

Inversion globaler Ozonvertikalverteilungen
aus Messungen
des Satelliteninstrumentes GOME

Dissertation
zur Erlangung des Grades Dr. rer. nat.
am Fachbereich Physik der Universität Bremen

vorgelegt von

Dipl. Phys. Ricarda Hoogen

Institut für Umweltphysik
Universität Bremen

Tag des öffentlichen Kolloquiums

8. Dezember 1998

Gutachter der Dissertation

Prof. Dr. J. P. Burrows
Prof. Dr. K. F. Künzi

weitere Prüfer

Prof. Dr. J. Bleck-Neuhaus
Prof. Dr. C. C. Noack

Inhaltsverzeichnis

Motivation und Ziele der Arbeit	1
I Grundlagen	5
Überblick	7
1 Atmosphärisches Ozon	9
1.1 Die Bedeutung des Ozons in der Atmosphäre	9
1.2 Grundlagen der Ozonchemie	10
1.2.1 Stratosphärisches Ozon	10
1.2.2 Troposphärisches Ozon	15
1.3 Dynamische Prozesse	16
1.4 Trends in der Ozonverteilung	17
2 Satellitenfernerkundung von Ozonvertikalverteilungen	19
2.1 Absorptionsstrukturen von Ozon	19
2.2 Ausgewählte Satelliteninstrumente	19
2.2.1 <i>MLS</i>	20
2.2.2 <i>HALOE</i>	20
2.2.3 <i>SAGE II</i>	21
2.2.4 <i>BUV/SBUV</i>	21
3 Das Projekt <i>GOME</i>	27
3.1 Der Satellit <i>ERS-2</i>	27
3.2 Das Instrument <i>GOME</i>	27
3.2.1 Der Scan-Spiegel und das Teleskop	28
3.2.2 Das Spektrometer	28
3.2.3 Die <i>PMDs</i>	30
3.2.4 Die Kalibrationseinheit	30
3.3 Die wissenschaftlichen Ziele von <i>GOME</i>	31

4	Strahlungstransport in der Atmosphäre	35
4.1	Aufgabenstellung	35
4.1.1	Die vektorielle Strahlungstransportgleichung	35
4.1.2	Die skalare Strahlungstransportgleichung	37
4.2	Das Strahlungstransportmodell <i>GOMETRAN</i>	39
4.2.1	Entwicklung und Anwendungsgebiete	39
4.2.2	Mathematische Grundlagen	39
4.2.3	Die Berechnung der Gewichtsfunktionen	45
4.2.4	Die Beschreibung der Atmosphäre und der Erdoberfläche	48
5	Inversionstheorie	53
5.1	Aufgabenstellung	53
5.2	Linearisierung des Inversionsproblems	54
5.3	Inversionsverfahren für lineare Probleme	55
5.3.1	Die direkte Inversion	55
5.3.2	Die Lösung im Sinne der kleinsten Quadrate	55
5.3.3	Die Lösung mit Zusatzbedingungen	56
5.3.4	Die Optimal-Estimation-Methode	57
5.3.5	Die Kozlov-Informationsmatrix-Methode	58
5.4	Fehleranalyse und Charakterisierung	62
5.5	Behandlung nichtlinearer Probleme	65
5.5.1	Lösung mittels Newton Iteration	65
5.5.2	Charakterisierung	66
II	Der Inversionsalgorithmus FURM	67
	Überblick	69
6	Programmbeschreibung	71
6.1	Beschreibung der Auswerteparameter	71
6.1.1	Das Ozonprofil	71
6.1.2	Die skalaren Auswerteparameter	74
6.2	Auswahl des Spektralbereichs	75
6.3	Programmablauf	77
6.3.1	Vorbereitung der Meßgrößen \mathbf{y} und \mathbf{S}_y	77
6.3.2	Bereitstellung der A-priori-Information \mathbf{x}_a und \mathbf{S}_a	79
6.3.3	Berechnung der synthetischen Spektren \mathbf{y}_i und der Gewichtsfunktionen \mathbf{K}_i	80
6.3.4	Berücksichtigung des Ring-Effekts	81
6.3.5	Shift-und-Squeeze Korrektur	82
6.3.6	Berechnung einer Schätzung für den Parametervektor \mathbf{x}	82
6.3.7	Konvergenz- und Qualitätstest	83

6.4	Vertikalauflösung der <i>GOME</i> -Ozonprofile	83
6.5	Fehlerabschätzung für die <i>GOME</i> