren der stratosphärischen Polarwirbel findet ein großräumiges diabatisches Absinken statt (Andrews et al., 1987). Verbunden mit dieser Absinkbewegung werden ozonrelevante Spurenstoffe aus höheren in niedrigere Atmosphärenschichten transportiert. Die korrekte Simulation der Vertikalbewegung ist daher für eine realitätsnahe Behandlung der polaren Ozonchemie von wesentlicher Bedeutung. Ein Vergleich mit unterschiedlichen Studien zeigt, dass die Vertikalbewegung in 50 hPa im nordhemisphärischen Polarwirbel vom Modell zufriedenstellend erfasst wird, während sie im südhemisphärischen Polarwirbel deutlich unterschätzt wird (Hein et al., 2001). Zusätzlich werden die dynamischen Größen im Modell oberhalb von etwa 50 hPa zum Modelloberrand hin gedämpft („sponge layer“). Aus diesem Grund nimmt die residuale Vertikalgeschwindigkeit in beiden Hemisphäre zum Modelloberrand hin ab, was in der polaren Südhemisphäre dazu führt, dass ozonrelevante Spurenstoffe wie Stickoxide und Chlor, deren Konzentration zum Modelloberrand hin zunimmt, nicht ausreichend stark in tiefere Schichten transportiert werden. Deswegen erfolgt der maximale Ozonabbau im Modell in 20 bis 30 hPa und nicht wie beobachtet in 50 hPa (Schnadt, 2001).

Wie in Abbildung 5.17 zu erkennen ist, fehlt auf der Nordhemisphäre ein vergleichbares Gegenstück zum südhemisphärischen Ozonloch. In den Wintermonaten können sich aufgrund der vorherrschenden Westwinde troposphärische Wellen in die Stratosphäre ausbreiten und dort zu einer Verlagerung und Verformung des stratosphärischen Polarwirbels führen (s. Abschnitt 2.1.1). Auf der Nordhemisphäre ist die Anregung planetarer Wellen aufgrund der stärkeren Land-See-Kontraste und der Orographie deutlich stärker ausgeprägt als auf der Südhemisphäre. Dies führt zu einer hohen dynamischen Variabilität der nordhemisphärischen Stratosphäre und einer geringeren Stabilität des Polarwirbels. Wie ein Vergleich mit ECMWF-Analysen zeigt, reproduziert das Modell das Ausbreitungsmuster der planetaren Wellen auf der Nordhemisphäre richtig (Schnadt, 2001). Infolgedessen wird auch die interannuale Variabilität des nordhemisphärischen Polarwirbels vom Modell realistisch wiedergegeben (Hein et al., 2001).

Stratosphärische Ozonchemie

Stickoxide spielen eine wichtige Rolle für die stratosphärische Ozonchemie: Katalytische Reaktionen mit Stickoxiden (s. Abschnitt 2.3.2) führen dazu, dass die Anzahl der Ozonmoleküle in der mittleren Atmosphäre um 25% geringer ist, als es durch die Sauerstoff-Chemie alleine der Fall wäre (Fabian, 1992). Somit ist die korrekte Simulation der stratosphärischen Stickoxidverteilung von großer Bedeutung für eine realitätsnahe Reproduktion der beobachteten Ozonverteilung. Dabei ist insbesondere Salpetersäure (HNO_3) wichtig, da sie selbst nicht mit Ozon reagiert und reaktivere Substanzen wie OH und NO_2 vorübergehend bindet. Wie in Schnadt (2001) gezeigt wurde, ist das Modell in der Lage, sowohl die Breitenabhängigkeit des HNO_3 -Mischungsverhältnisses, den ausgeprägten Jahresgang in mittleren und hohen Breiten als auch die interannuale Variabilität realistisch zu reproduzieren. Desweiteren wird die NO_y -Verteilung

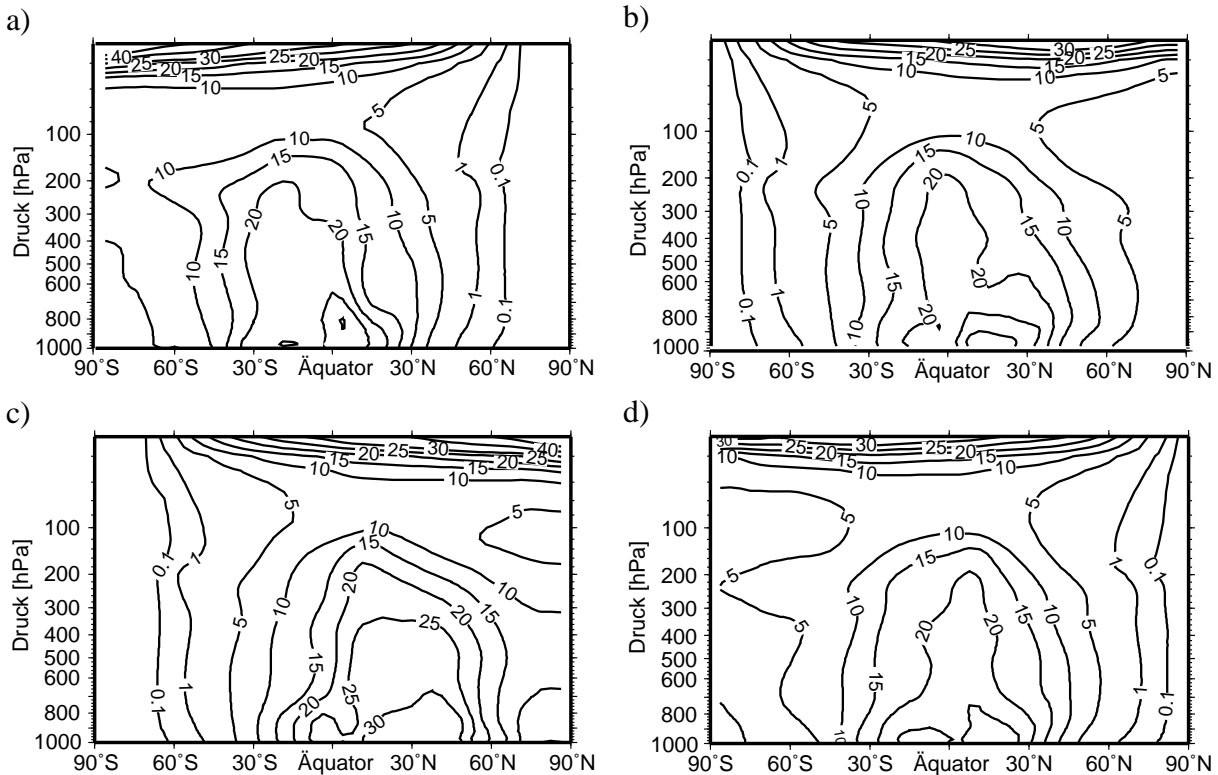


Abbildung 5.18: Zonal und klimatologisch gemittelte OH-Verteilung für CNTL_1999 in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Höhe für die Monate Januar (a), April (b), Juli (c) und Oktober (d). Einheit: $10^5 \text{ molec cm}^{-3}$.

vom Modell sowohl qualitativ als auch quantitativ richtig wiedergegeben. Allein die südpolare Stratosphäre wird aufgrund des zu stabilen Polarwirbels im Modell länger denoxifiziert als beobachtet. Im nordhemisphärischen Polarwirbel wird abweichend von den Beobachtungen ebenfalls eine leichte Denoxifizierung modelliert (Schnadt, 2001).

Desweiteren spielen heterogene Reaktionen an den Oberflächen von polaren Stratosphärenwolken (PSCs) eine wichtige Rolle für die Ozonchemie in den Polargebieten (s. Abschnitt 2.3.2). Neben der Temperatur hängt die PSC-Bildung von der Konzentration der Salpetersäure und des Wasserdampfs ab. Im Vergleich zu dem aus den Berliner Analysen bestimmten PSC-Bildungspotential auf der Nordhemisphäre (Pawson et al., 1995) wird das PSC-Potential vom Modell überschätzt. Nachdem das Modell in der Lage ist, die Größenordnung der beobachteten Mischungsverhältnisse von HNO_3 und Wasserdampf in der polaren Stratosphäre der Nordhemisphäre richtig wiederzugeben, ist die Ursache für das Überschätzen des PSC-Potentials im Kältefehler zu vermuten (Hein et al., 2001). Durch das überschätzte PSC-Potential wird die Luft innerhalb des Modellpolarwirbels zu stark denoxifiziert. Gleichzeitig nehmen aber mit den zu tiefen Temperaturen auch die heterogenen Reaktionsraten im Modell ab (Steil, 1999), so dass trotz der überschätzten PSC-Bildung eine mit Beobachtungen vergleichbare Chloraktivierung simuliert wird. Für die Südhemisphäre liegen keine vergleichbaren Beobachtungsdaten vor. Allein aufgrund des modellierten Temperaturfehlers ist davon auszugehen, dass das PSC-Potential in der Südhemisphäre ebenfalls überschätzt wird. Allerdings verursacht der Kältefehler eine zu starke Dehydrierung der polaren Stratosphäre (s. Abb. 5.13), die den Temperatureffekt möglicherweise kompensiert (Schnadt, 2001).

In Kapitel 8 dieser Arbeit werden die Auswirkungen einer veränderten Wasserdampfverteilung

auf die stratosphärische Ozonchemie untersucht. Wasserdampf beeinflusst die stratosphärische Ozonchemie in erster Linie als Quelle für das Hydroxyl-Radikal, das eine sehr wichtige Rolle für den Ozonabbau spielt. Nachdem die modellierte OH-Verteilung bislang in keiner Modellevaluierung berücksichtigt wurde, ist abschließend in Abbildung 5.18 die zonal und klimatologisch gemittelte OH-Verteilung in CNTL_1999 für die Monate Januar, April, Juli und Oktober dargestellt. Aufgrund der starken Abhängigkeit vom Sonnenzenitwinkel (Hanisco et al., 2001) ist die atmosphärische OH-Konzentration von einer extrem hohen räumlichen und zeitlichen Variabilität geprägt. Ein Vergleich von klimatologisch gemittelten Modellergebnissen, die sowohl Tag- als auch Nachtstunden beinhalten, mit einzelnen In-situ-Messungen ist deswegen nicht sinnvoll. Zur Modellevaluierung wird an dieser Stelle eine simulierte troposphärische OH-Klimatologie von Spivakovsky et al. (2000) verwendet (im Folgenden als *OH-S* bezeichnet). Spivakovsky et al. (2000) berechneten eine globale OH-Verteilung mit Hilfe eines photochemischen Box-Modells, wobei Beobachtungsdaten von OH-Vorläufersubstanzen wie Ozon, Wasserdampf, CO, Kohlenwasserstoffe und verschiedenen Stickoxiden sowie Temperaturmessungen und Informationen über die optische Dicke von Wolken als Eingangsgrößen verwendet wurden. Die höchsten OH-Konzentrationen treten in *OH-S* mit Werten um $25 \cdot 10^5$ molec cm^{-3} in etwa 600 hPa in den Tropen auf. Ausgehend von diesem Maximum nimmt die OH-Konzentration zu allen Richtungen hin ab. Das Modell ist in der Lage, die Größenordnung der troposphärischen OH-Konzentrationen zu reproduzieren. Allerdings sind die modellierten OH-Konzentrationen in der unteren Troposphäre deutlich höher als in *OH-S*. Dies ist höchstwahrscheinlich auf die fehlende NMHC (Non-Methane HydroCarbons)-Chemie im Modell zurückzuführen, da OH über bewaldeten Gebieten der tropischen Kontinente durch NMHCs abgebaut wird (Lawrence et al., 2001). Verbunden mit dem Stand der Sonne tritt das OH-Maximum in beiden Verteilungen im Januar südlich und im Juli nördlich des Äquators auf. Ebenso zeigen sowohl die modellierte OH-Verteilung als auch *OH-S* während der Polarnacht sehr geringe OH-Konzentrationen von weniger als $0.1 \cdot 10^5$ molec cm^{-3} . Zwischen 100 und 500 hPa weist *OH-S* einen deutlich stärkeren vertikalen Gradienten auf als die modellierte OH-Verteilung. Dies hat zur Folge, dass das Modell die OH-Konzentrationen in der oberen Troposphäre im Vergleich zu *OH-S* überschätzt. Für die Stratosphäre liegen keine vergleichbaren OH-Klimatologien vor. Insgesamt ist nach diesem Vergleich aber davon auszugehen, dass die Modellergebnisse in Kapitel 8 nicht von Defiziten hinsichtlich der modellierten OH-Verteilung beeinflusst werden. Wie ein Vergleich von verschiedenen Chemie-Transport- sowie Klima-Chemie-Modellen mit Spurenstoffmessungen über dem Pazifik bzw. dem Nordatlantik gezeigt hat, gehört OH zu denjenigen Größen, deren Verteilung von Modellen am besten simuliert wird (Brunner et al., 2005).

5.4 Fazit

In diesem Kapitel wurden mit dem interaktiv gekoppelten Modellsystem E39/C modellierte Klimatologien verschiedener dynamischer Größen wie Temperatur und Meridionalzirkulation sowie die Wasserdampfverteilung vorgestellt und soweit möglich anhand unterschiedlicher Beobachtungsdaten bewertet.

Der Vergleich mit ECMWF-Reanalysen zeigt, dass die beobachtete Temperaturverteilung vom Modell im allgemeinen zufriedenstellend wiedergegeben wird. Eine Ausnahme bildet der systematische Kältefehler (Cold Bias) im Bereich der polaren Tropopause und in der polaren Stratosphäre der Südhemisphäre. Dieser Temperaturfehler tritt in fast allen gängigen Modell-

systemen in unterschiedlicher Stärke auf (Gates et al., 1999). Der Kältefehler in der polaren Stratosphäre der Südhemisphäre führt zu einer deutlich überschätzten Dehydrierung in diesem Bereich.

Qualitativ stimmt die mittlere Meridionalzirkulation mit Aufsteigen in den Tropen, polwärts gerichtetem Transport in der Stratosphäre und Absinken in hohen Breiten gut mit den Ergebnissen verschiedener auf Satellitendaten basierender Studien überein. Ein Vergleich der modellierten Massenflüsse mit Beobachtungsdaten zeigt allerdings, dass die Stärke der mittleren Meridionalzirkulation vom Modell überschätzt wird.

Im Bereich des südhemisphärischen Polarwirbels wird die Absinkbewegung vom Modell dagegen unterschätzt. Dies hat hauptsächlich Auswirkungen auf die Ozonchemie, da ozonrelevante Spurenstoffe wie z.B. Chlor nicht in ausreichendem Maße vom Modelloberrand nach unten transportiert werden. Als Ursache für die unterschätzten Vertikalgeschwindigkeiten im antarktischen Polarwirbel wird die Nichtberücksichtigung von nicht-orographischen Schwerewellen angenommen (Schnadt, 2001).

Wie ein Vergleich mit HALOE- und MLS-Satellitenbeobachtungen zeigt, ist das Modell in der Lage, die Wasserdampfverteilung in der UT/LS-Region qualitativ richtig zu reproduzieren. Allerdings wird der stratosphärische Wasserdampfgehalt insbesondere in der extratropischen untersten Stratosphäre vom Modell überschätzt. Eine Ausnahme bildet dabei, wie bereits erwähnt, die polare Stratosphäre der Südhemisphäre, die während des Winters aufgrund des Kältefehlers zu stark dehydriert wird. Für den Feuchtefehler im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre ist größtenteils das numerisch diffusive semi-Lagrangesche Transportschema in E39/C verantwortlich, da im Rahmen dieser Arbeit gezeigt werden konnte, dass die Verwendung eines numerisch nicht-diffusiven Lagrangeschen Transportschemas den Feuchtefehler drastisch reduziert (s. Kapitel 6). Eine etwas zu warme tropische Tropopausentemperatur bzw. eine unterschätzte Variabilität der Temperatur an der tropischen Tropopause sind nach den bisherigen Ergebnissen die Ursache für den überschätzten Wasserdampfgehalt der Stratosphäre.

Desweiteren ist das Modell nicht in der Lage, den meridionalen Wasserdampfgradienten in der Stratosphäre zufriedenstellend zu reproduzieren. Hierbei stellt sich die Frage, ob die Stärke der subtropischen Transportbarriere vom Modell nicht richtig erfasst wird oder ob die numerischen Eigenschaften des verwendeten Transportschemas zu einer unrealistisch starken Vermischung zwischen niedrigen und hohen Breiten führen. Nach den bisherigen Erkenntnissen ist zu erwarten, dass beide Prozesse beteiligt sind.

Die Wasserdampfverteilung in der oberen Troposphäre wird maßgeblich durch Konvektion bestimmt. Die Lage der konvektiven Zentren werden vom Modell annähernd richtig wiedergegeben, wobei die Stärke der konvektiven Ereignisse in manchen Regionen unterschätzt wird. Insgesamt fallen die modellierte Wasserdampfmaxima in den Tropen in 215 hPa schwächer aus als beobachtet. In 147 hPa zeigt sich eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den Beobachtungen, was auf einen zu schwachen vertikalen Temperaturgradienten in der oberen Troposphäre zurückzuführen ist.

Während der Sommermonate wird die unterste Stratosphäre im Bereich von 30°N vom asiatischen Monsun beeinflusst. Das Modell reproduziert dabei die vorherrschenden dynamischen Bedingungen qualitativ richtig, allerdings wird die Intensität des asiatischen Monsuns unterschätzt. Dagegen simuliert E39/C über dem Süden der USA eine mit dem asiatischen Monsun vergleichbare antizyklonale Strömung in der oberen Troposphäre. Das daraus resultierende

Wasserdampfmaximum in der oberen Troposphäre, das bis in die untere Stratosphäre hineinreicht, fällt im Vergleich zu den MLS-Beobachtungen allerdings deutlich zu stark aus.

Offensichtlich ist das Modell in der Lage, die für die Wasserdampfverteilung relevanten dynamischen Prozesse — soweit sie bislang bekannt sind — zufriedenstellend zu erfassen. Ein Großteil der Modellschwächen hinsichtlich der Wasserdampfverteilung in der UT/LS wird nach dem bisher Gesagten durch die modellierte Temperaturverteilung sowie durch die numerischen Eigenschaften des verwendeten Transportschemas hervorgerufen. Das folgende Kapitel geht der Frage nach, inwieweit einige der hier aufgedeckten Modellschwächen durch den Einsatz eines rein Lagrangeschen Advektionsschemas verbessert werden können.

Kapitel 6

Sensitivitätsstudie: Lagrangescher Feuchtetransport mit ATTILA

In der Standardversion des Modells E39 werden Wasserdampf und Wolkenwasser mit dem semi-Lagrangeschen Transportschema nach Williamson und Rasch (1994) advehiert. Nicht-Lagrangesche Transportschemata neigen dazu, starke Gradienten in Spurenstoffverteilungen durch numerische Diffusion unrealistisch abzuschwächen (s. Abschnitt 3.1). Die beobachtete Wasserdampfverteilung zeigt im Tropopausenbereich einen ausgeprägten Gradienten, der in der modellierten Wasserdampfverteilung nicht vollständig reproduziert wird (s. Kapitel 5.2). Abbildung 6.1 (links) zeigt das Verhältnis zwischen dem mit E39 simulierten Wasserdampfmischungsverhältnis und HALOE-Satellitendaten als Funktion der geographischen Breite und der Höhe. Im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre zwischen 150 und 250 hPa überschätzt das Modell die Wasserdampfbeobachtungen deutlich um 300–500%. Dagegen wird der Wasserdampfgehalt in mittleren und hohen Breiten oberhalb von etwa 50-70 hPa etwas unterschätzt, was zum einen darauf zurückgeführt werden kann, dass die Wasserdampfproduktion aufgrund der Methanoxidation in der Standardmodellversion ohne Chemiemodul nicht enthalten ist. Zum anderen führt der Temperaturfehler in der polaren Stratosphäre zu einer überschätzten Dehydrierung in diesem Bereich (s. Kapitel 5.2).

Studien mit passiven Spurenstoffen wie ^{14}C haben gezeigt, dass starke Gradienten mit dem rein Lagrangeschen Transportschema ATTILA deutlich besser erhalten werden als mit dem semi-Lagrangeschen Advektionsschema (Reithmeier, 2001). Inwieweit dieses Verhalten auf die Wasserdampfverteilung übertragbar ist und sich der eben beschriebene Feuchtefehler im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre auf die numerischen Eigenschaften des semi-Lagrangeschen Transportschemas zurückführen lässt, ist Gegenstand dieses Kapitels.

Zur Beantwortung dieser Frage werden die beiden Modellexperimente E4/SLT und E4/ATTILA miteinander verglichen. In der Simulation E4/SLT wurden spezifische Feuchte und Wolkenwasser mit dem semi-Lagrangeschen Transportschema (SLT) transportiert, während in dem Sensitivitätsexperiment E4/ATTILA das rein Lagrangesche Advektionsschema ATTILA verwendet wurde (zur Experimentbeschreibung siehe Kapitel 4.2). Um spezifische Feuchte und Wolkenwasser mit ATTILA transportieren zu können, waren zunächst einige Erweiterungen zu ATTILA notwendig, die ebenfalls bereits in Kapitel 4.2 beschrieben wurden. Der nächste Abschnitt beschreibt den Einfluss des Transportschemas auf die modellierten Verteilungen von Wasserdampf und Wolkenwasser. Veränderungen in der Wasserdampf- und Wolkenwasserver-

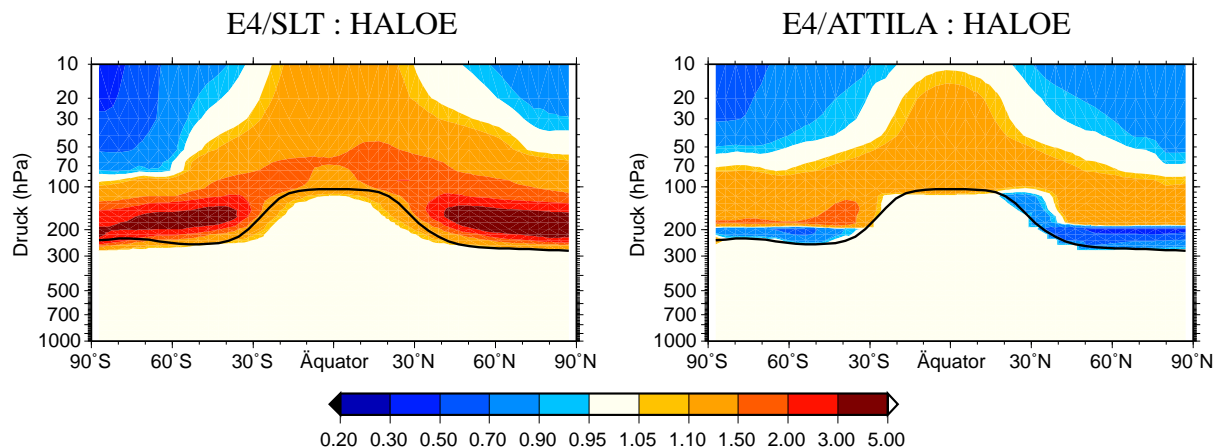


Abbildung 6.1: Verhältnis zwischen dem Wasserdampfmischungsverhältnis in E4/SLT und HALOE-Satellitendaten (links, M. Ponater, persönliche Mitteilung) bzw. E4/ATTILA und HALOE-Satellitendaten (rechts). Dargestellt ist ein Jahresmittelwert. Die fett eingezeichnete Linie markiert die klimatologische Tropopausehöhe in E4/ATTILA.

teilung beeinflussen als Eingangsparameter für die Strahlungsrechnungen auch den Strahlungshaushalt und die modellierte Temperaturverteilung. Mit diesen Rückkopplungseffekten befasst sich Abschnitt 6.2.

6.1 Wasserdampf und Wolkenwasser

Abbildung 6.2 vergleicht die zonal und klimatologisch gemittelte Wasserdampfverteilung der beiden Modellsimulationen E4/ATTILA und E4/SLT für die Monate Januar und Juli. Die deutlichsten Unterschiede treten im Bereich der Tropopause und der extratropischen untersten Stratosphäre sowie in der winterlichen polaren Stratosphäre der Südhemisphäre auf. In der Simulation E4/ATTILA zeigt die Wasserdampfverteilung im extratropischen Tropopausenbereich einen deutlich stärkeren vertikalen als auch meridionalen Gradienten als in E4/SLT. Der Übergang zwischen Troposphäre und Stratosphäre, d.h. der Verlauf der Tropopause, ist in E4/ATTILA klar zu erkennen. In E4/SLT wird dagegen der Wasserdampfgradient im Tropopausenbereich durch die numerische Diffusion des semi-Lagrangeschen Transportschemas unrealistisch stark abgeschwächt. Folglich liegen die Wasserdampfwerte im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre zwischen 250 und 150 hPa in E4/ATTILA deutlich unterhalb der Werte in E4/SLT. Die Differenzen betragen in diesem Höhenbereich in der jeweiligen Sommerhemisphäre -15 bis -30 ppmv, was einer Abnahme von mehr 70% entspricht. Generell ist der stratosphärische Wasserdampfgehalt in E4/ATTILA um etwa 1 ppmv geringer als in E4/SLT. Im Januar betragen die minimalen Wasserdampfwerte oberhalb der tropischen Tropopause in E4/ATTILA zwischen 3 und 4 ppmv, während in E4/SLT das Minimum bei 4 bis 5 ppmv liegt. Im Juli ist das lokale Minimum oberhalb der tropischen Tropopause in E4/SLT nicht mehr zu erkennen. In E4/ATTILA ist dieses Minimum dagegen weiterhin vorhanden, wenn auch nicht mehr so ausgeprägt wie im Januar.

Im Gegensatz zur restlichen Stratosphäre treten in E4/ATTILA in der südhemisphärischen polaren Stratosphäre während der Wintermonate (Juli) höhere Wasserdampfwerte auf als in E4/SLT: Während in E4/SLT die polare Stratosphäre aufgrund der niedrigen Temperaturen bis auf Wer-

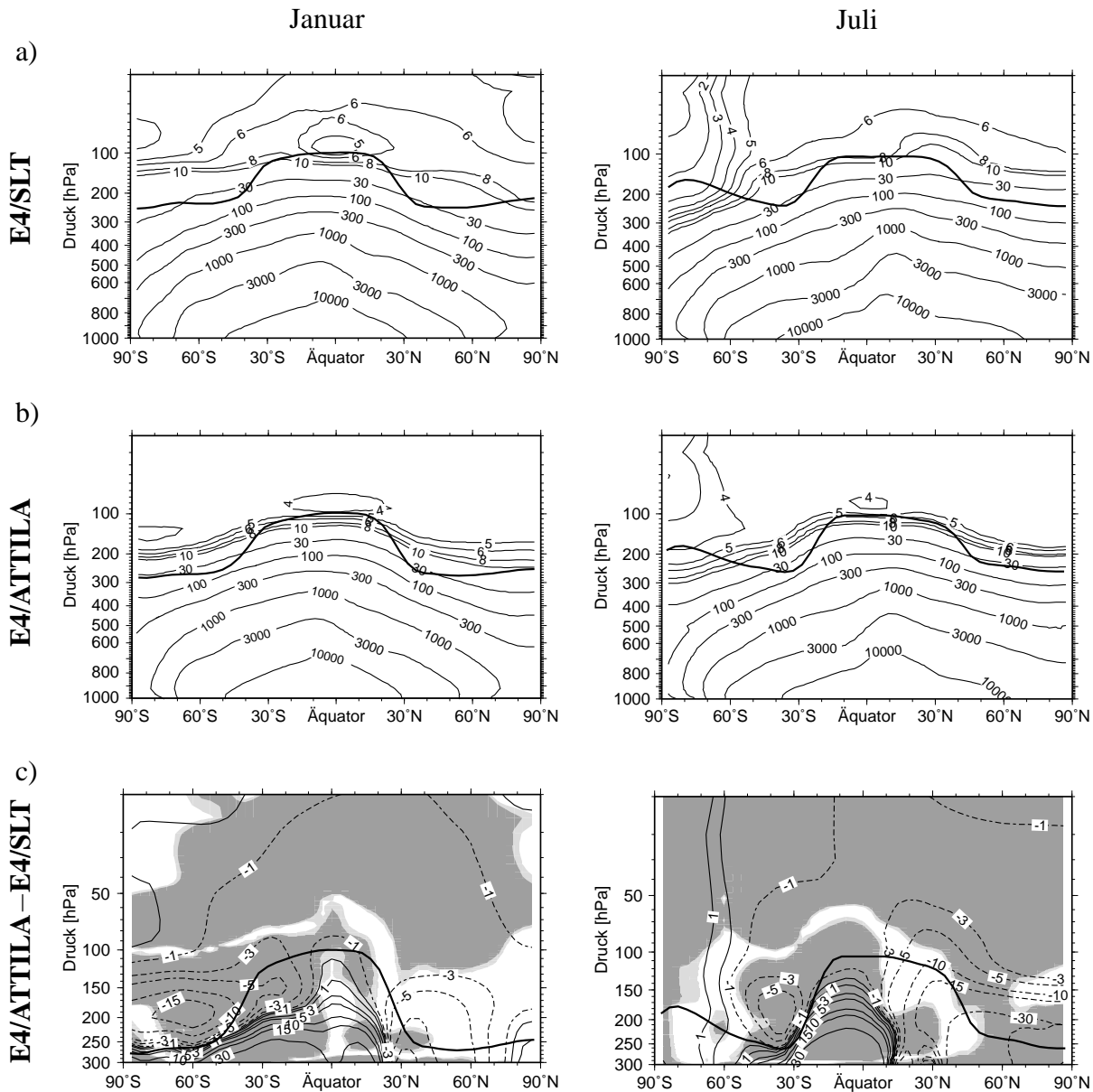


Abbildung 6.2: Zonal und klimatologisch gemittelt Wasserstoffmischungsverhältnis für Januar (links) und Juli (rechts) [ppmv]. a) E4/SLT, b) E4/ATTILA, c) Differenz E4/ATTILA-E4/SLT für den Ausschnitt 10 bis 300 hPa. Die fett eingezeichnete Linie markiert die für den jeweiligen Monat und die jeweilige Modellversion klimatologisch gemittelt Tropopausenhöhe, in c) ist die Tropopausenhöhe aus E4/ATTILA eingezeichnet. Die helle (dunkle) Schattierung markiert Gebiete, in denen die Differenzen auf dem 95% (99%)-Niveau statistisch signifikant sind (t-Test).

te unter 1 ppmv dehydriert wird, liegt in E4/ATTILA das Wasserdampfverhältnis in diesem Bereich um mehr als 1-2 ppmv über den Werten in E4/SLT. Dies entspricht einer Wasserdampfzunahme von mehr als 70%. Die Ursache für diese Wasserdampfzunahme liegt in der Temperaturzunahme in der winterlichen polaren Stratosphäre (s. Abb. 6.5). Desweiteren zeigt die Simulation E4/ATTILA im Bereich der oberen tropischen und subtropischen Troposphäre eine Zunahme des Wasserdampfverhältnisses um bis zu 10 bis 30 ppmv (entspricht 10-30%). Diese Zunahme ist auf einen leichten Temperaturanstieg in diesem Bereich von etwa 1 K zurückzuführen (s. Abb. 6.5). Ansonsten unterscheidet sich die Struktur der troposphärischen Wasserdampfverteilung in E4/ATTILA kaum von der in E4/SLT. Mit einigen wenigen

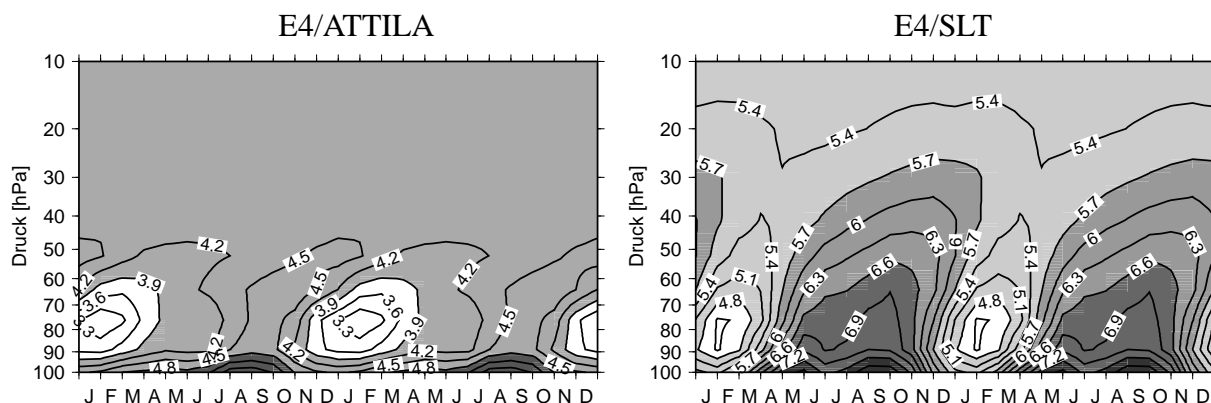


Abbildung 6.3: Mittlerer Jahresgang des Wasserdampfmischungsverhältnisses [ppmv] zwischen 10°N und 10°S in Abhängigkeit von der Höhe, „Tape Recorder“, für E4/ATTILA (links) und E4/SLT (rechts).

Ausnahmen sind die Änderungen der stratosphärischen Wasserdampfverteilung statistisch signifikant.

Auf der rechten Seite von Abbildung 6.1 ist das Verhältnis zwischen dem Wasserdampfmischungsverhältnis in E4/ATTILA und HALOE-Satellitendaten als Funktion der geographischen Breite und der Höhe dargestellt. Besonders im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre zeigt sich ein deutlich anderes Muster als in der linken Abbildung. Die Modellergebnisse stimmen nun weitaus besser mit Beobachtungsdaten überein, in einigen Bereichen der untersten extratropischen Stratosphäre unterschätzt E4/ATTILA die HALOE-Beobachtungen sogar, wobei berücksichtigt werden muss, dass die HALOE-Messungen im Tropopausenbereich zunehmend ungenauer werden. Im Bereich der südhemisphärischen polaren Stratosphäre fällt der Unterschied zwischen Modellergebnissen und Beobachtungen nun deutlich geringer aus. Dies ist auf die bereits erwähnte Tatsache zurückzuführen, dass die Dehydrierung der südhemisphärischen polaren Stratosphäre aufgrund der höheren Temperaturen in E4/ATTILA nicht mehr so stark ausfällt wie in E4/SLT. Die Verwendung des rein Lagrangeschen Transportmodells ATTILA führt folglich zu einer drastischen Verringerung des Feuchtefehlers in der extratropischen untersten Stratosphäre.

Abbildung 6.3 zeigt den mittleren Jahresgang des Wasserdampfmischungsverhältnisses in den Tropen oberhalb von 100 hPa, den sogenannten „Tape Recorder“, für E4/ATTILA und E4/SLT. Qualitativ zeigen beide Modellsimulationen in der unteren Stratosphäre einen vergleichbaren Jahresgang mit niedrigen Wasserdampfmischungsverhältnissen im Winter/Frühjahr und hohen Mischungsverhältnissen in den Monaten August/September. Dieser Jahresgang ist mit dem Jahresgang der tropischen Tropopausentemperatur verbunden. Wie bereits in den vorherigen Abbildungen zu erkennen war, liegen die stratosphärischen Wasserdampfwerte in E4/ATTILA etwa 1 bis 2 ppmv unterhalb derer in E4/SLT. Außerdem zeigt die Simulation E4/ATTILA oberhalb von etwa 50 hPa eine sehr konstante Wasserdampfverteilung ohne saisonale Variabilität, während in E4/SLT auch oberhalb dieses Niveaus noch ein Jahresgang zu erkennen ist. Der „Tape Recorder“, also der zeitliche Verlauf des Wasserdampfsignals in der tropischen Stratosphäre, gibt Auskunft über die Geschwindigkeit der aufsteigenden Luftbewegungen in der Stratosphäre. In E4/SLT propagiert das Wasserdampfsignal aus der untersten Stratosphäre weitaus schneller nach oben als in E4/ATTILA. Es ist davon auszugehen, dass dieser Unterschied nicht auf eine veränderte atmosphärische Zirkulation in E4/ATTILA, sondern größtenteils auf die numerische Diffusion des semi-Lagrangeschen Transportschemas zurückzuführen ist. Dieses

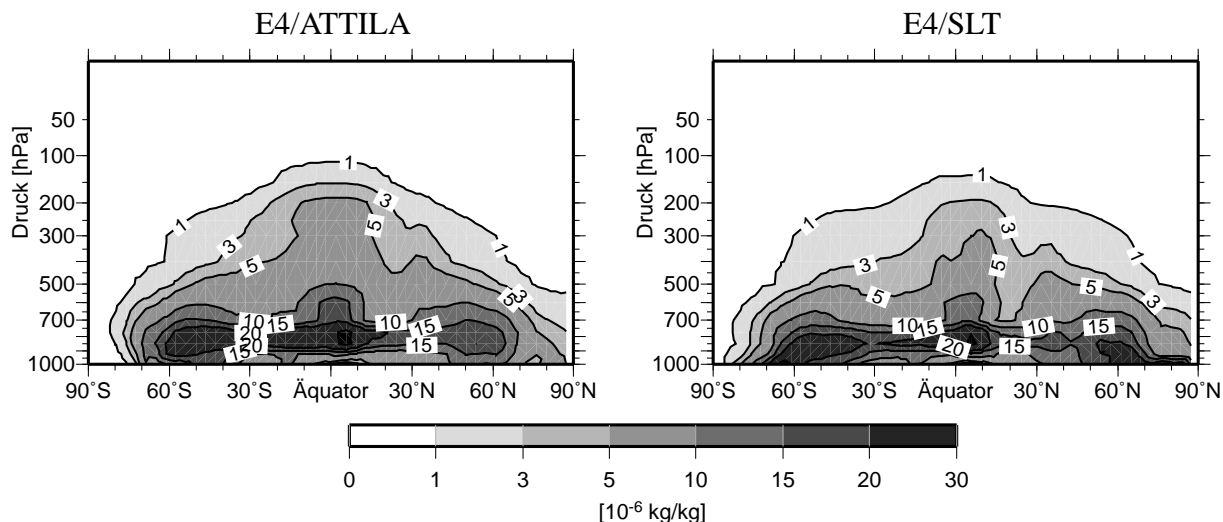


Abbildung 6.4: Zonal und klimatologisch gemittelte Verteilung des Wolkenwassergehalts (flüssig und fest) in Abhängigkeit von der Höhe und der geographischen Breite für E4/ATTILA (links) und E4/SLT (rechts). In der Abbildung sind Jahresmittelwerte gezeigt.

Ergebnis stimmt mit Studien von Eluszkiewicz et al. (2000) überein, die besagen, dass das simulierte Alter der Luft empfindlich von der Wahl des Transportschemas abhängt. Eluszkiewicz et al. (2000) testeten u.a. das semi-Lagrangesche Transportschema von Williamson und Rasch (1994) und zwei rein Lagrangesche Transportschemata. Dabei zeigte das semi-Lagrangesche Transportschema die jüngsten und weitaus unrealistischsten Altersverteilungen, was mit großer Wahrscheinlichkeit auf die numerische Diffusion zurückzuführen ist. Die Ergebnisse mit weniger diffusiven Transportschemata waren dagegen durchaus realistisch. Berechnungen zum Alter der stratosphärischen Luft in ATTILA sind in Reithmeier (2001) zu finden.

Neben dem Vertikaltransport bestimmt auch die horizontale Vermischung zwischen Tropen und Extratropen die Ausbreitung des Wasserdampfsignals in der tropischen Stratosphäre. In Kapitel 5.2 wurde bereits diskutiert, dass die beobachtete subtropische Transportbarriere in ECHAM4 zu schwach ausgeprägt ist. Nach den bisherigen Ergebnissen dieser Arbeit und der Arbeit von Reithmeier (2001) ist dies nicht auf das verwendete Transportschema, sondern auf die Modelldynamik zurückzuführen. Diese Annahme ist in Übereinstimmung mit der konstanten Wasserdampfverteilung oberhalb von 50 hPa in E4/ATTILA: Tropische Luftmassen mischen sich beim Aufsteigen mit extratropischen Luftmassen. Dabei verwischt sich der „Tape Recorder“-Effekt. Aufgrund des schnelleren Vertikaltransports in E4/SLT verwischt sich der „Tape Recorder“-Effekt langsamer und der Jahresgang des Wasserdampfverhältnisses in den Tropen verschwindet in E4/SLT erst oberhalb von 20 hPa.

Neben der spezifischen Feuchte wurde in der Simulation E4/ATTILA auch das Wolkenwasser mit ATTILA transportiert. Abbildung 6.4 zeigt die zonal und klimatologisch gemittelte Verteilung des Wolkenwassergehalts in Abhängigkeit von der Höhe und der geographischen Breite für E4/ATTILA und E4/SLT. In Abbildung 6.4 ist zu erkennen, dass die Verteilungen des Wolkenwassergehalts in E4/ATTILA und E4/SLT qualitativ vergleichbar sind. Beide Simulationen zeigen einen hohen Wolkenwassergehalt über weite Bereiche in niedrigen und mittleren Breiten zwischen etwa 900 und 750 hPa, mit einem lokalen Maximum etwas nördlich des Äquators. Mit zunehmender Höhe und in Richtung der Pole nimmt in beiden Verteilungen der Wolkenwassergehalt ab. Oberhalb von 700 hPa zeigt E4/ATTILA in den Tropen und Subtropen allgemein

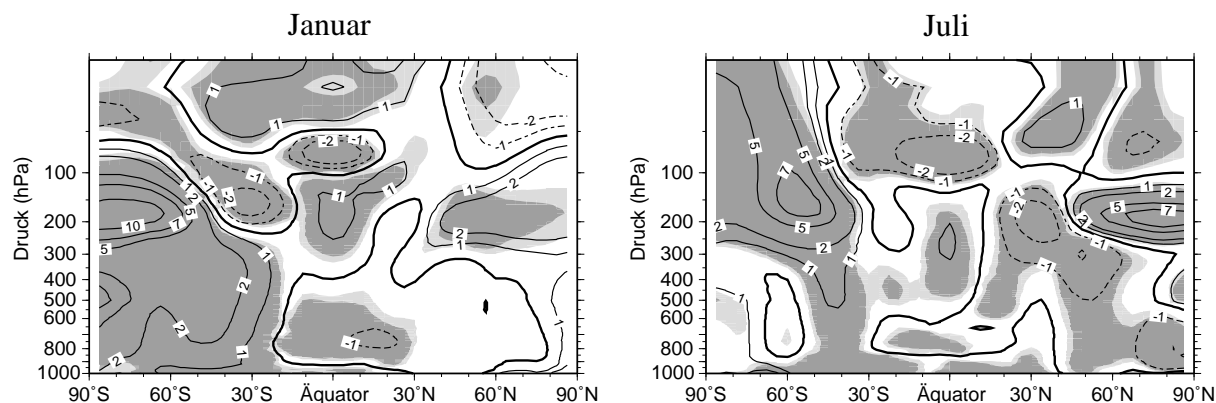


Abbildung 6.5: Differenz der zonal und klimatologisch gemittelten Temperatur zwischen E4/ATTILA und E4/SLT in Abhängigkeit der geographischen Breite und der Höhe für Januar (links) und Juli (rechts). Die fett eingezeichnete Linie markiert den Übergang zwischen positiven und negativen Differenzen. Die helle (dunkle) Schattierung markiert Gebiete, in denen die Differenzen auf dem 95% (99%)-Niveau statistisch signifikant sind (t-Test).

höhere Werte als E4/SLT. Dies hängt mit dem leicht erhöhten Wasserdampfgehalt in den tropischen Regionen in E4/ATTILA zusammen. Größere Unterschiede treten in hohen Breiten in der unteren Troposphäre auf. In diesen Bereich ist der Wolkenwassergehalt in E4/ATTILA deutlich geringer als in E4/SLT. Diese Differenzen sind höchstwahrscheinlich auf das Problem der leeren Gitterboxen zurückzuführen. Wie in Abschnitt 4.2 bereits erwähnt wurde, werden leere Gitterboxen im Fall von Wolkenwasser im Gegensatz zur spezifischen Feuchte nicht aufgefüllt, da der Wolkenwassergehalt im Vergleich zur spezifischen Feuchte sehr inhomogen verteilt ist. Inwieweit die Unterschiede in der oberen Troposphäre auf einen veränderten hydrologischen Kreislauf oder auf die Verwendung eines linearen Ansatzes bei der Übertragung der Mischungsverhältnisse von den Luftpaketen auf das ECHAM-Gitter (und umgekehrt) zurückzuführen sind, kann an dieser Stelle nicht abschließend geklärt werden.

6.2 Temperatur und Tropopause

Die im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Veränderungen der Wasserdampf- und Wolkenwasserverteilung aufgrund der unterschiedlichen Transportschemata wirken sich über die Strahlung auf die modellierte Temperaturverteilung aus, die wiederum auf spezifische Feuchte und Wolkenwassergehalt zurückwirkt.

In Abbildung 6.5 ist die Temperaturdifferenz zwischen E4/ATTILA und E4/SLT für die Monate Januar und Juli dargestellt. Die größten Temperaturänderungen treten im Bereich der untersten Stratosphäre in den Extratropen auf, d.h. in den Regionen, in denen das Standardmodell den größten Kältefehler aufweist (s. Kapitel 5.1.1). Verbunden mit dem Rückgang des Wasserdampfgehalts sind die Temperaturen in diesen Regionen in E4/ATTILA um mehrere Kelvin wärmer als in E4/SLT. Die größte Erwärmung tritt dabei in der jeweiligen Sommerhemisphäre auf, wobei die Temperaturzunahme in der Südhemisphäre mit mehr als +12 K deutlicher stärker ausfällt als in der Nordhemisphäre mit +7 K. Auf der Südhemisphäre umfasst diese Erwärmung während der Wintermonate (Juli) die gesamte Stratosphäre in mittleren und hohen Breiten, wobei die Temperaturzunahme in der Polarregion bei 2 bis 5 K liegt. Auf der Nord-

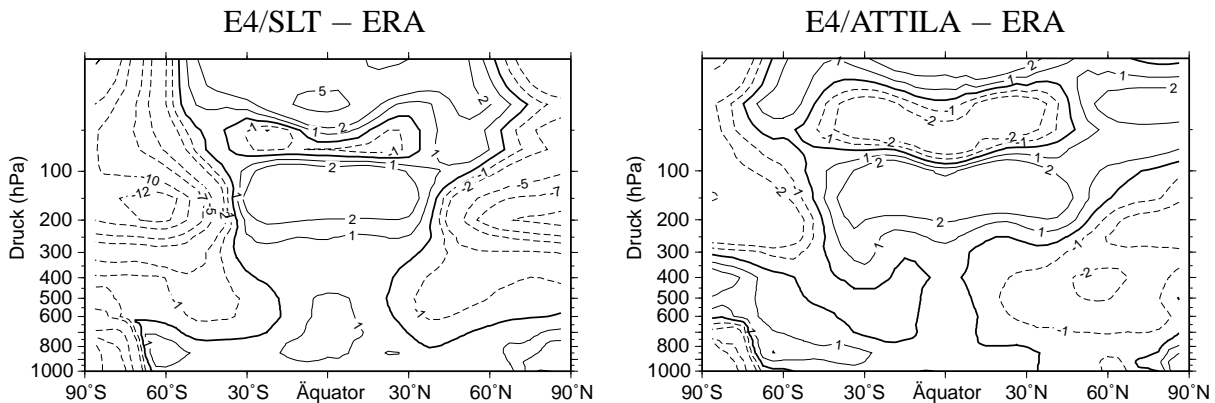


Abbildung 6.6: Differenz der zonal und klimatologisch gemittelten Temperatur zwischen E4/SLT und ERA-Daten (links) und zwischen E4/ATTILA und ERA-Daten (rechts) in Abhängigkeit der geographischen Breite und der Höhe. Gezeigt sind Jahresmittelwerte. Die fett eingezeichnete Linie markiert den Übergang zwischen positiven und negativen Differenzen.

halbkugel beschränkt sich die Erwärmung im Winter wie im Sommer auf die extratropische untere Stratosphäre, fällt aber mit etwas mehr als 2 K geringer aus als im Sommer. Oberhalb der tropischen Tropopause sind die Temperaturen in E4/ATTILA etwa 2 (Januar) bzw. 5 K (Juli) niedriger als in E4/SLT. In weiten Teilen der Troposphäre liegen die Temperaturdifferenzen zwischen 1 bis 2 K. Bis auf wenige Ausnahmen sind alle Temperaturänderungen größer als 1 K statistisch signifikant.

Abbildung 6.6 vergleicht die langjährig und zonal gemittelte Temperaturverteilung für E4/SLT (links) und E4/ATTILA (rechts) mit ERA-Daten. Gezeigt sind Jahresmittelwerte. Der Vergleich zwischen E4/SLT und ERA zeigt die bereits in Kapitel 5.1.1 erläuterten Unterschiede, wobei insbesondere wieder der Kältefehler im extratropischen Tropausenbereich (Cold Bias) auffällt. Im Gegensatz dazu ist dieser Kältefehler in E4/ATTILA deutlich reduziert. Wie in Abbildung 6.6 (rechts) zu erkennen ist, beträgt die Differenz zwischen der modellierten Temperaturverteilung in E4/ATTILA und den Beobachtungen im Bereich der extratropischen Tropopause nur noch etwa -2 K anstatt -10 K. Desweiteren zeigt E4/ATTILA eine verbesserte Temperaturverteilung in der polaren Stratosphäre. Insbesondere in der antarktischen Stratosphäre stimmen die Modellergebnisse nun besser mit den ERA-Daten überein als in E4/SLT. Im Bereich der Tropen zeigt der Vergleich zwischen E4/ATTILA und ERA-Daten das bereits bekannte Dipolmuster mit positiven Differenzen in der oberen Troposphäre und negativen Differenzen in der unteren Stratosphäre.

Die in Abbildung 6.5 gezeigte Temperaturabnahme oberhalb der tropischen Tropopause ist nicht auf eine veränderte Wasserdampfverteilung in E4/ATTILA zurückzuführen, da der Wasserdampfgehalt in diesem Bereich geringer ist als in E4/SLT. Diese Abkühlung wird durch eine verstärkte Zirrusbildung in der tropischen oberen Troposphäre in E4/ATTILA verursacht. Zirren in der oberen Troposphäre absorbieren an ihrer Unterseite die langwellige Ausstrahlung der tiefer liegenden Atmosphärenschichten und emittieren entsprechend der niedrigen Temperaturen an ihrer Oberseite weniger Strahlung in Richtung Weltraum und wirken somit abkühlend auf die darüberliegenden Atmosphärenschichten (Slingo und Slingo, 1988). In Übereinstimmung mit der Zunahme des Wolkenwassergehalts in den Tropen oberhalb von 700 hPa in E4/ATTILA gegenüber E4/SLT (s. Abb. 6.4) nimmt der Bedeckungsgrad in E4/ATTILA gegenüber E4/SLT im tropischen Tropausenbereich um etwa 25% zu. Diese Zunahme des

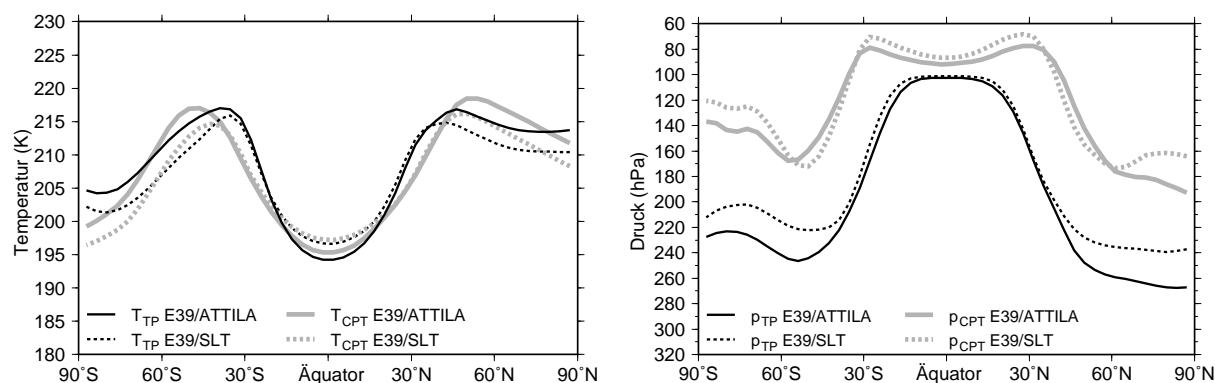


Abbildung 6.7: Zonal gemittelte Temperatur (links) und Höhe (rechts) der thermischen Tropopause (schwarz, dünne Linien) und der Cold Point-Tropopause (grau, fette Linien) in E4/ATTILA (durchgezogene Linien) und E4/SLT (gestrichelte Linien). Dargestellt sind Jahresmittelwerte.

Bedeckungsgrades hat Auswirkungen auf den Strahlungshaushalt am Oberrand der Atmosphäre. Die global gemittelte Strahlungsbilanz am Oberrand der Atmosphäre ist im Jahresmittel in E4/ATTILA mit -0.5 W m^{-2} nahezu ausgeglichen. Allerdings fallen die global gemittelten Einzelkomponenten der Strahlungsbilanz, also die absorbierte Solarstrahlung (engl. absorbed solar radiation, ASR) und die langwellige Ausstrahlung (engl. outgoing longwave radiation, OLR), mit $+224.46 \text{ W m}^{-2}$ (ASR) und -224.96 W m^{-2} (OLR) in E4/ATTILA geringer aus als beobachtet. Die beobachteten Strahlungsflüsse am Oberrand der Atmosphäre aus ERBE-Satellitendaten („Earth Radiation Budget Experiment“, z.B. Barkstrom (1984)) betragen $+240.3 \text{ W m}^{-2}$ (ASR) und -235.3 W m^{-2} (OLR).

Typischerweise werden im Modell verschiedene Anpassungsparameter so gewählt, dass die modellierten Strahlungsbilanzen am Oberrand der Atmosphäre mit den ERBE-Werten übereinstimmen. Diese Anpassungsparameter betreffen vor allem die Wolkenbildung, die einen großen Einfluss auf den Strahlungshaushalt besitzt. So wurde in der Modellversion E39 im Vergleich zum Standardmodell mit 19 vertikalen Schichten u.a. die Sedimentationsgeschwindigkeit von Eiskristallen erniedrigt und somit die Lebensdauer von Eiswolken erhöht. Diese Anpassung war notwendig, da die Erhöhung der vertikalen Auflösung von 19 auf 39 Modellschichten in ECHAM4 zu einer Abnahme des Wolkenbedeckungsgrades und dadurch zu einer stärkeren thermischen Ausstrahlung in den Tropen geführt hatte (Land, 1999). Nach dem bisher Gesagten ist davon auszugehen, dass eine Erhöhung der Sedimentationsgeschwindigkeit von Eiskristallen in E4/ATTILA zu einer Abnahme des Bedeckungsgrades in der tropischen oberen Troposphäre und dadurch auch zu einer erhöhten langwelligen Ausstrahlung am Oberrand der Atmosphäre führen würde. Eine Neueinstellung der unterschiedlichen Wolkenparameter erfordert langwierige Sensitivitätsrechnungen und geht deswegen über den Rahmen dieser Arbeit hinaus. Desweiteren ist nicht zu erwarten, dass sich die grundlegenden Erkenntnisse aus dieser Sensitivitätsstudie bzgl. der Wasserdampfverteilung durch eine Neukonfiguration des Strahlungshaushaltes verändern. Diese Arbeiten sollen zu einem späteren Zeitpunkt durchgeführt werden.

In Abbildung 6.7 sind die zonal gemittelte Temperatur (links) und Höhe (rechts) der thermischen Tropopause und des Cold Points für E4/ATTILA und E4/SLT dargestellt. In den Tropen sind Tropopausentemperatur und Cold Point-Temperatur nahezu identisch. In subtropischen und polaren Breiten ist die Cold Point-Temperatur generell niedriger als die Tropopausentemperatur, während es in mittleren Breiten umgekehrt ist. In E4/ATTILA liegt im Bereich der Tropen sowohl die Temperatur der thermischen Tropopause als auch die Cold Point-Temperatur etwa

um 3 K unterhalb der jeweiligen Werte in E4/SLT. Im Gegensatz dazu treten in den Subtropen bis etwa 40° nahezu keine Unterschiede zwischen E4/ATTILA und E4/SLT auf. In mittleren und hohen Breiten zeigt sich das umgekehrte Muster zu den Tropen: In diesem Bereich ist sowohl die Tropopausentemperatur als auch die Cold Point-Temperatur in E4/ATTILA etwa 4 K höher als in E4/SLT.

Die Höhe der Cold Point-Tropopause ist generell höher als die der thermischen Tropopause (s. Abb. 6.7 rechts). Die thermische Tropopause in E4/ATTILA liegt mit Ausnahme der Tropen in allen Breitenbereichen unterhalb der Tropopause in E4/SLT, wobei die größten Unterschiede in den mittleren und hohen Breiten beider Hemisphären auftreten und bis zu 20 hPa (etwa 0.5 km) betragen. In den Subtropen sind die Unterschiede deutlich geringer. Dagegen liegt die tropische Tropopause in E4/ATTILA ein wenig oberhalb der Tropopausenhöhe in E4/SLT. Bei der Höhe der Cold Point-Tropopause sind die Unterschiede etwas vielfältiger: In hohen Breiten liegt der Cold Point in E4/ATTILA analog zur Tropopause tiefer als in E4/SLT. Die Unterschiede liegen in diesem Bereich ungefähr bei 15-20 hPa. Bei 30°N/S liegt der Cold Point in E4/ATTILA ebenfalls etwa 5-10 hPa unterhalb des Cold Points in E4/SLT. In den übrigen Gebieten liegt der Cold Point in E4/ATTILA etwas höher, wobei der Unterschied in den Tropen weniger als 5 hPa beträgt. In mittleren Breiten liegen E4/ATTILA und E4/SLT etwas weiter auseinander. Die Unterschiede in der Tropopausen- und Cold Point-Höhe zwischen E4/ATTILA und E4/SLT sind auf die veränderte Temperaturverteilung zurückzuführen, d.h. eine Erwärmung der Tropopause ist mit einem Rückgang der Tropopausenhöhe verbunden und umgekehrt.

6.3 Fazit

Die Verwendung des numerisch nicht-diffusiven, Lagrangeschen Transportschemas ATTILA anstelle des operationellen semi-Lagrangeschen Advektionsschemas zum Transport von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser im globalen Zirkulationsmodell E39 führt zu einer deutlichen Reduzierung des Feuchtefehlers in der extratropischen untersten Stratosphäre und zu einer realistischeren Simulation der Wasserdampfverteilung im Tropopausenbereich. Gleichzeitig bewirkt die veränderte Wasserdampfverteilung eine Erwärmung der unteren Stratosphäre in den Extratropen und somit eine deutliche Reduzierung des systematischen Kältefehlers (Cold Bias) in dieser Region um etwa 60 bis 70%. Damit verbunden ergibt sich eine verbesserte Darstellung der extratropischen Modelltropopause.

Allerdings zeigen die Ergebnisse der Simulation E4/ATTILA auch einen Rückgang der Temperaturen oberhalb der tropischen Tropopause um 1-2 K, was eine Verstärkung des Kältefehlers in diesem Bereich bedeutet. Diese weitere Abkühlung ist mit dem vermehrten Auftreten von Zirren in der oberen tropischen Troposphäre verbunden, was zu einer fehlerbehafteten Strahlungsbilanz in E4/ATTILA führt. Es ist davon auszugehen, dass sich diese Defizite durch eine Anpassung verschiedener modellinterner Parameter und eine Neukonfiguration des Strahlungshaushaltes sowie des hydrologischen Kreislaufs beheben lassen.

Aufgrund der in diesem Kapitel präsentierten Ergebnisse erscheint ein weiterer Einsatz von ATTILA zum Transport von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser in E39 durchaus sinnvoll, wobei zuvor die erwähnte Neukonfiguration der Strahlungsbilanz und des hydrologischen Kreislaufs durchgeführt werden muss. Aber nicht nur hinsichtlich einer Verbesserung der Modelldynamik ist der Feuchtetransport mit ATTILA möglicherweise sinnvoll. Der Cold Bias

verursacht in Klima-Chemie-Simulationen mit E39/C eine ganzjährige Bildung von PSC-II-Partikeln in beiden Hemisphären. In der realen Atmosphäre können sich in diesem Höhenbereich zwar Zirren bilden, allerdings ist anzunehmen, dass die Wolkenbildung im Modell aufgrund des Cold Bias überschätzt wird. Ein Überschätzen der PSC-Bildung hat aufgrund der heterogenen Prozessierung von Chlorverbindungen an der Oberfläche dieser Partikel auch Auswirkungen auf die lokale Ozonchemie in den Modellsimulationen (Schnadt, 2001).

Kapitel 7

Variabilität und Trends des Wasserdampfs in der UT/LS

Nachdem in Kapitel 5 die mittlere Wasserdampfverteilung in E39/C detailliert untersucht wurde, befasst sich dieses Kapitel nun mit der interannualen Variabilität sowie mit langfristigen Veränderungen des Wasserdampfs im Bereich der UT/LS. Ziel dieses Kapitels ist es, die Beiträge unterschiedlicher Prozesse wie der QBO oder der ENSO-Phase zu der modellierten Variabilität der Wasserdampfverteilung zu quantifizieren sowie die Ursachen langfristiger Veränderungen (Trends) des Wasserdampfgehalts zu identifizieren. Da in Kapitel 5 gezeigt wurde, dass die Wasserdampfverteilung stark von der modellierten Temperaturverteilung abhängt, werden in diesem Kapitel auch interannuale sowie langfristige Veränderungen der Temperaturverteilung untersucht. Die in diesem Kapitel verwendeten statistischen Auswertungsmethoden sind in Anhang C näher beschrieben.

Die im folgenden Abschnitt gezeigten Ergebnisse basieren auf zwei transienten Modellsimulationen des Zeitraums 1960 bis 1999 (CNTL_1999) bzw. 1982 bis 1999 (NOVOLC_1999) (s. Kapitel 4.1). In beiden Modellsimulationen wurden möglichst viele externe Klimaantriebe wie z.B. der 11-jährige Sonnenfleckenzyklus, die QBO, Änderungen der Treibhausgaskonzentrationen oder die Variabilität der Meeresoberflächentemperaturen berücksichtigt, um die reale Atmosphäre mit dem Modellsystem E39/C bestmöglich reproduzieren zu können. Die Modellsimulation CNTL_1999 berücksichtigt zusätzlich zu den genannten Klimaantrieben die drei großen Ausbrüche der Vulkane Agung (1963), El Chichon (1982) und Pinatubo (1991). Ein Teil der hier präsentierten Ergebnisse sind in Dameris et al. (2005) veröffentlicht.

Vulkanausbrüche beeinflussen den stratosphärischen Wasserdampfgehalt durch eine vorübergehende Erwärmung der tropischen Tropopause und einem damit verbundenen erhöhten Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre in nicht unerheblicher Weise. So stellten Joshi und Shine (2003) die Hypothese auf, dass sich vulkanische Wasserdampfstörungen in der Stratosphäre akkumulieren und damit zu einem langfristigen Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts beitragen können. Die Modellsimulation NOVOLC_1999, in welcher die Ausbrüche der Vulkane El Chichon und Pinatubo nicht berücksichtigt wurden, dient somit als Sensitivitätsexperiment, um den Einfluss von Vulkanausbrüchen sowohl auf die Temperatur- als auch auf die Wasserdampfverteilung näher bestimmen zu können.

Anschließend werden in Abschnitt 7.2 anhand einer transienten Zukunftssimulation der Jahre 2000 bis 2019 (CNTL_2019, s. Abschnitt 4.1) mögliche zukünftige Veränderungen der Tempe-

ratur- und Wasserdampfverteilung im Bereich der UT/LS diskutiert, wobei die vorgeschriebenen Treibhausgaskonzentrationen dem sog. A2-Szenario (IPCC, 2001) folgen.

Im Zusammenhang mit der Auswertung von transienten Modellsimulationen, bei denen versucht wird, die reale Atmosphäre so gut wie möglich zu reproduzieren, stellt sich die Frage, wie empfindlich gekoppelte Klima-Chemie-Modelle auf vorgeschriebene Antriebe wie z.B. die Meeresoberflächentemperaturen (SSTs) reagieren und inwieweit eine identische Wiedergabe einzelner Ereignisse zu erwarten ist. So untersuchten z.B. Braesicke und Pyle (2004) die Abhängigkeit der mit dem Unified Model modellierten Stratosphärendynamik und der modellierten Ozonverteilung von den verwendeten SSTs. Ihre Ergebnisse zeigen, dass die interannuale Variabilität des nordhemisphärischen Polarwirbels in Modellsimulationen mit klimatologisch gemittelten SSTs gegenüber Modellsimulationen, in denen die interannuale Variabilität der SSTs berücksichtigt wurde, deutlich reduziert ist und die Ozonwerte im Bereich der UT/LS infolgedessen um 2–4% geringer ausfallen. Im Hinblick auf diese Fragestellung werden die Modellergebnisse in diesem Kapitel soweit wie möglich mit Beobachtungsdaten verglichen, um zu klären, inwieweit das Modell die beobachtete Variabilität sowie allgemeine Trends, aber auch einzelne Ereignisse realistisch nachvollzieht, und um somit den deterministischen Charakter einzelner Prozesse bestimmen zu können.

7.1 Entwicklung von 1960 bis 1999

7.1.1 Temperatur

Troposphäre

Abbildung 7.1 zeigt die Änderungen der zonal gemittelten Temperatur zwischen den 1960er (Mittelwert 1960 bis 1969) und 1990er Jahren (Mittelwert 1990 bis 1999) in der Simulation CNTL_1999 für alle vier Jahreszeiten. Die durch anthropogene Aktivitäten verursachte Zunahme der Treibhausgaskonzentrationen bewirkt eine Abkühlung der Stratosphäre sowie eine Erwärmung der Troposphäre. Weite Teile der tropischen bzw. subtropischen Troposphäre sowie der mittleren Breiten der Südhemisphäre zeigen eine signifikante Temperaturzunahme, wobei die stärkste Erwärmung mit mehr als 1 K in der oberen Troposphäre (≈ 200 hPa) stattfindet. Die simulierte Zunahme der troposphärischen Erwärmung mit der Höhe ist in guter Übereinstimmung mit einer Vielzahl anderer Klimamodelle (z.B. Santer et al., 2005). Gegenwärtig wird diskutiert, ob eine solch verstärkte Erwärmung der oberen Troposphäre im Widerspruch zu Satellitenbeobachtungen steht (z.B. Douglass et al., 2004). Studien von Santer et al. (2003; 2005) haben jedoch gezeigt, dass die Unstimmigkeiten zwischen Modellrechnungen und Satellitenbeobachtungen stark von dem verwendeten Datensatz abhängig sind und höchstwahrscheinlich auf Unsicherheiten bzw. Inhomogenitäten hinsichtlich der Aufbereitung der Messdaten zurückzuführen sind.

In der mittleren und unteren tropischen Troposphäre beträgt die modellierte Temperaturzunahme 0.5–0.7 K. Zusätzlich kommt es in den mittleren und hohen Breiten der Nordhemisphäre zu einer signifikanten Temperaturzunahme in der unteren und mittleren Troposphäre. In diesen Regionen beträgt die maximale Erwärmung ebenfalls etwas mehr als 1 K. Die größte Temperaturzunahme findet dabei in den Wintermonaten (DJF) statt. In den hohen Breiten

1960 – 1990

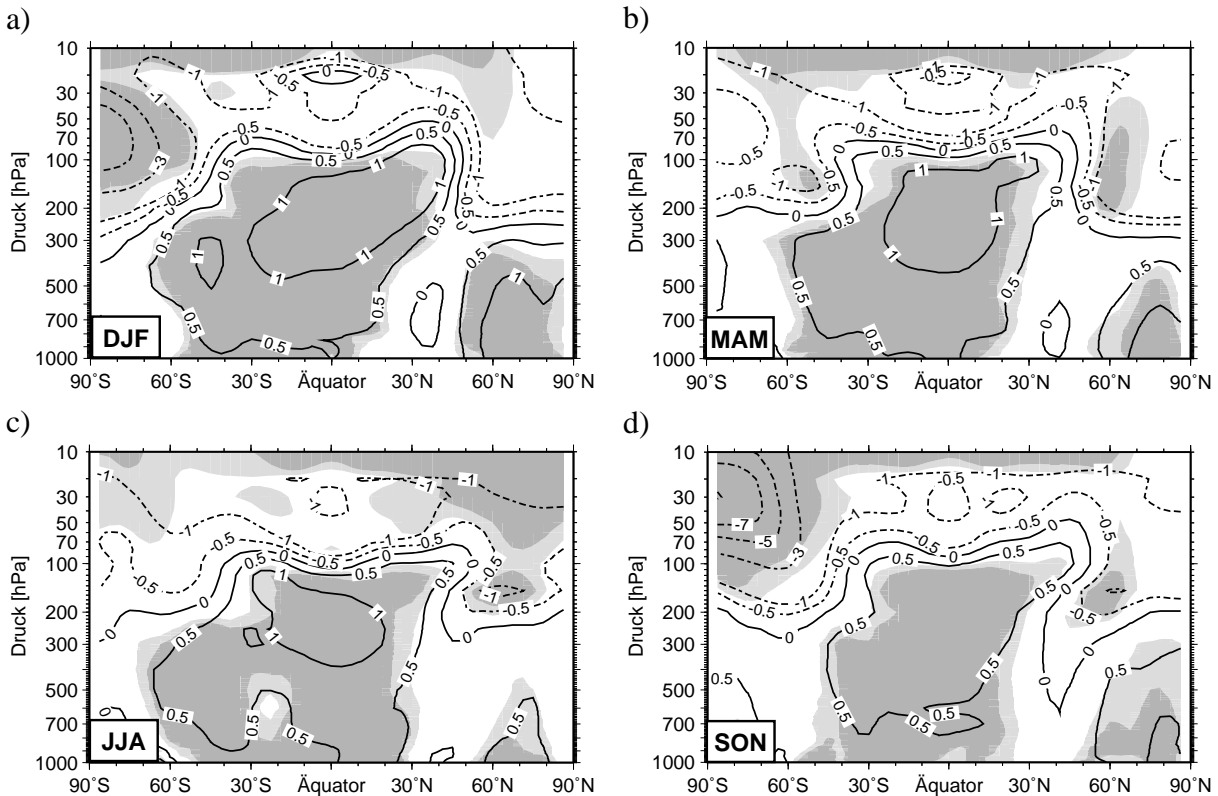


Abbildung 7.1: Änderungen der zonal gemittelten Temperatur zwischen den 1960er und 1990er Jahren der Simulation CNTL_1999, Einheit: K. a) DJF, b) MAM, c) JJA, d) SON. Die hellen (dunklen) Flächen markieren Gebiete, in denen die Änderungen auf dem 95% (99%)-Niveau statistisch signifikant sind (t-Test).

der Südhemisphäre sind die modellierten troposphärischen Temperaturänderungen nicht signifikant. Aus MSU (Microwave Sounding Unit)-Satellitenmessungen ergibt sich für die mittlere Troposphäre (4–7 km, 400–600 hPa) im Jahresmittel ein globaler Temperaturanstieg zwischen 1979 und 2001 von 0.097 ± 0.028 K/Dekade. Die stärkste Erwärmung wird dabei mit etwa 0.15–0.2 K/Dekade in den Subtropen sowie in den mittleren und hohen Breiten der Nordhemisphäre beobachtet. In hohen Breiten der Südhemisphäre wird dagegen eine Abnahme der troposphärischen Temperaturen beobachtet (Mears et al., 2003). Somit stimmt sowohl das Muster als auch die Größenordnung der modellierten Temperaturänderungen in der mittleren Troposphäre gut mit Beobachtungen überein.

Stratosphäre

In der Stratosphäre zeigt die Simulation CNTL_1999 zwischen den sechziger und neunziger Jahren im Allgemeinen eine Abkühlung, wobei die Temperaturänderung in der unteren Stratosphäre besonders in den Tropen und Subtropen nicht signifikant ist. Der stärkste Temperaturrückgang findet in der polaren unteren Stratosphäre auf der Südhemisphäre während der Frühlings- (SON) und Sommermonate (DJF) statt. Dieser markante Rückgang der Stratosphärentemperaturen um bis zu 10 K (SON) bzw. 6 K (DJF) ist mit den Veränderungen im stratosphärischen Ozon in den Polargebieten verbunden. Etwa seit Beginn der 1980er Jahre findet

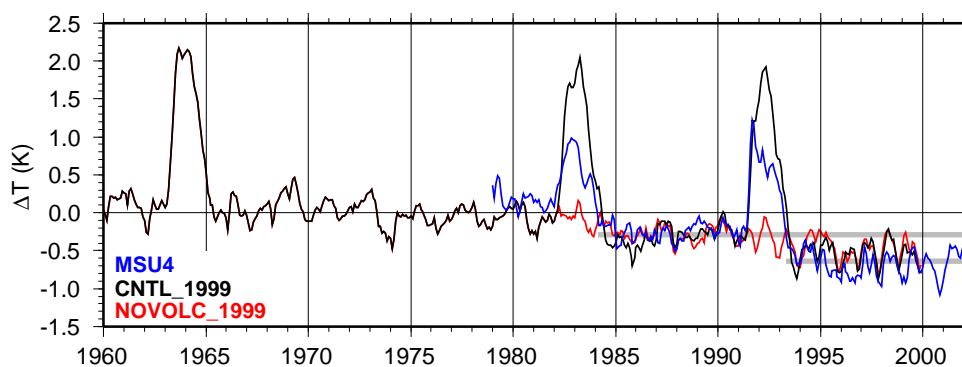


Abbildung 7.2: Zeitreihe der global gemittelten Temperaturabweichungen in der unteren Stratosphäre (15-23 km). Blau: Satellitenbeobachtungen MSU-Kanal 4, schwarz: CNTL_1999, rot: NOVOLC_1999. Für die Modellsimulationen wurde gemäß Santer et al. (1999) eine entsprechende „Pseudo-MSU-Temperatur“ berechnet. Die Abweichungen beziehen sich auf einen mittleren Jahresgang zwischen 1960 und 1980 (CNTL_1999, NOVOLC_1999) bzw. 1979 und 1998 (MSU). Die grau unterlegten Linien sollen die stufenweise Abkühlung der Stratosphäre verdeutlichen.

in polaren Breiten der Südhemisphäre jeweils während der Frühlingsmonate ein starker katalytischer Ozonabbau statt, der mit dem Begriff „Ozonloch“ bezeichnet wird. Das Auftreten des Ozonlochs ist eine Folge der FCKW-Emissionen seit Mitte der siebziger Jahre. Verbunden mit dem Anstieg der stratosphärischen Chlorbeladung (s. Abb. 4.1a) verstärkt sich das Ozonloch in der Simulation CNTL_1999 seit den achtziger Jahren zunehmend, was mit Beobachtungen übereinstimmt (Dameris et al., 2005). Der maximale Ozonrückgang in der polaren Stratosphäre tritt dabei zwischen 30 und 50 hPa auf, also in der Region mit dem stärksten modellierten Temperaturrückgang. In diesem Bereich beträgt der Ozonverlust seit den sechziger Jahren im Südfrühling etwa 30% (Dameris et al., 2005).

Randel und Wu (1999) diskutierten die Temperaturentwicklung in der polaren Stratosphäre im Zeitraum zwischen 1970 und 1993 anhand von NCEP-Temperaturanalysen. Ihre Ergebnisse zeigen eine starke Abkühlung der antarktischen Stratosphäre in den Monaten September bis Dezember mit einer maximalen Temperaturabnahme von 9 K im Höhenbereich zwischen etwa 80 und 100 hPa im November. Die vom Modell berechnete Abkühlung in der Südhemisphäre stimmt somit gut mit den Analysen überein, wobei die maximale Abkühlung anstatt zwischen 80 und 100 hPa zwischen 30 und 50 hPa simuliert wird. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im Modell der maximale Ozonabbau in 20 bis 30 hPa Höhe und nicht wie beobachtet in 50 hPa auftritt (s. Abschnitt 5.3).

Desweiteren zeigen die NCEP-Analysen eine vergleichbare Abkühlung in der polaren Stratosphäre der Nordhemisphäre zwischen Dezember und Mai, wobei die maximale Abkühlung mit 8 K im März beobachtet wird. Die in CNTL_1999 simulierte Abkühlung der nordhemisphärischen polaren Stratosphäre in den Winter- und Frühlingsmonaten fällt mit etwa 3 K (Abb. 7.1) geringer aus als in den NCEP-Daten. Allerdings sind die simulierten Temperaturänderungen in diesem Bereich nicht signifikant, was auf die hohe interannuale Variabilität der nordhemisphärischen Dynamik zurückzuführen ist.

In Abbildung 7.2 sind die Zeitreihen der global gemittelten stratosphärischen Temperaturanomalien der MSU-Satellitenbeobachtungen (Kanal 4, untere Stratosphäre) und der Modellsimulation CNTL_1999 dargestellt. Dabei wurden die Modelldaten mittels der MSU-Gewichtsfunktionen so gemittelt, dass beide Temperaturkurven direkt miteinander vergleichbar sind („Pseudo-

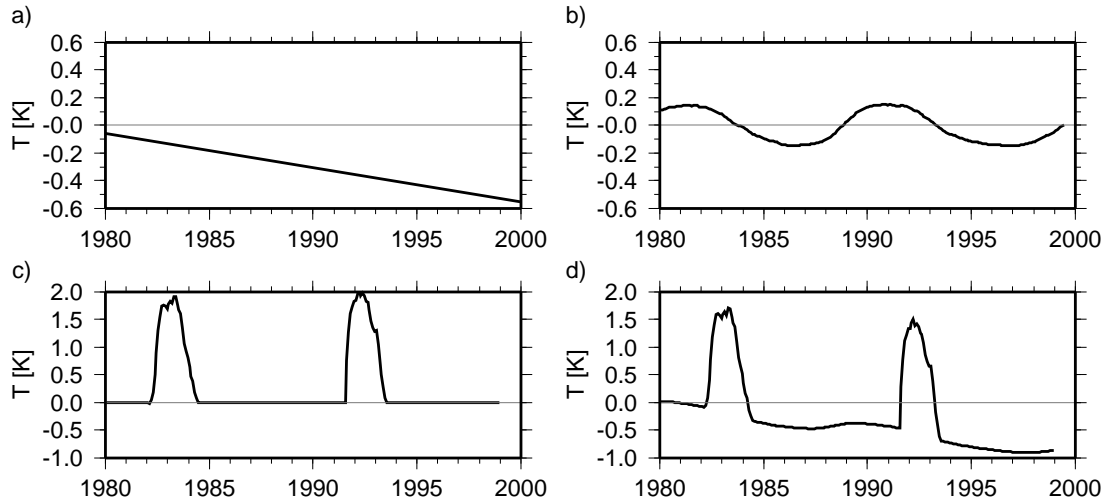


Abbildung 7.3: Überlagerung von linearer Abkühlung (a), Sonnenfleckenzyklus (b) und Erwärmung nach Vulkanausbrüchen (c) ergibt die stufenweise Abkühlung der Stratosphäre (d).

MSU-Temperatur“ gemäß Santer et al. (1999)). Anhand dieser Zeitreihen ist deutlich der vorübergehende Anstieg der stratosphärischen Temperaturen nach den Ausbrüchen der Vulkane Agung (keine Beobachtungen), El Chichon und Pinatubo zu erkennen. Dabei fällt der Temperaturanstieg in CNTL_1999 mit 2 K annähernd doppelt so stark aus wie beobachtet. Der überschätzte stratosphärische Temperaturanstieg nach einem Vulkanausbruch in CNTL_1999 wird möglicherweise dadurch hervorgerufen, dass die vorgeschriebenen zusätzlichen Heizraten, die von Kirchner et al. (1999) für die Phase nach dem Pinatuboausbruch berechnet und für die beiden anderen Vulkanausbrüche extrapoliert wurden, zu groß sind und nicht den realen Heizraten entsprechen. Als weitere Ursache werden Sekundäreffekte aufgrund einer veränderten Ozonchemie diskutiert (Dameris et al., 2005).

Pawson et al. (1998) zeigten anhand von Radiosondenaufstiegen im Zeitraum zwischen 1964 und 1997, dass sich die Abkühlung der Stratosphäre auf der Nordhemisphäre nicht durch einen linearen Trend beschreiben lässt, sondern in zwei Schritten von jeweils ungefähr 0.5 K stattgefunden hat. Diese Stufen werden jeweils in der Folge des Temperaturanstiegs nach den Ausbrüchen der Vulkane El Chichon und Pinatubo beobachtet. Insbesondere nach dem Abklingen der post-Pinatubo Erwärmung werden ungewöhnlich tiefe Stratosphärentemperaturen auf der Nordhemisphäre beobachtet. Dieses Verhalten ist auch in den MSU-Daten sowohl für die Nordhemisphäre (nicht gezeigt) als auch auf globaler Basis (s. Abb. 7.2) zu erkennen. Offensichtlich ist das Modell in der Lage, die stufenweise Abkühlung der Stratosphäre realistisch zu reproduzieren. Interessanterweise zeigt die Simulation CNTL_1999 nach dem Ausbruch des Agung kein vergleichbares Muster. Dagegen scheint in der Modellsimulation CNTL_1999 Mitte der siebziger Jahre erstmals eine geringfügige Abkühlung der Stratosphäre aufzutreten.

Es drängt sich an dieser Stelle die Frage auf, welche Rolle die Ausbrüche des El Chichon und des Pinatubo bei dem stufenförmigen Kurvenverlauf spielen. Zur Beantwortung dieser Frage sind in Abbildung 7.2 zusätzlich die stratosphärischen Temperaturanomalien der Modellsimulation NOVOLC_1999 (rote Kurve) dargestellt. Interessanterweise zeigt NOVOLC_1999 in den Phasen der vulkanischen Erwärmung einen Rückgang der stratosphärischen Temperaturen, während der Temperaturverlauf nach diesen Phasen in den Simulationen NOVOLC_1999 und CNTL_1999 nahezu identisch ist. Die Modellergebnisse deuten also daraufhin, dass die Vulkanausbrüche nicht für den stufenförmigen Temperaturverlauf verantwortlich sind. Die stu-

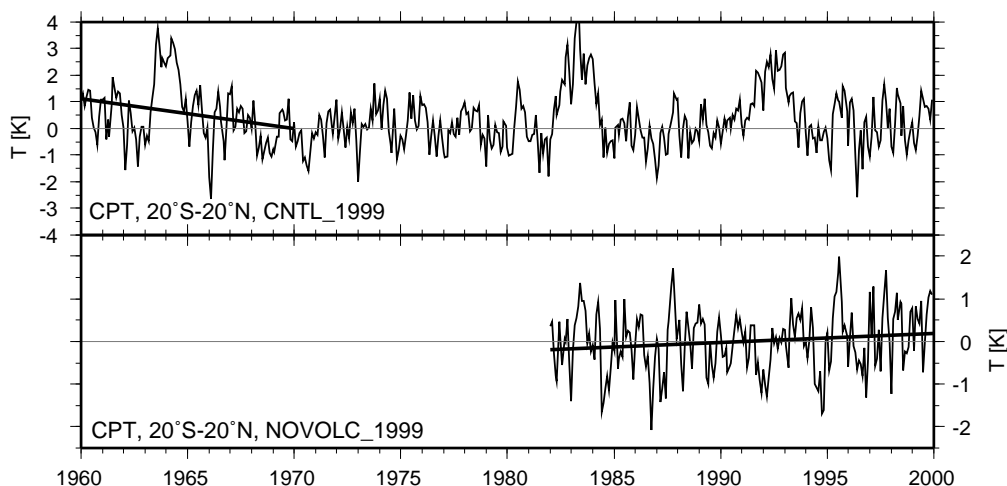


Abbildung 7.4: Zeitreihe der zonal gemittelten Cold Point-Temperatur zwischen 20°N und 20°S in CNTL_1999 (oben) bzw. NOVOLC_1999 (unten). Gezeigt sind Abweichungen zum klimatologisch gemittelten Jahresgang, Einheit: K. Zusätzlich eingezeichnet sind die linearen Änderungen zwischen 1960 und 1970 (CNTL_1999, Steigung der Regressionsgerade: -0.11 ± 0.07 K/yr) bzw. 1982 und 1999 (NOVOLC_1999, Steigung der Regressionsgerade: 0.22 ± 0.18 K/Dekade).

fenweise Abkühlung der Stratosphäre lässt sich vielmehr durch die Überlagerung eines linearen Temperaturtrends (Abb. 7.3a) und einer mit dem Sonnenfleckenzyklus verbundenen Temperaturschwingung (Abb. 7.3b) in der Stratosphäre erklären. Die Temperaturdifferenz zwischen einem Minimum und einem Maximum der solaren Aktivität beträgt etwa 0.4 K (Matthes, 2003a) und ist somit in etwa von der gleichen Größenordnung wie der aus den Modelldaten berechnete lineare Temperaturtrend von -0.025 K/yr. Der Temperaturanstieg während einem solaren Maximum wirkt somit der linearen Abkühlung der Stratosphäre entgegen und bewirkt einen nahezu horizontalen Kurvenverlauf. Im Gegensatz dazu verstärkt die Abkühlung während einem solaren Minimum den linearen Temperaturtrend, was letztendlich zu einem stufenförmigen Temperaturverlauf führt. Die beiden genannten Vulkanausbrüche ereigneten sich jeweils etwa drei Jahre vor einem solaren Minimum (Abb. 7.3c), was den Eindruck einer stufenweisen Abkühlung verstärkt.

Tropische Cold Point-Tropopause

Nachdem bislang die Veränderungen der Temperaturverteilung im Allgemeinen diskutiert wurden, folgt nun die zeitliche Entwicklung der tropischen Cold Point-Temperatur, da diese für den Wasserdampfeintrag in die Stratosphäre von grundlegender Bedeutung ist. In Abbildung 7.4 sind die Anomalien der tropischen Cold Point-Temperatur zwischen 1960 und 1999 dargestellt. In den ersten 10 Jahren weist die Zeitreihe eine signifikante Abkühlung der Cold Point-Temperatur um 0.11 ± 0.07 K/yr (die hier und im Folgenden angegebenen Unsicherheiten geben den 95%-Vertrauensbereich an). In den 1970er Jahren ist keine signifikante Änderung der tropischen Cold Point-Temperatur festzustellen. In den letzten zwei Dekaden der Simulation CNTL_1999 wird die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause stark durch die Ausbrüche der beiden Vulkane El Chichon und Pinatubo geprägt, so dass auch in diesem Zeitraum keine signifikante Veränderung festzustellen ist. Aus diesem Grund sind in Abbildung 7.4 (unten) zusätzlich die Anomalien der tropischen Cold Point-Temperatur in NOVOLC_1999 darge-

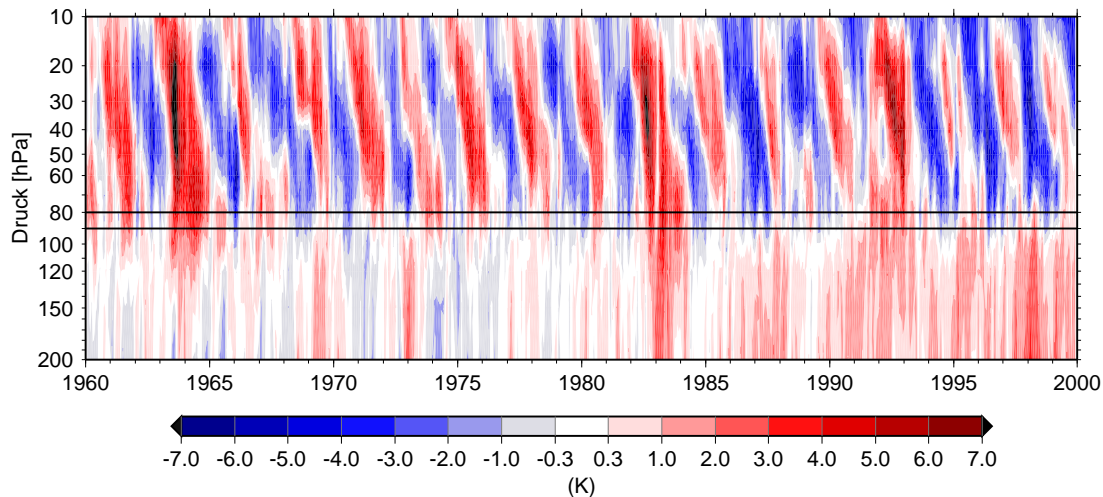


Abbildung 7.5: Temperaturanomalien am Äquator zwischen 10 und 200 hPa aus CNTL_1999, Einheit: K. Die Abweichungen beziehen sich auf einen mittleren Jahresgang zwischen 1960 und 1999. Die beiden horizontalen Linien markieren den mittleren Bereich der Cold Point-Tropopause.

stellt. Zwischen 1982 und 1999 steigt die tropische Cold Point-Temperatur in NOVOLC_1999 um 0.22 ± 0.18 K/Dekade an. Der Anstieg der Cold Point-Temperatur ist auf dem 95%-Niveau statistisch signifikant. Die Ursachen für die Abkühlung der tropischen Cold Point-Temperatur in der ersten Dekade der Simulation CNTL_1999 und für die spätere Erwärmung sind bislang noch ungeklärt. Es lässt sich jedoch vermuten, dass zu Beginn der Simulation die Abkühlung der Stratosphäre dominiert, während in den letzten zwei Dekaden die Erwärmung der Troposphäre den Verlauf der Cold Point-Temperatur bestimmt.

Untersuchungen zur Veränderungen der tropischen Tropopausentemperatur zeigen zum Teil sehr unterschiedliche Ergebnisse. So schwanken die Ergebnisse verschiedener Trendanalysen der 100 hPa-Temperatur für die Periode 1979 bis 1994 zwischen $+0.3$ und -0.5 K/Dekade (WMO, 1999). Neuere Studien, die auf Radiosondendaten beruhen und anstatt der 100 hPa-Temperaturen die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause untersucht haben, zeigen dagegen einheitlich eine Abkühlung der Tropopausentemperatur um etwa 0.5 K/Dekade (Seidel et al., 2001; Zhou et al., 2001a), was den Modellergebnissen widerspricht. Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, dass es sich bei den angegebenen Werten um zonale Mittelwerte handelt. Eine genaue Betrachtung der Temperaturtrends zeigt große Unterschiede zwischen den einzelnen Radiosondenstationen, die zudem sehr inhomogen verteilt sind. An vereinzelt Stationen wurde sogar eine Zunahme der Cold Point-Temperatur beobachtet (Zhou et al., 2001a).

Neben den eben diskutierten Temperaturtrends unterliegen die Temperaturen im Bereich der UT/LS insbesondere in den Tropen einer hohen interannualen Variabilität (s. Abb. 7.5). In der Stratosphäre wechseln sich positive und negative Temperaturanomalien mit einer mittleren Periode von etwa zwei Jahren ab. Die Temperaturschwankungen breiten sich dabei vom Modelloberrand nach unten bis in den Tropopausenbereich hinein aus. Diese Variabilität der stratosphärischen Temperatur ist mit der QBO verbunden, wobei positive (negative) Temperaturabweichungen mit der Westwind- (Ostwind-) Phase der QBO in Zusammenhang stehen. Im Tropopausenbereich betragen die QBO-induzierten Temperaturabweichungen im Mittel etwa ± 0.5 K, was mit Beobachtungen übereinstimmt (Randel et al., 2004). Desweiteren sind in Abbildung 7.5 die bereits erwähnten vulkanischen Temperaturmaxima zu erkennen.

In der tropischen oberen Troposphäre zeigen sich in Abbildung 7.5 in einzelnen Jahren starke positive Temperaturanomalien bis zu 3 K, die mit intensiven El Niño-Ereignissen verbunden sind, so z.B. in den Jahren 1972/73, 1982/83, 1987/88 oder 1997/98 (ENSO-Index s. Abb. 7.6). Diese Temperaturanomalien nehmen mit zunehmender Höhe ab und erreichen nur in Ausnahmefällen den Tropopausenbereich. Dieses Verhalten spiegelt sich auch in der Korrelation zwischen den Temperaturanomalien und dem sog. Niño3-Wert wider, der häufig als Maß für die ENSO-Phase verwendet wird und die Anomalien der Meeresoberflächentemperaturen im äquatorialen Westpazifik (5°N–5°S, 150°W–90°W) beschreibt. Im 200 hPa-Niveau beträgt der maximale Korrelationskoeffizient (Spearman-Rank-Korrelation, (Sachs, 1969)) $r=0.6$, bei einer zeitlichen Verschiebung von 3 Monaten. Im 100 hPa-Niveau beträgt der entsprechende Wert nur noch $r=0.4$, bei einer zeitlichen Verschiebung von 4 Monaten. Starke El Niño-Ereignisse wie das von 1997/98 können aber die Region bis 90 hPa beeinflussen. Ein Vergleich mit Radiosondendaten zeigt (Randel et al., 2004, Abb. 16), dass die Ausprägung der Temperaturanomalien in den Jahren 1997/98 vom Modell gut wiedergegeben wird. Die Variabilität der Temperatur im Tropopausenbereich wird somit sowohl von stratosphärischen als auch von troposphärischen Prozessen bestimmt.

7.1.2 Wasserdampf

Zur Beschreibung der modellierten Wasserdampfzeitreihen wurde das folgende nicht-lineare Regressionsmodell mittels der Methode der kleinsten Quadrate gelöst (s. Anhang C.1):

$$f(t) = \underbrace{a_0}_{(1)} + \underbrace{a_1 \sin(2\pi t + a_2)}_{(2)} + \underbrace{a_3 t}_{(3)} + \underbrace{a_4 \sin((12/26)2\pi t + a_5)}_{(4)} + \underbrace{e}_{(5)}, \quad (7.1)$$

wobei t die Zeit bezeichnet. Die einzelnen Terme beschreiben dabei den Beitrag des klimatologischen Mittelwerts (1), des Jahresgangs (2), des linearen Trends (3) und der QBO mit einer mittleren Periode von 26 Monaten (4) zur simulierten Wasserdampfzeitreihe. Der letzte Term bezeichnet das Residuum.

Troposphäre

Nachdem im vorherigen Abschnitt die interannuale Variabilität und langfristige Veränderungen der simulierten Temperaturverteilung diskutiert wurden, beschäftigt sich dieser Abschnitt nun mit der Variabilität des Wasserdampfs im Bereich der UT/LS. Wie in Kapitel 5.2 bereits erläutert wurde, sind konvektive Ereignisse hauptverantwortlich für den Transport von Wasserdampf aus der Grenzschicht in die obere Troposphäre. Im Bereich des tropischen Westpazifiks wird die Konvektion stark von der ENSO-Phase beeinflusst (s. Kapitel 2.1.3). Die ENSO-Phase wird in der Modellsimulation CNTL_1999 implizit über die vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen berücksichtigt (s. Abschnitt 4.1). In Abbildung 7.6 sind die Anomalien des modellierten tropischen Wasserdampf-mischungsverhältnisses in 200 hPa dargestellt. Zusätzlich ist ein multivariater ENSO-Index hinterlegt. Generell sind in CNTL_1999 warme ENSO-Phasen (El Niño-Ereignisse) mit positiven Anomalien des Wasserdampfgehalts in der tropischen oberen Troposphäre verbunden und umgekehrt. Besonders deutlich ist dieser Zusammenhang in den starken El Niño-Jahren von 1972/73, 1982/83 und 1997/98 mit Wasserdampf-anomalien von bis zu 30 ppmv zu erkennen. Ein Vergleich mit Beobachtungen (Newell et al., 1997; Chandra

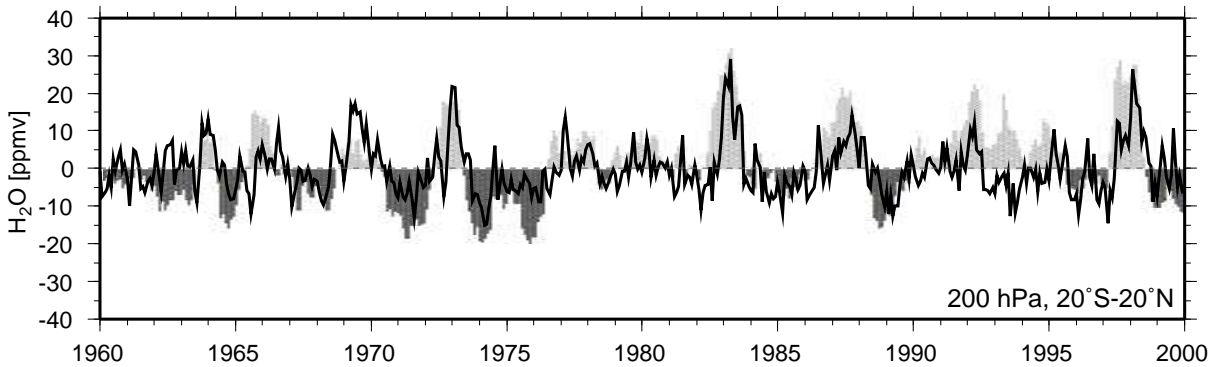


Abbildung 7.6: Zeitreihe des tropischen Wasserdampf-mischungsverhältnisses in 200 hPa aus der Simulation CNTL_1999. Der mittlere Jahresgang zwischen 1960 und 1980 sowie der lineare Trend (0.68 ± 0.06 ppmv/yr) wurden abgezogen. Einheit: ppmv. Die grau hinterlegten Flächen markieren die ENSO-Phasen: Hellgraue Schattierungen stehen für warme ENSO-Phasen (El Niño, positiver ENSO-Index), dunkelgraue Schattierungen für kalte ENSO-Phasen (La Niña, negativer ENSO-Index).

et al., 1998) zeigt, dass die Größenordnung der Wasserdampfanomalien vom Modell realistisch reproduziert wird. Als Maß für die Stärke der ENSO-Ereignisse wird wiederum der sog. Niño3-Wert verwendet. Im Mittel nimmt der Wasserdampfgehalt in der tropischen oberen Troposphäre mit den Meeresoberflächentemperaturen in diesem Bereich um 5.2 ppmv/K zu bzw. ab. Über den gesamten Zeitraum von 1960 bis 1999 lassen sich knapp 60% der simulierten Variabilität des Wasserdampfgehalts in der oberen Troposphäre durch El Niño-Ereignisse erklären.

Eine genaue Betrachtung der ENSO-Ereignisse zeigt, dass in einzelnen Jahren sowohl die räumliche Struktur als auch die Größenordnung der beobachteten Wasserdampfanomalien vom Modell nahezu identisch reproduziert wird (nicht gezeigt). Zu diesen Ereignissen gehört z.B. das El Niño-Jahr 1997/98. In anderen Jahren weichen die Modellergebnisse dagegen deutlich von den Beobachtungen ab. So zeigt die Simulation CNTL_1999 in den Jahren 1993/94 trotz positivem ENSO-Index negative Wasserdampfanomalien (s. Abb. 7.6). Offensichtlich bildet die troposphärische Modelldynamik ein so komplexes System, dass allein die Vorgabe von beobachteten Meeresoberflächentemperaturen nicht ausreicht, um den ENSO-Effekt in jedem Fall identisch zu reproduzieren. ENSO-bedingte Wasserdampfanomalien im Bereich der tropischen oberen Troposphäre besitzen somit nur einen quasi-deterministischen Charakter.

Desweiteren zeigt die Simulation CNTL_1999 verbunden mit der Erwärmung der oberen Troposphäre (s. Abb. 7.1) seit Mitte der 1970er Jahre einen statistisch signifikanten Anstieg des Wasserdampfgehalts in der tropischen oberen Troposphäre um 0.68 ± 0.06 ppmv/yr (die hier und im Folgenden angegebenen Unsicherheiten geben den 95%-Vertrauensbereich an). Ein Vergleich mit Beobachtungen ist an dieser Stelle schwierig, da keine ausreichend langen Messreihen des Wasserdampf-mischungsverhältnisses in der oberen Troposphäre zur Verfügung stehen. Die in Kley et al. (2000) für den Zeitraum 1991 bis 1997 präsentierten Zeitreihen des Wasserdampfs in der tropischen oberen Troposphäre zeigen keinerlei signifikanten Trend, allerdings ist dabei zu beachten, dass die obere Troposphäre in diesem Zeitraum stark von El Niño-Ereignissen geprägt ist.

Stratosphäre

Ausgehend von der oberen Troposphäre gelangt der Wasserdampf über die tropische Tropopause in die Stratosphäre, so dass zu erwarten ist, dass ein Großteil der Veränderungen und der Variabilität des stratosphärischen Wasserdampfgehalts mit Veränderungen bzw. Schwankungen der tropischen Tropopausentemperatur in Zusammenhang steht. In der Tat zeigt der stratosphärische Wasserdampfgehalt eine hohe Korrelation mit der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause. In 80 hPa beträgt der Korrelationskoeffizient zwischen tropischen Wasserdampfanomalien und Temperaturanomalien an der Tropopause $r=0.8$, d.h. etwa 80% der Variabilität des Wasserdampfgehalts sind auf die Tropopausentemperatur zurückzuführen. In 50 hPa beträgt der Korrelationskoeffizient immerhin noch $r=0.7$ (bei einer zeitlichen Verschiebung von zwei Monaten). Vermischungsprozesse mit Luftmassen aus höheren Breiten, die sich bereits länger in der Stratosphäre aufhalten und mit der mittleren Zirkulation aus der oberen Stratosphäre in tiefer gelegene Schichten transportiert werden, führen dazu, dass der Zusammenhang zwischen der Temperatur an der Tropopause und dem Wasserdampfgehalt mit zunehmender Höhe abnimmt.

Langfristige Veränderungen

In Abbildung 7.7a ist zunächst die zeitliche Entwicklung des Wasserdampfmischungsverhältnisses in 50 hPa in der transienten Modellsimulation CNTL_1999 zwischen 1960 und 1999 in Abhängigkeit von der geographischen Breite dargestellt. Analog dazu sind in Abbildung 7.7b die Abweichungen zum klimatologischen Mittelwert der Jahre 1960 bis 1980 gezeigt.

In Abbildung 7.7a ist zu erkennen, dass der in Kapitel 5.2 bereits beschriebene interhemisphärische Unterschied mit höheren Wasserdampfwerten auf der Nordhemisphäre über den gesamten Zeitraum von 1960 bis 1999 bestehen bleibt. Die in Abbildung 5.13c sichtbare „Nase“ höherer Wasserdampfwerte, die mit dem Sommermonsun über Asien und Nordamerika verbunden ist und in den Sommermonaten bei etwa 30°N in die untere Stratosphäre hineinragt, zeigt sich in der Simulation CNTL_1999 durchgehend jedes Jahr, allerdings mit wechselnder Intensität. Je nach Intensität ist dieses Ereignis in 50 hPa in manchen Jahren nicht mehr zu erkennen. In tiefer liegenden Niveaus (nicht gezeigt) tritt diese Periodizität deutlicher zutage.

Bei einer Betrachtung der Abweichungen des Wasserdampfgehalts zum klimatologischen Mittelwert zwischen 1960 und 1980 fällt auf (s. Abb. 7.7b), dass die Wasserdampfwerte in den sechziger Jahren zunächst abnehmen, in den siebziger Jahren annähernd konstant bleiben und erst zu Beginn der achtziger Jahre wieder zunehmen. Deutlich ist der Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts in den neunziger Jahren zu erkennen. In Abbildung 7.8 sind die linearen Änderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts in CNTL_1999 zwischen 1960 und 1970 in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Höhe dargestellt. Der lineare Trend wurde mit Hilfe einer nicht-linearen Regressionsanalyse bestimmt (Glg. (7.1), s. Anhang C.1). Der Wasserdampfgehalt nimmt in der gesamten Stratosphäre mit Ausnahme der Polargebiete signifikant ab. Die größten Änderungen treten dabei mit Werten um -0.07 ppmv/yr in der tropischen unteren Stratosphäre auf. Die Ursache dieses negativen Wasserdampftrends liegt in der bereits diskutierten Abkühlung der tropischen Cold Point-Tropopause (s. Abb. 7.4) und einem dadurch verringerten Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre. In den ersten 10 Jahren der Simulation CNTL_1999 nimmt der sogenannte „entry value“ (s. Abschnitt 5.2) um 0.07 ± 0.05 ppmv/yr ab. Folglich lässt sich die Abnahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts vollständig mit der simulierten Abkühlung der tropischen Cold Point-Tropopause erklären.

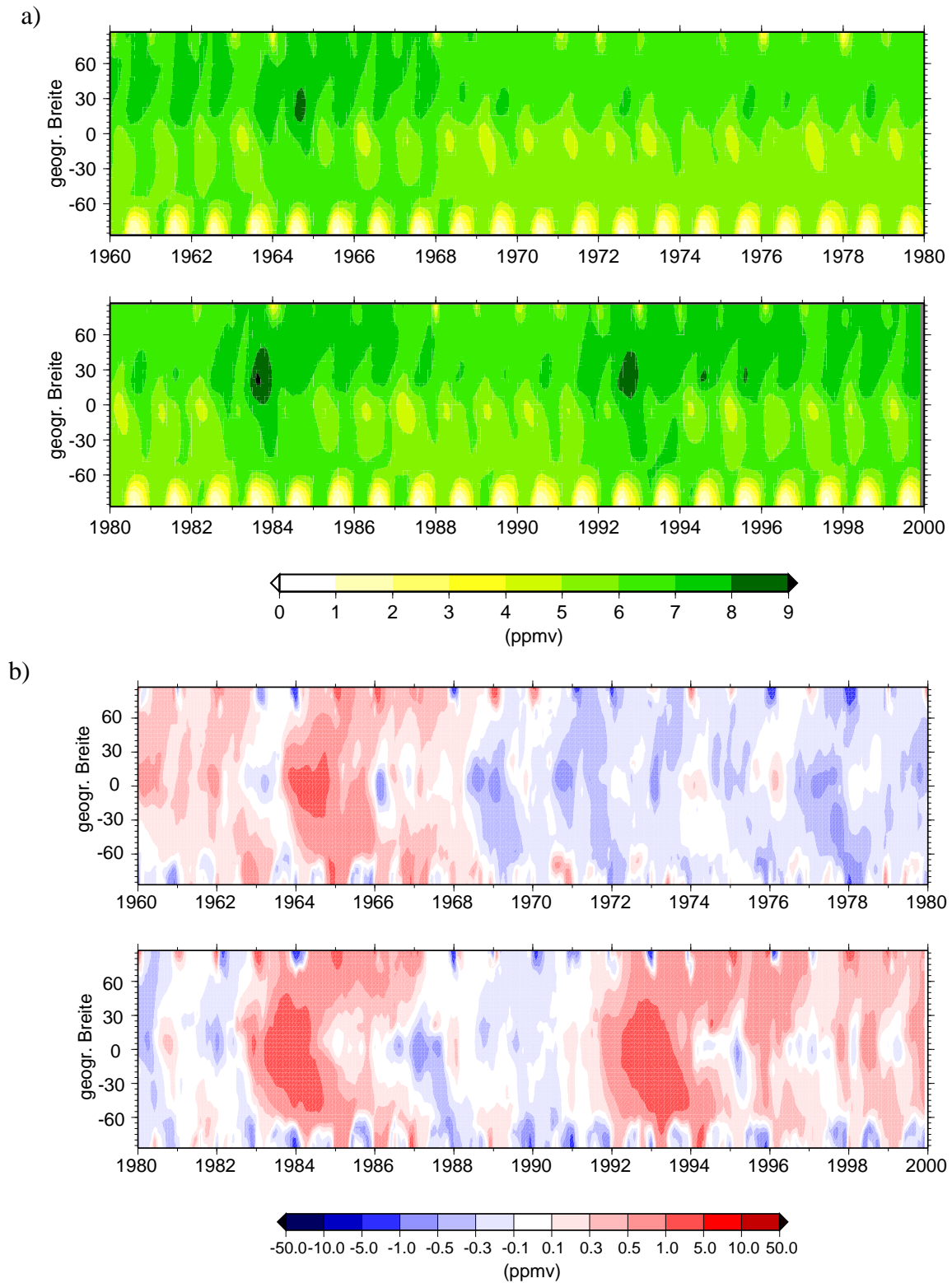


Abbildung 7.7: Zeitreihe des zonal gemittelten Wasserdampfverhältnisses in der Simulation CNTL_1999 in 50 hPa (a), sowie die Abweichungen zum klimatologischen Mittelwert der Jahre 1960–1980 (b). Einheit: ppmv.

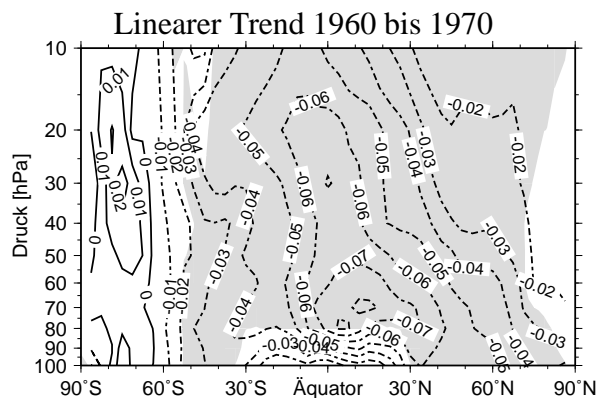


Abbildung 7.8: Lineare Änderungen („ a_3 “ gemäß Regressionsmodell (7.1)) des Wasserdampfverhältnisses zwischen 1960 und 1970 in CNTL_1999, Einheit: ppmv/yr. Graue Flächen markieren Gebiete, in denen die Änderungen auf dem 95%-Niveau statistisch signifikant sind.

Für den Zeitraum 1960 bis 1970 existieren keine zusammenhängenden Messdaten, die für einen Vergleich mit den Modellergebnissen herangezogen werden könnten. Allerdings existiert für den Zeitraum von 1964 bis 1976 eine Zeitreihe von Wasserdampfsondierungen über Washington, DC, die einen deutlichen stratosphärischen Wasserdampfanstieg von 0.079 ± 0.048 ppmv/yr aufweist (Mastenbrook und Oltmans, 1983) und somit den modellierten Rückgang des stratosphärischen Wasserdampfgehalts nicht bestätigt. Allerdings ist die Messreihe über Washington insgesamt durch eine höhere Variabilität geprägt, was auf eine geringere Genauigkeit des verwendeten Messinstruments zurückgeführt wird, so dass der berechnete Wasserdampfanstieg vorsichtig interpretiert werden muss (Mastenbrook und Oltmans, 1983; Oltmans et al., 2000).

In Abbildung 7.9 (links) sind die linearen Änderungen des Wasserdampfverhältnisses zwischen 1980 und 1999 in CNTL_1999 in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Höhe dargestellt. Der Wasserdampfgehalt in der tropischen Stratosphäre wird von den Auswirkungen der beiden Vulkanausbrüche in den Jahren 1982 und 1991 dominiert, so dass sich in dieser Region keine signifikanten Änderungen feststellen lassen. Oberhalb von 60 hPa in den

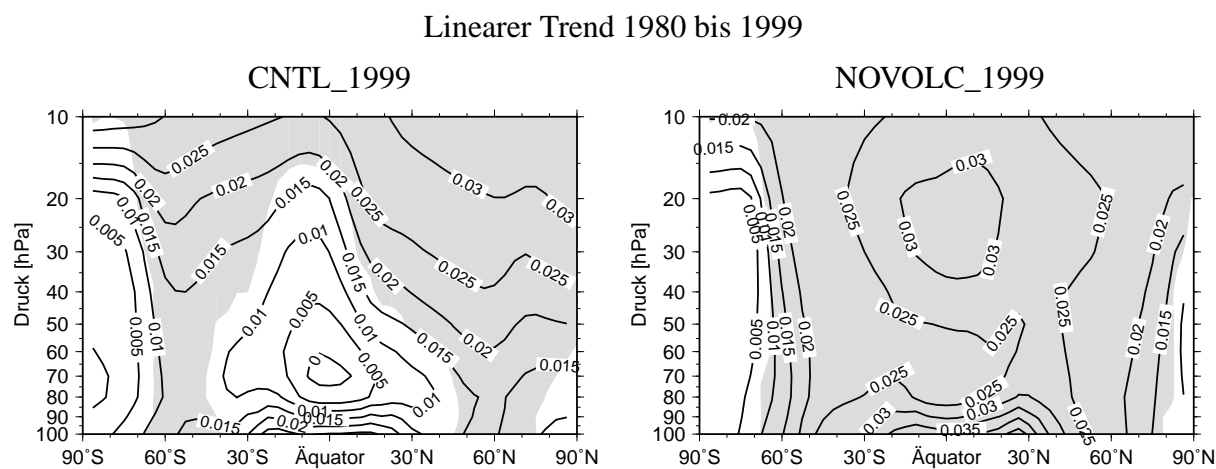


Abbildung 7.9: Lineare Änderungen („ a_3 “ gemäß Regressionsmodell (7.1)) des Wasserdampfverhältnisses zwischen 1980 und 1999, Einheit: ppmv/yr. Links: CNTL_1999, recht: NOVOLC_1999. Graue Flächen markieren Gebiete, in denen die Änderungen auf dem 95%-Niveau statistisch signifikant sind.

mittleren Breiten beider Hemisphären sowie in hohen Breiten der Nordhemisphäre nimmt der Wasserdampfgehalt in CNTL_1999 dagegen signifikant zu. Die größte Wasserdampfunahme tritt mit Werten um 0.025–0.03 ppmv/yr in den mittleren und hohen Breiten der Nordhemisphäre oberhalb von 40 hPa auf. In hohen Breiten der Südhemisphäre ist keine signifikante Zunahme des Wasserdampfgehalts festzustellen.

Um den Effekt der Vulkanausbrüche auf das Ergebnis der Trendberechnung zu bestimmen, sind auf der rechten Seite von Abbildung 7.9 zusätzlich die linearen Änderungen des Wasserdampfmischungsverhältnisses zwischen 1982 und 1999 in NOVOLC_1999 dargestellt. Die deutlichsten Unterschiede treten im Bereich der Tropen auf, in denen die Simulation NOVOLC_1999 einen mit mittleren Breiten vergleichbaren Wasserdampftrend zeigt. Die lineare Wasserdampfunahme in mittleren und subtropischen Breiten weist keine großen interhemisphärischen Unterschiede auf. Die mittlere Zunahme in diesen Bereichen liegt bei etwa 0.025 ppmv/yr. Der größte Wasserdampftrend tritt nun mit 0.03 ppmv/yr in den Tropen auf. Der deutliche Wasserdampfanstieg in den Tropen zwischen 80 und 100 hPa spiegelt den Wasserdampftrend in der tropischen oberen Troposphäre wider.

Eine lineare Regressionsanalyse der HALOE-Daten im Zeitraum von 1992 bis 2001 liefert unterhalb von etwa 60 hPa ein deutlich anderes Muster mit teilweise negativen Änderungen in mittleren Breiten (Rosenlof, 2002, Abb. 2). Zwischen etwa 30 und 60 hPa zeigen die HALOE-Daten in den Tropen ein Maximum mit Werten um 0.03 ppmv/yr. Dieses Maximum ist in CNTL_1999 etwas nach oben verschoben. Zwischen 10 und 30 hPa nimmt der lineare Trend in den HALOE-Daten auf Werte um 0.015 ppmv/yr ab. In den mittleren Breiten beider Hemisphären sowie den hohen Breiten der Nordhemisphäre nimmt der Trend in den HALOE-Daten mit der Höhe eher zu. Die Werte bewegen sich zwischen 0.015 und 0.03 ppmv/yr. Somit reproduziert das Modell den beobachteten Trend in den mittleren Breiten beider Hemisphären. In der polaren Stratosphäre der Südhemisphäre ist zwischen 10 und 20 hPa auch in den HALOE-Daten kein Trend festzustellen (Rosenlof, 2002).

Neben den HALOE-Daten bilden die Messungen über Boulder die längste zusammenhängende Wasserdampfzeitreihe. In Abbildung 7.10 sind die Zeitreihen des modellierten Wasserdampfmischungsverhältnisses in 50 hPa und 40°N in CNTL_1999 sowie NOVOLC_1999 der Messreihe über Boulder (Oltmans et al., 2000) gegenübergestellt. Die modellierten Wasserdampfwerte sind etwa 1–1.5 ppmv größer als die beobachteten Werte. Sowohl Modell als auch Beobachtungen zeigen nach 1980 einen positiven Wasserdampftrend. Der lineare Wasserdampfanstieg über Boulder beträgt 0.044 ± 0.012 ppmv/yr. Der entsprechende Wert für die Simulationen CNTL_1999 bzw. NOVOLC_1999 ist 0.025 ± 0.01 ppmv/yr, d.h. der modellierte Trend ist etwa halb so stark wie beobachtet. Dieser Unterschied zwischen Modell und Boulder-Zeitreihe ist anhand der gezeigten Wasserdampfanomalien in Abbildung 7.10 deutlich zu erkennen.

Während bislang die Ursachen für den beobachteten Wasserdampftrend noch diskutiert werden, bietet die Modellsimulation CNTL_1999 globale, zusammenhängende Datensätze aller relevanten Größen und ermöglicht somit eine detaillierte Trendanalyse. Eine mögliche Ursache für den stratosphärischen Wasserdampftrend ist ein Anstieg der chemischen Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre, der mit einer kontinuierlichen Zunahme der Methanemissionen verbunden ist (s. Abb. 4.1). Der globale stratosphärische Methantrend in CNTL_1999 beträgt für den Zeitraum 1980 bis 1999 0.0091 ± 0.0004 ppmv/yr. Somit wird der zwischen 1992 und 2001 mit HALOE beobachtete stratosphärische Methananstieg (50 hPa) von 0.005–0.01 ppmv/yr (Rosenlof, 2002) vom Modell realistisch erfasst. Verbunden mit der steigenden Methankonzen-

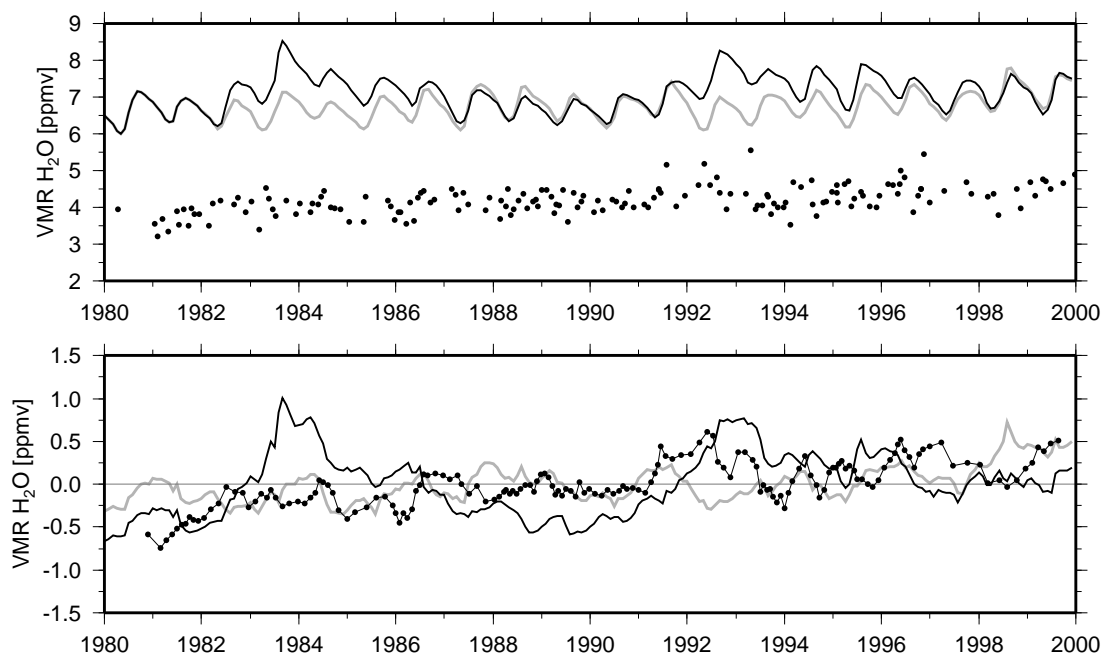


Abbildung 7.10: Zeitreihe des zonal gemittelten Wasserdampf-mischungsverhältnisses in 50 hPa und 40°N. Schwarze Kurve: CNTL_1999, graue Kurve: NOVOLC_1999. Schwarze Punkte: Zeitreihe des Wasserdampf-mischungsverhältnisses über Boulder (USA, ≈40°N), zwischen 20 und 22 km (Oltmans et al., 2000). Die modellierte Zeitreihe zeigt Monatsmittelwerte, während die Beobachtungswerte aus einzelnen Sondierungen stammen. Die untere Abbildung zeigt Abweichungen zum Mittelwert über den Zeitraum 1980 bis 1999.

tration nimmt die mittlere stratosphärische Wasserdampfproduktion in CNTL_1999 im Zeitraum von 1980 bis 1999 jährlich um etwa 0.75% zu. Diese Steigerungsrate allein reicht allerdings nicht aus, um den daraus resultierenden Wasserdampftrend bestimmen zu können, da zusätzlich die Aufenthaltszeit des Wasserdampfs in der Stratosphäre berücksichtigt werden muss. Um den Beitrag einer veränderten Methanoxidation zum stratosphärischen Wasserdampftrend bestimmen zu können, wurde die Wasserdampfproduktion zwischen 1980 und 1999 aus CNTL_1999 archiviert und als Randbedingung in dem Sensitivitätsexperiment CH₄_1990 (s. Kapitel 4.1) vorgeschrieben. Die übrigen Randbedingungen repräsentieren das Jahr 1990 und blieben während der Simulation unverändert. Die veränderte Methanoxidation bewirkt zwischen 1980 und 1999 einen mittleren Wasserdampfanstieg um etwas weniger als 0.01 ppmv/yr.

Die erhöhte chemische Wasserdampfproduktion aufgrund ansteigender Methankonzentrationen allein kann den Wasserdampfanstieg allerdings nicht erklären. Die Erwärmung der Tropopause in den letzten 20 Jahren der Simulationsperiode (s. Abb. 7.4) bewirkt eine signifikante Zunahme des „entry value“ um 0.02 ± 0.01 ppmv/yr, wobei an dieser Stelle die Ergebnisse der Simulation NOVOLC_1999 angegeben sind, da die letzten zwei Dekaden der Simulation CNTL_1999 von den Vulkanausbrüchen dominiert werden. Folglich lässt sich der simulierte Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts seit 1980 mit der Zunahme der chemischen Wasserdampfproduktion zusammen mit einem erhöhten Wasserdampfeintrag aus der Troposphäre erklären, wobei der Anteil der erhöhten Methanoxidation am Wasserdampftrend ungefähr 30% beträgt.

Interannuale Variabilität — QBO

Neben den eben diskutierten langfristigen Veränderungen weist der stratosphärische Wasserdampfgehalt eine große Jahr-zu-Jahr-Variabilität auf. Die QBO-induzierte Variation der tropi-

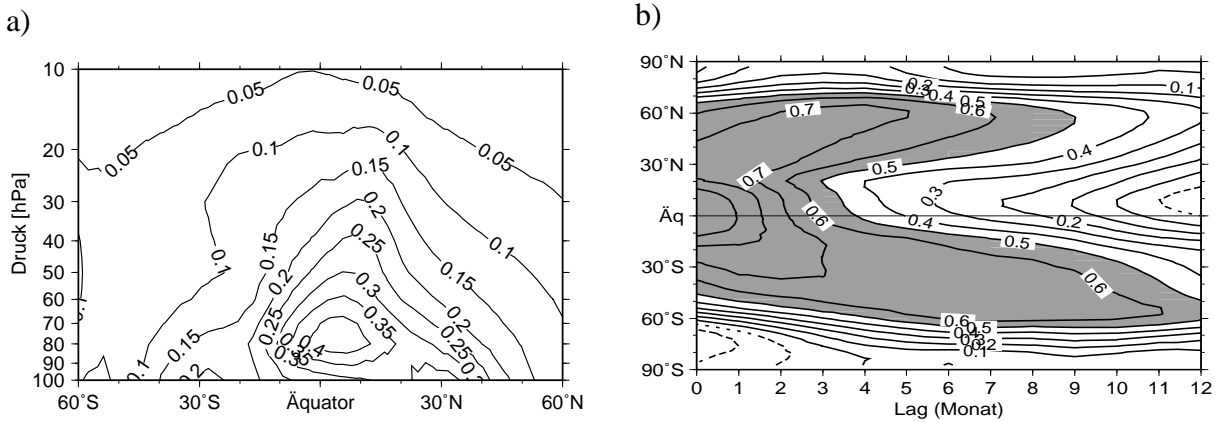


Abbildung 7.11: a) Amplitude der QBO-induzierten Wasserdampfanomalien (Koeffizient „ a_4 “ gemäß Regressionsmodell (7.1)) in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Höhe, Einheit: ppmv. b) Korrelation der Wasserdampfanomalien in 50 hPa mit einer Referenzzeitreihe der Wasserdampfanomalien am Äquator in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der zeitlichen Verschiebung (Lag). Werte größer als 0.5 sind grau unterlegt. Abbildung b) verdeutlicht die Ausbreitung des tropischen QBO-Signals in höhere Breiten.

schen Tropopausentemperatur wirken sich direkt auf den Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre aus. In den siebziger Jahren, in denen die Wasserdampfzeitreihe nicht von den Folgen eines Vulkanausbruchs dominiert wird, ist der Einfluss der QBO in Abbildung 7.7b deutlich sichtbar. Positive und negative Wasserdampfanomalien wechseln sich mit einer Periode von ungefähr zwei Jahren ab. Die positiven Anomalien in den Jahren 1969, 1972, 1974, 1975/76 und 1978 sind mit der Westwindphase der QBO und positiven Temperaturanomalien an der Tropopause verbunden, die negativen Anomalien in den Jahren dazwischen mit der Ostwindphase und negativen Temperaturanomalien. Die Amplitude der QBO-induzierten Wasserdampfanomalien ist in Abbildung 7.11a abgebildet (Koeffizient „ a_4 “, s. Anhang C.1). Die stärksten QBO-Anomalien treten mit ± 0.4 ppmv in der tropischen untersten Stratosphäre auf und breiten sich von dort analog zum sog. „tape recorder“-Signal (Abb. 5.15) nach oben und in Richtung der mittleren Breiten beider Hemisphären aus. In mittleren Breiten beträgt die Amplitude der QBO-Anomalien noch etwa ± 0.1 ppmv. Die Ausbreitung des QBO-Signals von den Tropen in mittlere Breiten ist in Abbildung 7.11b dargestellt: Ausgehend von den Tropen breitet sich das QBO-Signal innerhalb von 3 bis 9 Monaten in die mittleren Breiten beider Hemisphären aus. Polwärts von ungefähr 60° ist keine Korrelation mit der Wasserdampfzeitreihe am Äquator festzustellen, d.h. die Ränder der Polarwirbel bilden offensichtlich eine effektive Transportbarriere. Ein vergleichbares Ausbreitungsmuster lässt sich auch in HALOE-Daten beobachten (Randel et al., 2004, Abb. 5). Randel et al. (2004) berechneten aus HALOE-Daten QBO-induzierte Wasserdampfanomalien von etwa ± 0.3 ppmv (Mittelwert 60°N bis 60°S). Dieser Vergleich zeigt, dass das Modell sowohl das Muster als auch die Größenordnung des QBO-Signals im stratosphärischen Wasserdampf realistisch erfasst. Im Gegensatz zu den ENSO-induzierten Wasserdampfanomalien in der tropischen oberen Troposphäre weisen die QBO-induzierten Wasserdampfanomalien im Modell einen deterministischen Charakter auf.

Interannuale Variabilität — Dehydrierung der Polargebiete

Den ausgeprägtesten Jahresgang des Wasserdampfgehalts weisen die hohen Breiten der Südhemisphäre auf. Aufgrund der strahlungsbedingten Abkühlung der polaren Stratosphäre während der Polarnacht werden die Luftmassen im Polarwirbel stark dehydriert und das Wasserdampf-

mischungsverhältnis sinkt in Polnähe auf Werte unter 1 ppmv (s. Abb. 5.16). Verbunden mit dem negativen Temperaturtrend in der antarktischen Stratosphäre während der Südfrühlings- und Sommermonate (s. Abb. 7.1) verstärkt sich in der Modellsimulation CNTL_1999 die Dehydrierung der polaren Stratosphäre im Südwinter etwa seit Beginn der 1980er Jahre. Zusätzlich verlängert sich die Phase mit extrem niedrigen Volumenmischungsverhältnissen in der polaren Stratosphäre bis in den Frühling/Frühsummer hinein. Dies wird an den negativen Abweichungen in Abbildung 7.7b deutlich. Eine vergleichbare Dehydrierung der arktischen Stratosphäre wird nur in einzelnen, sehr kalten Wintern wie z.B. im Winter 1977/78 simuliert. Eine Zunahme der Winter mit starker Dehydrierung der arktischen Stratosphäre ist in CNTL_1999 nicht festzustellen. Dies stimmt mit dem Ergebnis überein, dass die Temperaturen in der arktischen Stratosphäre keine signifikanten Veränderungen aufweisen (s. Abb. 7.1).

Interannuale Variabilität — Vulkanausbrüche

Sowohl in Abbildung 7.7a als auch in Abbildung 7.7b ist der Einfluss der Vulkanausbrüche auf den stratosphärischen Wasserdampfgehalt in CNTL_1999 deutlich zu erkennen. Infolge der Erwärmung der tropischen Tropopause, die knapp zwei Jahre nach dem Vulkanausbruch andauert, gelangt vermehrt Wasserdampf in die Stratosphäre. Dieser zusätzliche Wasserdampf breitet sich analog zum QBO-Signal mit der mittleren Meridionalzirkulation in der gesamten Stratosphäre aus. Während die maximale Wasserdampfunahme nach dem Ausbruch des Pinatubo im Juni 1991 in 80 hPa bereits ein Jahr nach dem Vulkanausbruch erreicht wird, ist das Maximum in 10 hPa erst in der zweiten Hälfte des Jahres 1993 erreicht. Mit Hilfe des Sensitivitätsexperiments NOVOLC_1999 lässt sich die Lebenszeit¹ der vulkanischen Wasserdampfstörung abschätzen, wobei zu berücksichtigen ist, dass die simulierten Meteorologien in CNTL_1999 und NOVOLC_1999 nicht identisch sind. In 80 hPa beträgt die Lebenszeit des vulkanischen Wasserdampfs nur etwa 3–4 Monate. Starke Vermischungsprozesse führen dazu, dass sich der zusätzliche Wasserdampf rasch verteilt. Mit zunehmender Höhe steigt die Lebenszeit auf etwa 2.5 bis 3 Jahre in 10 hPa an.

Joshi und Shine (2003) stellten die Hypothese auf, dass ein Teil des stratosphärischen Wasserdampfanstiegs von 1%/yr seit 1955 (Rosenlof et al., 2001) durch eine Reihe großer Vulkanausbrüche hervorgerufen wird: Je nach Lebensdauer können sich die Wasserdampfstörungen der aufeinander folgenden Vulkanausbrüche akkumulieren und zu einem Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts führen. Nach Joshi und Shine (2003) ereigneten sich zwischen 1960 und 2000 fünf Vulkanausbrüche in unterschiedlicher zeitlicher Abfolge, die stark genug waren, um einen Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts zu bewirken. Bei einer maximalen Wasserdampfunahme um 15% und einer exponentiellen Abnahme der Wasserdampfstörung mit einer Lebensdauer von 5 Jahren errechneten Joshi und Shine (2003) einen Wasserdampftrend von 0.22%/yr. Bei einer Lebensdauer von 10 Jahren erhöht sich der Wasserdampftrend auf 0.47%/yr. Zusammen mit der Wasserdampfunahme, die sich aus dem erhöhten stratosphärischen Methangehalt ergibt, könnte dieser Mechanismus den von Rosenlof et al. (2001) errechneten Wasserdampftrend annähernd erklären.

In Abbildung 7.12 ist die Differenz des Wasserdampfmischungsverhältnisses in 40°N, 50 hPa zwischen CNTL_1999 und NOVOLC_1999 dargestellt. Nach dem Erreichen des Maximums der vulkanischen Wasserdampfstörung klingt die Störung nahezu linear mit einer Lebenszeit von etwa zwei bis drei Jahren wieder ab. Vor dem Ausbruch des Pinatubo erreichen die Was-

¹Der Begriff Lebensdauer bezeichnet hier die Zeit, bis nur noch der 1/e-fache Wert der Wasserdampfstörung vorhanden ist.

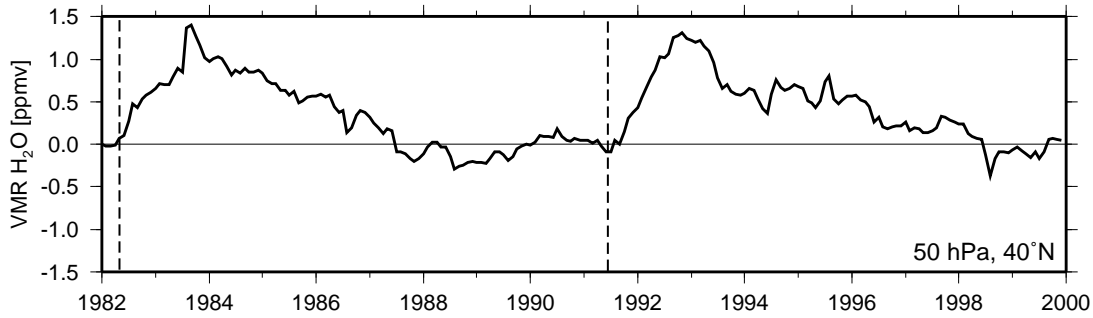


Abbildung 7.12: Differenz des Wasserdampfmischungsverhältnisses in 40°N und 50 hPa zwischen den Modellsimulationen CNTL_1999 und NOVOLC_1999, Einheit: ppmv. Die vertikalen Linien kennzeichnen den Zeitpunkt der Ausbrüche des El Chichon (1982) und des Pinatubo (1991).

serdampfwerte in CNTL_1999 das Niveau der Simulation NOVOLC_1999, d.h. die Lebenszeit der vulkanischen Wasserdampfstörung ist nicht ausreichend lang, um zu einer Akkumulation der vulkanischen Wasserdampfstörung zu führen. Die Hypothese von Joshi und Shine (2003) wird folglich von den hier gezeigten Ergebnissen nicht bestätigt.

Da der modellierte Temperaturanstieg nach einem Vulkanausbruch im Vergleich zu Beobachtungen deutlich zu stark ausfällt, ist davon auszugehen, dass auch der modellierte stratosphärische Wasserdampfanstieg nach einem Vulkanausbruch überschätzt wird. Ein Vergleich mit Beobachtungsdaten gestaltet sich schwierig, da HALOE-Daten erst seit Oktober 1991 zur Verfügung stehen und somit keine Vergleichsmöglichkeit mit Messungen vor dem Pinatuboausbruch besteht. Zusätzlich sind die Daten vor 1995 durch das vulkanische Aerosol des Pinatuboausbruchs beeinflusst. Auch in der Messreihe über Boulder ist kein eindeutiger Anstieg der Wasserdampfwerte nach 1991 festzustellen (s. Abb. 7.10). Allerdings handelt es sich bei den Messwerten um Einzelmessungen und nicht um Monatsmittelwerte, so dass die Messreihe über Boulder stark durch die jeweilige meteorologische Situation zum Messzeitpunkt geprägt ist.

7.1.3 Fazit

Verbunden mit dem Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen und dem Rückgang der stratosphärischen Ozonkonzentrationen zeigt das Modell zwischen 1960 und 2000 eine Abkühlung der Stratosphäre sowie eine Erwärmung der Troposphäre. In der mittleren Troposphäre und in der Stratosphäre wird die Stärke des beobachteten Temperaturtrends vom Modell gut wiedergegeben. Die Abkühlung der Stratosphäre erfolgt scheinbar in zwei Stufen von jeweils 0.5 K, die zeitlich mit den Ausbrüchen der Vulkane El Chichon und Pinatubo zusammenfallen. Dieser stufenweise Verlauf ergibt sich aus der Überlagerung eines negativen linearen Temperaturtrends und einer mit der Sonnenaktivität verbundenen stratosphärischen Temperaturschwingung. Die Vulkanausbrüche verstärken lediglich den Eindruck der stufenweisen Abkühlung.

Die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause zeigt in den ersten 10 Jahren der Simulation eine signifikante Abkühlung, gefolgt von einem nahezu konstanten Verlauf in den 1970er Jahren und einem Anstieg in den letzten 20 Jahren, der allerdings nicht beobachtet wird. Die Ursachen für diesen Temperaturverlauf sind bislang noch ungeklärt, allerdings ist zu vermuten, dass die Tropopausentemperatur zu Beginn der Simulation von der stratosphärischen Abkühlung und später von der troposphärischen Erwärmung dominiert wird.

Ein Großteil der interannualen Variabilität der Temperatur in der tropischen Stratosphäre ist auf die QBO zurückzuführen, wobei sich die Temperaturanomalien aus der oberen Stratosphäre bis in die untere Stratosphäre ausbreiten und im Tropopausenbereich im Mittel etwa ± 0.5 K betragen. In der tropischen oberen Troposphäre wird die Temperatur stark durch die ENSO-Phase geprägt. Allerdings beeinflussen diese Temperaturanomalien nur in Ausnahmefällen wie 1997/98 den Tropopausenbereich. Die interannuale Variabilität der Tropopausentemperatur wird somit sowohl von stratosphärischen als auch von troposphärischen Prozessen bestimmt.

Verbunden mit der Erwärmung der tropischen oberen Troposphäre nimmt der Wasserdampfgehalt in diesem Bereich seit Mitte der 1970er Jahre zu. Desweiteren zeigt der Wasserdampf in der tropischen oberen Troposphäre einen engen Zusammenhang mit der ENSO-Phase, die in den Modellsimulationen implizit über die vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen berücksichtigt wird. Allerdings besitzen die ENSO-induzierten Wasserdampfanomalien nur einen quasi-deterministischen Charakter: Während einzelne ENSO-Ereignisse nahezu identisch reproduziert werden, weichen andere Jahre deutlich von den Beobachtungen ab.

Der stratosphärische Wasserdampfgehalt weist in den ersten 10 Jahren einen signifikanten negativen Trend auf, der auf die Abkühlung der tropischen Cold Point-Tropopause zurückzuführen ist. Im Gegensatz dazu führen der Anstieg der Methankonzentration und die Erwärmung der tropischen Tropopause in den letzten 20 Jahren zu einem Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfs, der im Rahmen der Unsicherheiten mit den beobachteten Wasserdampftrends vergleichbar ist.

Neben den langfristigen Veränderungen ist der Wasserdampf in der Stratosphäre von einer hohen interannualen Variabilität geprägt, die von der QBO und den Vulkanausbrüchen hervorgerufen wird. Dabei ist festzustellen, dass sowohl Muster als auch Größenordnung der QBO-induzierten Wasserdampfanomalien vom Modell realistisch reproduziert werden. Im Gegensatz zu der ENSO-Phase reagiert das Modell somit deterministisch auf die Vorgabe der QBO-Phase. Der Einfluss der Vulkanausbrüche auf den Wasserdampfgehalt wird vom Modell aufgrund der zu starken Erwärmung der tropischen Tropopause überschätzt. Die Lebensdauer der vulkanischen Wasserdampfstörungen beträgt im Modell abhängig von der geographischen Region zwischen wenigen Monaten und 3 Jahren. Somit wird die Hypothese von Joshi und Shine (2003), dass sich vulkanische Wasserdampfstörungen in der Stratosphäre akkumulieren und zu einem Wasserdampftrend beitragen können, von den hier gezeigten Modellergebnissen nicht bestätigt.

7.2 Entwicklung von 2000 bis 2019

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der vom Modell berechneten zukünftigen Entwicklung der stratosphärischen Wasserdampfverteilung. Die in diesem Abschnitt präsentierten Ergebnisse basieren auf der transienten Modellsimulation CNTL_2019 des Zeitraums 2000 bis 2019 (s. Kapitel 4.1). Die vorgeschriebenen Konzentrationsänderungen der Treibhausgase Kohlendioxid, Methan, Lachgas und der Fluorchlorkohlenwasserstoffe entsprechen dem sogenannten A2-Szenario („business as usual“, IPCC (2001), s. Abb. 4.1). Das Hauptaugenmerk dieser Studie liegt auf der längerfristigen Entwicklung des Wasserdampfgehalts in der oberen Troposphäre und in der Stratosphäre. Ereignisse wie QBO oder ENSO werden in der Modellsimulation CNTL_2019 zwar parametrisiert bzw. indirekt über die vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen berücksichtigt, aber selbstverständlich kann eine transiente Modellsimulati-

on nicht als „Vorhersage“ für einzelne Jahre aufgefasst werden. Dennoch sollten die generellen Entwicklungen im Rahmen eines vorgeschriebenen Zukunftsszenarios erfasst werden können.

Die Zukunftssimulation CNTL_2019 darf nicht als Fortsetzung der Simulation CNTL_1999 betrachtet werden, da zwischen den Jahren 1999 und 2000 eine Diskontinuität der verwendeten Meeresoberflächentemperaturen vorliegt. Für den Zeitraum 2000 bis 2019 werden Meeresoberflächentemperaturen aus einer Langzeitsimulation des gekoppelten Ozean-Atmosphären-Modells des Hadley Centre verwendet (Williams et al., 2001). Für die Jahre 1960 bis 1999 steht ein Datensatz beobachteter Meeresoberflächentemperaturen zur Verfügung. Die modellierten Meeresoberflächentemperaturen wurden zwar den Beobachtungsdaten angepasst (Anomaliekopplung, s. Abschnitt 4.1), so dass ein harmonischer Datensatz entstand, allerdings basieren die beiden Datensätze auf unterschiedlichen Land-See-Masken, was insbesondere bei der Meeresreisegrenze zu Verschiebungen führt. Wie bereits erwähnt wurde, ist die Bedeutung der Meeresoberflächentemperaturen und solcher Diskontinuitäten für die stratosphärische Zirkulation Gegenstand aktueller Forschung (z.B. Braesicke und Pyle, 2004).

Im vorangegangenen Abschnitt konnte gezeigt werden, dass das hier verwendete gekoppelte Modellsystem E39/C in der Lage ist, sowohl die beobachtete interannuale Variabilität des Wasserdampfgehalts im Bereich der UT/LS als auch langfristige Veränderungen im Allgemeinen realistisch nachzuvollziehen. Desweiteren werden auch die beobachteten Temperaturtrends vom Modell zufriedenstellend erfasst. Auf dieser Basis stellt das Modell ein geeignetes Werkzeug für Untersuchungen der zukünftigen Entwicklung der Wasserdampfverteilung in der UT/LS dar.

Wie in Abbildung 4.1 dargestellt ist, wird davon ausgegangen, dass sich der Anstieg der Methanemissionen in den kommenden Jahren fortsetzt. Damit einhergehend ist ein weiterer Anstieg der Methankonzentrationen und eine Zunahme der chemischen Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre zu erwarten. Neben der Methanchemie wirken sich aber auch Veränderungen der Temperaturverteilung oder der globalen Zirkulation auf die Wasserdampfverteilung aus. All diese Faktoren bilden ein komplexes System, in welchem chemische und physikalische Prozesse durch unterschiedliche Rückkopplungsmechanismen miteinander verbunden sind. Die sich daraus ergebenden Temperaturänderungen werden im nächsten Abschnitt beschrieben. In Abschnitt 7.2.2 folgen die modellierten zukünftigen Veränderungen der Wasserdampfverteilung.

7.2.1 Temperatur

Der Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen sowie der Rückgang der stratosphärischen Ozonkonzentrationen haben in CNTL_1999 zu einer Erwärmung der Troposphäre sowie einer Abkühlung der Stratosphäre geführt. Das sog. A2-Szenario (IPCC, 2001), das die Grundlage für die Simulation CNTL_2019 bildet, geht von einer Fortsetzung der Zunahme der Treibhausgaskonzentrationen in der Zukunft aus, während für die stratosphärische Chlorbeladung infolge des Montrealer Protokolls und seiner Nachfolgeprotokolle eine langsame Abnahme erwartet wird (s. Abb. 4.1). Neben dem Chlorgehalt hängt die Entwicklung der stratosphärischen Ozonkonzentrationen aber noch von einer Reihe anderer Faktoren wie der Temperatur, der stratosphärischen Dynamik oder dem stratosphärischen Wasserdampf als Quelle für das Hydroxyl-Radikal ab (Schnadt et al., 2002). So ist in der Simulation CNTL_2019 über die 20 Jahre Simulationszeit noch keine Erholung des antarktischen Ozonlochs festzustellen (Sigrun Matthes, persönliche Mitteilung), was mit Modellergebnissen von Schnadt et al. (2002) zur zeitlichen Entwicklung der stratosphärischen Ozonschicht zwischen 1990 und 2015 übereinstimmt.

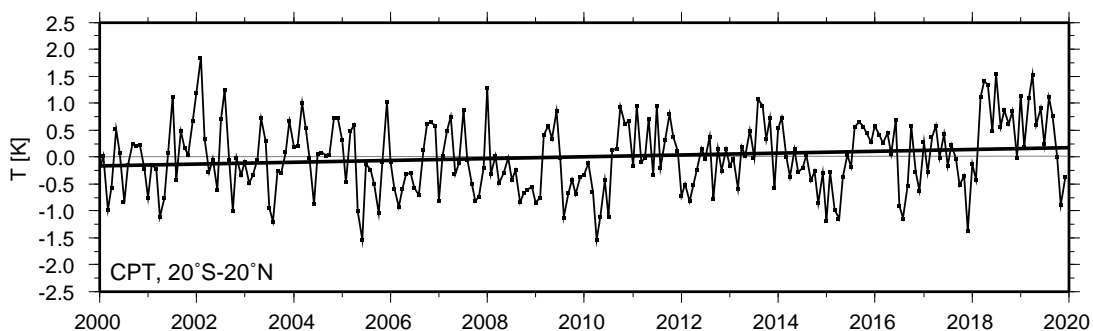


Abbildung 7.13: Zeitreihe der zonal gemittelten Cold Point-Temperatur zwischen 20°N und 20°S in CNTL_2019. Gezeigt sind Abweichungen von einem klimatologischen Jahresgang sowie die Regressionsgerade (Steigung: 0.017 ± 0.013 K/yr). Einheit: K.

Tropo- und Stratosphäre

Die zonal gemittelten Temperaturänderungen (nicht gezeigt) zwischen den ersten (2000–2007) und den letzten acht Jahren (2012–2019) der Simulation CNTL_2019 zeigen ein ähnliches Muster wie die Temperaturänderungen in Abbildung 7.1. Die Stratosphäre kühlt sich um 0.5–1 K ab, während die Temperaturen in der Troposphäre weiterhin leicht zunehmen. Die maximale Erwärmung tritt dabei mit Werten um 0.5 K wieder in der tropischen oberen Troposphäre auf. Allerdings sind die Temperaturänderungen mit Ausnahme der Region oberhalb von 40 hPa in der jeweiligen Sommerhemisphäre statistisch nicht signifikant. Die signifikante Erwärmung der tropischen oberen Troposphäre (200 hPa-Niveau) seit Mitte der 1970er Jahre um etwa 0.6 K/Dekade setzt sich in CNTL_2019 somit nicht fort.

Dennoch ist das Muster der Temperaturänderungen mit den Ergebnissen von Schnadt et al. (2002) vergleichbar, die die Klimaänderung zwischen 1990 und 2015 mit dem gekoppelten Klima-Chemie-Modell E39/C untersuchten und deren Modellergebnisse in weiten Teilen der Stratosphäre eine signifikante Abkühlung um etwa 1.5 K sowie eine signifikante Erwärmung der Troposphäre um bis zu 1.5 K zeigen. Die Ursachen dafür, dass die Temperaturänderungen in CNTL_2019 statistisch nicht signifikant sind, liegen möglicherweise in dem kurzen Mittelungszeitraum oder in dem Experimentdesign der Simulation CNTL_2019, bei der die ersten 10 Jahre Einschwingzeit bei konstanten Randbedingungen „2000“ integriert wurden und somit unter Umständen ein Teil der zeitlichen Entwicklung „vorweggenommen“ wurde.

Tropische Cold Point-Tropopause

In Abschnitt 7.1 wurde gezeigt, dass im Modell der stratosphärische Wasserdampfgehalt stark mit der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause korreliert ist. Abbildung 7.13 zeigt die zeitliche Entwicklung der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause in CNTL_2019. Analog zu Abbildung 7.4 ist hier der Einfluss der QBO auf die modellierte Temperatur der tropischen Cold Point-Tropopause zu erkennen, besonders in den Jahren nach 2008. Der QBO induzierten Temperaturschwankungen betragen im Modell ungefähr ± 0.5 –1 K und bewegen sich damit im Rahmen der Beobachtungen in der Vergangenheit. Neben der interannualen Variabilität weist die tropische Cold Point-Temperatur über den Simulationszeitraum 2000 bis 2019 ein leichten Anstieg von 0.017 ± 0.013 K/yr (die angegebenen Unsicherheiten

geben den 95%-Vertrauensbereich an) auf, der mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 1% signifikant ist. Verbunden mit der Zunahme der tropischen Cold Point-Temperatur steigt der Wasserdampfgehalt an der tropischen Cold Point-Tropopause („entry value“) in der Simulation CNTL_2019 statistisch signifikant (Irrtumswahrscheinlichkeit 1%) um 0.019 ± 0.009 ppmv/yr zu. Somit setzt sich der Trend der Cold Point-Temperatur und des „entry value“ zwischen 1980 und 1999 (s. Abb. 7.4) auch in der Zukunftssimulation CNTL_2019 weiterhin fort.

7.2.2 Wasserdampf

Troposphäre

In Abschnitt 7.1 wurde bereits deutlich, dass der Wasserdampfgehalt in der tropischen oberen Troposphäre zum einen von langfristigen Temperaturänderungen und zum anderen von der ENSO-Phase beeinflusst wird. In Abbildung 7.14 sind die Anomalien des Wasserdampfmischungsverhältnisses in der tropischen oberen Troposphäre in CNTL_2019 dargestellt. Für die Zukunftssimulation wurde wieder der Niño3-Wert als ein Maß für die Stärke eines ENSO-Ereignisses verwendet. In der Simulation CNTL_2019 werden auf Grundlage der vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen in den Jahren 2002/03 und 2017/18 zwei sehr starke El Niño-Ereignisse simuliert, die mit dem El Niño-Ereignis von 1997/98 vergleichbar sind. Während dem außergewöhnlich starken El Niño-Ereignis 1997/98 betrug die Abweichung der Meeresoberflächentemperatur in dem Niño3-Gebiet 3.8 K, 2002/03 beträgt die SST-Anomalie etwa 2.8 K, 2017/18 knapp 4 K. Im Jahr 2006/07 wird zusätzlich ein mittleres El Niño-Ereignis simuliert. Der Zeitraum 2011 bis 2015 ist durch andauernde El Niño-Aktivität gekennzeichnet. Interessanterweise war das Jahr 2002/03 auch in der Realität ein El Niño-Jahr, allerdings war dieses El Niño-Ereignis eher schwach. Die beiden starken El Niño-Ereignisse 2002/03 und 2017/18 führen zu positiven Wasserdampf-anomalien von etwa 30 ppmv in der tropischen oberen Troposphäre. Somit ist der Wasserdampfrespons in diesen Jahren mit dem El Niño-Ereignis von 1997/98 in der Simulation CNTL_1999 vergleichbar. Im Mittel nimmt der Wasserdampfgehalt in der tropischen oberen Troposphäre mit den Meeresoberflächentemperaturen in dem Niño3-Gebiet um 5.3 ppmv/K zu bzw. ab, was den Ergebnissen in CNTL_1999 entspricht.

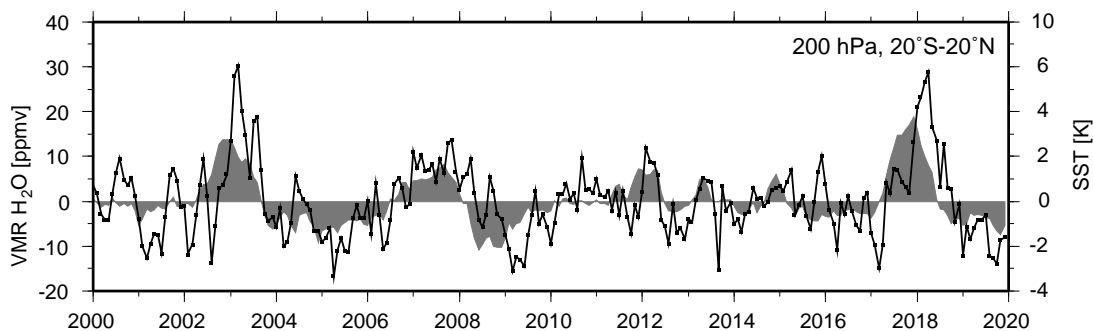


Abbildung 7.14: Zeitreihe des tropischen Wasserdampfmischungsverhältnisses in 200 hPa aus der Simulation CNTL_2019 (schwarze Linie). Dargestellt sind Abweichungen von einem klimatologisch gemittelten Jahresgang. Der lineare Trend ist abgezogen. Einheit: ppmv. Die grau hinterlegten Flächen zeigen Anomalien der Meeresoberflächentemperaturen zwischen 5°N und 5°S, 150°W und 90°W. Einheit: K (rechte y-Achse).

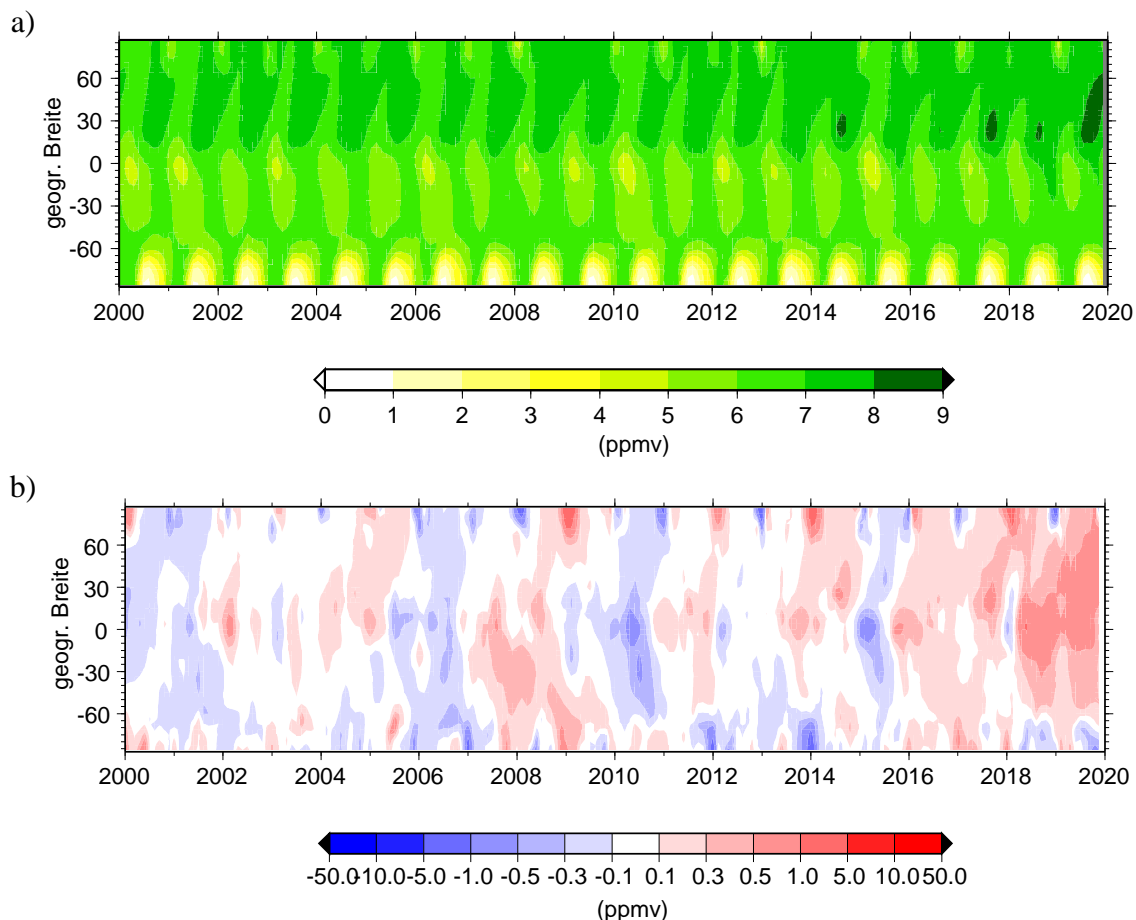


Abbildung 7.15: Zeitreihe des zonal gemittelten Wasserdampfverhältnisses aus der Simulation CNTL_2019 in 50 hPa (a) sowie die Abweichungen zum klimatologischen Mittelwert der Jahre 2000–2010 (b). Einheit: ppmv.

Desweiteren zeigt der Wasserdampf in der tropischen oberen Troposphäre eine statistisch signifikante Zunahme von 0.24 ± 0.18 ppmv/yr (die hier und im Folgenden angegebenen Unsicherheiten geben den 95%-Vertrauensbereich an). Damit fällt der Wasserdampfanstieg in der tropischen oberen Troposphäre in CNTL_2019 deutlich geringer aus als in der Simulation CNTL_1999 (0.68 ± 0.06 ppmv/yr). Dieser Unterschied ist auf die unterschiedlich starke Erwärmung der tropischen oberen Troposphäre in den Simulationen CNTL_1999 und CNTL_2019 zurückzuführen (s. Abschnitt 7.2.1).

Stratosphäre

In Abbildung 7.15a ist die zeitliche Entwicklung des Wasserdampfgehalts in 50 hPa in der Modellsimulation CNTL_2019 dargestellt. In Abbildung 7.15b sind analog dazu die entsprechenden Abweichungen zum mittleren Jahrgang der Jahre 2000 bis 2010 gezeigt. Wie bereits die Simulation CNTL_1999 zeigt auch CNTL_2019 den für das Modell E39/C charakteristischen interhemisphärischen Unterschied mit höheren Wasserdampfwerten auf der Nordhemisphäre. Im Gegensatz zur Simulation CNTL_1999 ist in CNTL_2019 keine Zunahme der Dehydrierung der polaren Stratosphäre im Südwinter festzustellen, was darauf zurückzuführen ist, dass eine mit CNTL_1999 vergleichbare Abkühlung der polaren Stratosphäre in den Win-

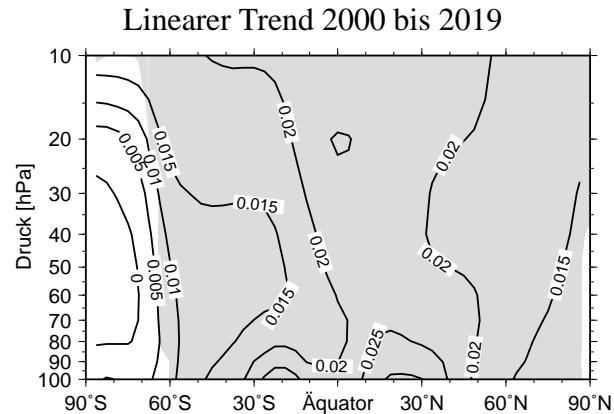


Abbildung 7.16: Lineare Wasserdampfänderungen („a₃“ gemäß Regressionsmodell (7.1)) in der Modellsimulation CNTL_2019. Die grauen Flächen markieren Regionen, in denen die Änderungen auf dem 95%-Niveau statistisch signifikant sind. Einheit: ppmv/yr.

termonaten in CNTL_2019 fehlt. Das bereits in der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause erkennbare QBO-Signal ist auch in Abbildung 7.15b sichtbar. Die QBO-induzierten Wasserdampfschwankungen in den Tropen betragen etwa ± 0.2 – 0.3 ppmv und sind damit mit CNTL_1999 vergleichbar.

Die linearen Änderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts zwischen 2000 und 2019 sind in Abbildung 7.16 gezeigt. In weiten Teilen der Stratosphäre nimmt der Wasserdampfgehalt signifikant zu. Die einzige Ausnahme bildet dabei die polare Stratosphäre der Südhemisphäre. Analog zu Abbildung 7.9 (rechts) ist der stratosphärische Wasserdampftrend in den Tropen am stärksten und nimmt zu den Polen hin ab. In den mittleren Breiten der Nordhemisphäre nimmt der Wasserdampf um etwa 0.02 ppmv/yr zu. Auf der Südhemisphäre fällt der Anstieg etwas geringer aus. Der hier gezeigte Wasserdampfanstieg in CNTL_2019 mit den Ergebnissen der Simulation NOVOLC_1999 vergleichbar, wobei der Anstieg insgesamt etwas schwächer ausfällt als in NOVOLC_1999.

Einen Beitrag zu dem Wasserdampfanstieg leistet die Zunahme der chemischen Wasserdampfproduktion in der Stratosphäre. Im 50 hPa-Niveau nimmt die Methankonzentration im globalen Mittel um 0.015 ± 0.0004 ppmv/yr zu und steigt somit etwas stärker an als in CNTL_1999 (0.009 ± 0.0004 ppmv/yr). Dies ist mit einem schnelleren Anstieg der Methanemissionen ab dem Jahr 2000 verbunden (vgl. Abb. 4.1). Verbunden mit dem Anstieg der stratosphärischen Methankonzentration nimmt die chemische Wasserdampfproduktion jährlich um ungefähr 0.6% zu. Mit Hilfe der Ergebnisse aus dem Sensitivitätsexperiment CH4_1990 lässt sich damit ein Beitrag der Methanoxidation zum stratosphärischen Wasserdampftrend von wiederum etwa 30% abschätzen. Hinzukommt der erhöhte Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre.

Die Modellergebnisse von Schnadt et al. (2002) zeigen neben einem Anstieg des troposphärischen Wasserdampfgehalts aufgrund der Erwärmung der Troposphäre auch eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfs. Das Muster der Wasserdampfänderungen ist mit den Ergebnissen der Simulationen CNTL_1999 und CNTL_2019 vergleichbar. Die geringsten Zunahmen sind in der tropischen Tropopausenregion und den polaren Breiten zu finden. Auch die Größenordnung der Wasserdampfänderungen ist mit den hier gezeigten Ergebnissen vergleichbar: Die von Schnadt et al. (2002) berechneten Änderungen des stratosphärischen Wasserdampfs betragen zwischen 0.5 und 1 ppmv, was einer Zunahme um 0.02 – 0.04 ppmv/yr entspricht.

7.2.3 Fazit

In der Simulation CNTL_2019 setzt sich verbunden mit einem fortschreitenden Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen die Abkühlung der Stratosphäre sowie die Erwärmung der Troposphäre weiter fort. Aufgrund des kurzen Mittelungszeitraums und evtl. auch aufgrund des Experimentdesigns sind die modellierten Temperaturänderungen größtenteils nicht signifikant.

Desweiteren steigt in CNTL_2019 analog zu den letzten 20 Jahren der Simulation CNTL_1999 die Temperatur und direkt damit verbunden der Wasserdampfgehalt („entry value“) an der tropischen Cold Point-Tropopause um 0.017 ± 0.013 K/yr bzw. 0.019 ± 0.009 ppmv/yr an.

Der Anstieg der stratosphärischen Methankonzentration bewirkt eine Zunahme chemische Wasserdampfproduktion um jährlich etwa 0.6%. Somit setzt sich der bereits in CNTL_1999 beobachtete Anstieg der chemischen Wasserdampfproduktion in etwa fort. Zusammen mit der Erwärmung der tropischen Tropopause und dem damit verbundenen verstärkten Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre bewirkt die gestiegene Methanoxidation eine Zunahme der stratosphärischen Wasserdampfgehalts in CNTL_2019, die in etwa dem Wasserdampftrend im Zeitraum 1980 bis 1999 in CNTL_1999 entspricht. In der tropischen oberen Troposphäre fällt der Wasserdampfanstieg in CNTL_2019 mit 0.24 ± 0.18 ppmv/yr hingegen deutlich schwächer aus als in CNTL_1999 (0.68 ± 0.06 ppmv/yr), was auf die schwächere Erwärmung der oberen Troposphäre in CNTL_2019 zurückzuführen ist.

Desweiteren setzt sich die in CNTL_1999 modellierte Variabilität des Wasserdampfgehalts in der UT/LS-Region, die auf den Einfluss von ENSO-Ereignissen bzw. der QBO zurückzuführen ist, auch in der Simulation CNTL_2019 fort.

7.3 Diskussion

In diesem Kapitel wurden Ergebnisse von verschiedenen transienten Modellsimulationen mit dem interaktiv gekoppelten Klima-Chemie-Modell E39/C vorgestellt. Um die Entwicklung des Klimas in den Modellsimulationen möglichst realistisch reproduzieren zu können, wurde eine Vielzahl externer Klimaantriebe berücksichtigt. Neben interannualen Schwankungen des stratosphärischen Wasserdampfs zeigen die Modellergebnisse sowohl für den Zeitraum 1980 bis 1999 als auch für den Zeitraum 2000 bis 2019 einen stetigen Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts. Ansteigende Methanemissionen können den simulierten Wasserdampftrend nur teilweise erklären. Daneben wird in den Modellsimulationen der stratosphärische Wasserdampfgehalt vor allem von der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause kontrolliert.

Verlässliche Aussagen über langfristige Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts werden dadurch erschwert, dass die vorhandenen Messreihen relativ kurz sind. Die längste zusammenhängende Messreihe bilden die Sondierungen über Boulder die allerdings nur etwa einmal im Monat stattfinden. Globale Datensätze stehen mit HALOE seit 1991 zur Verfügung. Die anhand der HALOE-Daten beobachteten Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts fallen jedoch je nach Länge der verwendeten Messreihe sehr unterschiedlich aus: Nedoluha et al. (1998) untersuchten 6 Jahre HALOE-Daten von 1991 bis 1997 und berechneten eine deutliche Wasserdampfungnahme von etwa 0.1 ppmv/yr. Rosenlof (2002) analysierte HALOE-Daten zwischen 1992 und 2001 und berechneten mit Werten zwischen 0.015 und 0.03 ppmv/yr einen deutlich geringeren Wasserdampfanstieg als Nedoluha et al. (1998). In

der unteren Stratosphäre fielen die von Rosenlof (2002) berechneten Wasserdampfänderungen sogar negativ aus. Im Gegensatz zu dem starken Wasserdampftrend zu Beginn der neunziger Jahre fanden Nedoluha et al. (2003) für den Zeitraum 1996 bis 2002 unterhalb von 60 km nahezu keine Wasserdampfanstieg in den HALOE-Daten, so dass der Wasserdampfanstieg zwischen 1991 und 2002 insgesamt weniger als 1%/yr betrug. Eine kürzlich erschienene Studie von Randel et al. (2004) hat weiterhin gezeigt, dass der stratosphärische Wasserdampfgehalt seit 2001 außergewöhnlich niedrig ist². Dieser starke Rückgang der Wasserdampfwerte ist sowohl in HALOE- und POAM-Daten als auch in den Boulder-Messungen festzustellen. Desweiteren hat die Studie von Randel et al. (2004) gezeigt, dass die Messungen über Boulder und die HALOE-Daten seit 1997 voneinander abweichen, wodurch sich die unterschiedlichen Trendergebnisse erklären lassen: Während die Boulder-Messreihe einen Wasserdampfanstieg von 0.5%–1%/yr zeigt, ergibt eine Analyse der HALOE-Daten einen negativen Wasserdampftrend für die untere Stratosphäre. Die Ursachen für diese Differenz sind noch nicht geklärt, allerdings haben die Ergebnisse von Randel et al. (2004) die Diskussion um Wasserdampftrends neu eröffnet.

Ähnlich unterschiedliche Ergebnisse zeigen verschiedene Studien zur Veränderung der tropischen Tropopausentemperatur. So schwanken die Ergebnisse verschiedener Trendanalysen der 100 hPa-Temperaturen für den Zeitraum 1979 bis 1994 zwischen +0.3 K/Dekade und –0.5 K/Dekade (WMO, 1999). Simmons et al. (1999) fanden in ERA-Daten einen Anstieg der 100 hPa-Temperaturen um etwa 0.6 K/Dekade für den Zeitraum 1979 bis 1998. Im Gegensatz zu den eben genannten Studien analysierten Zhou et al. (2001a) nicht die Temperaturen in 100 hPa, sondern die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause anhand von operationellen Radiosondenaufstiegen an 37 Stationen. Ihre Analysen zeigen eine mittlere Abkühlung der tropischen Cold Point-Temperatur um 0.57 K/Dekade zwischen 1973 und 1998, wobei die einzelnen Messstationen zum Teil sehr unterschiedliche Temperaturtrends bis hin zu einer Erwärmung der Cold Point-Tropopause aufweisen. Analysen von Seidel et al. (2001), die für den Zeitraum 1978 bis 1997 ebenfalls anhand von operationellen Radiosondenaufstiegen an 20 Messstationen eine mittlere Abkühlung der tropischen Tropopause um etwa 0.5 K/Dekade zeigen, bestätigen die Ergebnisse von Zhou et al. (2001a). Zusätzlich fanden sie eine Abnahme des Sättigungsmischungsverhältnisses an der tropischen Tropopause um 0.3 ppmv/Dekade. Die Mehrzahl der hier genannten Studien geht von einer Abkühlung der tropischen Tropopausentemperaturen aus, wobei aber immer berücksichtigt werden muss, dass Veränderungen an den Messinstrumenten oder Auswertalgorithmen die Trendanalysen insbesondere bei der Verwendung von Radiosondenmessungen beeinflussen können.

Aufgrund der Unsicherheiten hinsichtlich der beobachteten Wasserdampftrends kann nicht sofort geschlussfolgert werden, dass der modellierte Zusammenhang zwischen stratosphärischem Wasserdampfgehalt und tropischer Cold Point-Temperatur den Beobachtungen widerspricht. So könnten sich z.B. die Abkühlung der tropischen Tropopause und die gestiegene Wasserdampfproduktion aufgrund der Methanoxidation kompensieren. Randel et al. (2004) untersuchten interannuale Schwankungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts anhand von HALOE- und POAM-Daten sowie der Boulder-Zeitreihe und deren Zusammenhang mit der tropischen Tropopausentemperatur. Dabei zeigen die Ergebnisse generell eine deutliche Korrelation der Wasserdampfvariationen mit der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause, was mit den Modellstudien von Holton und Gettelman (2001) und Jensen und Pfister (2004) konsistent ist. Weniger klar ist dagegen die Ursache der extrem niedrigen Wasserdampfwerte in den Jahren 2001 bis 2003, da die Temperaturen an der tropischen Tropopause in diesem Zeitraum zwar

²siehe auch: http://acd.ucar.edu/~randel/H2O_changes.html

kalt, aber nicht außergewöhnlich kalt waren. Allerdings hielten die niedrigen Tropopausentemperaturen über einen Zeitraum von zwei Jahren an, während die kalten Perioden in den Jahren zuvor wesentlich kürzer ausfielen.

Somit ist das Modellergebnis, dass die interannuale Variabilität des stratosphärischen Wasserdampfs mit den Temperaturschwankungen an der tropischen Cold Point-Tropopause zusammenhängt, konsistent mit der Studie von Randel et al. (2004). Die Frage, inwieweit der simulierte Zusammenhang zwischen den langfristigen Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts und der tropischen Cold Point-Temperatur ebenso von den Beobachtungsdaten bestätigt wird, kann an dieser Stelle nicht abschließend beantwortet werden.

Kapitel 8

Bedeutung von Wasserdampfänderungen für die Ozonchemie

Der in der Modellsimulation CNTL_1999 berücksichtigte Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen beeinflusst die Temperatur, die atmosphärische Zirkulation und somit die Ozonchemie. Verstärkte Emissionen von Stickoxiden und FCKWs oder auch der Anstieg der Wasserdampfkonzentration bewirken eine veränderte chemische Zusammensetzung der Atmosphäre, die sich ebenfalls auf die Ozonchemie auswirkt. All diese Einflussfaktoren bilden ein komplexes System, in dem die verschiedenen physikalischen und chemischen Prozesse durch unterschiedliche Rückkopplungsmechanismen nicht-linear miteinander verknüpft sind. Die Berücksichtigung all dieser Prozesse in gekoppelten Klima-Chemie-Modellen gewährleistet auf der einen Seite eine größtmögliche Realitätsnähe, auf der anderen Seite lässt sich der Beitrag, den die einzelnen Prozesse z.B. zu Veränderungen der Ozonschicht leisten, nicht mehr quantifizieren.

In Übereinstimmung mit Beobachtungen (vgl. Fioletov et al. (2002), Abb. 3) tritt in der Simulation CNTL_1999 zu Beginn der 1980er Jahre ein globaler Rückgang der Gesamtozonwerte auf (Abb. 8.1a), wobei die Anomalien in den neunziger Jahren etwas schwächer ausfallen als beobachtet. Der simulierte Ozonrückgang in polaren Breiten beträgt im südhemisphärischen Frühling etwa 20%/Dekade, im nordhemisphärischen Frühling 5%/Dekade (Dameris et al., 2005).

Neben dem generellen Ozonrückgang zeigt die Simulation CNTL_1999 jeweils nach einem Vulkanausbruch eine vorübergehende, markante Abnahme der tropischen Ozonsäule (Dameris et al., 2005). In Abbildung 8.1b ist der zeitliche Verlauf des tropischen Gesamtozons nach einem Vulkanausbruch dargestellt. Dazu wurde das Ozonminimum nach einem Vulkanausbruch als Referenzzeitpunkt (Monat 0) gewählt und so ein Mittelwert über alle drei Vulkanperioden (Agung, El Chichon, Pinatubo) gebildet. Der eigentliche Vulkanausbruch ereignete sich zwischen 8 und 15 Monaten vorher. Im Mittel beträgt die simulierte Ozonanomalie in den Tropen etwa -5% . Ein Jahr nach dem Minimum erreichen die Ozonwerte wieder das Ausgangsniveau.

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Frage, welchen Einfluss kurz- und langfristige Veränderungen des Wasserdampfgehalts auf die stratosphärische Ozonchemie ausüben und welchen Beitrag die im vorangegangenen Kapitel gezeigten vulkanischen Wasserdampfstörungen bzw. langfristigen Veränderungen zu den simulierten Änderungen der Ozonsäule leisten. Schwankungen des Wasserdampfgehalts beeinflussen über die Konzentration des ozonzerstörenden OH-Radikals die Ozonchemie, wobei eine Zunahme der OH-Konzentration aufgrund von Kopplungsreaktionen mit anderen Radikalgruppen nicht unweigerlich zu einem erhöhten

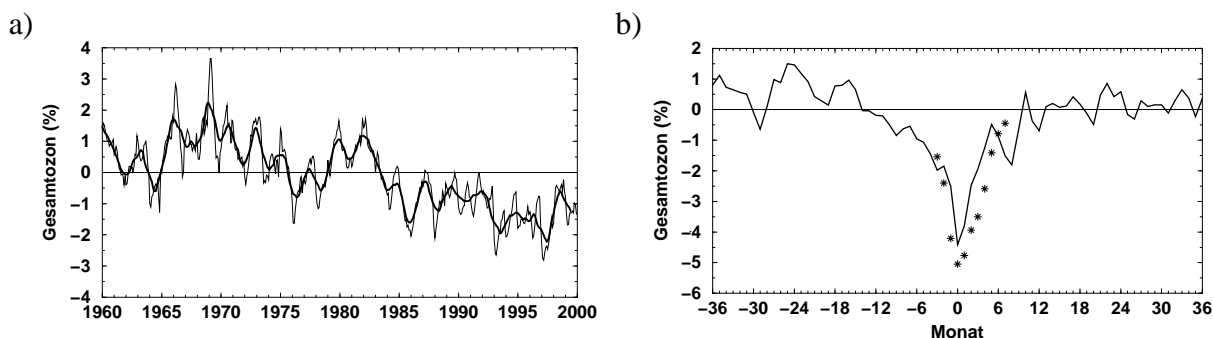


Abbildung 8.1: a) Abweichungen des globalen Gesamt Ozons in der Simulation CNTL_1999 relativ zum Mittelwert über den Zeitraum 1964–1980 (berechnet nach der Methode von Fioletov et al. (2002)). Die fett eingezeichnete Linie zeigt ein gleitendes Mittel über 13 Monate. b) Abweichungen des Gesamt Ozons in den Tropen (10°N – 10°S) nach einem Vulkanausbruch, gemittelt über die drei in CNTL_1999 berücksichtigten Vulkanausbrüche. Mit Monat 0 wird der Zeitpunkt des Ozonminimums bezeichnet, die Vulkanausbrüche ereigneten sich zwischen 8 und 15 Monate vorher. Die Sterne markieren die mit einem linearen Chemie-Transport-Säulenmodell abgeschätzten Ozonanomalien, wie sie durch eine verstärkte Aufwärtsbewegung nach einem Vulkanausbruch verursacht werden. Einheit: %.

Ozonabbau führen muss (s. Abschnitt 2.3.2). Desweiteren hängt die PSC-Bildungstemperatur stark nicht-linear vom Wasserdampf-mischungsverhältnis ab, so dass sich Veränderungen des Wasserdampfgehalts nicht nur auf die Gasphasenchemie, sondern auch auf die PSC-Bildung und damit die heterogene Ozonchemie auswirken können.

Neben einer veränderten chemischen Zusammensetzung und einer veränderten PSC-Bildung bewirkt ein langfristiger Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts eine Abkühlung der Stratosphäre (Forster und Shine, 1999; Forster und Shine, 2002). Der von Forster und Shine (1999) berechnete Temperaturrückgang fiel dabei mit 3–7 K im arktischen Frühling am stärksten aus. Nach Shindell et al. (1998) könnte eine derartige Abkühlung der arktischen Stratosphäre aufgrund einer verstärkten PSC-Bildung zu einem signifikanten Rückgang der Ozonsäule in polaren Breiten um bis zu 50% führen. Die Auswirkungen eines Wasserdampftrends auf die stratosphärische Temperatur und die damit verbundenen Folgen für die Ozonschicht wurden bereits in WMO (2003) intensiv diskutiert und sind nicht Gegenstand dieser Arbeit.

Zur Bestimmung des rein „chemischen“ Effekts einer veränderten stratosphärischen Wasserdampfkonzentration auf die Ozonchemie, wurden eine kurzfristige sowie zwei unterschiedlich starke langfristige Wasserdampfstörungen simuliert. Um Veränderungen der Ozonchemie, die sich aus dem Einfluss der Wasserdampfstörung auf die Temperatur und die atmosphärische Zirkulation ergeben würden, zu unterbinden, wurde für diese Arbeit eine spezielle Methodik entwickelt, mit deren Hilfe die Wasserdampfstörung ausschließlich auf die Modellchemie, nicht aber auf die Modelldynamik wirkt (s. Kapitel 4.3). Abschnitt 8.1 beschreibt den Einfluss eines kurzfristigen Anstiegs des Wasserdampfgehalts, während Abschnitt 8.2 die Auswirkungen der langfristigen Wasserdampfstörungen untersucht. Die in diesem Kapitel präsentierten Ergebnisse sind in Stenke und Grewe (2005) veröffentlicht.

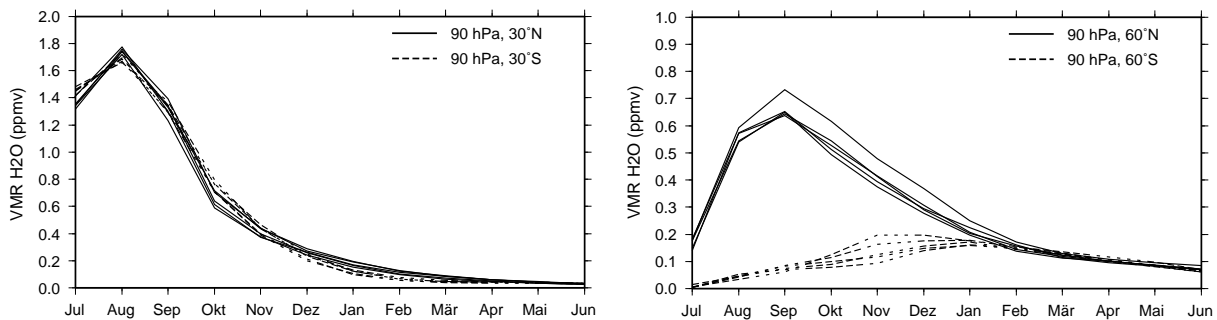


Abbildung 8.2: Zeitliche Entwicklung der Wasserdampfstörung in den fünf 1-Jahressimulationen von VOLC in 90 hPa und verschiedenen geographischen Breiten. Links: 30°N/S, rechts: 60°N/S. Einheit: ppmv.

8.1 Kurzfristige Änderung

Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit den Auswirkungen einer kurzfristigen Wasserdampfstörung, wie sie nach Vulkanausbrüchen auftreten kann, auf die Ozonchemie. Die vorgestellten Ergebnisse basieren auf dem Sensitivitätsexperiment VOLC. Als Kontrollsimulation dient das Modellexperiment CNTL. Beide Simulationen wurden bereits in Kapitel 4.3 näher beschrieben.

Wasserdampf und OH-Konzentration

In Abbildung 8.2 ist der Verlauf der Wasserdampfstörung in den fünf unterschiedlichen 1-Jahressimulationen des Ensembles VOLC in der unteren Stratosphäre bei 30°N/S bzw. 60°N/S dargestellt. In den Monaten Juli und August wurde die Wasserdampfstörung in der tropischen unteren Stratosphäre auf einen konstanten Wert von 2 ppmv fixiert. In den Monaten September bis Juli wurde die „Wasserdampfemission“ eingestellt, so dass die Wasserdampfstörung langsam abklingt. In den Subtropen ergibt sich ein sehr einheitliches Bild. Es treten weder große interhemisphärische Differenzen noch große Unterschiede zwischen den fünf einzelnen 1-Jahressimulationen des Ensembles auf. Die Wasserdampfstörung erreicht im August ihr Maximum und nimmt anschließend exponentiell ab. Nach etwa zwei Monaten ist die Wasserdampfstörung auf den 1/e-fachen Wert abgesunken. In höheren Breiten treten dagegen deutliche interhemisphärische Unterschiede auf. Während auf der Nordhemisphäre das Maximum der Wasserdampfstörung bereits im September auftritt, erreicht die Störung auf der Südhemisphäre erst einige Monate später die stärkste Ausprägung, wobei sich hier auch Unterschiede zwischen den einzelnen Simulationen zeigen. In den meisten Simulationen tritt das Maximum im Januar auf, in einem Fall allerdings bereits im November. Ebenso unterscheidet sich die Stärke der Wasserdampfstörung. In 60°N beträgt die maximale Wasserdampfstörung 0.6–0.7 ppmv, während das Maximum in 60°S nur bei 0.1–0.2 ppmv liegt. Dieses Muster lässt darauf schließen, dass der vom Modell simulierte, meridionale Transport in der unteren Stratosphäre in den Sommermonaten in Richtung Nordpol stärker ist als in Richtung Südpol. Ein solches Verhalten lässt sich anhand des vertikalen Gradienten der Stromlinien im Bereich der unteren Stratosphäre auch aus Abbildung 5.3 ableiten. Zusätzlich zeigen die Ergebnisse von Grewe et al. (2004), die den Einfluss des horizontalen Transports durch sogenannte Streamer auf die chemische Zusammensetzung der Tropopausenregion untersuchten, ein solches Muster. In 50 hPa (nicht gezeigt), d.h. oberhalb der Region, in der die Wasserdampfstörung fixiert wird, tritt das Maximum der

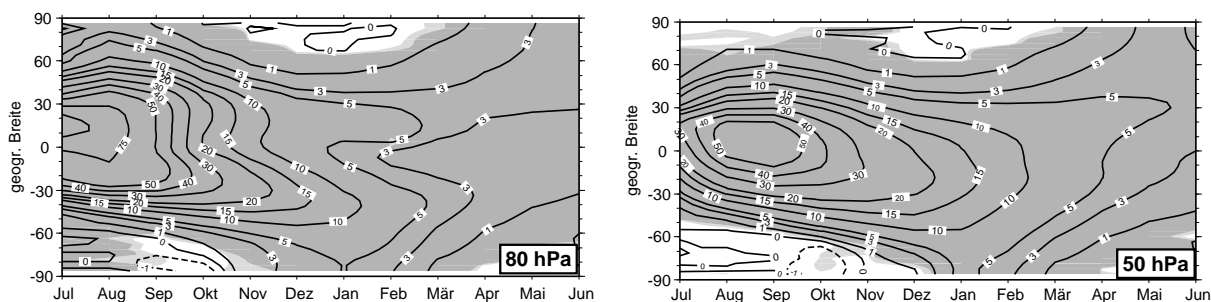


Abbildung 8.3: Änderungen der OH-Konzentration in der Simulation VOLC im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Jahreszeit. Links: 80 hPa, rechts: 50 hPa. Einheit: $10^3 \text{ molec cm}^{-3}$. Helle (dunkle) Flächen markieren Gebiete, in denen die Unterschiede auf dem 95% (99%)-Niveau signifikant sind.

Wasserdampfstörung im September auf. Ausgehend von den Tropen verteilt sich die Wasserdampfstörung gleichmäßig in beide Hemisphären, d.h. ein interhemisphärischer Unterschied wie in 90 hPa ist nicht vorhanden.

Über Reaktion (2.4) reagiert Wasserdampf mit angeregten Sauerstoffatomen zu OH-Radikalen und bildet somit eine OH-Quelle in der Stratosphäre. Die Veränderungen der stratosphärischen OH-Konzentration, die sich in VOLC aufgrund der Wasserdampfstörung gegenüber der Kontrollsimulation CNTL ergeben, sind in Abbildung 8.3 als Funktion der geographischen Breite und der Jahreszeit gezeigt. Dargestellt ist in dieser Abbildung sowie in allen folgenden Abbildungen ein Mittelwert über die fünf einzelnen Simulationen in VOLC. Verbunden mit der Stärke der Wasserdampfstörung treten die größten OH-Änderungen in den Tropen auf. In 80 hPa erreicht die OH-Zunahme ihre stärkste Ausprägung mit Werten um $75 \cdot 10^3 \text{ molec cm}^{-3}$ in den Monaten Juli und August. Dies entspricht einer Erhöhung der lokalen OH-Konzentration um 10 bis 15%. In 50 hPa ist der OH-Anstieg im August und September mit Werten um $50 \cdot 10^3 \text{ molec cm}^{-3}$ (entspricht etwa 7%) am höchsten. Diese zeitliche Verschiebung ist mit der bereits erwähnten Ausbreitungszeit der Wasserdampfstörung verbunden. Ausgehend von dem jeweiligen Maximum nehmen die OH-Änderungen polwärts und im Laufe des Jahres wieder ab. Dabei folgen die OH-Änderungen nicht nur der Ausbreitung der Wasserdampfstörung, sondern auch dem Stand der Sonne, da die Bildung von OH ist an das Vorhandensein von Sonnenlicht gebunden ist. Sowohl in 50 als auch in 80 hPa sind die OH-Änderungen während der Wintermonate auf der Südhemisphäre stärker als auf der Nordhemisphäre. Die gezeigten Änderungen sind mit wenigen Ausnahmen statistisch signifikant (t-Test). Die Änderungen in den Polargebieten der jeweiligen Winterhemisphäre sind aufgrund der geringen Hintergrundkonzentrationen während der Polarnacht statistisch nicht signifikant.

Ozonproduktion und -abbau

Der in Abbildung 8.3 gezeigte OH-Anstieg hat unterschiedliche Auswirkungen auf die einzelnen Ozonproduktions- und Ozonabbaureaktionen. Ein Anstieg der OH-Konzentration führt direkt zu einem verstärkten Ozonabbau durch den HO_x -Zyklus. Desweiteren beeinflussen Kopplungsmechanismen zwischen dem HO_x - und dem NO_x - bzw. ClO_x -Zyklus auch die beiden letztgenannten Ozonabbauzyklen (s. Kapitel 2.3.2). Folgende Wechselwirkungen sind zu erwarten: Über Reaktion (2.29) bewirkt eine Zunahme der OH-Konzentration, dass NO_2 verstärkt in die Reservoirsubstanz HNO_3 überführt wird. Da die Rückgewinnung von NO_2 über Reaktion (2.32)

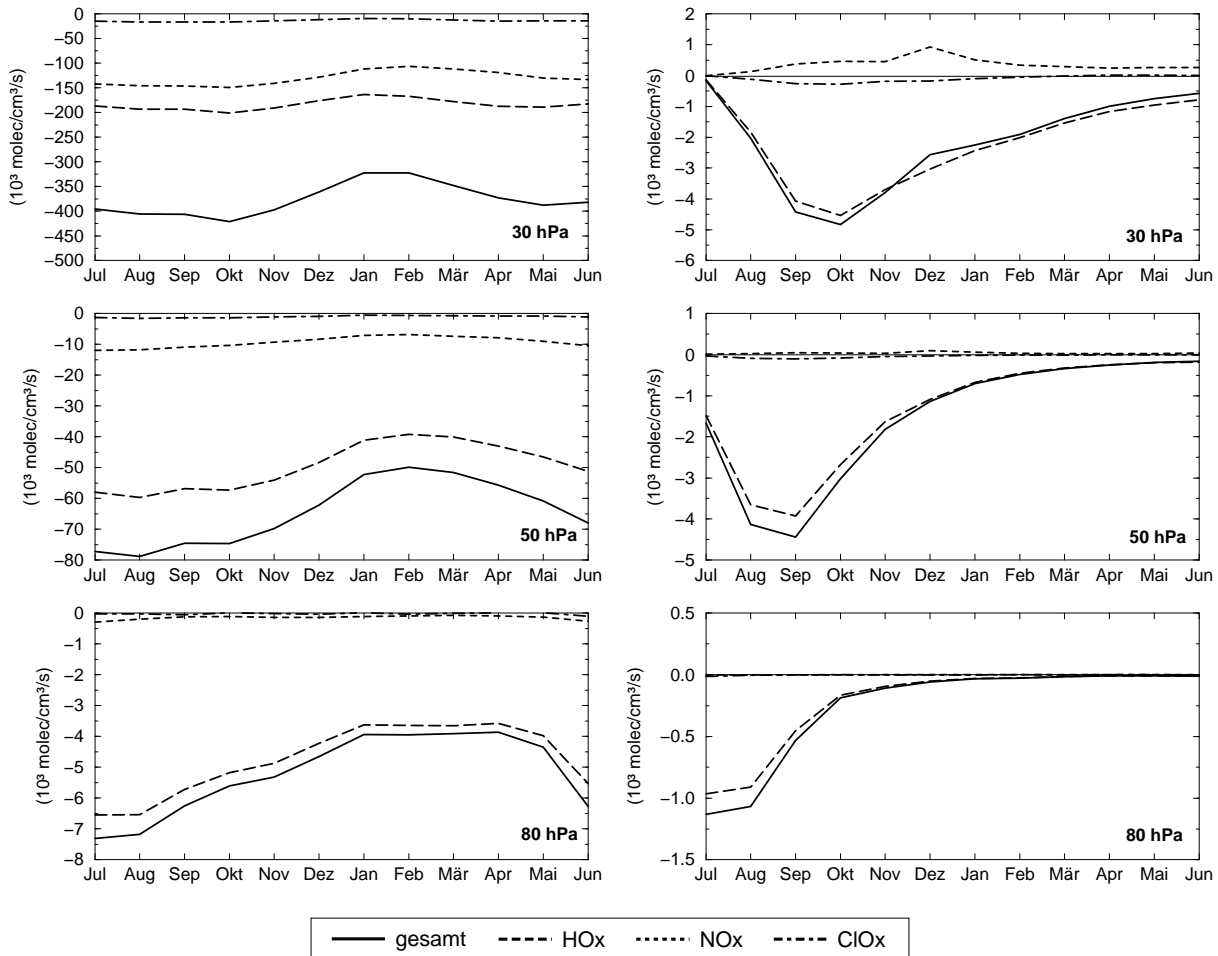


Abbildung 8.4: Links: Jahresgang des Ozonabbaus durch unterschiedliche Reaktionszyklen in den Tropen (5°S - 5°N) in 30, 50 und 80 hPa, Simulation CNTL. Rechts: Veränderungen des Ozonabbaus in der Simulation VOLC. Negative Änderungen kennzeichnen eine Zunahme, positive Änderungen eine Abnahme des Ozonabbaus. Einheit: $10^3 \text{ molec cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

langsamer abläuft, sollte somit der chemische Ozonabbau durch den NO_x -Zyklus abnehmen. Im Gegensatz dazu ist zu erwarten, dass der Ozonabbau durch den ClO_x -Zyklus mit steigenden OH-Konzentrationen zunimmt, da das Reservoirgas HCl über Reaktion (2.34) vermehrt in reaktive Cl-Radikale überführt wird. Im Folgenden werden die Veränderungen der einzelnen Ozonproduktions- und Ozonabbaureaktionen genauer quantifiziert.

Auf der linken Seite von Abbildung 8.4 ist sowohl der Ozonabbau insgesamt als auch der Ozonabbau durch verschiedene Reaktionszyklen in äquatorialen Breiten in Abhängigkeit von der Jahreszeit für verschiedene Höhengiveaus dargestellt. Der Ozonabbau weist einen Jahresgang auf, wobei der stärkste Ozonabbau in den Sommermonaten stattfindet. Desweiteren nimmt der Ozonabbau mit der Höhe zu. Der Jahresgang des Ozonabbaus ist zum einem mit dem temperaturbedingten Anstieg der Reaktionsraten in den Sommermonaten verbunden. Zum anderen berücksichtigen die Ozonabbauraten die aktuelle Ozonkonzentration, so dass sich der Jahresgang des Ozons im Ozonabbau widerspiegelt. Der Ozonabbau in den Tropen wird vom HO_x -Zyklus dominiert, gefolgt von NO_x - und ClO_x -Zyklus. In 80 hPa beträgt der Anteil des HO_x -Zyklus am Ozonabbau etwa 90%. Der Beitrag des NO_x -Zyklus liegt bei 4%. Mit zunehmender Höhe verliert der HO_x -Zyklus an Bedeutung, während der NO_x -Zyklus verstärkt zum Ozonabbau

beiträgt. In 30 hPa beträgt der Anteil des HO_x -Zyklus am Ozonabbau nur noch knapp 50%, während der Anteil des NO_x -Zyklus auf 35% gestiegen ist. Der ClO_x -Zyklus ist in den Tropen unbedeutend (s. Tabelle 8.1, CNTL). Wie ein Vergleich mit Kapitel 2.3.2 zeigt, werden die beobachteten Veränderungen der relativen Beiträge der einzelnen Ozonabbauzyklen mit der Höhe vom Modell realistisch wiedergegeben.

Auf der rechten Seite von Abbildung 8.4 sind die Änderungen des Ozonabbaus in den Tropen in der Simulation VOLC gegenüber CNTL dargestellt. Negative (positive) Änderungen kennzeichnen einen verstärkten (abgeschwächten) Ozonabbau. In 80 hPa tritt die stärkste Zunahme des Ozonabbaus zusammen mit der größten OH-Zunahme gleich zu Beginn der Simulation VOLC in den Monaten Juli und August auf. Der Ozonabbau nimmt um etwa 15% zu, wobei dieser Anstieg fast vollständig auf einen verstärkten Ozonabbau durch den HO_x -Zyklus zurückzuführen ist. Die Änderungen des NO_x - bzw. ClO_x -Zyklus sind in diesem Höhenbereich zu vernachlässigen. Mit zunehmender Höhe verschiebt sich die maximale Zunahme des Ozonabbaus zu den Monaten September und Oktober. Der zeitliche Verlauf sowie die Stärke der Veränderungen hängen direkt mit der Ausbreitung der Wasserdampfstörung und der daraus resultierenden Zunahme der OH-Konzentration zusammen. In 50 hPa beträgt die maximale Zunahme des Ozonabbaus 6%, in 30 hPa aufgrund der höheren Hintergrundwerte 1.25%. In den höheren Druckniveaus sind auch leichte Änderungen der Effektivität von ClO_x - bzw. NO_x -Zyklus zu erkennen, wobei der Ozonabbau durch den ClO_x -Zyklus leicht zunimmt, während der NO_x -Zyklus etwas an Effektivität verliert. Allerdings liegen selbst die maximalen Änderungen des NO_x -Zyklus nur bei etwa 1%. Die Zunahme des Ozonabbaus durch den ClO_x -Zyklus ist aufgrund der geringen Hintergrundwerte ebenfalls zu vernachlässigen. Neben den hier gezeigten Ozonabbauzyklen tragen zwar noch weitere Reaktionen zum Ozonabbau bei, wie z.B. Reaktion (2.21), aber die Unterschiede zwischen den Simulationen CNTL und VOLC sind sehr gering und daher an dieser Stelle nicht von Bedeutung.

In Richtung der Pole nimmt der Ozonabbau insgesamt zu, wobei sich auch der Jahresgang verstärkt. So findet z.B. in polaren Breiten während der Polarnacht nahezu kein Ozonabbau statt. Mit zunehmender geographischer Breite nimmt der Anteil des HO_x -Zyklus am Ozonabbau ab, während NO_x - und ClO_x -Zyklus an Bedeutung gewinnen (s. Tabelle 8.1, CNTL). In mittleren Breiten variieren die Veränderungen des Ozonabbaus, die sich in VOLC aufgrund der Wasserdampfzunahme ergeben, stark mit der Höhe (nicht gezeigt). In 80 hPa ist die Zunahme des Ozonabbaus in mittleren Breiten etwa doppelt so groß wie in den Tropen. In den höher gelegenen Druckniveaus betragen die Änderungen in mittleren Breiten etwa 50% (50 hPa) bzw. 25% (30 hPa) der Änderungen in den Tropen. Insgesamt dominiert auch in mittleren Breiten die Zunahme des HO_x -Zyklus gegenüber den Veränderungen der übrigen Ozonabbaureaktionen.

Veränderungen der Ozonschicht

Die beschriebenen Veränderungen der Ozonchemie bewirken die in Abbildung 8.5 gezeigten Veränderungen des Volumenmischungsverhältnisses von Ozon bzw. des Gesamt ozonegehalts. In 80 hPa zeigt sich der stärkste Ozonrückgang nicht wie erwartet in den Tropen, sondern in hohen Breiten der Nordhemisphäre während des Frühlings. In den Tropen kommt es in den Monaten Juli bis Oktober sogar zu einer leichten Ozonzunahme von etwa 0.25%. In 80 hPa dominiert während dieser Zeit eine verstärkte Ozonproduktion über dem Anstieg der Ozonabbauraten. Diese Zunahme der Ozonproduktion ist darauf zurückzuführen, dass aufgrund der erhöhten OH-Konzentration die Oxidation von Methan zunimmt, in deren Verlauf NO_2 gebil-

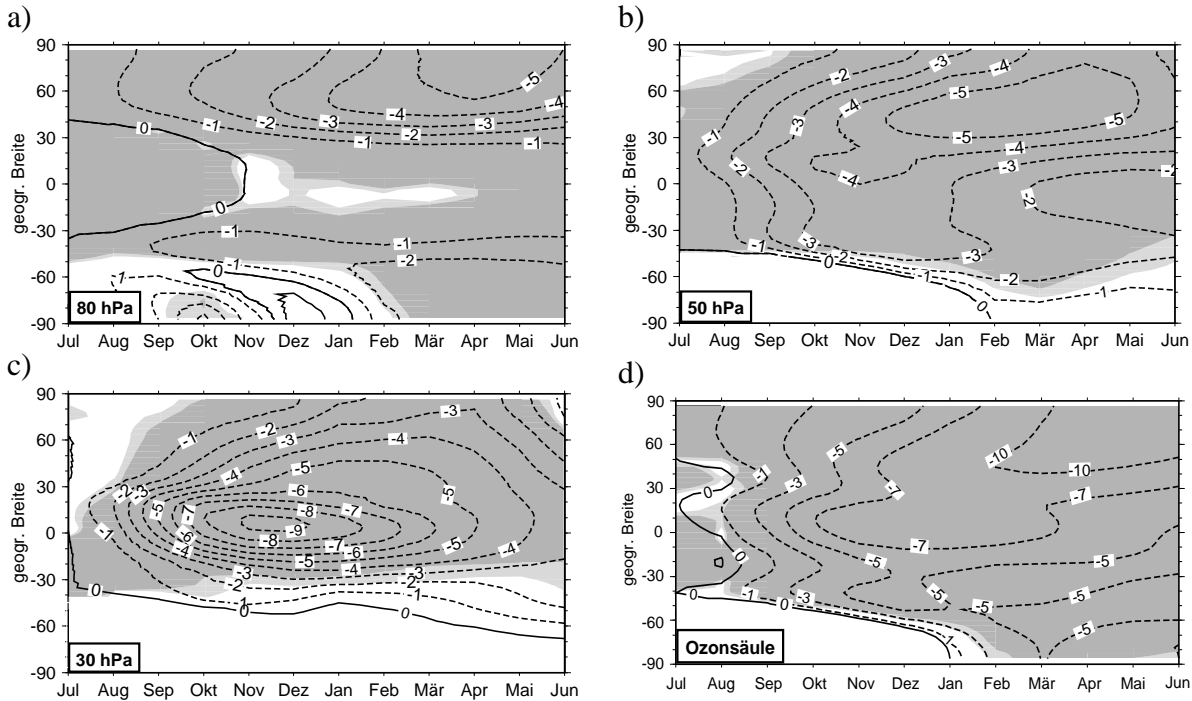


Abbildung 8.5: Änderungen des Volumenmischungsverhältnisses von Ozon in der Simulation VOLC im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Jahreszeit in 80 hPa (a), 50 hPa (b) und 30 Pa (c). Einheit: ppbv. d) Änderungen der Gesamtozonsäule. Einheit: 0.01%. Helle (dunkle) Flächen markieren Gebiete, in denen die Unterschiede auf dem 95% (99%)-Niveau signifikant sind.

det wird (Reaktion (2.8) und (2.10)), welches anschließend photolysiert wird und über Reaktion (2.16) zu einer vermehrten Produktion von Ozon führt. In höher gelegenen Druckniveaus dominiert dagegen der verstärkte Ozonabbau gegenüber der veränderten Ozonproduktion. Bereits in 50 hPa ist die Ozonzunahme nicht mehr zu erkennen. Dieses Höhenniveau ist mit Ausnahme der hohen Breiten der Südhemisphäre durch einen Rückgang des Ozongehalts gekennzeichnet, der zum größten Teil signifikant ist. Der größte Ozonrückgang zeigt sich auch hier nicht in den Tropen, sondern in mittleren bis hohen Breiten der Nordhemisphäre während des Spätwinters. Dieses Muster ist folgendermaßen zu erklären: Der größte Ozonrückgang tritt in der Tropen oberhalb von etwa 40 hPa während der Herbstmonate auf (s. Abb. 8.5c). Von den Tropen werden ozonarme Luftmassen mit der mittleren Meridionalzirkulation in Richtung Nordpol transportiert und sinken dort ab. Insgesamt liegen selbst die maximalen Ozonänderungen in den einzelnen Niveaus unter 10 ppbv, d.h. die lokale Ozonabnahme, die durch die vorgegebene kurzfristige Wasserdampfstörung hervorgerufen wird, bleibt unter 1%.

Die soeben beschriebenen Änderungen im Volumenmischungsverhältnis von Ozon resultieren in einem geringen Rückgang der Ozonsäule (Abb. 8.5d), der unter 1% liegt. In Übereinstimmung mit den Ozonveränderungen 80 und 50 hPa treten die größten Änderungen im Gesamt-ozon in den hohen Breiten der Nordhemisphäre während der Frühlingsmonate auf. Der größte Rückgang der tropischen Ozonsäule tritt in den Wintermonaten mit Werten um 0.07%. Damit zeigt sich deutlich, dass der rein chemische Effekt eines kurzfristigen Anstiegs des Wasserdampfgehalts in der tropischen unteren Stratosphäre um 2 ppmv nicht ausreicht, um den in CNTL_1999 simulierten Rückgang der tropischen Ozonsäule um bis zu 4% nach einem Vulkanausbruch zu erklären.

Nachdem der Rückgang der tropischen Ozonsäule nach einem Vulkanausbruch nicht allein durch den chemischen Effekt der Wasserdampfstörung zu erklären ist, sind weitere Ursachen in einer veränderten Dynamik zu suchen. Der zusätzliche Eintrag von Aerosolen in die Atmosphäre durch einen Vulkanausbruch verursacht eine Erwärmung der tropischen Stratosphäre und damit eine verstärkte Meridionalzirkulation. In der Modellsimulation CNTL_1999 ist der Vertikaltransport in den Tropen nach einem Vulkanausbruch um etwa 20% erhöht, was zu einer Anhebung des Ozonprofils, also einem größeren Anteil ozonarmer, troposphärischer Luftmassen in der Luftsäule, und damit einem Rückgang der Gesamtozonwerte führt. In Abbildung 8.1b sind zusätzlich die mit einem linearen Chemie-Transport-Säulenmodell abgeschätzten Ozonanomalien dargestellt. Für diese Abschätzung wurden Ozonproduktions- und Ozonabbauraten sowie Vertikalgeschwindigkeiten aus der transienten Modellsimulation CNTL_1999 verwendet. Die maximalen Ozonanomalien, die durch eine veränderte Zirkulation nach einem Vulkanausbruch hervorgerufen werden, betragen etwa -5% . Somit zeigt sich, dass die in CNTL_1999 simulierten Ozonanomalien nach einem Vulkanausbruch hauptsächlich dynamisch verursacht sind und der chemische Effekt eines zusätzlichen Wasserdampfeintrags vernachlässigbar ist.

Kinne et al. (1992) untersuchten die Auswirkungen des Pinatubo-Aerosols auf die Temperatur der Stratosphäre sowie auf den tropischen Vertikaltransport. Ihre Abschätzungen ergaben eine Anhebung des Ozonprofils in den Tropen um etwa 1.8 km in einem Zeitraum von etwa 5 Monaten nach dem Ausbruch des Pinatubo. Mit Hilfe der veränderten tropischen Aufstiegsraten simulierten Kinne et al. (1992) die Veränderungen des Gesamtozons. Der stärkste Ozonrückgang zeigt sich sowohl in den Simulationsergebnissen von Kinne et al. (1992) mit 26 DU ($\approx 12\%$) als auch in TOMS-Satellitendaten mit 18 DU ($\approx 7\%$) im November 1991, also fünf Monate nach dem Vulkanausbruch. In CNTL_1999 tritt die stärkste Ozonanomalie mit -17 DU ($\approx 6\%$) erst ungefähr 8 Monate nach dem Pinatuboausbruch auf. Die Stärke des simulierten Ozonminimums fällt etwas geringer aus als bei Kinne et al. (1992), stimmt allerdings sehr gut mit Satellitenbeobachtungen überein (Randel et al., 1995).

8.2 Langfristige Änderung

Im vorangegangenen Abschnitt wurde gezeigt, dass ein kurzfristiger Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfs nur geringe Auswirkungen auf die Ozonchemie hat. Dieser Abschnitt befasst sich nun mit den Auswirkungen von langfristigen Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts. Die in diesem Abschnitt vorgestellten Ergebnisse basieren auf den Modellexperimenten H2O_1 und H2O_5, mit denen eine Zunahme des Wasserdampfgehalts in der Stratosphäre um 1 bzw. 5 ppmv simuliert wird (s. Kapitel 4.3). Als Kontrollsimulation dient, wie in Abschnitt 8.1, die Modellsimulation CNTL. Da sich die Ergebnisse der Simulationen H2O_1 und H2O_5 qualitativ nicht unterscheiden, werden im Folgenden ausschließlich die Ergebnisse der Simulation H2O_5 vorgestellt.

Wasserdampf und OH-Konzentration

In Abbildung 8.6 ist die mittlere Verteilung der Wasserdampfstörung in der Simulation H2O_5 für die Monate Januar (links) und Juli (rechts) gezeigt. Der grau markierte Bereich kennzeichnet die „Quellregion“ der Wasserdampfstörung in der tropischen unteren Stratosphäre zwischen 30°N und 30°S , in der die Wasserdampfstörung über die gesamte Simulationsdauer auf 5 ppmv

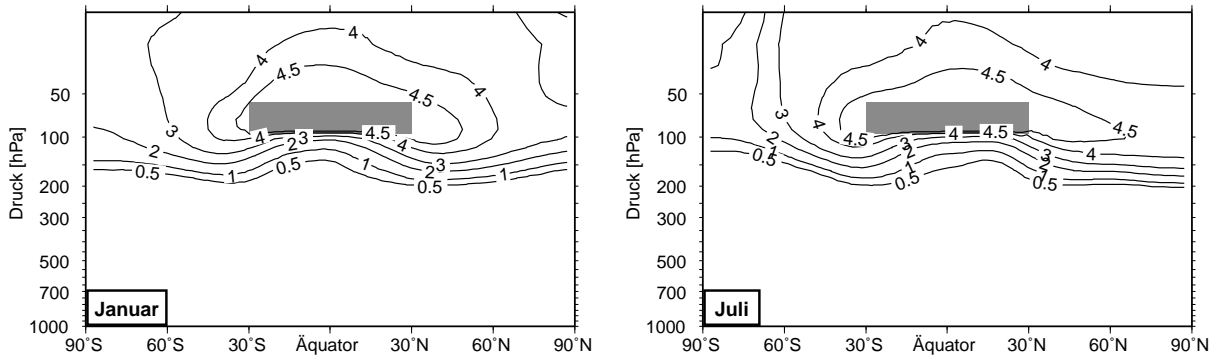


Abbildung 8.6: Zonal gemittelte Verteilung der Wasserdampfstörung in der Simulation H2O_5 für die Monate Januar (links) und Juli (rechts). Einheit: ppmv. Der grau markierte Bereich kennzeichnet die „Quellregion“ der Wasserdampfstörung.

fixiert wurde. Ausgehend von der tropischen unteren Stratosphäre breitet sich der Wasserdampf vertikal und horizontal aus. Analog zu Abschnitt 8.1 zeigt sich auch hier eine stärkere Ausbreitung in Richtung Nordpol. In den Extratropen der Südhemisphäre ist der Gehalt der Wasserdampfstörung um etwa 15–20% geringer als auf der Nordhemisphäre. Desweiteren zeigt sich im Südwinter (Juli) eine deutliche Dehydrierung der polaren unteren Stratosphäre, wodurch der Gehalt der Wasserdampfstörung auf Werte unter 1 ppmv fällt. Die Simulation H2O_1 zeigt eine identische Verteilung, wobei die Wasserdampfstörung etwa ein Fünftel der in Abbildung 8.6 gezeigten Werte beträgt.

Die Änderungen der OH-Konzentration, die sich aus der in Abbildung 8.6 gezeigten Wasserdampfstörung ergeben (Reaktion (2.4)), sind in Abbildung 8.7 für die Monate Januar (links) und Juli (rechts) dargestellt. Die stärkste OH-Zunahme tritt dabei in der unteren Stratosphäre der Tropen und Subtropen sowie zum Modelloberrand hin in den mittleren und hohen Breiten der jeweiligen Sommerhemisphäre auf. In der unteren Stratosphäre entspricht dies einer Zunahme des OH-Gehalts um mehr als 25%, in den höheren Druckniveaus um 10–25%. In H2O_1 betragen die maximalen Änderungen in den Tropen 5–10%. Ein genauere Vergleich der beiden Simulationen H2O_1 und H2O_5 zeigt, dass die OH-Konzentration linear mit der Wasser-

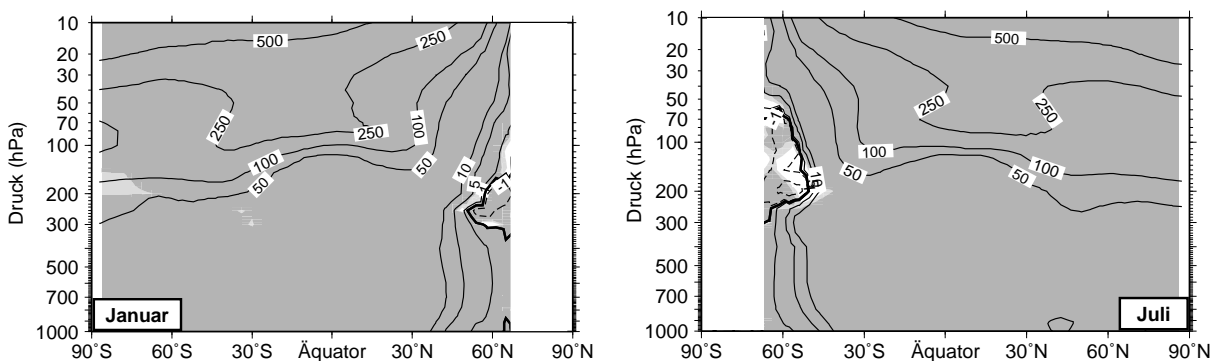


Abbildung 8.7: Änderungen der OH-Konzentration in H2O_5 im Vergleich zu CNTL für Januar (links) und Juli (rechts). Einheit: $10^3 \text{ molec cm}^{-3}$. Die fett eingezeichnete Linie markiert den Übergang zwischen positiven und negativen Differenzen. Die Änderungen während des polaren Winters sind aufgrund der geringen Hintergrundkonzentration zu vernachlässigen und deswegen nicht gezeigt. Helle (dunkle) Flächen markieren Gebiete, in denen die Unterschiede auf dem 95% (99%)-Niveau signifikant sind.

dampfstörung ansteigt (ohne Abb.). Da OH-Radikale nur im sonnenbeschienenen Teil der Atmosphäre bestehen können, ist die Hintergrundkonzentration in der winterlichen polaren Stratosphäre sehr gering. Aus diesem Grund sind die in Abbildung 8.7 gezeigten OH-Änderungen in polaren Breiten der jeweiligen Winterhemisphäre zu vernachlässigen.

Verbunden mit der erhöhten OH-Konzentration nimmt in der Simulation H2O_5 die chemische Wasserdampfproduktion durch die Oxidation von Methan (Reaktion (2.6) bis (2.14)) in der Stratosphäre ebenfalls zu. In H2O_5 erhöht sich die Wasserdampfproduktion im Bereich der Tropen und mittleren Breiten oberhalb von 20 hPa um etwa 5%. In der Modellsimulation H2O_1 erhöht sich die chemische Wasserdampfproduktion entsprechend um etwa 1%. Unterhalb von 20 hPa ist die Wasserdampfproduktion aufgrund der Methanoxidation unbedeutend und die sich ergebenden Änderungen dementsprechend zu vernachlässigen.

Ozonproduktion und -abbau

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt erläutert wurde, verändert der Anstieg der OH-Konzentration die Effektivität der einzelnen Ozonproduktions- und Ozonabbauzyklen in unterschiedlicher Art und Weise. Der dominierende Effekt ist dabei eine Zunahme des katalytischen Ozonabbaus durch den HO_x-Zyklus (Reaktion (2.19) bis (2.21)), die direkt mit der erhöhten OH-Konzentration verbunden ist. In Tabelle 8.1 sind die Veränderungen der wichtigsten Ozonabbauzyklen in 50 hPa für verschiedene geographische Breiten zusammengestellt. Zusätzlich ist der Anteil der einzelnen Reaktionszyklen am Ozonabbau in der Simulation CNTL angegeben. Den größten Beitrag zum Ozonabbau in den Tropen liefert der HO_x-Zyklus gefolgt vom NO_x-Zyklus. Der ClO_x-Zyklus spielt in den Tropen nur eine untergeordnete Rolle. In den Tropen nimmt der Ozonabbau in H2O_5 (H2O_1) insgesamt um etwa 26% (5%) zu, wobei der Ozonabbau durch den HO_x-Zyklus mit 29% (6.4%) am stärksten zunimmt. Im Gegensatz dazu nimmt der Ozonabbau durch den NO_x-Zyklus in den Tropen leicht um 7.7% (1.6%) ab. Die Zunahme der OH-Konzentration führt in H2O_5 über Reaktion (2.29) zu einer verstärkten Bildung des Reservoirgases HNO₃ und einer verringerten Effektivität des NO_x-Zyklus. Im Falle des ClO_x-Zyklus bewirkt ein Anstieg der OH-Konzentrationen durch Reaktion (2.34) eine gesteigerte Konvertierung des Reservoirgas HCl in Cl-Radikale. Zusätzlich bewirkt Reaktion (2.35) und die anschließende Photolyse des entstehenden HOCl eine Beschleunigung des katalytischen Ozonabbaus, da zusätzlich zu dem entstehenden Cl-Radikal ein OH-Radikal entsteht, das ebenfalls zum katalytischen Ozonabbau beiträgt. Die Veränderungen des ClO_x-Zyklus sind aufgrund des geringen Beitrags zum Ozonabbau allerdings vernachlässigbar.

In mittleren Breiten zeigt sich ein ähnliches Muster. Generell steigen die Ozonabbauraten in Richtung der Pole an, wobei der NO_x- und der ClO_x-Zyklus im Vergleich zu den Tropen an Bedeutung gewinnen, während der Anteil des HO_x-Zyklus am Ozonabbau etwas geringer wird. In mittleren Breiten nimmt der Ozonabbau in H2O_5 (H2O_1) im Vergleich zu CNTL insgesamt um 11% (2.4%) zu. Dabei steigt die Effektivität des HO_x-Zyklus um 19% (4.1%) und die des ClO_x-Zyklus um 3.4% (2.7%), während die des NO_x-Zyklus um 7% (2.2%) abnimmt.

Neben einer Zunahme des chemischen Ozonabbaus bewirkt die in H2O_5 simulierte OH-Zunahme auch eine verstärkte Ozonproduktion. Zum einen führt ein Rückgang des stratosphärischen Ozongehalts dazu, dass ultraviolette Strahlung vermehrt in tieferliegende Atmosphärenschichten vordringen kann und dadurch in der unteren Stratosphäre über den Chapman-Mechanismus (Reaktion (2.15) und (2.16)) mehr Ozon produziert wird. Dieser Effekt betrifft

Tabelle 8.1: Ozonabbauzyklen in 50 hPa in verschiedenen Breiten und Jahreszeiten. CNTL: Prozentualer Anteil der einzelnen Reaktionszyklen am gesamten Ozonabbau. H2O_1 und H2O_5: Prozentuale Änderung im Vergleich zu CNTL. Der Term **O₃-Abbau** bezeichnet die Summe aller im Modell berücksichtigten Abbaureaktionen. Positive (negative) Werte kennzeichnen einen verstärkten (abgeschwächten) Ozonabbau.

	O₃-Abbau	HO _x	NO _x	ClO _x
<i>Jahresmittel, Tropen</i>				
CNTL	—	77.1	14.0	1.4
H2O_1	+5.1	+6.4	−1.6	+7.8
H2O_5	+25.8	+29.0	−7.7	+114.9
<i>Jahresmittel, mittlere Breiten</i>				
CNTL	—	60.8	19.6	8.4
H2O_1	+2.4	+4.1	−2.2	+2.7
H2O_5	+11.0	+19.0	−7.0	+3.4
<i>arktischer Frühling, polare Breiten</i>				
CNTL	—	26.8	47.7	7.9
H2O_1	−0.9	+5.6	−6.7	+12.4
H2O_5	−1.5	+23.3	−17.5	+16.5
<i>antarktischer Frühling, polare Breiten</i>				
CNTL	—	6.7	4.0	88.7
H2O_1	+38.9	−3.4	−47.4	+46.4
H2O_5	+126.6	−22.8	−94.9	+149.1

hauptsächlich die tropische Stratosphäre zwischen 20 und 40 hPa, wobei die Ozonproduktion durch den Chapman-Mechanismus in H2O_5 (H2O_1) mit 1–3% ($\approx 0.5\%$) nur wenig zunimmt. Zum anderen kommt es im Zusammenhang mit der erhöhten Methanoxidation zu einer Zunahme von NO₂, das anschließend photolysiert wird und damit über Reaktion (2.16) zu einer verstärkten Ozonproduktion führt. Insgesamt dominiert der Anstieg des Ozonabbaus, so dass die simulierte Wasserdampfstörung zu einem Rückgang des stratosphärischen Ozongehalts führt.

In Abbildung 8.8 sind die Ozonänderungen in der Simulation H2O_5 im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Höhe für Januar (links) und Juli (rechts) dargestellt. Der stärkste Ozonrückgang tritt mit Werten um 150–200 ppbv im Bereich der Tropen und den mittleren bis hohen Breiten der jeweiligen Winterhemisphäre oberhalb von etwa 30 hPa sowie in der unteren extratropischen Stratosphäre der jeweiligen Sommerhemisphäre auf. Neben den stratosphärischen Änderungen ist in Abbildung 8.8 auch ein leichter Rückgang des troposphärischen Ozongehalts um etwa 1% zu erkennen.

Polare Stratosphärenwolken

Die bisher genannten Prozesse haben nur die Gasphasenchemie, nicht aber heterogene Prozesse an den Oberflächen polarer Stratosphärenwolken (PSCs) berücksichtigt. PSCs bilden sich bei

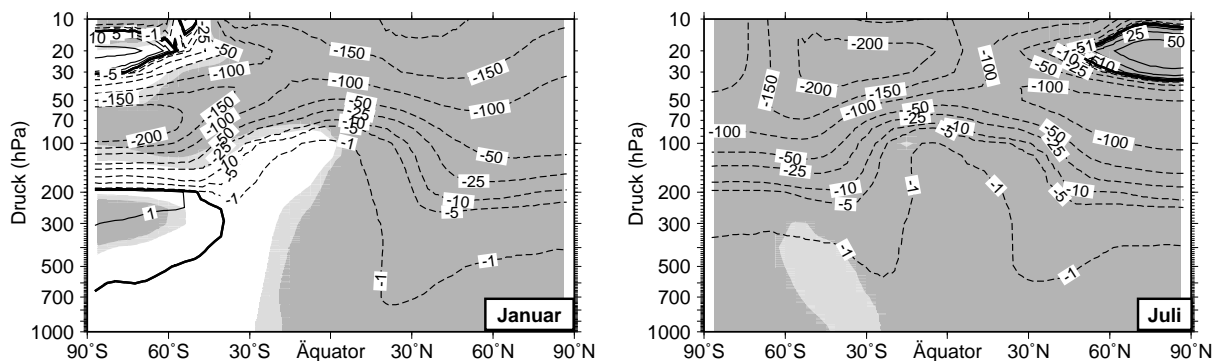


Abbildung 8.8: Zonal und klimatologisch gemittelte Ozonänderungen in der Simulation H2O_5 im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL. Einheit: ppbv. Helle (dunkle) Flächen markieren Gebiete, in denen die Unterschiede auf dem 95% (99%)-Niveau signifikant sind.

Temperaturen unterhalb von etwa 195 K (s. Kapitel 2.3.2), wie sie in der Stratosphäre während der Polarnacht auftreten können. An den Oberflächen der PSCs werden sogenannte Reservoirsubstanzen in reaktive Substanzen überführt (Reaktionen (2.36) bis (2.39)), die am Ende der Polarnacht photolysiert werden und einen effektiven katalytischen Ozonabbau in Gang setzen. Dabei zeigen sich deutliche interhemisphärische Unterschiede. Die Temperaturen im nordhemisphärischen Polarwirbel sind im Mittel wesentlich höher als im südhemisphärischen Polarwirbel. Daraus folgt eine geringere PSC-Bildung sowie eine schwächere Denitrifizierung der arktischen Stratosphäre. Aufgrund der starken Denitrifizierung der antarktischen Stratosphäre wird zudem die Rückbildung des Reservoirgases ClONO_2 verhindert, wodurch der katalytische Ozonabbau durch den ClO_x -Zyklus weiter begünstigt wird (Douglass et al., 1995; Solomon, 1999). Diese interhemisphärischen Unterschiede hinsichtlich der Denitrifizierung der polaren Stratosphäre sowie der Rückbildung der Reservoirgase werden vom Modell realistisch wiedergegeben (Steil et al., 1998). Dies zeigt sich auch in den polaren Ozonabbauraten, die im nordhemisphärischen Frühling nur etwa 30% der Ozonabbauraten im antarktischen Frühling betragen. Desweiteren trägt auf der Nordhemisphäre der NO_x -Zyklus den größten Teil ($\approx 50\%$) zum Ozonabbau bei, während auf der Südhemisphäre mit knapp 90% Anteil der ClO_x -Zyklus dominiert (s. Tabelle 8.1).

Ein Zunahme der Wasserdampfkonzentration bewirkt eine Zunahme der Sättigungstemperatur (s. Gleichung 2.1) und beeinflusst damit die PSC-Bildung. Unter normalen atmosphärischen Bedingungen (H_2O : 5 ppmv) beträgt die Sättigungstemperatur in 50 hPa ungefähr 188.4 K (nach Salby (1996)). Ein Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts um 3 ppmv führt zu einem Anstieg der Sättigungstemperatur auf 191.2 K (50 hPa), d.h. die Änderungsrate beträgt unter den gegebenen Bedingungen ungefähr 0.8 K/ppmv.

Das Chemiemodul CHEM unterscheidet zwischen PSC Typ I (NAT) und Typ II (Eis) (s. Abschnitt 3.2). Da die Bildung von PSCs Typ II im Modell nur von der simulierten Temperatur und dem Wasserdampfmischungsverhältnis abhängt, bewirkt ein erhöhter stratosphärischer Wasserdampfgehalt direkt eine verstärkte PSC-Bildung sobald die simulierten Temperaturen unter die jeweilige Sättigungstemperatur fallen. In Abbildung 8.9 ist der Jahresgang der zonal gemittelten Temperatur in 50 hPa, 80°N/S für 10 Modelljahre der Simulation CNTL dargestellt. Dabei zeigen sich die bereits angesprochenen interhemisphärischen Unterschiede: Die Temperaturen im nordpolaren Winter liegen um mehr als 10 K über den Temperaturen im südpolaren Winter. Desweiteren sind die Temperaturen im nordhemisphärischen Polarwirbel von einer deutlich hö-

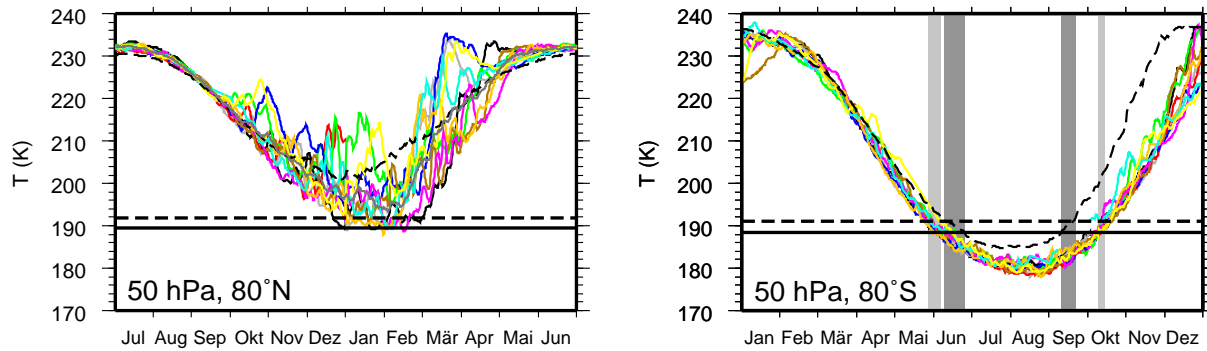


Abbildung 8.9: Jahresgang der zonal gemittelten Temperatur in 50 hPa, 80°N (links) und 80°S (rechts) in der Simulation CNTL. Abgebildet sind 10 verschiedene Jahre. Zur besseren Übersicht ist die Zeitachse in der linken Abbildung um 6 Monate verschoben. Die gestrichelten Linien zeigen beobachtete Temperaturen (NCEP Reanalysen, <http://hyperion.gsfc.nasa.gov>), gemittelt über den Zeitraum 1979–2004. Die horizontalen Linien markieren die Sättigungstemperatur für PSC Typ II bei einem H₂O Mischungsverhältnis von 5 ppmv (188.4 K, durchgezogen) bzw. 8 ppmv (191.2 K, gestrichelt). Die graue Schattierung markiert die Verlängerung des Zeitraums, in dem PSC-Bildung möglich ist (hell: E39/C, dunkel: NCEP).

heren Variabilität gekennzeichnet. Dieser Temperaturunterschied macht sich dementsprechend in der PSC-Bildung bemerkbar: In der südpolaren Stratosphäre fallen die Temperaturen zwischen Juni und September/Oktober bereits bei normalen Bedingungen (H₂O: 5 ppmv) anhaltend unter die PSC-Bildungstemperatur (schwarze horizontale Linie in Abb. 8.9). In der nordpolaren Stratosphäre fallen die Temperaturen im Winter dagegen nur an einzelnen Tagen unter die PSC-Bildungstemperatur. Daraus ergibt sich im Modell für die Südhemisphäre ein mehr als doppelt so großes PSC-Potential als für die Nordhemisphäre (Schnadt, 2001).

Eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts und die damit verbundene Zunahme der Sättigungstemperatur (gestrichelte horizontale Linie in Abb. 8.9) bewirkt in der südpolaren Stratosphäre nun zweierlei: Zum einen verlängert sich der Zeitraum der PSC-Bildung, da die PSC-Bildung zu Beginn des Winters bereits bei höheren Temperaturen einsetzt und am Ende des Winters auch noch bei höheren Temperaturen fort dauert. Wie in Abbildung 8.9 durch die graue Schattierung angedeutet, setzt die PSC-Bildung bei einem um 3 ppmv erhöhten Wasserdampfgehalt anstatt Anfang Juni bereits etwa zwei Wochen früher gegen Ende Mai ein. Im Oktober verlängert sich der Zeitraum, in dem sich PSCs bilden können, um etwa eine Woche. Zum anderen führt die erhöhte Wasserdampfkonzentration zu einem Anstieg der PSC-Oberflächen.

Im Gegensatz zur Südhemisphäre führt eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts und die damit verbundene Erhöhung der Sättigungstemperatur im nordhemisphärischen Polarwirbel nicht zu einer signifikanten Zunahme der PSC-Bildung. Wie in Abbildung 8.9 deutlich zu erkennen ist, wird auch die erhöhte Sättigungstemperatur nur vereinzelt während sehr kalten Episoden unterschritten.

Um die Realitätsnähe der Modellergebnisse bewerten zu können, werden die modellierten Temperaturen in der polaren Stratosphäre in Abbildung 8.9 zusätzlich mit NCEP-Reanalysen verglichen, die auf langjährigen Beobachtungen (1979–2004) basieren. Für die Nordhemisphäre ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtungen, wobei die mittlere Tiefsttemperatur im Modell etwas niedriger ausfällt als in den NCEP-Daten (Hein et al., 2001). Wie oben bereits erwähnt bewirkt ein Wasserdampfanstieg in der nordpolaren Stratosphäre keinen Anstieg der PSC-Bildung, da die Sättigungstemperaturen nicht unterschritten werden. Da

die modellierten Temperaturen in der polaren Stratosphäre sogar noch etwas niedriger sind als beobachtet, ist zu erwarten, dass dieses Ergebnis auch auf die reale Atmosphäre übertragbar ist. Um einen signifikanten Anstieg der PSC-Bildung in der arktischen Stratosphäre zu erhalten, wäre eine deutliche Abkühlung der Stratosphäre notwendig, zu der auch ein Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts beitragen würde. Allerdings bestehen bzgl. der Größenordnung der stratosphärischen Abkühlung, die durch einen Anstieg der Treibhausgase hervorgerufen wird, noch große Unsicherheiten (WMO, 2003, Kapitel 3).

Auf der Südhemisphäre zeigen sich größere Unterschiede zwischen Modell und NCEP-Daten. Die mittleren Tiefsttemperaturen im Winter sind im Modell deutlich niedriger als in den Beobachtungen (Hein et al., 2001). Dennoch wird während der Wintermonate Juni bis September auch in den Beobachtungen die Bildungstemperatur von PSCs dauerhaft unterschritten. Es ist also zu erwarten, dass ein Wasserdampfanstieg auch in der realen Atmosphäre zu einer Zunahme der PSC-Bildung bzw. einer Verlängerung des PSC-Zeitraums führt. Möglicherweise ist der Effekt eines verlängerten Zeitraums der PSC-Bildung in der realen Atmosphäre (dunkelgraue Schattierung in Abbildung 8.9) sogar stärker ausgeprägt als in den Modellsimulationen (hellgraue Schattierung): Im Juni, d.h. zu Beginn der PSC-Bildung, schreitet die Abkühlung der Stratosphäre bereits langsamer voran als im Vormonat Mai. Ein vergleichbares Verhalten ist auch gegen Ende der PSC-Phase im September und dem Folgemonat Oktober zu erkennen.

Neben der simulierten Temperatur und dem simulierten Wasserdampf-mischungsverhältnis wird bei der Bildung von PSCs Typ I (NAT) nach der Theorie von Hanson und Mauersberger (1988) zusätzlich noch das simulierte HNO_3 Mischungsverhältnis berücksichtigt (s. Abschnitt 3.2). Bei konstantem HNO_3 Mischungsverhältnis würde eine Zunahme des Wasserdampfgehalts analog zu PSCs Typ II zu einer Erhöhung der Sättigungstemperatur für PSCs Typ I führen (Hanson und Mauersberger, 1988, Abb. 1). Dieser Zusammenhang hätte auch bei einem Rückgang des HNO_3 Mischungsverhältnisses bis zu einem gewissen Grad noch Gültigkeit. Um die Auswirkungen einer Wasserdampfzunahme auf die NAT-Bildung bestimmen zu können, müssen demnach Änderungen des HNO_3 Mischungsverhältnisses mit in Betracht gezogen werden. Die Modellsimulationen H2O_1 sowie H2O_5 zeigen zu Beginn des Winters (NH: November, SH: Mai) jeweils eine leichte Zunahme des NAT-Mischungsverhältnisses¹ in der polaren Stratosphäre. In den jeweiligen Wintermonaten (NH: Dezember bis März/April, SH: Juni bis Oktober) nimmt das NAT Mischungsverhältnis in den Simulationen H2O_1 und H2O_5 im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL dagegen ab (s. Abb. 8.10b). Dieses Verhalten ist auf eine verstärkte Denitrifizierung der polaren Stratosphäre im Frühwinter zurückzuführen, die die NAT-Bildung im weiteren Verlauf des Winters verringert.

Ozonloch

Die soeben beschriebenen Veränderungen der PSC-Bildung in der polaren Stratosphäre bewirken auf der Südhemisphäre einen verstärkten heterogenen Ozonabbau im antarktischen Frühling (s. Tabelle 8.1). Auf der Nordhemisphäre zeigen die Modellsimulationen H2O_1 und H2O_5 nahezu keine Änderung der Ozonabbauraten im polaren Frühling. Es kommt lediglich zu einer Verschiebung zwischen den einzelnen Reaktionszyklen, wobei sich die Effekte gegenseitig nahezu aufheben. Auf der Südhemisphäre führt die Wasserdampf-störung in der Simulation H2O_5 dagegen zu einer Verdopplung des Ozonabbaus. In H2O_1 steigen die Ozonabbauraten

¹Die Formulierung „NAT-Mischungsverhältnis“ beschreibt den in NAT gebundenen Anteil der Salpetersäure.

ten um knapp 40% an. Während in den bisher diskutierten Regionen die gestiegene Effektivität des HO_x-Zyklus der dominierende Faktor war, zeigt sich im antarktischen Frühling ein deutlich anderes Bild. Sowohl der HO_x- als auch der NO_x-Zyklus verlieren an Effektivität, wobei der Anteil dieser beiden Abbauzyklen eher gering ist. Die Zunahme des Ozonabbaus wird eindeutig von einer verstärkten Effektivität des ClO_x-Zyklus dominiert.

Zur detaillierten Analyse der veränderten Ozonchemie im antarktischen Polarwirbel, die sich in H2O_5 aufgrund des gestiegenen stratosphärischen Wasserdampfgehalts ergibt, sind in Abbildung 8.10 die Änderungen verschiedener ozonrelevanter Spezies in der antarktischen Stratosphäre für den Zeitraum Juli bis November dargestellt. Abbildung 8.10b und 8.10c zeigen die Differenz des Mischungsverhältnisses von PSC Typ I (NAT) und Typ II (Eis) zwischen H2O_5 und CNTL. In den Abbildungen sind die bereits erwähnte Abnahme von NAT-Teilchen aufgrund einer verstärkten Denitrifizierung sowie die Zunahme von Eisteilchen im antarktischen Polarwirbel deutlich zu erkennen. Die größten Änderungen treten dabei verbunden mit den tiefsten Temperaturen während der Polarnacht im Wirbelzentrum auf. Insgesamt überkompensiert die Zunahme der PSCs Typ II den Rückgang der PSCs Typ I, was zu einer Zunahme der Gesamtoberfläche von PSCs führt. An der Oberfläche dieser zusätzlichen Partikel werden durch heterogene Reaktionen verstärkt Chlorsubstanzen freigesetzt. Im Bereich zwischen 50 und 60°S setzt eine signifikante Zunahme des aktivierten Chlors bereits im August ein (s. Abb. 8.10f), wobei die maximale Zunahme mit Werten um 0.7 ppbv in polaren Breiten nach dem Ende der Polarnacht auftritt. Die zeitliche Entwicklung der beiden Reservoirsubstanzen ClONO₂ und HCl ist mit den eben beschriebenen Veränderungen der Chloraktivierung in Übereinstimmung: Von August bis Oktober zeigt Abbildung 8.10h einen signifikanten Rückgang von ClONO₂ in den polaren Breiten der Südhemisphäre, der mit der verstärkten Chloraktivierung an den PSC-Oberflächen verbunden ist. Der stärkste Rückgang des ClONO₂-Mischungsverhältnisses tritt in räumlicher und zeitlicher Übereinstimmung mit der stärksten Zunahme von aktiviertem Chlor auf. Das Mischungsverhältnis von HCl (Abb. 8.10g) zeigt im Bereich des Polarwirbels keine Änderungen. Erst in den Monaten Oktober und November steigt das HCl-Mischungsverhältnis in hohen Breiten der Südhemisphäre an. Aufgrund der starken Denitrifizierung der polaren Stratosphäre stehen im antarktischen Frühling Stickoxide nicht mehr ausreichend zur Verfügung, um reaktive Chlorverbindungen wieder in der Reservoirsubstanz ClONO₂ zu speichern. Stattdessen erfolgt eine verstärkte Bildung von HCl. Allerdings sind die gezeigten Differenzen statistisch nicht signifikant, was wahrscheinlich auf die zeitliche Variabilität bzgl. des Ende des Polarwirbels zurückzuführen ist. Die Abbildungen 8.10d und 8.10e verdeutlichen die verstärkte Denitrifizierung der antarktischen Stratosphäre. Sowohl das Mischungsverhältnis von Salpetersäure (HNO₃) als auch der Stickoxide (NO_x) zeigen einen deutlichen Rückgang, insbesondere im Frühling, was auf ein irreversibles Entfernen der Stickoxide aus der Gasphase hindeutet. Die Denitrifizierung der antarktischen Stratosphäre wird durch die Veränderungen der NO_y²-Werte bestätigt (nicht gezeigt), die ebenfalls einen deutlichen Rückgang während der Polarnacht zeigen und somit eine Verschiebung innerhalb der NO_y-Familie ausschließen. Insgesamt führen die eben erläuterten Prozesse zu einem verstärkten stratosphärischen Ozonabbau, der Ende Oktober mit Werten um 900 ppbv ein Maximum erreicht (Abb. 8.10a).

Die aus den bisher gezeigten Ergebnissen resultierenden Änderungen der Gesamtozonsäule in der Simulation H2O_5 sind in Abbildung 8.11 als Funktion der geographischen Breite und der Jahreszeit dargestellt. Auf der Nordhemisphäre und in den Tropen zeigt sich ein sehr einheitliches Muster ohne ausgeprägten Jahresgang. In diesen Bereichen beträgt die Abnahme des Ge-

²NO_y=NO_x+HNO₃+NAT

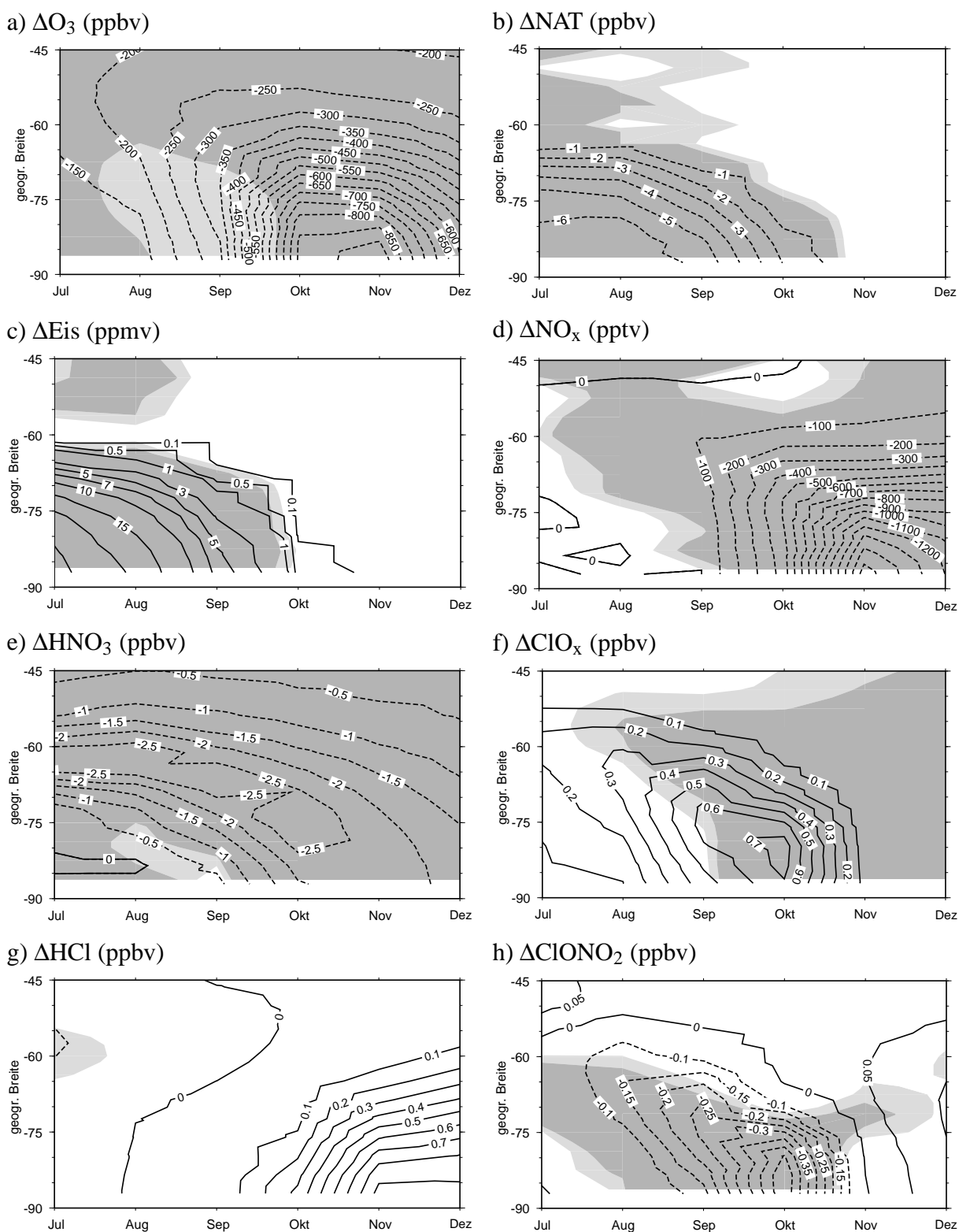


Abbildung 8.10: Zeitlicher Verlauf der Änderungen verschiedener chemischer Spezies in H₂O₅ von Juli bis November in Abhängigkeit von der geographischen Breite in 50 hPa, Südhemisphäre. a) O₃ (ppbv), b) NAT (ppbv), c) Eis (ppmv), d) NO_x(pptv), e) HNO₃ (ppbv), f) ClO_x (ppbv), g) HCl (ppbv), h) ClONO₂ (ppbv). Helle (dunkle) Flächen markieren Gebiete, in denen die Unterschiede auf dem 95% (99%)-Niveau signifikant sind.

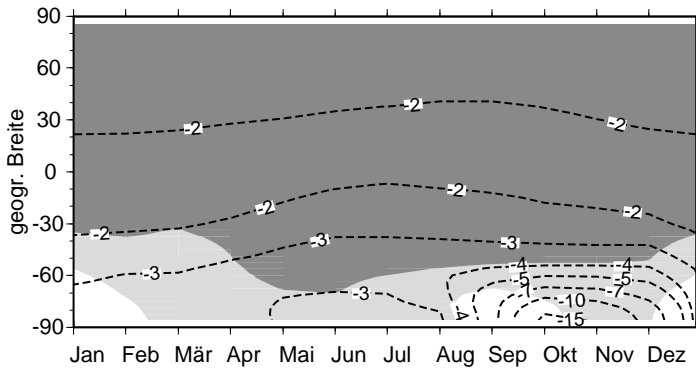


Abbildung 8.11: Änderungen des Gesamt ozons in H₂O₅ im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Jahreszeit. Einheit: %. Helle (dunkle) Flächen markieren Gebiete, in denen die Unterschiede auf dem 95% (99%)-Niveau signifikant sind.

samt ozons in der Simulation H₂O₅ etwa 2%. In den hohen Breiten der Südhemisphäre führt der verstärkte heterogene Ozonabbau im antarktischen Frühling in der Simulation H₂O₅ zu einer weiteren Intensivierung des antarktischen Ozonlochs um bis zu 15%. Die gezeigten Änderungen der Gesamt ozonsäule sind bis auf wenige Bereiche statistisch signifikant. Die nicht-signifikanten Änderungen im September bzw. Dezember/Januar sind auf die interannuale Variabilität des Anfangs und der Dauer des südpolaren Ozonlochs zurückzuführen.

Veränderungen in der Troposphäre

Wie bereits erwähnt wurde, verringert der stratosphärische Ozonrückgang die Absorption von ultravioletter Strahlung. In Abbildung 8.12 sind die Änderungen des aktinischen Flusses an der Erdoberfläche im Wellenlängenbereich 305.5–313.5 nm in Abhängigkeit der geographischen Breite und der Jahreszeit gezeigt. Die schwarze Schattierung markiert Gebiete, in denen während der Polarnacht keine Strahlung dieser Wellenlänge am Erdboden ankommt. Der Rückgang der Ozonsäule in H₂O₅ spiegelt sich auch in einem veränderten aktinischen Fluss wieder: In den Tropen und auf der Nordhemisphäre nimmt die ultraviolette Strahlung nahezu einheitlich um 2–5% zu. Die stärkste Zunahme des Strahlungsflusses im ultravioletten Spektralbereich tritt mit mehr als 30% in den polaren Breiten der Südhemisphäre während des maximalen Ozonrückgangs auf. Resultat dieser Zunahme der kurzwelligen Strahlung ist eine verstärkte Photolyse von Ozon (Reaktion (2.2)), was über die Reaktionen (2.4) und (2.5) zu einer Zunahme der OH-Konzentration führt. Dabei spielt die Reaktion (2.4) insbesondere für die troposphärische OH-Konzentration eine wichtige Rolle. Wie in Abbildung 8.7 gezeigt, nimmt in H₂O₅ nicht nur der stratosphärische, sondern auch der troposphärische OH-Gehalt zu. Die troposphärischen Änderungen betragen allerdings nur etwa 1%.

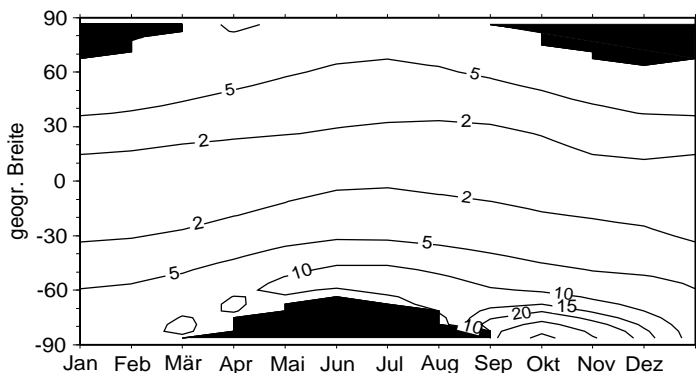


Abbildung 8.12: Änderungen des aktinischen Flusses im Wellenlängenbereich 305.5–313.5 nm in H₂O₅ im Vergleich zur Kontrollsimulation CNTL in Abhängigkeit von der geographischen Breite und der Jahreszeit. Einheit: %. Die schwarzen Gebiete markieren die Ausdehnung der Polarnacht.

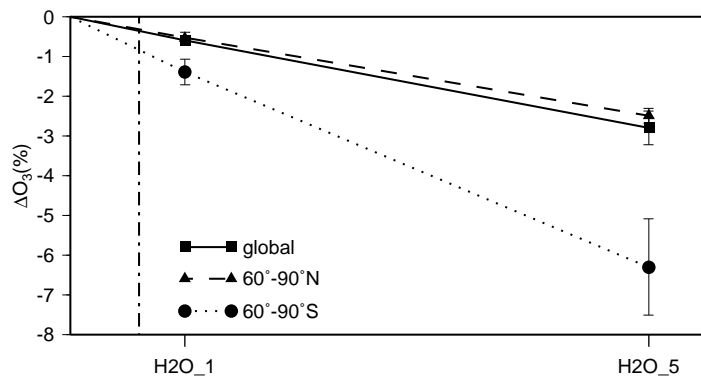


Abbildung 8.13: Rückgang der Gesamtozonsäule in verschiedenen geographischen Regionen in den Simulationen H2O_1 und H2O_5 im Vergleich zu CNTL (Jahresmittelwerte). Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung. Die gestrichelte vertikale Linie markiert die Größenordnung des stratosphärischen Wasserdampfanstiegs zwischen 1980 und 1999 in der Simulation CNTL_1999.

Ozontrend

Abbildung 8.13 vergleicht den Ozonrückgang in verschiedenen geographischen Breiten in Abhängigkeit von der simulierten Wasserdampfstörung in den Simulationen H2O_1 und H2O_5. Der Ozonabbau nimmt bei ansonsten gleichbleibenden atmosphärischen Bedingungen nahezu linear mit der Wasserdampfstörung zu. Die Ozonänderungen in H2O_5 weichen etwa 10% von einem vollständig linearen Verhalten ab. Die vertikale Linie in Abbildung 8.13 markiert den in der Simulation CNTL_1999 simulierten stratosphärischen Wasserdampfanstieg von etwa 0.6 ppmv über den Zeitraum von 1980 bis 2000 (s. Kapitel 7.1.2). Unter der Annahme eines linearen Ozonrückgangs führt allein dieser Wasserdampfanstieg zu einer globalen Gesamtozonabnahme von etwa 0.5%. Unter Berücksichtigung der ansteigenden stratosphärischen Chlorbelastung sowie des Klimawandels ergibt sich aus der transienten Modellsimulation CNTL_1999 ein globaler Ozonrückgang zwischen 1980 und 2000 von etwa 3.4% (Dameris et al., 2005). Daraus ergibt sich in der transienten Modellsimulation ein Anteil des simulierten Wasserdampfanstiegs am globalen Ozonabbau von knapp 15%.

8.3 Diskussion

In diesem Abschnitt sollen die in den beiden vorangegangenen Abschnitten vorgestellten Modellergebnissen untereinander sowie im Vergleich mit anderen Studien diskutiert werden.

Vergleich kurz- und langfristige Wasserdampfstörung

Ein Vergleich zwischen der simulierten kurzfristigen Wasserdampfstörung (VOLC) und den simulierten langfristigen Wasserdampfstörungen (H2O_1, H2O_5) lässt einige Unterschiede erkennen, die nun diskutiert werden sollen. Simulation VOLC zeigt in den ersten zwei Monaten der Simulationszeit Juli und August einen Anstieg der Gesamtozonwerte im Bereich der Tropen. Ein ähnliches Muster ist in den Simulationen H2O_1 bzw. H2O_5 nicht zu beobachten. Dieser Unterschied ist auf die unterschiedliche Verteilung der Wasserdampfstörung in beiden

Simulationen zurückzuführen: In den ersten beiden Monaten der Simulationszeit von VOLC hat sich die Wasserdampfstörung noch nicht gleichmäßig in der Modellstratosphäre ausgebreitet, so dass sich der Anstieg der OH-Konzentration auf die untere tropische Stratosphäre beschränkt. Verbunden mit dem OH-Anstieg nimmt die Ozonproduktion innerhalb der Methanoxidationskette zu. Im weiteren Verlauf der Simulation breitet sich die Wasserdampfstörung auch in größere Höhen aus und erreicht somit Bereiche, in denen der Ozonabbau durch den HO_x-Zyklus zunehmend an Bedeutung gewinnt. Ab diesem Zeitpunkt dominiert der verstärkte Ozonabbau durch den HO_x-Zyklus die zusätzliche Ozonproduktion in tieferliegenden Atmosphärenschichten, was sich in einem Rückgang der Gesamtozonwerte äußert. Im Gegensatz dazu zeigt die Wasserdampfstörung in den Simulationen H2O_1 bzw. H2O_5 bereits eine gleichmäßige Verteilung, so dass der verstärkte Ozonabbau durch den HO_x-Zyklus über andere Veränderungen der Ozonproduktions- bzw. Ozonabbaureaktionen dominiert.

Desweiteren zeigen die Simulationen VOLC und H2O_1 trotz eines vergleichbaren Anstiegs der OH-Konzentration einen unterschiedlich starken Rückgang des stratosphärischen Ozongehalts. In der Simulation VOLC beträgt die simulierte Wasserdampfstörung in den Tropen in 50 hPa während der Monate August und September etwa 1 ppmv. Damit verbunden erhöht sich die OH-Konzentration in 50 hPa um etwa 7%, während sich der lokale Ozongehalt aufgrund veränderter chemischer Prozesse um 0.1% reduziert. Simulation H2O_1 zeigt in diesem Höhenbereich einen vergleichbaren Anstieg des Wasserdampfgehalts sowie der OH-Konzentration. Der daraus resultierende Rückgang des lokalen Ozongehalts in 50 hPa fällt allerdings mit circa 1% stärker aus als in der Simulation VOLC. In diesem Höhenbereich (Tropen, 50 hPa) wird der Ozongehalt im Wesentlichen von dynamischen Prozessen beeinflusst (Seinfeld und Pandis, 1998, S. 170). Chemische Prozesse spielen eine eher untergeordnete Rolle. Wie der Vergleich der beiden Simulationen VOLC und H2O_1 zeigt, trägt in H2O_1 neben dem erhöhten chemischen Ozonabbau ein veränderter Ozontransport wesentlich zum Rückgang des lokalen Ozongehalts bei, wobei unter einem veränderten Ozontransport in diesem Fall ein veränderter Ozongehalt der transportierten Luftmassen zu verstehen ist. Die modellierte Meteorologie und damit der Luftmassentransport ist in den Modellsimulationen VOLC, H2O_1, H2O_5 und CNTL identisch (s. Abschnitt 4.3).

Vergleich mit anderen Studien

Die bisher veröffentlichten Arbeiten zum Einfluss von Wasserdampf auf die Ozonchemie beschränken sich im Wesentlichen auf Modellstudien mit 2-D Modellen, während in dieser Arbeit mit E39/C ein 3-D Klima-Chemie-Modell verwendet wurde. Im Gegensatz zu 2-D Modellen sind 3-D Modelle in der Lage, zonal asymmetrische Zirkulationsmuster und Spurenstoffverteilungen zu berücksichtigen. Gerade auf der Nordhemisphäre weist die Ozonverteilung eine hohe zonale Variabilität auf. Um belastbare Aussagen über Veränderungen der Ozonchemie bzw. Ozonverteilung machen zu können, muss diese zonale Variabilität berücksichtigt werden.

Dvortsov und Solomon (2001) untersuchten den Einfluss eines Wasserdampftrends von 1%/yr auf Temperatur und Ozongehalt mit Hilfe eines 2-D Strahlungs-Chemie-Dynamik-Modells. Dabei unterschieden die Autoren wiederum zwischen den (photo)chemischen und den dynamischen Effekten der Wasserdampfzunahme. Allerdings beschränkt sich die Studie von Dvortsov und Solomon (2001) auf die Gasphasenchemie in mittleren Breiten der Nordhemisphäre. Im Gegensatz dazu umfasst die vorliegende Arbeit auch die Polarregionen und berücksichtigt neben der Gasphasenchemie auch heterogene Reaktionen an Sulfataerosolen und PSCs.

Für den Zeitraum 1979 bis 1997 zeigen die Ergebnisse von Dvortsov und Solomon (2001) einen zusätzlichen Rückgang der Gesamtozonwerte um 0.5% bei einem Wasserdampftrend von 35 ppbv/yr. Eine Verdopplung des simulierten Wasserdampftrends auf 70 ppbv/yr (2%/yr) bewirkte auch eine Verdopplung des zusätzlichen Ozontrends auf 1%. Somit bestätigt die Arbeit von Dvortsov und Solomon (2001) den in Abbildung 8.13 gezeigten linearen Zusammenhang zwischen Ozonrückgang und Wasserdampfanstieg. Ein linearer Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfs um 35 ppbv/yr über einen Zeitraum von 19 Jahren (1979–1997) entspricht einer Wasserdampfzunahme von insgesamt etwa 0.7 ppmv, was ungefähr im Bereich der in H2O_1 simulierten stratosphärischen Wasserdampfstörung (0.5–0.8 ppmv) in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre liegt. Der mit dieser Wasserdampfstörung verbundene Rückgang der Gesamtozonsäule in H2O_1 beträgt etwa 0.5%. Somit stimmen die Ergebnisse dieser Arbeit hinsichtlich der Gasphasenchemie gut mit den Ergebnissen von Dvortsov und Solomon (2001) überein.

Die Auswirkungen einer Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts wurden auch im Zusammenhang mit den Emissionen einer zukünftigen Flotte von Überschallflugzeugen untersucht. Im Rahmen des IPCC (1999) wurden Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfs und Ozons aufgrund des Überschallflugverkehrs mit verschiedenen zwei- und dreidimensionalen Chemie-Transport-Modellen analysiert. Die Modellsimulationen zeigen den größten Wasserdampfanstieg im Bereich der mittleren Breiten der nordhemisphärischen unteren Stratosphäre (≈ 20 km) mit Werten zwischen 0.4 und 0.7 ppmv. Verbunden mit diesem Wasserdampfanstieg simulieren die Modelle einen Rückgang der nordhemisphärischen Gesamtozonwerte um 0.3 bis 0.6%. Ein Vergleich der IPCC-Studien mit den oben erwähnten Ergebnissen der Simulation H2O_1 zeigt, dass die in dieser Arbeit präsentierten Modellergebnisse ebenso mit den Ergebnissen aus IPCC (1999) gut übereinstimmen. Neben den Wasserdampfemissionen wurden in weiteren Simulationen auch Stickoxidemissionen aus dem Überschallflugverkehr berücksichtigt. Dabei hat sich jedoch gezeigt, dass die Wasserdampfemissionen den größten Einfluss auf das stratosphärische Ozon ausüben, während die zusätzliche Berücksichtigung von Stickoxidemissionen nur zu einem leichten Rückgang des Ozonabbaus führt.

Während in der Studie von Dvortsov und Solomon (2001) ausschließlich die Veränderungen der Gasphasenchemie betrachtet wurden, berücksichtigen die Modellsimulationen in IPCC (1999) auch die Veränderungen der PSC-Bildung bzw. des heterogenen Ozonabbaus, wobei sich hierbei große Unterschiede zwischen den einzelnen Modellen zeigen. Nur zwei der 9 Modelle simulierten einen verstärkten Ozonrückgang im antarktischen Frühling aufgrund der Wasserdampf- und Stickoxidemissionen aus dem Überschallflugverkehr. Eine Analyse der simulierten PSCs zeigt eine generelle Zunahme der Oberflächendichte von PSCs aufgrund der Flugzeugemissionen, wobei auch hier große Unterschiede zwischen den verschiedenen Modellen existieren. Generell deuten aber auch die IPCC-Ergebnisse darauf hin, dass die durch die Wasserdampfemissionen verursachten Veränderungen der PSC-Bildung in der antarktischen Stratosphäre deutlich stärker ausgeprägt sind als in der Nordhemisphäre. Die Änderungen der PSC-Bildung in der polaren Nordhemisphäre betragen je nach Modell zwischen 15 und 25% der Änderungen in der Südhemisphäre, wobei zu berücksichtigen ist, dass die durch den Luftverkehr verursachten Wasserdampfstörungen nicht gleichmäßig verteilt sind, sondern ihr Maximum in mittleren Breiten der Nordhemisphäre aufweisen. Desweiteren zeigen die IPCC-Studien, dass eine zusätzliche Berücksichtigung von Stickoxidemissionen in der Südhemisphäre eine geringere Zunahme der PSC-Bildung bewirkt als in der Nordhemisphäre, was eine Folge der anhaltenden Bildung von PSCs Typ II in der antarktischen Stratosphäre ist. In der Nordhemisphäre dominieren dagegen PSCs vom Typ I.

8.4 Fazit

In diesem Kapitel wurden mit Hilfe des gekoppelten Klima-Chemie-Modells E39/C die Auswirkungen verschiedener Wasserdampfstörungen auf die stratosphärische Ozonchemie untersucht. Dazu wurde eine neue Methodik entwickelt, um den chemischen Effekt der Wasserdampfstörungen von den dynamischen Effekten zu trennen (s. Abschnitt 4.3). Insgesamt wurden drei unterschiedliche Wasserdampfstörungen simuliert: Eine kurzfristige Wasserdampfstörung von 2 ppmv mit einer Lebensdauer von zwei Monaten (VOLC) sowie zwei langfristige Wasserdampfstörungen von 1 ppmv und 5 ppmv (H2O_1, H2O_5). Die Ergebnisse der Modellsimulationen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

Eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts bewirkt zunächst einen Anstieg der stratosphärischen OH-Konzentrationen. Direkt verbunden mit diesem OH-Anstieg verstärkt sich der katalytische Ozonabbau durch den HO_x-Zyklus. Kopplungsprozesse führen desweiteren zu einem veränderten katalytischen Ozonabbau durch den NO_x- und den ClO_x-Zyklus, wobei die Effektivität des ClO_x-Zyklus erhöht wird, während die des NO_x-Zyklus abnimmt. Neben den verschiedenen Ozonabbauzyklen beeinflusst ein Wasserdampfanstieg auch die Ozonproduktion: Aufgrund der OH-Zunahme kommt es zu einer verstärkten Oxidation von Methan, in deren Verlauf vermehrt Ozon gebildet wird. Schließlich verstärkt sich auch die Ozonproduktion durch den Chapman-Mechanismus: Bei einem Rückgang der stratosphärischen Ozonkonzentrationen kann ultraviolette Strahlung vermehrt in tieferliegende Atmosphärenschichten vordringen und dadurch in der unteren Stratosphäre über Reaktion (2.15) und (2.16) mehr Ozon produziert werden. Abhängig von der Höhe, der Jahreszeit und der Verteilung der Wasserdampfstörung kann es somit zu einer Zunahme oder Abnahme der lokalen Ozonkonzentration kommen, was sich dementsprechend in den Gesamtozonwerten widerspiegelt.

Neben den eben geschilderten Veränderungen der Gasphasenchemie beeinflusst eine langfristige, globale Wasserdampfzunahme durch eine erhöhte Sättigungstemperatur die Bildung polarer Stratosphärenwolken und somit den heterogenen Ozonabbau in den Polargebieten. Dabei deuten die Modellergebnisse auf einen klaren Unterschied zwischen Nord- und Südhemisphäre hin. Während ein Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts auf der Südhemisphäre eine verstärkte PSC-Bildung im Polarwirbel und damit verbunden einen verstärkten heterogenen Ozonabbau im antarktischen Frühling verursacht, lassen sich auf der Nordhemisphäre keine Veränderungen der heterogenen Ozonchemie feststellen. Diese interhemisphärischen Unterschiede sind darauf zurückzuführen, dass im nordhemisphärischen Polarwirbel generell höhere Temperaturen vorherrschen und die Bildungstemperaturen für PSCs seltener unterschritten werden. Selbst eine Erhöhung der Bildungstemperaturen führt nicht zu einer signifikanten Zunahme der PSC-Bildung. Im Gegensatz dazu wird die Bildungstemperatur für PSCs im südhemisphärischen Polarwirbel während der Wintermonate dauerhaft unterschritten, so dass sich eine erhöhte Sättigungstemperatur direkt in einer verstärkten PSC-Bildung äußert.

Ein Ziel der in diesem Kapitel beschriebenen Simulationen war es, die Auswirkungen der im vorangegangenen Kapitel vorgestellten lang- und kurzfristigen Wasserdampfänderungen auf die Ozonchemie zu untersuchen und ein besseres Verständnis der in der transienten Simulation CNTL_1999 modellierten Ozonvariationen zu erlangen. Gegenstand der Simulation VOLC war die Frage, inwieweit der tropische Ozonrückgang nach einem Vulkanausbruch (s. Abb. 8.1b) auf einen kurzfristigen Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts zurückzuführen ist. Wie die Ergebnisse der Simulation VOLC zeigen, reicht der chemische Effekt einer kurzfristigen Wasserdampfstörung in der tropischen unteren Stratosphäre nicht aus, um einen Rückgang

der tropischen Ozonsäule um 5% nach einem Vulkanausbruch zu erklären. Vielmehr zeigt eine Abschätzung des veränderten Vertikaltransports nach einem Vulkanausbruch, dass die analysierten Ozonanomalien hauptsächlich durch eine veränderte Dynamik verursacht werden. Der hohe Aerosolgehalt nach einem Vulkanausbruch bewirkt eine Erwärmung der tropischen unteren Stratosphäre und damit verbunden einen verstärkten Vertikaltransport, was zu einer Anhebung des Ozonprofils in den Tropen führt.

Dagegen zeigen die Ergebnisse der Simulationen H2O_1 und H2O_5, dass ein langfristiger Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehalts einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zum stratosphärischen Ozonabbau leistet. Unter der Annahme eines linearen Zusammenhangs zwischen Ozonabbau und Wasserdampfanstieg lassen sich knapp 15% des globalen Ozonrückgangs (s. Abb. 8.1a) in der transienten Modellsimulation auf den Wasserdampftrend zurückführen.

Kapitel 9

Zusammenfassung und Ausblick

9.1 Zusammenfassung

Die Bedeutung der simulierten Wasserdampfverteilung für die Qualität von gekoppelten Klima-Chemie-Simulationen wird sofort deutlich, wenn man sich die vielschichtige Rolle des Wasserdampfs als Treibhausgas, latenter Wärmespeicher und OH-Quelle vor Augen führt. Dennoch wurde der modellierten Wasserdampfverteilung und insbesondere den verantwortlichen Steuerungsmechanismen bislang nur wenig Beachtung geschenkt. Gegenstand der vorliegenden Arbeit war die mit dem gekoppelten Klima-Chemie-Modell ECHAM4.L39(DLR)/CHEM (E39/C) modellierte Wasserdampfverteilung im Bereich der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre, deren Variabilität sowie langfristige Veränderungen (Trends) des stratosphärischen Wasserdampfgehalts. Ziel der Untersuchungen war es, die für die stratosphärische Wasserdampfverteilung verantwortlichen Steuerungsprozesse zu identifizieren, ihre Darstellung im Modell zu validieren, bei Modelldefiziten deren Ursachen zu erkennen und gegebenenfalls Lösungsansätze zu erarbeiten. Ferner wurde die Wirkung sich verändernder Steuerungsmechanismen auf die stratosphärische Wasserdampfverteilung und die Ozonchemie untersucht. Die zentralen Ergebnisse dieser Arbeit sind in Abbildung 9.1 schematisch zusammengefasst.

Zur Beantwortung der genannten Fragestellungen wurden verschiedene Simulationen mit dem Klima-Chemie-Modell E39/C durchgeführt und ausgewertet. In diesem Modellsystem sind dynamischer Teil, Strahlungsroutine und Chemiemodul interaktiv miteinander gekoppelt, wobei diese Rückkopplung je nach Fragestellung ausgeschaltet werden kann. E39/C ist somit hervorragend geeignet, um das komplexe, aus gekoppelten chemischen und physikalischen Prozessen bestehende System der Troposphäre und der Stratosphäre eingehend zu untersuchen.

Zur Analyse der modellierten Wasserdampfverteilung, deren Variabilität sowie langfristiger Veränderungen wurden verschiedene transiente Modellsimulationen des Zeitraums von 1960 bis 1999 (Dameris et al., 2005) bzw. von 2000 bis 2019 ausgewertet. Diese Modellsimulationen berücksichtigen verschiedene natürliche und anthropogene Klimaantriebe und gewährleisten somit eine größtmögliche Realitätsnähe. Die in dieser Arbeit analysierten transienten Modellsimulationen gehören mit zu den ersten Simulationen dieser Art, in denen neben dem Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen und der Stickoxidemissionen auch die Veränderungen der Meeresoberflächentemperaturen, der Einfluss großer Vulkanausbrüche, der Sonnenfleckenzyklus und die quasi-zweijährige Schwingung der Stratosphäre (QBO) berücksichtigt wurden.

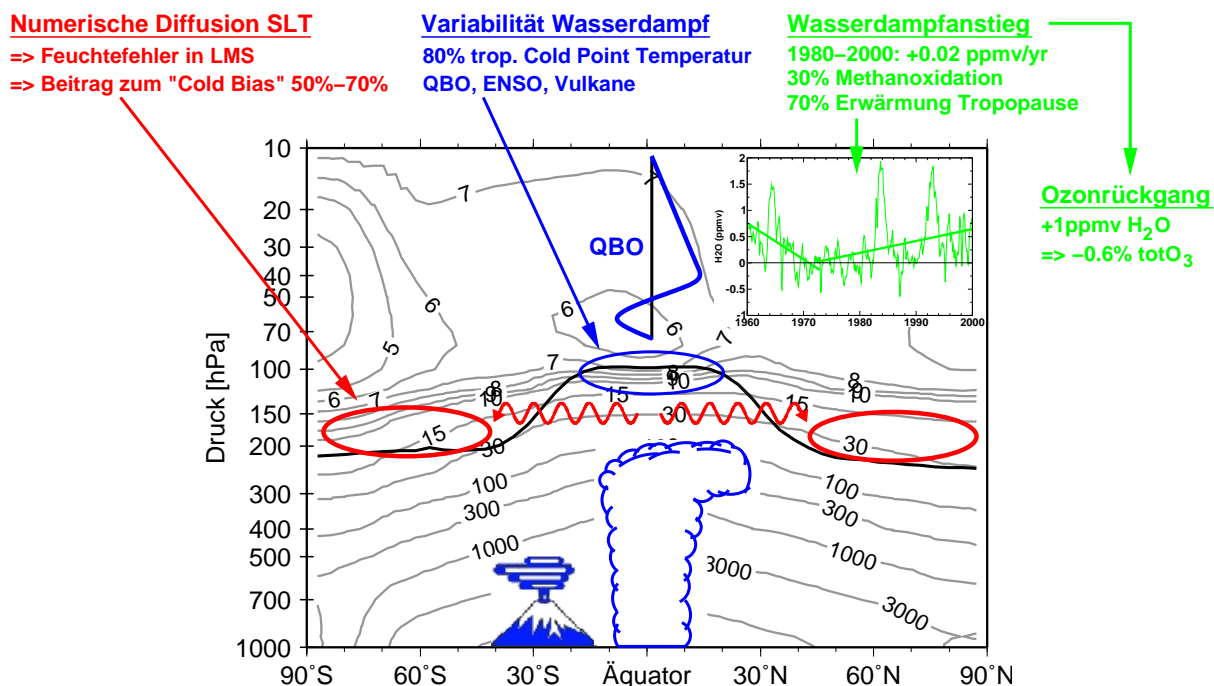


Abbildung 9.1: Schematische Darstellung der wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit. Im Hintergrund ist die zonal gemittelte Wasserdampfverteilung (Jahresmittelwert) in E39/C dargestellt. Die fett eingezeichnete schwarze Linie markiert eine klimatologische Modelltropopause. Die roten Pfeile repräsentieren die numerische Diffusion des semi-Lagrangischen Advektionsschemas (SLT), die zu einem Feuchtefehler in der extratropischen untersten Stratosphäre (LMS) führt (angedeutet durch rote Ellipsen). Blau kennzeichnet die wesentlichen Prozesse, die zur Variabilität der tropischen Cold Point-Temperatur und damit zur Variabilität des Wasserdampfgehalts in der UT/LS beitragen (QBO, ENSO, Vulkane). Der modellierte Wasserdampftrend sowie dessen Auswirkungen auf die Ozonchemie sind grün dargestellt.

Um die Bedeutung von Veränderungen der stratosphärischen Wasserdampfverteilung für die Ozonchemie bestimmen zu können, wurde zunächst eine Methode entwickelt, die eine separate Betrachtung der chemischen Veränderungen ermöglicht und unerwünschte Rückkopplungen zwischen Dynamik und Chemie unterbindet. Mit Hilfe dieser Methode wurden eine kurzfristige Wasserdampfstörung von 2 ppmv mit einer Lebenszeit von 2 Monaten sowie zwei unterschiedlich starke, langfristige Wasserdampfstörungen von 1 bzw. 5 ppmv simuliert (Stenke und Grewe, 2005). Die kurzfristige Wasserdampfstörung ist mit dem Effekt eines Vulkanausbruchs auf den stratosphärischen Wasserdampfgehalt vergleichbar, während die langfristigen Störungen einen mit der Klimaänderung verbundenen Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfs widerspiegeln sollen. Bisherige Studien zum Einfluss einer veränderten Wasserdampfverteilung auf die Ozonchemie beschränken sich entweder auf die Gasphasenchemie in mittleren Breiten oder wurden mit 2-D Modellen gerechnet, während in dieser Arbeit ein 3-D Klima-Chemie-Modell verwendet wurde, das sowohl die Polarregionen als auch heterogene Prozesse an polaren Stratosphärenwolken (PSCs) und Aerosolen berücksichtigt.

Modellevaluierung

Das Modellsystem E39/C weist einige Defizite hinsichtlich dynamischer Größen auf, die sich auf die modellierte Wasserdampfverteilung auswirken. Im Allgemeinen werden die beobach-

teten Zirkulationsmuster wie die mittlere Meridionalzirkulation vom Modell zufriedenstellend nachvollzogen. Allerdings weichen die Absolutwerte zum Teil von den Beobachtungen ab. Im Vergleich zu den aus MLS-Beobachtungen abgeschätzten abwärtsgerichteten Massenflüssen in den Extratropen (Eluszkiewicz et al., 1996) fällt der modellierte Abwärtstransport etwa doppelt so stark aus. Infolgedessen wird auch der aufwärtsgerichtete Transport in den Tropen überschätzt, wodurch der sog. „tape recorder“-Effekt vom Modell nur bedingt wiedergegeben wird. Die Berücksichtigung der QBO bewirkt im Vergleich zu früheren Modellversionen allerdings eine deutliche Verbesserung der simulierten Massenflüsse.

Die beobachtete Temperaturverteilung wird vom Modell zufriedenstellend wiedergegeben, wobei die Absolutwerte in einigen Regionen von den Beobachtungen (ERA) abweichen. So fallen die modellierten Temperaturen im Bereich der polaren Tropopause um bis zu 12 K (sommerliche Nordhemisphäre) bzw. 18 K (sommerliche Südhemisphäre) niedriger aus. Dieser systematische Kältefehler wird mit dem Begriff „Cold Bias“ bezeichnet. Desweiteren unterschätzt das Modell die Temperaturen in der polaren Stratosphäre der jeweiligen Winterhemisphäre. Am Modelloberrand betragen die Abweichungen bis zu -15 K. Im Gegensatz dazu ist die tropische obere Troposphäre im Modell um etwa 2 K zu warm, weswegen die tropische Modelltropopause zu hoch liegt.

Hieraus ergeben sich im Vergleich zu den Beobachtungen einige Unterschiede hinsichtlich der Wasserdampfverteilung im Bereich der UT/LS. Zunächst einmal wird die Lage der Wasserdampfmaxima in der oberen Troposphäre über den tropischen Konvektionszentren vom Modell annähernd richtig wiedergegeben. Allerdings werden die Absolutwerte in 215 hPa vom Modell unterschätzt, während sie in 147 hPa überschätzt werden. Diese Unterschiede sind zum einen auf eine etwas zu schwach ausgeprägte Konvektion und zum anderen auf einen zu schwachen vertikalen Temperaturgradienten in der tropischen oberen Troposphäre zurückzuführen.

Desweiteren erfasst das Modell die wesentlichen Merkmale der Wasserdampfverteilung im Bereich der unteren Stratosphäre wie den ausgeprägten Wasserdampfgradienten im Tropopausenbereich, das Wasserdampfminimum oberhalb der tropischen Tropopause und die Zunahme des Wasserdampfgehalts mit der Höhe aufgrund der Methanoxidation. Verbunden mit dem Temperaturfehler in der tropischen oberen Troposphäre fällt jedoch die Dehydrierung der Luftmassen beim Eintritt in die Stratosphäre zu gering aus. Infolgedessen wird der stratosphärische Wasserdampfgehalt im Vergleich zu HALOE-Beobachtungen um 50% überschätzt. Eine Ausnahme dazu bildet die polare Stratosphäre der Südhemisphäre, die während der Wintermonate aufgrund des Kältefehlers zu stark dehydriert wird. Allgemein bleibt festzuhalten, dass der beobachtete meridionale Wasserdampfgradient im Bereich der Subtropen, insbesondere im Bereich der subtropischen Tropopausenbrüche, vom Modell nicht zufriedenstellend reproduziert wird. Infolgedessen wird der Wasserdampfgehalt im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre im Vergleich zu MLS-Beobachtungen um etwa 50% überschätzt.

Lagrangescher Transport von Wasserdampf und Wolkenwasser

Zur Beantwortung der Frage, inwieweit der modellierte Feuchtefehler im Bereich der extratropischen untersten Stratosphäre auf den Einfluss des verwendeten Transportschemas zurückzuführen ist, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Sensitivitätsexperiment durchgeführt, in dem anstelle des operationellen semi-Lagrangeschen Transportschemas das rein Lagrangesche Transportschema ATTILA zum Transport von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser eingesetzt wurde.

ATTILA ist strikt massenerhaltend und numerisch nicht-diffusiv und bietet sich daher für den Transport inhomogen verteilter Spurenstoffe an. Um ATTLA für den Feuchtetransport verwenden zu können, waren zunächst einige Erweiterungen notwendig, die hauptsächlich die Transformation zwischen Luftpaketen und Gitterpunktraum betreffen, um die Parametrisierung von Wolkenprozessen in den Luftpaketen zu realisieren. Mit der Entwicklung einer Modellversion von E4/ATTILA für den Feuchtetransport wurde in dieser Arbeit gewissermaßen Neuland betreten. Bislang wurde ATTLA in ECHAM4 nur für den Transport passiver Spurenstoffe eingesetzt. Darüber hinaus wurde hier zum ersten Mal ein rein Lagrangesches Transportschema für den Feuchtetransport in einem Klimamodell eingesetzt.

Der Einsatz des rein-Lagrangeschen Advektionsschemas ATTLA führt zu einer deutlich verbesserten Darstellung des meridionalen Wasserdampfgradienten im Bereich der subtropischen Tropopausenbrüche und einer bedeutenden Reduzierung des Wasserdampfgehalts in der extratropischen untersten Stratosphäre um mehr als 50% gegenüber dem Standardmodell. Verbunden mit der Verbesserung der modellierten Wasserdampfverteilung ergibt sich eine drastische Reduzierung des systematischen Kältefehlers im Bereich der polaren Tropopause um bis zu 70%, was sich auch in einer verbesserten Darstellung der Modelltropopause äußert. Es bleibt somit festzuhalten, dass ATTLA hinsichtlich des Feuchtetransports dem operationellen semi-Lagrangeschen Transportschema eindeutig vorzuziehen ist.

Bei der hier vorgestellten Version von E4/ATTILA handelt es sich um eine vorläufige Modellversion. So haben sich die Strahlungsbilanzen am Oberrand der Atmosphäre gegenüber dem Standardmodell etwas geändert, was auf Veränderungen des Bedeckungsgrades in der oberen tropischen Troposphäre zurückzuführen ist. Eine Neukonfiguration dieser Modellversion mit Hilfe verschiedener Anpassungsparameter wie der Sedimentationsgeschwindigkeit von Eiskristallen ist sehr zeitintensiv und wäre über den Rahmen dieser Arbeit hinausgegangen. Eine grundlegende Veränderung der weiteren Ergebnisse dieser Arbeit ist dadurch nicht zu erwarten, da davon ausgegangen werden kann, dass die ausschlaggebenden Variabilitäts- und Trendmuster auch bei einer verbesserten Hintergrundverteilung in etwa erhalten bleiben.

Variabilität und Trends des Wasserdampf im Bereich der UT/LS

Neben der mittleren Wasserdampfverteilung wurde die modellierte Variabilität sowie langfristige Veränderungen des Wasserdampfgehalts in der UT/LS-Region analysiert. Der stratosphärische Wasserdampfgehalt unterliegt periodischen sowie nicht-periodischen Schwankungen, die von so unterschiedlichen Prozessen wie dem Jahrgang der tropischen Tropopausentemperatur, El Niño-Ereignissen, der QBO oder Vulkanausbrüchen hervorgerufen werden. Zusätzlich werden gegenwärtig langfristige Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts eingehend diskutiert, wobei die unterschiedlichen Beobachtungsdaten zum Teil sehr widersprüchliche Erkenntnisse liefern.

Variabilität

Der Wasserdampfgehalt in der tropischen oberen Troposphäre zeigt eine hohe Korrelation mit der ENSO-Phase, die in den Modellsimulationen über die vorgeschriebenen Meeresoberflächentemperaturen implizit berücksichtigt wird. Knapp 60% der simulierten interannualen Variabilität kann mit ENSO-Ereignissen erklärt werden. Im Mittel nimmt der Wasserdampfgehalt in der oberen Troposphäre mit den Meeresoberflächentemperaturen im äquatorialen Westpazifik um 5.2 ppmv/K zu bzw. ab. Eine genaue Betrachtung einzelner El Niño-Ereignisse hat gezeigt,

dass in einigen Jahren sowohl die räumliche Struktur als auch die Größenordnung der beobachteten Wasserdampfanomalien vom Modell nahezu identisch wiedergegeben werden. In anderen Jahren dagegen weichen die Modellergebnisse deutlich von den Beobachtungen ab. Offensichtlich bildet die troposphärische Dynamik ein so komplexes System, dass die Vorgabe von Meeresoberflächentemperaturen allein nicht in jedem Fall ausreicht, um die ENSO-bedingten Wasserdampfschwankungen identisch zu reproduzieren. ENSO-induzierte Wasserdampfanomalien besitzen daher einen eher quasi-deterministischen Charakter.

Wie die Auswertung der transienten Modellsimulationen ergeben hat, zeigt der Wasserdampfgehalt in der Stratosphäre eine hohe Korrelation mit der tropischen Cold Point-Temperatur. In 80 hPa lassen sich etwa 80% der interannualen Variabilität des tropischen Wasserdampfgehalts mit Veränderungen der Cold Point-Temperatur erklären, in 50 hPa sind es immerhin noch knapp 50%. Mit zunehmender Höhe und geographischer Breite nimmt die Korrelation aufgrund von Mischungsprozessen ab.

Eine Ursache der interannualen Schwankungen der tropischen Cold Point-Temperatur ist die QBO, die eine periodische Schwingung der Temperatur bewirkt, welche sich über die äquatoriale Stratosphäre bis hinunter zur tropischen Tropopause erstreckt. An der tropischen Tropopause betragen die mit der QBO verbundenen Temperaturanomalien ± 0.5 K. Die daraus resultierenden Wasserdampfanomalien betragen etwa ± 0.25 ppmv und stimmen damit gut mit beobachteten Werten von ± 0.3 ppmv überein (Randel et al., 2004). Das Anpassen des simulierten Zonalwindes in der äquatorialen Stratosphäre an Beobachtungsdaten ist somit ausreichend, um den Einfluss der QBO auf die Zirkulation und damit auf die Verteilung verschiedener Spurenstoffe wie Wasserdampf oder Ozon in einem Klimamodell realistisch zu reproduzieren.

Zusätzlich bewirken starke Vulkanausbrüche in unregelmäßigen Abständen eine Erwärmung der tropischen Tropopause, die von einem erhöhten Eintrag von Wasserdampf in die Stratosphäre begleitet wird. Aus bislang ungeklärter Ursache fällt der Temperaturanstieg nach einem Vulkanausbruch in den Modellsimulationen jedoch deutlich stärker aus als beobachtet. Verbunden damit wird auch der Wasserdampfanstieg in der Stratosphäre überschätzt. Die mit den Vulkanausbrüchen verbundenen Wasserdampfanomalien betragen in der tropischen unteren Stratosphäre etwa 2–3 ppmv. Mit zunehmender Höhe schwächen sich die Anomalien aufgrund von horizontalen Mischungsprozessen ab. Die Lebenszeit der vulkanischen Wasserdampfstörung liegt je nach Höhe und geographischer Breite zwischen wenigen Monaten und drei Jahren. Aufgrund dieser kurzen Lebenszeit kann die Hypothese von Joshi und Shine (2003), dass sich die Wasserdampfstörungen der vergangenen großen Vulkanausbrüche in der Stratosphäre akkumuliert und damit zu einem Wasserdampftrend beigetragen haben, hier nicht bestätigt werden.

Langfristige Veränderungen

Die Zunahme der Treibhausgaskonzentrationen, aber auch die Änderungen der stratosphärischen Ozonkonzentrationen, bewirken in den Modellsimulationen eine Erwärmung der Troposphäre und eine Abkühlung der Stratosphäre. Zwischen den 1960er und den 1990er Jahren erwärmt sich die tropische obere Troposphäre um mehr als 1 K. Im gleichen Zeitraum kühlt sich die Stratosphäre um etwa 1 K, in der südpolaren Stratosphäre in den Frühlingsmonaten um mehr als 7 K ab, so dass die beobachteten Temperaturänderungen realistisch reproduziert werden (Randel und Wu, 1999; Mears et al., 2003).

Die Abkühlung der Stratosphäre erfolgt dabei scheinbar in zwei Schritten von jeweils 0.5 K, die zeitlich mit den Ausbrüchen der Vulkane El Chichon und Pinatubo zusammenfallen (Pawson

et al., 1998). Anhand eines Sensitivitätsexperiments konnte gezeigt werden, dass der Beitrag der Vulkanausbrüche zu diesem markanten Kurvenverlauf hauptsächlich „kosmetischer“ Natur ist. Offensichtlich ergibt sich die stufenweise Abkühlung der Stratosphäre aus der Überlagerung einer linearen Abkühlung aufgrund der ansteigenden Treibhausgaskonzentrationen und einer durch den Sonnenzyklus verursachten Temperaturschwankung in der Stratosphäre. Die Temperaturdifferenz zwischen solarem Maximum und solarem Minimum beträgt etwa 0.4 K (Matthes, 2003a). Die beiden genannten Vulkanausbrüche ereigneten sich jeweils etwa drei Jahre vor einem solaren Minimum und verstärken dadurch den Eindruck einer stufenweisen Abkühlung der Stratosphäre. Somit ist es gelungen mit Hilfe von Klima-Chemie-Simulationen die beobachtete stufenweise Temperaturabnahme zu erklären.

Die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause zeigt zu Beginn der Simulationsperiode in den 1960er Jahren eine leichte Abkühlung, gefolgt von einem nahezu konstanten Verlauf in den 1970er Jahren und einer Erwärmung seit 1980. Die Ursachen für die anfängliche Abnahme und den späteren Anstieg der Tropopausentemperatur sind bislang noch ungeklärt. Es lässt sich aber vermuten, dass zu Beginn der 60er Jahre die stratosphärische Abkühlung die Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause kontrolliert, wohingegen später die troposphärische Erwärmung dominiert.

Verbunden mit der stetigen Erwärmung der tropischen oberen Troposphäre seit Mitte der 1970er Jahre steigt der Wasserdampfgehalt in diesem Bereich um etwa 0.6 ppmv/yr an. Dagegen spiegelt sich im stratosphärischen Wasserdampfgehalt der zeitlich Verlauf der Tropopausentemperatur wider: In den 1960er Jahren wird zunächst eine Abnahme der stratosphärischen Wasserdampfgehalts simuliert, gefolgt von nahezu konstanten Werten in den 1970er Jahren. Seit Beginn der 1980er Jahre steigen die stratosphärischen Wasserdampfkonzentrationen wieder um etwa 0.02 ppmv/yr an. Neben den Veränderungen der tropischen Tropopausentemperatur trägt die Zunahme der chemischen Wasserdampfproduktion aufgrund steigender Methanemissionen zu diesem Wasserdampftrend bei. Der Beitrag des Methananstiegs zum simulierten Wasserdampftrend beträgt dabei etwa 30%. Der modellierte Wasserdampftrend seit 1980 fällt etwas schwächer aus als der über Boulder beobachtete Wasserdampfanstieg (Oltmans et al., 2000). Allerdings müssen dabei die bestehenden Unsicherheiten hinsichtlich der beobachteten Wasserdampftrends berücksichtigt werden: HALOE-Messungen zeigen für die Region über Boulder einen Rückgang des Wasserdampfgehalts (Randel et al., 2004).

Zukünftige Entwicklung

Für den Zeitraum 2000 bis 2019 deuten die Modellergebnisse auf eine Fortsetzung der troposphärischen Erwärmung sowie der Abkühlung der Stratosphäre hin. Desweiteren setzt sich der Anstieg der Temperatur an der tropischen Cold Point-Tropopause und damit verbunden die Zunahme des „entry value“ fort. Der anhaltende Anstieg der Methanemissionen sowie die fortwährende Zunahme des Eintrags von Wasserdampf in die Stratosphäre sorgen dafür, dass auch der zwischen 1980 und 1999 simulierte stratosphärische Wasserdampftrend in den Jahren 2000 bis 2019 weiterhin anhält.

Insgesamt ist das Modell E39/C in der Lage, die beobachtete Variabilität und den beobachteten Trend des stratosphärischen Wasserdampfs sowie die zugrundeliegenden Prozesse — soweit sie bekannt sind — realistisch wiederzugeben. Mit Hilfe der durchgeführten Modellsimulationen konnten zum Teil auch unverständene Beobachtungen wie die stufenweise Abkühlung der Stratosphäre erklärt werden. Der Frage, wie die Veränderungen der stratosphärischen Wasserdampfverteilung die Ozonschicht beeinflussen, wurde im letzten Teil der Arbeit nachgegangen.

Auswirkungen einer geänderten Wasserdampfverteilung auf die Ozonchemie

Wie gezeigt wurde, bewirkt eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts einen Anstieg der OH-Konzentrationen, welcher sich in unterschiedlicher Art und Weise auf die Ozonchemie auswirkt. Direkt verbunden mit dem OH-Anstieg verstärkt sich der katalytische Ozonabbau durch den HO_x-Zyklus. Chemische Kopplungsprozesse führen im Weiteren zu einem erhöhten Ozonabbau durch den ClO_x-Zyklus sowie zu einem Rückgang des Ozonabbaus durch den NO_x-Zyklus. Nebenbei bewirkt eine erhöhte OH-Konzentration eine verstärkte Methanoxidation, in deren Verlauf vermehrt Ozon produziert wird. Dabei hat sich gezeigt, dass die aus dem Wasserdampfanstieg resultierende Zu- oder Abnahme der lokalen Ozonkonzentration stark von der Höhe, der Jahreszeit und der Verteilung der Wasserdampfstörung abhängt.

In den Polargebieten beeinflussen Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts zusätzlich durch eine Erhöhung der Sättigungstemperatur die Bildung polarer Stratosphärenwolken (PSCs). Dabei treten deutliche interhemisphärische Unterschiede auf: Während ein Wasserdampfanstieg auf der Südhemisphäre zu einer erhöhten PSC-Bildung und damit verbunden zu einem verstärkten heterogenen Ozonabbau im antarktischen Frühling führt, lassen sich auf der Nordhemisphäre keine Veränderungen des heterogenen Ozonabbaus feststellen. Dieser Unterschied ist darauf zurückzuführen, dass im nordhemisphärischen Polarwirbel, der durch deutlich höhere Temperaturen gekennzeichnet ist als der südhemisphärische Polarwirbel, die Bildungstemperaturen für PSCs nicht anhaltend unterschritten werden.

Eine Zunahme des stratosphärischen Wasserdampfgehalts um 1 ppmv führt zu einem global gemittelten Ozonrückgang um etwa 0.6%. In den hohen Breiten der Nordhemisphäre beträgt der aus dem simulierten Wasserdampfanstieg resultierende Ozonrückgang etwa 0.5%, während der verstärkte heterogene Ozonabbau in der polaren Südhemisphäre zu einem Rückgang der Ozonsäule um 1.4% führt. Desweiteren zeigen die Modellexperimente, dass der Ozonverlust mit steigenden Wasserdampfkonzentrationen in der Stratosphäre nahezu linear zunimmt.

Aus den Prozessstudien zum Einfluss einer veränderten Wasserdampfverteilung auf die Ozonchemie geht auch hervor, dass der kurzfristige Anstieg der stratosphärischen Wasserdampfkonzentration nach einem Vulkanausbruch nicht in der Lage ist, den gleichzeitig simulierten Rückgang der Gesamt ozonwerte in den Tropen um etwa 5% (Dameris et al., 2005) vollständig zu erklären. Eine Abschätzung des veränderten Vertikaltransports nach einem Vulkanausbruch zeigt, dass die simulierten Ozonanomalien hauptsächlich durch eine Anhebung des tropischen Ozonprofils verursacht werden, was in Einklang mit früheren Studien ist (Kinne et al., 1992).

Im Gegensatz dazu leistet eine langfristige Veränderung des stratosphärischen Wasserdampfgehalts einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zum Rückgang des stratosphärischen Ozons. Knapp 15% des globalen Ozonrückgangs in der transienten Modellsimulation zwischen 1980 und 1999 (Dameris et al., 2005) lassen sich auf den modellierten Wasserdampftrend zurückführen. Langfristige Veränderungen des stratosphärischen Wasserdampfgehalts sind somit bei der Abschätzung der zukünftigen Entwicklung der Ozonschicht ebenfalls mit einzubeziehen, selbst im Hinblick auf die aktuelle Diskussion um stratosphärische Wasserdampftrends.

Insgesamt bietet diese Arbeit einen umfassenden Überblick über die Wechselwirkungen zwischen Klimaveränderungen, der Wasserdampfverteilung im Bereich der UT/LS und der stratosphärischen Ozonchemie. Gleichzeitig verdeutlichen die Ergebnisse dieser Arbeit die Bedeutung der simulierten Wasserdampfverteilung für die Qualität von Klima-Chemie-Modellen und bilden damit die Grundlage für eine weiterführende Modellentwicklung.

9.2 Ausblick

In dieser Arbeit wurde gezeigt, dass der Einsatz des numerisch nicht-diffusiven Lagrangeschen Transportschemas ATTILA zu einer deutlichen Verbesserung der modellierten Wasserdampfverteilung im extratropischen Tropopausenbereich und damit verbunden zu einer starken Reduzierung des „Cold Bias“ gegenüber dem Standardmodell führt. Aufgrund dieser deutlichen Verbesserung der Modellergebnisse erscheint ein weiterer Einsatz von ATTILA für den Transport von spezifischer Feuchte und Wolkenwasser in ECHAM lohnend. Das nächste Ziel muss es nun sein, diese vorläufige Modellversion mit Hilfe verschiedener Anpassungsparameter neu zu konfigurieren, so dass E4/ATTILA für zukünftige Klimasimulationen als operationelles Modell zur Verfügung steht.

Desweiteren erfolgt die Berechnung der konvektiven Prozesse in der hier verwendeten Modellversion von E4/ATTILA noch auf dem ECHAM-Modellgitter, d.h. bislang werden durch konvektive Prozesse ausschließlich die Spurenstoffkonzentrationen auf den Luftpaketen beeinflusst, die Position der Luftpakete bleibt hingegen unverändert. Allerdings stellen gerade konvektive Ereignisse einen wichtigen Transportmechanismus für Wasserdampf dar, so dass die von ATTILA berechneten Trajektorien bislang nur unzureichende Informationen über die Transportwege in ECHAM4 liefern. Gegenwärtig wird an einer ebenfalls rein Lagrangeschen Behandlung der Konvektion in ATTILA gearbeitet (S. Brinkop, persönliche Mitteilung). Diese Erweiterung bietet dann die Möglichkeit, die von ATTILA berechneten Trajektorien direkt auszuwerten und so bestimmte Transportwege des Wasserdampfs in ECHAM4 zu untersuchen.

Um den Beitrag der einzelnen Steuerungsprozesse zur stratosphärischen Wasserdampfverteilung in ECHAM4 genau quantifizieren zu können, wäre neben dem Lagrangeschen Transport eine rein Lagrangesche Behandlung aller für die Wasserdampfverteilung relevanten Prozesse wünschenswert. Dazu wäre es notwendig alle wolkenphysikalischen Berechnungen anstatt auf dem ECHAM-Gitter auf den einzelnen Luftpaketen durchzuführen, was aufgrund der Komplexität der betroffenen Modellteile eine anspruchsvolle und zeitintensive Aufgabe darstellt. Eine Lagrangesche Behandlung des Wasserdampfs hätte außerdem den Vorteil, dass die Transformation zwischen Luftpaketen und Gitterpunktraum als potentielle Fehlerquelle entfallen würde.

Desweiteren bietet die Auswertung der transienten Modellsimulationen noch vielfältige Forschungsmöglichkeiten. So ist bislang noch nicht geklärt, welche Prozesse die Temperatur an der tropischen Tropopause bestimmen. Desweiteren werden zur Zeit weitere transiente Modellsimulationen durchgeführt, um ein Ensemble an Simulationen zu erhalten und somit den deterministischen Charakter verschiedener Ereignisse untersuchen zu können. Geplant sind außerdem zusätzliche Modellsimulationen, in denen analog zu den Vulkanausbrüchen einzelne Klimaantriebe wie z.B. die QBO gezielt ausgeschaltet werden, um deren Einfluss auf die Atmosphäre näher zu bestimmen. Solche Sensitivitätsstudien tragen in großem Maße zu einem besseren Verständnis der atmosphärischen Prozesse und insbesondere ihrer komplexen Wechselwirkungen bei.

Anhang A

Parametrisierungen

A.1 Kumulus-Konvektion

Die Parametrisierung des konvektiven Austauschs von Wärme, Feuchte, Impuls und Spurenstoffen basiert auf dem Massenflussschema nach Tiedtke (1989), wobei hochreichende, mittelhohe und niedrige Konvektion berücksichtigt wird. Konvektive Systeme bestehen im Allgemeinen aus einem Ensemble von Wolken mit unterschiedlichen Wolkenhöhen. In der vorliegenden Parametrisierung werden die einzelnen Komponenten des Wolkenpektrums nicht aufgelöst, sondern die Wolken werden als Ganzes behandelt („bulk model“, Abb. A.1). Die Gitterbox wird dazu in einen Aufwind- (updraft), einen Abwind- (downdraft) Bereich und einen Bereich der kompensierenden Absinkbewegung in der Umgebung der Konvektion eingeteilt. Es wird angenommen, dass der konvektive Massenfluss im Downdraft proportional zum Massenfluss im Updraft-Bereich ist. Bei der Berechnung der vertikalen Massenflüsse werden neben mikrophysikalischen Prozessen wie der Bildung bzw. Verdunstung von Niederschlag auch Vermischungsprozesse mit der Umgebungsluft berücksichtigt. Das Einmischen trockener Umgebungsluft (Entrainment) in die Wolke erfolgt durch turbulenten Massenaustausch an den Wolkenrändern sowie durch organisiertes Einströmen, das vom Auftrieb innerhalb der Wolke abhängig ist (Nordeng, 1994). Das Ausmischen von Wolkenluft in die Umgebung (Detrainment) erfolgt ebenfalls durch turbulenten Massenaustausch sowie durch organisiertes Detrainment an der Wolkenoberseite, wobei unterschiedliche Wolkenhöhen („bulk model“, Abb. A.1) angenommen werden. Wolkenwasser, das durch organisiertes Detrainment an der Wolkenoberseite ausfließt, bildet eine Quelle für stratiforme Wolken. Konvektiver Niederschlag ist mit den Downdraft-Bereichen verbunden.

Für die hochreichende Konvektion wird ein Schließungsansatz nach Nordeng (1994) verwendet, der den Massenfluss an der Wolkenbasis in Beziehung zur konvektiven Instabilität setzt. Zur Bestimmung des Massenflusses an der Wolkenunterseite wird die konvektive verfügbare potentielle Energie (CAPE) verwendet. Dabei wird angenommen, dass das Feuchteangebot unterhalb der Wolkenbasis konstant bleibt und sich großskalige Advektion sowie turbulenter und konvektiver Transport ausgleichen.

Mittelhohe Konvektion entsteht durch Hebung von Luftmassen aus tieferen Schichten bis Sättigung eintritt. Dabei liegt die Wolkenbasis oberhalb der Grenzschicht. Die Hauptfeuchtequelle ist großskalige Konvergenz in den unteren Schichten. Mittelhohe Cumuli treten an Niederschlagsbändern von Warmfronten und im Warmluftsektor von Tiefdruckgebieten auf.

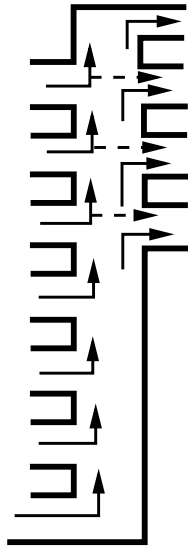


Abbildung A.1: Schematische Darstellung eines „bulk model“. Entrainment wird durch Pfeile von links gekennzeichnet, Detrainment durch Pfeile nach rechts. Die verschiedenen Detrainment-Level repräsentieren ein Ensemble von Wolken innerhalb eines konvektiven Systems mit unterschiedlichen Wolkenhöhen, das in einem „bulk model“ nicht explizit aufgelöst wird.

Typische Beispiele niedriger Konvektion sind Passatwind-Cumuli, die unter einer Absinkinversion entstehen, Konvektion auf der Rückseite tropischer Wellen, die nach Osten wandern, sowie konvektive Bewölkung, die sich tagsüber über Land bildet. Diese Art der Konvektion wird durch den turbulenten Feuchtetransport in den Schichten unterhalb der Wolke bestimmt.

A.2 Stratiforme Wolken

Die Parametrisierung stratiformer Wolken in ECHAM4 verwendet einen Ansatz von Sundqvist (1978), nach dem die Modellgitterbox in einen wolkenbedeckten Teil (b) und einen wolkenfreien Teil ($1 - b$) aufgeteilt wird. Der Bedeckungsgrad b wird aus der mittleren relativen Feuchte r in der Gitterbox berechnet (Sundqvist et al., 1989),

$$b = \begin{cases} 1 - \sqrt{\frac{r_{sat} - r}{r_{sat} - r_0}} & \text{für } r > r_0 \\ 0 & \text{für } r \leq r_0 \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

wobei r_{sat} ($=1$) den Sättigungswert und r_0 einen Grenzwert der relative Feuchte bezeichnet, unterhalb dessen die Gitterbox vollkommen wolkenfrei ist (Xu und Krüger, 1991).

Die Parametrisierung stratiformer Wolken basiert auf den Bilanzgleichungen für die prognostischen Variablen Wasserdampf-mischungsverhältnis (q_v) und Wolkenwasser (q_w , flüssige und feste Phase). Die Aufteilung zwischen flüssigen Wolkentröpfchen und Eisteilchen erfolgt rein nach der Temperatur in der Gitterbox (Rockel et al., 1991).

$$\frac{\partial q_v}{\partial t} = R(q_v) - bC_c - (1 - b)C_0 + (1 - b)E_0 \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{\partial q_w}{\partial t} = R(q_w) + bC_c + (1 - b)C_0 - bP_c \quad (\text{A.3})$$

Die Indizes c und 0 bezeichnen den bedeckten bzw. den wolkenfreien Teil der Gitterbox. Der Term R bezeichnet die Summe aller Transportvorgänge wie Advektion, Turbulenz und Konvektion (Detrainment von Wasserdampf und Wolkenwasser aus der obersten Schicht einer Cumulus-Wolke). Zu den wolkenphysikalischen Termen gehören Kondensation von Wasserdampf ($C > 0$)

Tabelle A.1: Aufgelöste Absorptionsbanden im langwelligen Spektralbereich in ECHAM4.

Spektralbereich (cm^{-1})	Korrespondierende Absorptionsbande
0 - 350	Rotations- und Rotationsvibrationsbande H_2O
350 - 500	25 μm „Fenster“
500 - 800	Ozon (14.6 μm), CO_2 (15 μm)
800 - 970	atmosphärisches Fenster
970 - 1110	Ozon (9.6 μm)
1110 - 1250	atmosphärisches Fenster
1250 - 1450	Rotationsvibrationsbande H_2O , CH_4 (7.7 μm), N_2O (7.8 μm)
1450 - 1880	Rotations- und Rotationsvibrationsbande H_2O
1880 - 2820	Rotationsvibrationsbande H_2O

bzw. Verdunstung von Wolkenwasser ($C < 0$) als Senke (Quelle) bzw. Quelle (Senke) von Wasserdampf (Wolkenwasser), Niederschlagsbildung durch Koaleszenz von Wolkenröpfchen sowie Sedimentation von Eiskristallen (P) als Senke für Wolkenwasser und Verdunstung von Niederschlag (E) im bedeckungsfreien Teil der Gitterbox als Quelle für Wasserdampf. Der wolkenbedeckte Teil der Gitterbox ist dabei je nach Temperatur bezüglich Eis oder Wasser gesättigt ($q_{vc} = q_{vsat}(T)$), während der wolkenfreie Teil stets untersättigt ist ($q_{v0} < q_{vsat}(T)$). Das Auftreten eisübersättigter Regionen ist demnach im Modell ausgeschlossen.

Die Bildung des Niederschlags hängt von dem Aggregatzustand des Wolkenwassers ab. Dazu wird das Wolkenwasser innerhalb einer Gitterbox in flüssige und feste Phase aufgeteilt. Die Aufteilung erfolgt rein nach der Temperatur in der Gitterbox (Rockel et al., 1991). Oberhalb von 0°C existieren nur reine Wasserwolken, bei -40°C beträgt der Eiswasseranteil 99%. Die Koagulation von flüssigen Wolkenröpfchen zu Regentropfen geschieht in Abhängigkeit vom Flüssigwassergehalt nach Sundqvist (1978). Ebenso wird die Kollision und Koaleszenz von Wolkenröpfchen mit größeren Regentropfen berücksichtigt (Smith, 1990). In der Realität ist die Sedimentationsrate von Eiskristallen abhängig von der Kristallform und -größe. Da diese Größen im Modell nicht bekannt sind, wird die Sedimentation von Eiskristallen in Abhängigkeit vom Eiswassergehalt parametrisiert (Heymsfield, 1977). Die Verdunstung von Niederschlag, der in den wolkenfreien Teil einer Gitterbox fällt, ist proportional zum Sättigungsdefizit.

A.3 Strahlung

Die Strahlungsparametrisierung in ECHAM4 basiert auf dem Strahlungstransfermodell von Morcrette (1991). Der langwellige Spektralbereich wird in 9 Absorptionsbanden aufgelöst (Tab. A.1). Im kurzwelligen Spektralbereich wird zwischen dem sichtbaren Spektralbereich (0.2 - 0.68 μm) und dem nahen Infrarot (0.68 - 4.0 μm) unterschieden. Das Strahlungsschema berechnet die Strahlungsheizrate, d.h. die Temperaturänderung, die durch die vertikale Divergenz des Netto-Strahlungsflusses hervorgerufen wird. Da die Lösung der Strahlungsübertragungsgleichung sehr rechenzeitaufwendig ist, geschieht dies nur alle zwei Stunden. Die Strahlungsübertragungsgleichung wird nach der sog. Zwei-Strom-Approximation gelöst, d.h. es werden nur die vertikalen Strahlungsflüsse berücksichtigt. Die Berechnung der vertikalen Strahlungsflüsse für die unterschiedlichen Absorptionsbanden im langwelligen Spektralbereich erfolgt unter der Annahme einer nicht-streuenden Atmosphäre im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht.

Der solare Strahlungsfluss wird sowohl durch Absorption durch Gase wie Wasserdampf, Kohlendioxid, Sauerstoff und Ozon als auch durch Streuung an Molekülen (Rayleigh-Streuung), Aerosolen und Wolkenpartikeln (Mie-Streuung) beeinflusst. Da beide Prozesse gleichzeitig stattfinden, ist die exakte Menge der jeweiligen Absorber entlang des Photonenpfades nicht bekannt. Somit ist die Verwendung von Banden-Modellen analog zum langwelligen Spektralbereich nicht möglich. Im solaren Spektralbereich wird deswegen nach der Photonen-Pfad-Methode die Wahrscheinlichkeit für das Auftreffen eines Photons auf einen Absorber bestimmt.

Die wichtigsten Eingangsparameter des Strahlungsschemas sind die Temperaturverteilung, die Albedo der Erdoberfläche und die Konzentrationen der strahlungsrelevanten Gase.

Anhang B

Residuale meridionale Stromfunktion

Mit dem Druck p als Vertikalkoordinate sind die residualen Geschwindigkeiten $[v^*]$ und $[\omega^*]$ definiert als (Edmon et al., 1980):

$$[v^*] = [v] - \frac{\partial}{\partial p} \left(\frac{[v'\theta']}{\partial[\theta]/\partial p} \right) \quad (\text{B.1})$$

$$[\omega^*] = [\omega] + \frac{1}{a \cos \varphi} \frac{\partial}{\partial p} \left(\cos \varphi \frac{[v'\theta']}{\partial[\theta]/\partial p} \right). \quad (\text{B.2})$$

v ist die meridionale Geschwindigkeit, ω ist die vertikale Geschwindigkeit, θ bezeichnet die potentielle Temperatur, a den Erdradius und φ die geographische Breite. Die Größen in eckigen Klammern sind zonale Mittelwerte. v' und θ' bezeichnen die Abweichung vom jeweiligen zonalen Mittel.

Durch Einsetzen der beiden Geschwindigkeiten $[v^*]$ und $[\omega^*]$ in die zonal gemittelte Form der primitiven Gleichungen erhält man diese in der transformierten Eulersch gemittelten (TEM) Formulierung. Aus der Kontinuitätsbedingung der TEM-Gleichungen

$$\frac{1}{a \cos \varphi} \frac{\partial}{\partial \varphi} ([v^*] \cos \varphi) + \frac{\partial}{\partial p} ([\omega^*]) = 0 \quad (\text{B.3})$$

ergibt sich eine Definition der residualen meridionalen Stromfunktion Ψ über

$$\frac{\partial \Psi}{\partial p} = -[v^*] \cos \varphi \quad (\text{B.4})$$

$$\frac{1}{a \cos \varphi} \frac{\partial \Psi}{\partial \varphi} = [\omega^*]. \quad (\text{B.5})$$

Unmittelbar am Modelloberrand nimmt der zonale Mittelwert des meridionalen Windes $[v]$ unrealistisch hohe Werte an. Dies führt dazu, dass die residuale Meridionalgeschwindigkeit $[v^*]$ am Modelloberrand vom zonalen Mittel $[v]$ dominiert wird. Aus diesem Grund werden für die Berechnung von Ψ die Gleichungen B.2 und B.5 verwendet:

$$\Psi = \Psi_0 - a \cos \varphi \int_{-\pi/2}^{\pi/2} [\omega^*] d\varphi \quad (\text{B.6})$$

Die Randbedingung $\Psi \rightarrow 0$ für $\varphi \rightarrow \pm\pi/2$ bestimmt die Integrationskonstante Ψ_0 .

Der Massenfluss durch die residuale Meridionalzirkulation kann mit der Massenstromfunktion F_m berechnet werden

$$F_m = \frac{2\pi a}{g} \Psi, \quad (\text{B.7})$$

wobei g die Schwerebeschleunigung bezeichnet.

Anhang C

Statistische Auswertungsmethoden

C.1 Nicht-lineares Regressionsmodell

Zur Beschreibung der modellierten Wasserdampfzeitreihen wurde das folgende nicht-lineare Regressionsmodell verwendet:

$$f(t) = \underbrace{a_0}_{(1)} + \underbrace{a_1 \sin(2\pi t + a_2)}_{(2)} + \underbrace{a_3 t}_{(3)} + \underbrace{a_4 \sin((12/26)2\pi t + a_5)}_{(4)} + \underbrace{e}_{(5)}, \quad (\text{C.1})$$

wobei t die Zeit bezeichnet. Die einzelnen Terme haben dabei folgende Bedeutung:

- (1): Klimatologischer Mittelwert
- (2): Jahresgang
- (3): Linearer Trend
- (4): Quasi-zweijährige Schwingung (QBO) mit einer mittleren Periode von 26 Monaten
- (5): Residuum

Die Berechnung des nicht-linearen Regressionsmodells erfolgte nach der Levenberg-Marquardt-Methode (Press et al., 2001). Dabei werden in einem iterativen Verfahren die Modellparameter a_0 bis a_5 solange neu bestimmt, bis die Gütefunktion χ^2 minimal wird:

$$\chi^2(\mathbf{a}) = \sum_{i=1}^n \left[\frac{y_i - y(x_i; \mathbf{a})}{\sigma_i} \right]^2, \quad (\text{C.2})$$

wobei \mathbf{a} die Modellparameter, y_i den i -ten Messwert, n die Länge der Zeitreihe, y den Modellwert zum Zeitpunkt x_i und σ_i die Standardabweichung von y_i bezeichnet.

Da die QBO eine variable Periode besitzt, wurden auch Testrechnungen mit anderen Perioden zwischen 24 und 30 Monaten durchgeführt, was allerdings nur wenig Einfluss auf die Ergebnisse hatte.

C.2 Mann-Kendall-Test

Die statistische Signifikanz der in Kapitel 7 berechneten linearen Trends wurde mit Hilfe des Mann-Kendall-Tests geprüft. Der Mann-Kendall-Test ist ein nicht-parametrischer Test der Signifikanz eines Trends einer Zeitreihe $x(i)$, $i = 1, \dots, n$ (Kendall, 1938; Mann, 1945). Dabei soll

die Hypothese, dass die Zeitreihe keinen Trend aufweist, gegen die Alternativhypothese, dass ein Trend vorliegt, getestet werden.

Nullhypothese H_0 : „kein Trend“

Alternativhypothese H_1 : „auf- oder absteigender Trend“ (zweiseitiger Test)

Alternativhypothese H_1 : „aufsteigender (absteigender) Trend“ (einseitiger Test)

Dazu wird folgende Prüfgröße (Teststatistik) S^* berechnet:

$$S^* = \sum_{\substack{i,j=1 \\ i < j}}^n \text{sign}[x(j) - x(i)], \quad \text{mit} \quad (\text{C.3})$$

$$\text{sign}[x(j) - x(i)] = \begin{cases} 1, & x(j) > x(i) \\ 0, & x(j) = x(i) \\ -1, & x(j) < x(i) \end{cases}$$

Unter der Annahme, dass die Nullhypothese H_0 gültig ist, berechnet sich die Varianz von S^* nach folgender Formel

$$\text{VAR}(S^*) = \frac{1}{18} [n(n-1)(2n+5) - \sum_{j=1}^p u_j(u_j-1)(2u_j+5)], \quad (\text{C.4})$$

wobei n die Länge der Zeitreihe, p die Anzahl der verbundenen Gruppen und u_j die Anzahl der Werte innerhalb der Gruppe j bezeichnet.

Unter der Annahme der Nullhypothese H_0 ist S^* für große n normalverteilt. Damit lässt sich die Wahrscheinlichkeit p berechnen, dass $|S^*|$ größer als ein kritischer Wert x_α ist.

$$p = \begin{cases} 1 - \text{erf}\left(\frac{|S^*|}{\sqrt{\text{VAR}(S^*)}}\right) & \text{(zweiseitiger Test)} \\ 1 + \text{erf}\left(\frac{S^*}{\sqrt{\text{VAR}(S^*)}}\right) * 0.5 & \text{(einseitiger Test, absteigender Trend)} \\ 1 - \text{erf}\left(\frac{S^*}{\sqrt{\text{VAR}(S^*)}}\right) * 0.5 & \text{(einseitiger Test, aufsteigender Trend), mit} \end{cases} \quad (\text{C.5})$$

$$\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt \quad (\text{Gaussches Fehlerintegral})$$

Die Nullhypothese H_0 wird dann zugunsten der Alternativhypothese H_1 zurückgewiesen, wenn $p < \alpha$, z.B. $p < 0.01$, wobei α ein vorgegebenes Signifikanzniveau bezeichnet.

Abkürzungen

ASR	Absorbed Solar Radiation
ATTILA	Atmospheric Tracer Transport In a LAgrangian model
CAPE	Convective Available Potential Energy, verfügbare potentielle konvektive Energie
CCM	Chemistry Climate Model
CHEM	Chemiemodul, das mit ECHAM gekoppelt werden kann
CH ₃	Methyl-Radikal
CH ₃ O	Methoxy-Radikal
CH ₃ O ₂	Methylperoxy-Radikal
CH ₃ OOH	Methylhydroperoxid
CH ₄	Methan
ClONO ₂	Chlornitrat
ClO _x	aktive Chlorverbindungen (Cl+ClO+HOCl)
CO	Kohlenmonoxid
CO ₂	Kohlendioxid
CPT	Cold Point-Tropopause
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
DJF	Dezember/Januar/Februar
DU	Dobson Unit
ECHAM	Modell des ECMWF, HAMBurger Version
ECHAM4.L39(DLR)	Am DLR entwickelte Version von ECHAM4 mit 39 vertikalen Schichten
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ENSO	El Niño/Southern Oscillation
ENVISAT	ENVIronment SATellite
ERA	ECMWF ReAnalysis
ERBE	Earth Radiation Budget Experiment
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoff

GCM	General Circulation Model
H ₂	Wasserstoff
H ₂ O	Wasser
H ₂ SO ₄	Schwefelsäure
HALOE	HALogen Occultation Experiment
HCHO	Formaldehyd
HCl	Chlorwasserstoff
HNO ₃	Salpetersäure
HO ₂	Hydroperoxy-Radikal
HO _x	Hydrogen-Oxide (H+OH+HO ₂)
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
ITCZ	Inter Tropical Convergence Zone
JJA	Juni/Juli/August
LIMS	Limb Infrared Monitor of the Stratosphere
MAM	März/April/Mai
MIPAS	Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding
MLS	Microwave Limb Sounder
MSU	Microwave Sounding Unit
N ₂ O	Distickstoffoxid, Lachgas
NAT	Nitric Acid Trihydrate, Salpetersäure-Trihydrat
NCEP	National Centers for Environmental Prediction
NMHC	Non-Methane HydroCarbons, Nicht-Methan Kohlenwasserstoffe
NO	Stickstoffmonoxid
NO ₂	Stickstoffdioxid
NO _x	Stickoxide (NO+NO ₂)
O(¹ D)	angeregtes Sauerstoffatom
O ₂	Sauerstoff
O ₃	Ozon
OH	Hydroxyl-Radikal
OLR	Outgoing Longwave Radiation
POAM III	Polar Ozone and Aerosol Measurement III
PSC	Polar Stratospheric Cloud, polare Stratosphärenwolke
QBO	Quasi-Biennial Oscillation, quasi-zweijährige Schwingung
SAGE II	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II
SAT	Sulphuric Acid Tetrahydrate, Schwefelsäure-Tetrahydrat

SLT	Semi-Lagrangescher Transport
SON	September/Okttober/November
SPARC	Stratospheric Processes And their Role in Climate
SSA	Stratospheric Sulfate Aerosol, Stratosphärisches Schwefelaerosol
SST	Sea Surface Temperature, Meeresoberflächentemperatur
STE	Stratosphere-Troposphere Exchange
STS	Supercooled Ternary Solution, unterkühlte ternäre Lösung
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
TP	(thermische) Tropopause
TTL	Tropical Tropopause Layer
UARS	Upper Atmosphere Reserch Satellite
UT/LS	Upper Troposphere/Lower Stratosphere
WMO	World Meteorological Organization

Abbildungsverzeichnis

1.1	Wasserdampfzeitreihe über Boulder	3
2.1	Zonal gemittelte Wasserdampfverteilung, HALOE	8
2.2	Schematische Darstellung der mittleren Meridionalzirkulation	9
2.3	Vertikalschnitt der zonal gemittelten potentiellen Temperatur	11
2.4	„Tape Recorder“, HALOE	13
2.5	Dehydrierung der polaren Südhemisphäre, POAM	14
2.6	Linearer Wasserdampftrend über Boulder, CO	15
2.7	Absorptionsspektrum Wasserdampf	17
2.8	Vertikalprofile von atmosphärischen Abkühlungsraten	18
2.9	Schematische Darstellung der Methan-Oxidationskette	20
2.10	Verlustraten der O _x -Familie	23
2.11	Schematische Darstellung der Bildung polarer Stratosphärenwolken	24
3.1	Verteilung der vertikalen Modellflächen in ECHAM4.L39(DLR)	27
3.2	Schema aller Prozesse in ECHAM4.L39(DLR)/CHEM	30
3.3	Schematische Darstellung der Konvektion in ATTILA	32
4.1	Treibhausgaskonzentrationen, stratosphärischer Chlorgehalt, NO _x -Emissionen und Sonnenaktivität zwischen 1999 und 2019	36
4.2	Schematische Darstellung der Lagrangeschen Feuchteadvektion	39
4.3	Differenz Gesamt ozon: E39/C nicht-rückgekoppelt und E39/C rückgekoppelt	41
5.1	Zonal gemittelte Temperaturverteilung, E39/C und ERA	44
5.2	Mittlere Cold-Point-Temperatur in E39/C, Januar	45
5.3	Vertikalschnitt residuale Massenstromfunktion, DJF und JJA	47
5.4	Residuale Massenstromfunktion in 100 hPa und 70 hPa	48
5.5	Massenfluss durch die thermische Tropopause in E39/C, DJF	51
5.6	Horizontale Verteilung der Massenflüsse	51
5.7	Wasserdampfverteilung in 215 hPa, E39/C und MLS	53
5.8	Wasserdampfverteilung in 147 hPa, E39/C und MLS	53
5.9	Konvektiven Ergebnisse in E39/C, DJF und JJA	54
5.10	Konvektiven Wolkenobergrenze in E39/C, DJF und JJA	55
5.11	Geopotential 100 hPa und 150 hPa in E39/C, Juli	55
5.12	Höhe der thermischen Tropopause in E39/C, JJA	56
5.13	Zonal gemittelte Wasserdampfverteilung, E39/C und HALOE	58
5.14	Zonal gemittelte Methanverteilung, E39/C und HALOE	59
5.15	„Tape recorder“, E39/C und HALOE	61

5.16	Dehydrierung der polaren Winterstratosphäre, E39/C	63
5.17	Jahresgang der Gesamtozonsäule, E39/C und TOMS	64
5.18	Zonal gemittelte OH-Verteilung, E39/C	66
6.1	Wasserdampfverteilung E4/SLT:HALOE und E4/ATTILA:HALOE	71
6.2	Zonal gemittelte Wasserdampfverteilung, E4/ATTILA und E4/SLT	72
6.3	„Tape Recorder“, E4/ATTILA und E4/SLT	73
6.4	Zonal gemittelter Wolkenwassergehalt, E4/ATTILA und E4/SLT	74
6.5	Zonal gemittelte Temperaturdifferenz E4/ATTILA und E4/SLT	75
6.6	Zonal gemittelte Temperaturdifferenz E4/SLT bzw. E4/ATTILA und ERA . . .	76
6.7	Thermische Tropopause und Cold Point-Tropopause, E4/SLT und E4/ATTILA .	77
7.1	Änderungen Temperatur 1960er bis 1990er Jahre, CNTL_1999	82
7.2	Temperatur untere Stratosphäre, CNTL_1999 und MSU4	83
7.3	Schema zur stufenweisen Abkühlung der Stratosphäre	84
7.4	Tropische Cold Point-Temperatur, CNTL_1999 und NOVOLC_1999	85
7.5	Temperaturanomalien am Äquator, 10–200 hPa, CNTL_1999	86
7.6	Wasserdampfzeitreihe Tropen 200 hPa, CNTL_1999	88
7.7	Wasserdampfzeitreihe 50 hPa, CNTL_1999	90
7.8	Linearer Wasserdampftrend 1960 bis 1970, CNTL_1999	91
7.9	Linearer Wasserdampftrend 1980 bis 1999, CNTL_1999 und NOVOLC_1999 .	91
7.10	Wasserdampfzeitreihe 50 hPa, 40°N, CNTL_1999 und Boulder-Messdaten . . .	93
7.11	QBO-induzierte Wasserdampfanomalien	94
7.12	Differenz H ₂ O in 40°N und 50 hPa, CNTL_1999 - NOVOLC_1999	96
7.13	Zeitreihe CPT, Tropen, CNTL_2019	99
7.14	Wasserdampfzeitreihe, Tropen, 200 hPa, CNTL_2019	100
7.15	Wasserdampfzeitreihe 50 hPa, CNTL_2019	101
7.16	Linearer Wasserdampftrend 2000 bis 2019, CNTL_2019	102
8.1	Gesamtozonanomalien, CNTL_1999	107
8.2	Wasserdampfstörung, VOLC	108
8.3	Änderungen der OH-Konzentration, VOLC	109
8.4	Ozonabbau, VOLC	110
8.5	Änderungen der Ozonschicht, VOLC	112
8.6	Wasserdampfstörung, H ₂ O_5	114
8.7	Änderungen der OH-Konzentration, H ₂ O_5	114
8.8	Änderungen der Ozonkonzentration, H ₂ O_5	117
8.9	Jahresgang der Temperatur, 50 hPa, 80°N/S, CNTL	118
8.10	Änderungen der Ozonchemie im antarktischen Polarwirbel, H ₂ O_5	121
8.11	Änderungen Gesamtozon, H ₂ O_5	122
8.12	Änderungen aktinischer Fluss, H ₂ O_5	122
8.13	Rückgang Gesamtozon, H ₂ O_1 und H ₂ O_5	123
9.1	Schematische Darstellung der wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit	129
A.1	Schematische Darstellung eines „bulk model“	137

Tabellenverzeichnis

4.1	Experimentübersicht	34
4.2	Natürliche und anthropogene Stickoxidemissionen, 2000	42
5.1	Abwärtsgerichteter Massenfluss in den Extratropen, 100 hPa	49
5.2	Aufwärtsgerichteter Massenfluss in den Tropen, 100 hPa	49
8.1	Ozonabbauzyklen in 50 hPa in verschiedenen Breiten und Jahreszeiten	116
A.1	Absorptionsbanden im langwelligen Spektralbereich	138

Literaturverzeichnis

- ANDREWS, D. G., HOLTON, J. R. und LEOVY, C. B., 1987: *Middle Atmospheric Dynamics*, Academic Press, London.
- ASSELIN, R., 1972: Frequency filter for time integrations, *Mon. Wea. Rev.*, **100**, 487–490.
- ATTICKS, M. G. und ROBINSON, G. D., 1983: Some features of the structure of the tropical tropopause, *Q. J. R. Met. Soc.*, **109**, 295–308.
- AUSTIN, J., KNIGHT, K. und BUTCHART, N., 2000: Three-dimensional chemical model simulations of the ozone layer: 1979-2015, *Q. J. R. Met. Soc.*, **126**, 1533–1556.
- BARATH, F. T., CHAVEZ, M. C., COFIELD, R. E., FLOWER, D. A., FRERKING, M. A., GRAM, M. B., HARRIS, W. M., HOLDEN, J. R., JARNOT, R. F., KLOEZEMAN, W. G., KLOSE, G. J., LAU, G. K., LOO, M. S., MADDISON, B. J., MATTAUCH, R. J., MCKINNEY, R. P., PECKHAM, G. E., PICKETT, H. M., SIEBES, G., SOLTIS, F. S., SUTTIE, R. A., TARSALA, J. A., WATERS, J. W. und WILSON, W. J., 1993: The Upper Atmosphere Research Satellite Microwave Limb Sounder Instrument, *J. Geophys. Res.*, **98**, 10751–10762.
- BARKSTROM, B. R., 1984: The Earth Radiation Budget Experiment (ERBE), *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **65**, 1170–1185.
- BENKOVITZ, C. M., SCHOLTZ, M. T., PACYNA, J., TARRASON, L., DIGNON, J., VOLDNER, E. C., SPIRO, P. A., LOGAN, J. A. und GRAEDEL, T. E., 1996: Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen, *J. Geophys. Res.*, **101**, 29239–29253.
- BRAESICKE, P. und PYLE, J. A., 2004: Sensitivity of dynamics and ozone to different representations of SSTs in the Unified Model, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **130**, 2033–2045.
- BREWER, A. W., 1949: Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **75**, 351–363.
- BRÜHL, C. und CRUTZEN, P. J., 1993: MPIC two-dimensional model, in M. PRATHER und E. REMSBERG (Hrsg.), *The atmospheric effects of stratospheric aircraft: Report of the 1992 models and measurement workshop*, NASA Reference Publ. 1292, Washington, DC, pp. 703–706.
- BRUNNER, D., STAEHELIN, J., ROGERS, H. L., KÖHLER, M. O., PYLE, J. A., HAUGLUSTAINÉ, D., JOURDAIN, L., BERNTSEN, T. K., GAUSS, M., ISAKSEN, I. S. A., MEIJER, E., VAN VELTHOVEN, P., PITARI, G., MANCINI, E., GREWE, V. und SAUSEN,

- R., 2005: An evaluation of the performance of chemistry transport models. Part 2: Detailed comparison with two selected campaigns, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 107–129.
- CHANDRA, S., ZIEMKE, J. R., MIN, W. und READ, W. G., 1998: Effects of 1997-1998 El Niño on tropospheric ozone and water vapor, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 3867–3870.
- CHAPMAN, S., 1930: A theory of upper atmospheric ozone, *Mem. R. Meteor. Soc.*, **111**.
- CHARNEY, J. G. und DARZIN, P. G., 1961: Propagation of planetary scale disturbances from the lower into the upper atmosphere, *J. Geophys. Res.*, **66**, 83–109.
- CHEN, M., ROOD, R. B. und READ, W. G., 1999: Seasonal variations of upper tropospheric water vapor and high clouds observed from satellites, *J. Geophys. Res.*, **104**, 6193–6197.
- CLOUGH, S. A., IACONO, M. J. und MONCET, J.-L., 1992: Line-by-line calculations of atmospheric fluxes and cooling rates: Application to water vapor, *J. Geophys. Res.*, **97**, 15761–15785.
- CONSIDINE, D. B., ROSENFELD, J. E. und FLEMING, E. L., 2001: An interactive model study of the influence of the Mount Pinatubo aerosol on stratospheric methane and water trends, *J. Geophys. Res.*, **106**, 27711–27727.
- CORBETT, J. J., FISCHBECK, P. S. und PANDIS, S. N., 1999: Global nitrogen and sulphur inventories for oceangoing shipping, *J. Geophys. Res.*, **104**, 3457–3470.
- DAMERIS, M., GREWE, V., PONATER, M., EYRING, V., MAGER, F., MATTHES, S., SCHNADT, C., STENKE, A., STEIL, B., BRÜHL, C. und GIORGETTA, M., 2005: Long-term changes in a transient simulation employing an interactively coupled chemistry-climate model under realistic forcings, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2121–2145.
- DANIELSEN, E. F., 1982: A dehydration mechanism for the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **9**, 605–608.
- DANIELSEN, E. F., 1993: In situ evidence of rapid, vertical, irreversible transport of lower tropospheric air into the lower tropical stratosphere by convective cloud turrets and by larger-scale upwelling in tropical cyclones, *J. Geophys. Res.*, **98**, 8665–8681.
- DESSLER, A. E., 1998: A reexamination of the stratospheric fountain hypothesis, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 4165–4168.
- DESSLER, A. E., HINTSA, E. J., WEINSTOCK, E. M., ANDERSON, J. G. und CHAN, K. R., 1995: Mechanisms controlling water vapor in the lower stratosphere: A tale of two stratospheres, *J. Geophys. Res.*, **100**, 23167–23172.
- DESSLER, A. E. und KIM, H., 1999: Determination of the amount of water vapor entering the stratosphere based on Halogen Occultation Experiment (HALOE) data, *J. Geophys. Res.*, **104**, 30605–30607.
- DESSLER, A. E., WEINSTOCK, E. M., HINTSA, E. J., ANDERSON, J. G., WEBSTER, C. R., MAY, R. D., ELKINS, J. W. und DUTTON, G. S., 1994: An examination of the total hydrogen budget of the lower stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 2563–2566.
- DETHOF, A., O'NEILL, A., SLINGO, J. M. und BERRISFORD, P., 2000: Quantification of isentropic water-vapour transport into the lower stratosphere, *Q. J. R. Met. Soc.*, **126**, 1771–1788.

- DETHOF, A., O'NEILL, A., SLINGO, J. M. und SMIT, H. G. J., 1999: A mechanism for moistening the lower stratosphere involving the Asian summer monsoon, *Q. J. R. Met. Soc.*, **125**, 1079–1106.
- DLUGOKENCKY, E. J., STEELE, L. P., LANG, P. M. und MASARIE, K. A., 1994: The growth rate and distribution of atmospheric methane, *J. Geophys. Res.*, **99**, 17021–17043.
- DOBSON, G. M. B., BREWER, A. W. und CWILONG, B., 1946: Meteorology of the lower stratosphere, *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **185**, 144–175.
- DOUGLASS, A. R., SCHOEBERL, M. R., STOLARSKI, R. S., WATERS, J. W., RUSSELL III, J. M., ROCHE, A. E. und MASSIE, S. T., 1995: Interhemispheric differences in springtime production of HCl and ClONO₂ in the polar vortices, *J. Geophys. Res.*, **100**, 13967–13978.
- DOUGLASS, D. H., PEARSON, B. D. und SINGER, F., 2004: Altitude dependence of atmospheric temperature trends: Climate models versus observations, *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L13208.
- DVORTSOV, V. L. und SOLOMON, S., 2001: Response of the stratospheric temperatures and ozone to past and future increases in stratospheric humidity, *J. Geophys. Res.*, **106**, 7505–7514.
- EDMON, H. J., HOSKINS, B. J. und MCINTYRE, M. E., 1980: Eliassen-Palm cross sections for the troposphere, *J. Atmos. Sci.*, **37**, 2600–2616.
- ELUSZKIEWICZ, J., CRISP, D., ZUREK, R., ELSON, L., FISHBEIN, E., FROIDEVAUX, L., WATERS, J., GRAINGER, R. G., LAMBERT, A., HARWOOD, R. und PECKHAM, G., 1996: Residual circulation in the stratosphere and lower mesosphere as diagnosed from Microwave Limb Sounder data, *J. Atmos. Sci.*, **53**, 217–240.
- ELUSZKIEWICZ, J., HELMER, R. S., MAHLMAN, J. D., BRUHWILER, L. und TAKACS, L. L., 2000: Sensitivity of age-of-air calculations to the choice of advection scheme, *J. Atmos. Sci.*, **57**, 3185–3201.
- EYRING, V., DAMERIS, M., GREWE, V., LANGBEIN, I. und KOUKER, W., 2003: Climatologies of subtropical mixing derived from 3D models, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 1007–1021.
- FABIAN, P., 1992: *Atmosphäre und Umwelt*, Springer, Berlin.
- FIOLETOV, V. E., BODEKER, G. E., MILLER, A. J., MCPETERS, R. D. und STOLARSKI, R., 2002: Global and zonal total ozone variations estimated from ground-based and satellite measurements: 1964–2000, *J. Geophys. Res.*, **107**, 4647, doi:10.1029/2001JD001350.
- FORSTER, P. M. DE F. und SHINE, K. P., 1999: Stratospheric water vapour changes as a possible contributor to observed stratospheric cooling, *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 3309–3312.
- FORSTER, P. M. DE F. und SHINE, K. P., 2002: Assessing the climate impact of trends in stratospheric water vapor, *Geophys. Res. Lett.*, **29**, 1086, doi:10.1029/2001GL013909.
- FORTUIN, J. P. F. und KELDER, H., 1998: An ozone climatology based on ozonesonde and satellite measurements, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31709–31734.
- GARCIA, R. R. und BOVILLE, B. A., 1994: Downward control of the mean meridional circulation and temperature distribution of the polar winter stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, **51**, 2238–2245.

- GARCIA, R. R. und SOLOMON, S., 1994: A new numerical model of the middle atmosphere, 2. ozone and related species, *J. Geophys. Res.*, **99**, 12,937–12,951.
- GATES, W. L., 1992: AMIP: The Atmosphere Model Intercomparison Project, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **73**, 1962–1970.
- GATES, W. L., BOYLE, J. S., COVEY, C., DEASE, C. G., DOUTRIAUX, C. M., DRACH, R. S., FIORINO, M., GLECKER, P. J., HNILO, J. J., MARLAIS, S. M., PHILLIPS, T. J., POTTER, G. L., SANTER, B. D., SPERBER, K. R., TAYLOR, K. E. und WILLIAMS, D. N., 1999: An overview of the results of the Atmospheric Model Intercomparison Project (AMIP I), *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **80**, 29–55.
- GETTELMAN, A. und BAUGHUM, S. L., 1999: Direct deposition of subsonic aircraft emissions into the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **104**, 8317–8327.
- GETTELMAN, A. und FORSTER, P. M. DE F., 2002: A climatology of the tropical tropopause layer, *J. Met. Soc. Japan*, **80**, 911–924.
- GETTELMAN, A., KINNISON, D. E., DUNKERTON, T. J. und BRASSEUR, G. P., 2004: Impact of monsoon circulations on the upper troposphere and lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **109**, D22101, doi:10.1029/2004JD004878.
- GETTELMAN, A., RANDEL, W. J., WU, F. und MASSIE, S. T., 2002a: Transport of water vapor in the tropical tropopause layer, *Geophys. Res. Lett.*, **29**, 1009, doi:10.1029/2001GL013818.
- GETTELMAN, A., SALBY, M. L. und SASSI, F., 2002b: The distribution and influence of convection in the tropical tropopause region, *J. Geophys. Res.*, **107**, 4080, doi:10.1029/2001JD001048.
- GIBSON, J. K., KALLBERG, P., UPPALA, S., HERNANDEZ, A. und SERANO, E., 1997: ERA description, *ECMWF Re-Analysis Project Report Series*, **1**, 72pp.
- GLAZE, L., BALOGA, S. M. und WILSON, L., 1997: Transport of atmospheric water vapor by volcanic eruption columns, *J. Geophys. Res.*, **102**, 6099–6108.
- GREWE, V., BRUNNER, D., DAMERIS, M., GRENFELL, J. L., HEIN, R., SHINDELL, D. und STAEHELIN, J., 2001: Origin and variability of upper tropospheric nitrogen oxides and ozone at northern mid-latitudes, *Atmos. Environ.*, **35**, 3421–3433.
- GREWE, V. und DAMERIS, M., 1996: Calculating the global mass exchange between stratosphere and troposphere, *Ann. Geophysicae*, **14**, 431–442.
- GREWE, V., DAMERIS, M., FICHTER, C. und SAUSEN, R., 2002: Impact of aircraft NO_x emissions. Part 1: Interactively coupled climate-chemistry simulations and sensitivities to climate-chemistry feedback, lightning and model resolution, *Meteorol. Z.*, **3**, 177–186.
- GREWE, V., SHINDELL, D. T. und EYRING, V., 2004: The impact of horizontal transport on the chemical composition in the tropopause region: Lightning NO_x and streamers, *Advances in Space Research*, **33**, 1058–1061.
- HANISCO, T. F., LANZENDORF, E. J., WENNBERG, P. O., PERKINS, K. K., STIMPFLER, R. M., VOSS, P. B., ANDERSON, J. G., COHEN, R. C., FAHEY, D. W., GAO, R. S.,

- HINTSA, E. J., SALAWITCH, R. J., MARGITAN, J. J., MCELROY, C. T. und MIDWINTER, C., 2001: Sources, sinks and the distribution of OH in the lower stratosphere, *J. Phys. Chem. A*, **105**, 1543–1553.
- HANSON, D. und MAUERSBERGER, K., 1988: Laboratory studies of nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 855–858.
- HAO, W. M., LIU, M.-H. und CRUTZEN, P. J., 1990: Estimates of annual and regional releases of CO₂ and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on the FAO statistics for the period 1975-1980, Vol. 84 von *Fire in the Tropical Biota, Ecological Studies*, Springer-Verlag, New York, pp. 440–462.
- HAYNES, P. H., MARKS, C. J., MCINTYRE, M. E., SHEPHERD, T. G. und SHINE, K. P., 1991: On the downward control of extratropical diabatic circulations by eddy-induced mean zonal forces, *J. Atmos. Sci.*, **48**, 651–679.
- HAYNES, P. H. und MCINTYRE, M. E., 1987: On the evolution of vorticity and potential vorticity in the presence of diabatic heating and frictional or other forces, *J. Atmos. Sci.*, **44**, 828–841.
- HAYNES, P. und SHUCKBURGH, E., 2000: Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport, 1. Stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **105**, 22777–22794.
- HEIN, R., DAMERIS, M., SCHNADT, C., LAND, C., GREWE, V., KÖHLER, I., PONATER, M., SAUSEN, R., STEIL, B., LANDGRAF, J. und BRÜHL, C., 2001: Results of an interactively coupled atmospheric chemistry–general circulation model: Comparison with observations, *Ann. Geophysicae*, **19**, 435–457.
- HEYMSFIELD, A. J., 1977: Precipitation development in stratiform clouds. A microphysical and dynamical study, *J. Atmos. Sci.*, **34**, 367–381.
- HIGHWOOD, E. J. und HOSKINS, B. J., 1998: The tropical tropopause, *Q. J. R. Met. Soc.*, **124**, 1579–1604.
- HOINKA, K. P., REINHARDT, M. E. und METZ, W., 1993: North Atlantic air traffic within the lower stratosphere: Cruising times and corresponding emissions, *J. Geophys. Res.*, **98**, 23113–23131.
- HOLTON, J. R., 1992: *An Introduction to Dynamic Meteorology*, Academic Press, San Diego, USA.
- HOLTON, J. R. und GETTELMAN, A., 2001: Horizontal transport and the dehydration of the stratosphere, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 2799–2802.
- HOLTON, J. R., HAYNES, P. H., MCINTYRE, M. E., DOUGLASS, A. R., ROOD, R. B. und PFISTER, L., 1995: Stratosphere-troposphere exchange, *Rev. Geophys.*, **33**, 405–439.
- HOSKINS, B. J., 1991: Towards a PV- θ view of the general circulation, *Tellus (AB)*, **43**, 27–35.
- IPCC, 1999: Aviation and the global atmosphere, Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, New York, USA.
- IPCC, 2001: Climate change 2001 - The scientific basis, Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, New York, USA.

- JACKSON, D. R., DRISCOLL, S. J., HIGHWOOD, E. J., HARRIES, J. E. und RUSSELL III, J. M., 1998: Troposphere to stratosphere transport at low latitudes as studied by HALOE observations of water vapour 1992-1997, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **124**, 169–192.
- JENSEN, E. J., PFISTER, L., ACKERMAN, A. S., TABAZADEH, A. und TOON, O. B., 2001: A conceptual model of the dehydration of air due to freeze-drying by optically thin, laminar cirrus rising slowly across the tropical tropopause, *J. Geophys. Res.*, **106**, 17237–17252.
- JENSEN, E. und PFISTER, L., 2004: Transport and freeze-drying in the tropical tropopause layer, *J. Geophys. Res.*, **109**, D02207.
- JOHNSTON, H. S. und SOLOMON, S., 1979: Thunderstorms as possible micrometeorological sink for stratospheric water, *J. Geophys. Res.*, **84**, 3155–3158.
- JOSHI, M. M. und SHINE, K. P., 2003: A GCM study of volcanic eruptions as a cause of increased stratospheric water vapor, *J. Climate*, **16**, 3525–3534.
- KENDALL, M. G., 1938: A new measure of rank correlation, *Biometrika*, **30**, 81–93.
- KINNE, S., TOON, O. B. und PRATHER, M. J., 1992: Buffering of stratospheric circulation by changing amounts of tropical ozone - a Pinatubo case study, *Geophys. Res. Lett.*, **19**, 1927–1930.
- KIRCHNER, I., STENCHIKOV, G. L., GRAF, H.-F., ROBOCK, A. und ANTUÑA, J. C., 1999: Climate model simulation of winter warming and summer cooling following the 1991 Mount Pinatubo volcanic eruption, *J. Geophys. Res.*, **104**, 19039–19055.
- KIRK-DAVIDOFF, D. B., HINTSA, E. J., ANDERSON, J. G. und KEITH, D. W., 1999: The effect of climate change on ozone depletion through changes in stratospheric water vapour, *Nature*, **402**, 399–401.
- KLEY, D., RUSSELL III, J. M. und PHILLIPS, C., 2000: SPARC Assessment of upper tropospheric and stratospheric water vapour, *WCRP #113, WMO/TD #1043, SPARC Report #2*.
- KLEY, D., STONE, E. J., HENDERSON, W. R., DRUMMOND, J. W., HARROP, W. J., SCHMELTEKOPF, A. L., THOMPSON, T. L. und WINKLER, R. H., 1979: In situ measurements of the mixing ratio of water vapor in the stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, **36**, 2513–2524.
- KÖHLER, H. W., 2003: Estimation of NO_x and other emissions from merchant ocean-going ships, *Shipping World and Shipbuilder, Surrey, UK*, **204**, 33–36.
- KÜPPER, C., THUBURN, J., CRAIG, G. C. und BIRNER, T., 2004: Mass and water transport into the tropical stratosphere: A cloud-resolving simulation, *J. Geophys. Res.*, **109**, D10111, doi:10.1029/2004JD004541.
- KURZ, C. und GREWE, V., 2002: Lightning and thunderstorms, Part 1: Observational data and model results, *Meteorol. Z.*, **11**, 379–393.
- LABITZKE, K., 1994: Stratospheric temperature changes after the Pinatubo eruption, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **56**, 1027–1034.
- LAMAGO, D., DAMERIS, M., SCHNADT, C., EYRING, V. und BRÜHL, C., 2003: Impact of large solar zenith angles on lower stratospheric dynamical and chemical processes in a coupled chemistry-climate model, *Atmos. Chem. Phys.*, **3**, 1981–1990.

- LAND, C., 1999: *Untersuchungen zum globalen Spurenstofftransport mit dem Atmosphärenmodell ECHAM4.L39(DLR)*, Dissertation, Fakultät für Physik, Ludwig–Maximilians–Universität München, DRL Forschungsbericht 1999-32, ISSN 1434-8454, Köln.
- LAND, C., PONATER, M., SAUSEN, R. und ROECKNER, E., 1999: The ECHAM4.L39(DLR) atmosphere GCM — technical description and model climatology, DRL Forschungsbericht 1999-31, ISSN 1434-8454, Köln.
- LAUER, A., DAMERIS, M., RICHTER, A. und BURROWS, J. P., 2002: Tropospheric NO₂ columns: A comparison between model and retrieved data from GOME measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, **2**, 67–78.
- LAWRENCE, M. G., JÖCKEL, P. und VON KUHLMANN, R., 2001: What does the global mean OH concentration tell us?, *Atmos. Chem. Phys.*, **1**, 37–49.
- LIU, K.-N., 2002: *An introduction to atmospheric radiation*, Academic Press, San Diego, USA.
- LONDON, J., BOJKOV, R. D., OLTMANS, S. und KELLEY, J., 1976: *Atlas of the global distribution of total ozone, July 1957 - June 1967*, NCAR Technical Note, 113+STR.
- LUCKE, R. L., KORWAN, D. R., BEVILACQUA, R. M., HORNSTEIN, J. S., SHETTLE, E. P., CHEN, D. T., DAEHLER, M., LUMPE, J. D., FROMM, M. D., DEBRESTIAN, D., NEFF, B., SQUIRE, M., KÖNIG-LANGLO, G. und DAVIES, J., 1999: The Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) III instrument and early validation results, *J. Geophys. Res.*, **104**, 18785–18799.
- MANN, H. B., 1945: Nonparametric tests against trend, *Econometrica*, **13**, 245–259.
- MANZINI, E. und MCFARLANE, N. A., 1998: The effect of varying the source spectrum of gravity wave parameterization in a middle atmosphere general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31523–31539.
- MASTENBROOK, H. J., 1968: Water vapor distribution in the stratosphere and high troposphere, *J. Atmos. Sci.*, **25**, 299–311.
- MASTENBROOK, H. J., 1971: The variability of water vapor in the stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, **28**, 1495–1501.
- MASTENBROOK, H. J. und OLTMANS, S. J., 1983: Stratospheric water vapor variability for Washington, DC/Boulder, CO: 1964-82, *J. Atmos. Sci.*, **40**, 2157–2165.
- MATTHES, K., 2003a: *Der Einfluss des 11-jährigen Sonnenfleckenzyklus und der QBO auf die Atmosphäre - eine Modellstudie*, Dissertation, Fachbereich Geowissenschaften, Freie Universität Berlin.
- MATTHES, S., 2003b: *Globale Auswirkung des Straßenverkehrs auf die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre*, Dissertation, Fakultät für Physik, Ludwig–Maximilians–Universität München, DRL Forschungsbericht 2003-15, ISSN 1434-8454, Köln.
- MCCORMICK, M. P., CHIOU, E. W., MCMASTER, L. R., CHU, W. P., LARSEN, J. C., RIND, D. und OLTMANS, S., 1993: Annual variations of water vapor in the stratosphere and upper troposphere observed by the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II, *J. Geophys. Res.*, **98**, 4867–4874.

- MEARS, C. A., SCHABEL, M. C. und WENTZ, F. J., 2003: A reanalysis of the MSU Channel 2 tropospheric temperature record, *J. Climate*, **16**, 3650–3664.
- MORCRETTE, J.-J., 1991: Radiation and cloud radiative properties in the European Centre for Medium-Range Weather Forecasting system, *J. Geophys. Res.*, **96**, 9121–9132.
- MOTE, P. W., DUNKERTON, T. J., MCINTYRE, M. E., RAY, E. A., HAYNES, P. H. und RUSSELL III, J. M., 1998: Vertical velocity, vertical diffusion and dilution by midlatitude air in the tropical lower stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **103**, 8651–8666.
- MOTE, P. W., HOLTON, J. R. und BOVILLE, B. A., 1994: Characteristics of stratosphere-troposphere exchange in a general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **99**, 16815–16829.
- MOTE, P. W., ROSENLOF, K. H., MCINTYRE, M. E., CARR, E. S., GILLE, J. C., HOLTON, J. R., KINNERSLEY, J. S., PUMPHREY, H. C., RUSSELL III, J. M. und WATERS, J. W., 1996: An atmospheric tape recorder: The imprint of tropical tropopause temperatures on stratospheric water vapor, *J. Geophys. Res.*, **101**, 3989–4066.
- NEDOLUHA, G. E., BEVILACQUA, R. M., GOMEZ, R. M., HICKS, B. C., RUSSELL III, J. M. und CONNOR, B. J., 2003: An evaluation of trends in middle atmospheric water vapor as measured by HALOE, WVMS, and POAM, *J. Geophys. Res.*, **108**, 4391, doi:10.1029/2002JD003332.
- NEDOLUHA, G. E., BEVILACQUA, R. M., GOMEZ, R. M., SISKIND, D. E., HICKS, B. C., RUSSELL III, J. M. und CONNOR, B. J., 1998: Increases in middle atmospheric water vapor as observed by the Halogen Occultation Experiment and the ground-based Water Vapor Millimeter-wave Spectrometer from 1991 to 1997, *J. Geophys. Res.*, **103**, 3531–3543.
- NEWELL, R. E. und GOULD-STEWART, S., 1981: A stratospheric fountain?, *J. Atmos. Sci.*, **38**, 2789–2796.
- NEWELL, R. E., ZHU, Y., READ, W. G. und WATERS, J. W., 1997: Relationship between tropical upper tropospheric moisture and eastern tropical pacific sea surface temperature at seasonal and interannual time scales, *Geophys. Res. Lett.*, **24**, 25–28.
- NORDENG, T. E., 1994: Extended versions of the convective parameterization scheme at ECMWF and their impact on the mean and transient activity of the model in the tropics, *Technical Report Technical Memorandum No. 206*, ECMWF, Shinfield Park, Reading RG29AX, UK.
- OLTMANS, S. J. und HOFMANN, D. J., 1995: Increase in lower-stratospheric water vapor at a mid-latitude northern hemisphere site from 1981 to 1994, *Nature*, **374**, 146–149.
- OLTMANS, S. J., VÖMEL, H., HOFMANN, D. J., ROSENLOF, K. H. und KLEY, D., 2000: The increase in stratospheric water vapor from balloonborne frostpoint hygrometer measurements at Washington, D.C., and Boulder, Colorado, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 3453–3456.
- PAWSON, S., LABITZKE, K. und LEDER, S., 1998: Stepwise changes in stratospheric temperature, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 2157–2160.
- PAWSON, S., NAUJOKAT, B. und LABITZKE, K., 1995: On the polar stratospheric cloud formation potential of the northern stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **100**, 23215–23225.

- PLUMB, R. A., 2002: Stratospheric transport, *J. Meteor. Soc. Japan*, **80**, 793–809.
- POTTER, B. E. und HOLTON, J. R., 1995: The role of monsoon convection in the dehydration of the lower tropical stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, **52**, 1034–1050.
- POULIDA, O., DICKERSON, R. R. und HEYMSFIELD, A., 1996: Stratosphere-troposphere exchange in a midlatitude mesoscale convective complex, *J. Geophys. Res.*, **101**, 6823–6836.
- PRESS, W. H., TEUKOLSKY, S. A., VETTERLING, W. T. und FLANNERY, B. P., 2001: *Numerical Recipes in Fortran 77: The Art of Scientific Computing*, 2. Aufl., Cambridge University Press, New York, USA.
- RANDEL, W. J. und WU, F., 1999: Cooling of Arctic and Antarctic polar stratospheres due to ozone depletion, *J. Climate*, **12**, 1467–1479.
- RANDEL, W. J., WU, F., OLTMANS, S. J., ROSENLOF, K. und NEDOLUHA, G. E., 2004: Interannual changes of stratospheric water vapor and correlations with tropical tropopause temperature, *J. Atmos. Sci.*, **61**, 2133–2148.
- RANDEL, W. J., WU, F., RUSSELL III, J. M., ROCHE, A. und WATERS, J. W., 1998: Seasonal cycles and QBO variations in stratospheric CH₄ and H₂O observed in UARS HALOE data, *J. Atmos. Sci.*, **55**, 163–185.
- RANDEL, W. J., WU, F., RUSSELL III, J. M., WATERS, J. W. und FROIDEVAUX, L., 1995: Ozone and temperature changes in the stratosphere following the eruption of Mount Pinatubo, *J. Geophys. Res.*, **100**, 16753–16764.
- RASCH, P. J. und LAWRENCE, M., 1998: Recent development in transport methods at NCAR, Report No. 265, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- RAY, E. A., MOORE, F. L., ELKINS, J. W., DUTTON, G. S., FAHEY, D. W., VÖMEL, H., OLTMANS, S. J. und ROSENLOF, K. H., 1999: Transport into the northern hemisphere lowermost stratosphere revealed by in situ tracer measurements, *J. Geophys. Res.*, **104**, 26565–26580.
- RAY, E. A., ROSENLOF, K. H., RICHARD, E. C., HUDSON, P. K., CZICZO, D. J., LOEWENSTEIN, M., JOST, H.-J., LOPEZ, J., RIDLEY, B., WEINHEIMER, A., MONTZKA, D., KNAPP, D., WOFSY, S. C., DAUBE, B. C., GERBIG, C., XUEREF, I. und HERMAN, R. L., 2004: Evidence of the effect of summertime midlatitude convection on the subtropical lower stratosphere from CRYSTAL-FACE tracer measurements, *J. Geophys. Res.*, **109** D18304, doi:10.1029/2004JD004655.
- RAYNER, N. A., PARKER, D. E., HORTON, E. B., FOLLAND, C. K., ALEXANDER, L. V., ROWELL, D. P., KENT, E. C. und KAPLAN, A., 2003: Global analyses of sea surface temperatures, sea ice, and night marine air temperature since the late nineteenth century, *J. Geophys. Res.*, **108**, 4407, doi:10.1029/2002JD002670.
- READ, W. G., WU, D. L., WATERS, J. W. und PUMPHREY, H. C., 2004: Dehydration in the tropical tropopause layer: Implications from the UARS Microwave Limb Sounder, *J. Geophys. Res.*, **106**, D06110, doi:10.1029/2003JD004056.
- REITHMEIER, C., 2001: *Untersuchungen zum globalen Spurenstofftransport und Stratosphären-Troposphären-Austausch mit dem Lagrangeschen Modell*

- ECHAM4/ATTILA*, Dissertation, Fakultät für Physik, Ludwig–Maximilians–Universität München, DRL Forschungsbericht 2001-09, ISSN 1434-8454, Köln.
- REITHMEIER, C. und SAUSEN, R., 2002: ATTILA: Atmospheric Tracer Transport in a Lagrangian Model, *Tellus (B)*, **54**, 278–299.
- ROBINSON, G. D., 1980: The transport of minor atmospheric constituents between troposphere and stratosphere, *Q. J. R. Met. Soc.*, **106**, 227–253.
- ROCKEL, B., RASCHKE, E. und WEYRES, B., 1991: A parameterization of broad band radiative transfer properties of water, ice and mixed clouds, *Beitr. Phys. Atmos.*, **64**, 1–12.
- ROECKNER, E., ARPE, K., BENGTTSSON, L., BRINKOP, S., DÜMENIL, L., ESCH, M., KIRK, E., LUNKEIT, F., PONATER, M., ROCKEL, B., SAUSEN, R., SCHLESE, U., SCHUBERT, S. und WINDELBAND, M., 1992: Simulation of the present-day climate with the ECHAM model: Impact of model physics and resolution, Report No. 93, Max–Planck–Institut für Meteorologie, Hamburg.
- ROECKNER, E., ARPE, K., BENGTTSSON, L., CHRISTOPH, M., CLAUSSEN, M., DÜMENIL, L., ESCH, M., GIORGETTA, M., SCHLESE, U. und SCHULZWEIDA, U., 1996: The atmospheric general circulation model ECHAM–4: Model description and simulation of present–day climate, Report No. 218, Max–Planck–Institut für Meteorologie, Hamburg.
- ROECKNER, E., BROKOPF, R., ESCH, M., GIORGETTA, M., HAGEMANN, S., KORNBLUEH, L., MANZINI, E., SCHLESE, U. und SCHULZWEIDA, U., 2004: Sensitivity of simulated climate to horizontal and vertical resolution, Report No. 354, Max–Planck–Institut für Meteorologie, Hamburg.
- ROSENLOF, K. H., 1995: Seasonal cycle of the residual mean meridional circulation in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, **100**, 5173–5191.
- ROSENLOF, K. H., 2002: Transport changes inferred from HALOE water and methane measurements, *J. Met. Soc. Jap.*, **80**, 831–848.
- ROSENLOF, K. H. und HOLTON, J. R., 1993: Estimates of the stratospheric residual circulation using the downward control principle, *J. Geophys. Res.*, **98**, 10465–10479.
- ROSENLOF, K. H., OLTMANS, S. J., KLEY, D., RUSSELL III, J. M., CHIOU, E.-W., CHU, W. P., JOHNSON, D. G., KELLY, K. K., MICHELSEN, H. A., NEDOLUHA, G. E., REMSBERG, E. E., TOON, G. C. und MCCORMICK, M. P., 2001: Stratospheric water vapor increases over the past half-century, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 1195–1198.
- RUSSELL III, J. M., GILLE, J. C., REMSBERG, E. E., GORDLEY, L. L., BAILEY, P. L., FISHER, H., GIRARD, A., DRAYSON, S. R., EVANS, W. F. J. und HARRIS, J. E., 1984: Validation of water-vapor results measured by the Limb Infrared Monitor of the Stratosphere experiment on Nimbus-7, *J. Geophys. Res.*, **89**, 5115–5124.
- RUSSELL III, J. M., GORDLEY, L. L., PARK, J. H., DRAYSON, S. R., TUCK, A. F., HARRIES, J. E., CICERONE, R. J., CRUTZEN, P. J. und FREDERICK, J. E., 1993: The Halogen Occultation Experiment, *J. Geophys. Res.*, **98**, 10777–10797.
- SACHS, L., 1969: *Statistische Auswertungsmethoden*, 2. Aufl., Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg.

- SALBY, M. L., 1996: *Fundamentals of Atmospheric Physics*, Academic Press, San Diego, USA.
- SANTER, B. D., HNILO, J. J., WIGLEY, T. G., BOYLE, J. S., DOUTRIAUX, C., FIORINO, M., PARKER, D. E. und TAYLOR, K. E., 1999: Uncertainties in observationally based estimates of temperature change in the free atmosphere, *J. Geophys. Res.*, **104**, 6305–6333.
- SANTER, B. D., WIGLEY, T. M. L., MEARS, C., WENTZ, F. J., KLEIN, S. A., SEIDEL, D. J., TAYLOR, K. E., THORNE, P. W., WEHNER, M. F., GLECKLER, P. J., BOYLE, J. S., COLLINS, W. D., DIXON, K. W., DOUTRIAUX, C., FREE, M., FU, Q., HANSEN, J. E., JONES, G. S., RUEDY, R., KARL, T. R., LANZANTE, J. R., MEEHL, G. A., RAMASWAMY, V., RUSSELL, G. und SCHMIDT, G. A., 2005: Amplification of surface temperature trends and variability in the tropical atmosphere, *Science*, **309**, 1551–1556.
- SANTER, B. D., WIGLEY, T. M. L., MEEHL, G. A., WEHNER, M. F., MEARS, C., SCHABEL, M., WENTZ, F. J., AMMANN, C., ARBLASTER, J., BETTGE, T., WASHINGTON, W. M., TAYLOR, K. E., BOYLE, J. S., BRÜGGEMANN, W. und DOUTRIAUX, C., 2003: Influence of satellite data uncertainties on the detection of externally forced climate change, *Science*, **300**, 1280–1284.
- SCHMITT, A. und BRUNNER, D., 1997: Emissions from aviation and their development over time, in U. SCHUMANN, A. CHLOUD, A. EBEL, B. KÄRCHER, H. PAK, H. SCHLAGER, A. SCHMITT und P. WENDLING (Hrsg.), *Pollutants from air traffic - results of atmospheric research 1992-1997*, Vol. 97-04 von *DLR-Mitt.*, DLR Köln, pp. 37–52.
- SCHNADT, C., 2001: *Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der stratosphärischen Ozon-schicht mit einem interaktiv gekoppelten Klima-Chemie-Modell*, Dissertation, Fakultät für Physik, Ludwig–Maximilians–Universität München, DRL Forschungsbericht 2001-19, ISSN 1434-8454, Köln.
- SCHNADT, C., DAMERIS, M., PONATER, M., HEIN, R., GREWE, V. und STEIL, B., 2002: Interaction of atmospheric chemistry and climate and its impact on stratospheric ozone, *Clim. Dyn.*, **17**, 501–517.
- SCHÖNWIESE, C.-D., 1995: *Klimaänderung. Daten, Analysen, Prognosen.*, Springer, Berlin, Heidelberg.
- SEIDEL, D. J., ROSS, R. J., ANGELL, J. K. und REID, G. C., 2001: Climatological characteristics of the tropical tropopause as revealed by radiosondes, *J. Geophys. Res.*, **106**, 7857–7878.
- SEINFELD, J. H. und PANDIS, S. N., 1998: *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*, John Wiley & Sons, Inc., New York, USA.
- SHERWOOD, S. C., 2000: A stratospheric drain over the maritime continent, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 677–680.
- SHERWOOD, S. C. und DESSLER, A. E., 2000: On the control of stratospheric humidity, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 2513–2516.
- SHERWOOD, S. C. und DESSLER, A. E., 2001: A model for transport across the tropical tropopause, *J. Atmos. Sci.*, **58**, 765–779.

- SHERWOOD, S. C. und DESSLER, A. E., 2003: Convective mixing near the tropical tropopause: Insights from seasonal variations, *J. Atmos. Sci.*, **60**, 2674–2685.
- SHINDELL, D. T., RIND, D. und LONERGAN, P., 1998: Increased polar stratospheric ozone losses and delayed eventual recovery owing to increasing greenhouse-gas concentrations, *Nature*, **392**, 589–592.
- SIMMONS, A. J., UNTCH, A., JAKOB, C., KALLBERG, P. und UNDEN, P., 1999: Stratospheric water vapor and tropical tropopause temperatures in ECMWF analyses and multi-year simulations, *Q. J. R. Met. Soc.*, **125**, 353–386.
- SLINGO, A. und SLINGO, J. M., 1988: The response of a general circulation model to cloud longwave radiative forcing. I: Introduction and initial experiments, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **114**, 1027–1062.
- SMITH, C. A., TOUMI, R. und HAIGH, J. D., 2000: Seasonal trends in stratospheric water vapour, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 1687–1690.
- SMITH, R. N. B., 1990: A scheme for predicting layer clouds and their water content in a general circulation model, *Q. J. R. Met. Soc.*, **116**, 435–460.
- SOLOMON, S., 1999: Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Reviews of Geophysics*, **37**, 275–316.
- SPIVAKOVSKY, C. M., LOGAN, J. A., MONTZKA, S. A., BALKANSKI, Y. J., FOREMAN-FOWLER, M., JONES, D. B. A., HOROWITZ, L. W., FUSCO, A. C., BRENNINKMEIJER, C. A. M., PRATHER, M. J., WOFSY, S. C. und MCELROY, M. B., 2000: Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: Update and evaluation, *J. Geophys. Res.*, **105**, 8931–8980.
- STEIL, B., 1999: *Modellierung der Chemie der globalen Strato- und Troposphäre mit einem dreidimensionalen Zirkulationsmodell*, Dissertation, Institut für Meteorologie, Universität Hamburg.
- STEIL, B., BRÜHL, C., MANZINI, E., CRUTZEN, P. J., LELIEVELD, J., RASCH, P. J., ROECKNER, E. und KRÜGER, K., 2003: A new interactive chemistry-climate model: 1. Present-day climatology and interannual variability of the middle atmosphere using the model and 9 years of HALOE/UARS data, *J. Geophys. Res.*, **108**, 4290, doi:10.1029/2002JD002971.
- STEIL, B., DAMERIS, M., BRÜHL, C., CRUTZEN, P. J., GREWE, V., PONATER, M. und SAUSEN, R., 1998: Development of a chemistry module for GCMs: First results of a multiannual integration, *Ann. Geophysicae*, **16**, 205–228.
- STENCHIKOV, G. L., KIRCHNER, I., ROBOCK, A., GRAF, H.-F., ANTUÑA, J. C., GRAINGER, R. G., LAMBERT, A. und THOMASON, L., 1998: Radiative forcing from the 1991 Mount Pinatubo volcanic eruption, *J. Geophys. Res.*, **103**, 13837–13857.
- STENKE, A. und GREWE, V., 2003: Impact of ozone mini-holes on the heterogeneous destruction of stratospheric ozone, *Chemosphere*, **50**, 177–190.
- STENKE, A. und GREWE, V., 2005: Simulation of stratospheric water vapor trends: Impact on stratospheric ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 1257–1272.

- STUBER, N., 2001: *Ursachen der Variabilität des Klimasensitivitätsparameters für räumlich inhomogene Ozonstörungen*, Dissertation, Fachbereich Geowissenschaften, Universität Hamburg, DRL Forschungsbericht 2003-03, ISSN 1434-8454, Köln.
- SUNDQVIST, H., 1978: A parameterization scheme for non-convective condensation including prediction of cloud water content, *Q. J. R. Met. Soc.*, **104**, 677–690.
- SUNDQVIST, H., BERGE, E. und KRISTJANSSON, J. E., 1989: Condensation and cloud parameterization studies with a mesoscale numerical weather prediction model, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1641–1657.
- TIEDTKE, M., 1989: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1779–1800.
- WEI, M.-Y., 1987: A new formulation of the exchange of mass and trace constituents between the stratosphere and troposphere, *J. Atmos. Sci.*, **44**, 3079–3086.
- WILCOX, R. W. und BELMONT, A. D., 1977: *Ozone concentration by latitude, altitude and month, near 80°W*, Control Data Corporation, Contract No. DOT-FA77WA-3999.
- WILLIAMS, K. D., SENIOR, C. A. und MITCHELL, J. F. B., 2001: Transient climate change in the Hadley Centre models: The role of physical processes, *J. Climate*, **14**, 2659–2674.
- WILLIAMSON, D. L. und RASCH, P. J., 1994: Water vapor transport in the NCAR CCM2, *Tellus (A)*, **46**, 34–51.
- WINKLER, D. M. und TREPTE, C. R., 1998: Laminar cirrus observed near the tropical tropopause by LITE, *Geophys. Res. Lett.*, **25**, 3351–3354.
- WMO, 1986: Atmospheric ozone 1985: Global ozone research and monitoring report, *Report No. 16*, World Meteorological Organization, Genf, Schweiz.
- WMO, 1992: Scientific assessment of ozone depletion: 1991, *Report No. 25*, World Meteorological Organization, Genf, Schweiz.
- WMO, 1999: Scientific assessment of ozone depletion: 1998, Global Ozone Research and Monitoring Project, *Report No. 44*, World Meteorological Organization, Genf, Schweiz.
- WMO, 2003: Scientific assessment of ozone depletion: 2002, *Report No. 47*, World Meteorological Organization, Genf, Schweiz.
- XU, K. M. und KRÜGER, S. K., 1991: Evaluation of cloudiness parameterizations using a cumulus ensemble model, *Mon. Wea. Rev.*, **119**, 342–367.
- YIENGER, J. J. und LEVY, H., 1995: Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**, 11447–11464.
- ZELLNER, R., 1999: *Global Aspects of Atmospheric Chemistry*, Vol. 6 von *Topics in physical chemistry*, Steinkopff ISBN 3-7985-1127-6.
- ZHOU, X., GELLER, M. A. und ZHANG, M., 2001a: Cooling trend of the tropical cold point tropopause temperatures and its implications, *J. Geophys. Res.*, **106**, 1511–1522.
- ZHOU, X., GELLER, M. A. und ZHANG, M., 2001b: Tropical cold point tropopause characteristics derived from ECMWF reanalyses and soundings, *J. Clim.*, **14**, 1823–1837.

Danksagung

Zum Gelingen dieser Arbeit haben eine Reihe von Personen beigetragen, bei denen ich mich an dieser Stelle bedanken möchte:

Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Prof. Dr. Robert Sausen für die Förderung und Begutachtung dieser Arbeit. Ein herzliches Dankeschön geht auch an Prof. Dr. Susanne Crewell für ihre Bereitschaft, diese Dissertation zu begutachten, und ihr damit bekundetes Interesse an meiner Arbeit. Herrn Prof. Dr. Ulrich Schumann danke ich für die Gelegenheit, dieses interessante Thema am Institut für Physik der Atmosphäre zu bearbeiten.

Ein ganz besonders großer Dank gebührt Dr. Volker Grewe für die Betreuung der Arbeit. Seine wertvollen Anregungen und kritischen Nachfragen haben einen wesentlichen Beitrag zur Entstehung dieser Arbeit geleistet. Weiterhin möchte ich mich für sein Vertrauen bedanken, mich „manchmal einfach mal machen zu lassen“.

Dr. Martin Dameris und Dr. Michael Ponater standen mir während meiner gesamten Promotionszeit mit Rat und Tat zur Seite. Ihr großes Interesse an meiner Arbeit und ihre ständige Bereitschaft zur Beantwortung der vielen Fragen waren mir eine unschätzbare Hilfe. Vielen Dank dafür!

Dr. Holger Vömel, NOAA/CMDL, sei für die Bereitstellung der Wasserdampfmessungen über Boulder (USA) gedankt.

Allen (auch ehemaligen) Kolleginnen und Kollegen der Abteilung 1 danke ich für die große Hilfsbereitschaft und für die äußerst angenehme Arbeitsatmosphäre. Hier sind insbesondere Dr. Axel Lauer, Christian Kurz, Dr. Sigrun Matthes, Dr. Klaus Gierens, Dr. Nicola Stuber und Dr. Peter Spichtinger hervorheben, von denen jeder auf seine Weise zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat.

„Last, but not least“ möchte ich mich recht herzlich bei meiner Familie bedanken. Meinem Lebensgefährten Robert Schwencker danke ich ganz besonders für seine tatkräftige Unterstützung und die viele, viele Geduld, die er mit mir hatte. Ein großes Dankeschön geht auch an meine Eltern, die mich während meiner gesamten Studienzeit unterstützt und stets zu dieser Arbeit ermutigt haben.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name Andrea Stenke
geboren am 3. August 1976
in München
Familienstand ledig

Schulbildung

1982 – 1986 Grundschule an der Schrobenhausener Straße, München
1986 – 1995 Erasmus-Grasser-Gymnasium, München
Juni 1995 Abitur

Studium

1995 – 2001 Studium der Meteorologie an der
Ludwig-Maximilians-Universität München
Oktober 2001 Diplom in Meteorologie, Thema der Diplomarbeit:
*Eine Modellstudie über Ozon-Minilöcher: Zeitliche und geographische
Variabilität und Einfluss auf die stratosphärische Ozonchemie*
seit April 2004 Promotionsstudium der Meteorologie an der
Ludwig-Maximilians-Universität München
seit Februar 2002 Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Institut für Physik der Atmosphäre,
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V., Oberpfaffenhofen

Veröffentlichungen im Rahmen dieser Dissertation

Beiträge in Fachzeitschriften

- STENKE, A. und GREWE, V., 2005: Lagrangian transport of water vapour and cloud water in the ECHAM4 GCM and its impact on the cold bias, *submitted to Climate Dynamics*.
- DAMERIS, M., GREWE, V., PONATER, M., DECKERT, R., EYRING, V., MAGER, F., MATHES, S., SCHNADT, C., STENKE, A., STEIL, B., BRÜHL, C. und GIORGETTA, M., 2005: Long-term changes and variability in a transient simulation with a chemistry-climate model employing realistic forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2121–2145.
- STENKE, A. und GREWE, V., 2005: Simulation of stratospheric water vapor trends: Impact on stratospheric ozone chemistry, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 1257–1272.

Konferenzbeiträge

- STENKE, A., GREWE, V., PONATER, M. und SCHUMANN, U., 2004: Simulated trends of water vapor in the upper troposphere and lower stratosphere in the period 1960-2000, *Workshop on Trends in Global Water Cycle Variables to Support IPCC Assessments, UNESCO, Paris, F, November 2004*.
- PONATER, M., STENKE, A., STUBER, N., BRÜHL, C., DAMERIS, M., GREWE, V., GROOSS, J.-U. und SAUSEN, R., 2004: Water vapor in the tropopause region as a forcing and feedback component in climate model simulations, *SPARC, 3rd General Assembly, Victoria, CDN, 1-6 August 2004*.
- STENKE, A., GREWE, V., BRÜHL, C., DAMERIS, M., EYRING, V., GIORGETTA, M., PONATER, M. und STEIL, B., 2004: The role of volcanic eruptions on water vapor and ozone through climate-chemistry interactions, *Quadrennial Ozone Symposium, Kos, GR, 1-8 June 2004*.
- STENKE, A. und GREWE, V., 2004: Simulated trends in stratospheric water vapor and their impact on stratospheric chemistry, *EGU, 1st General Assembly, Nice, F, 25-30 April 2004*.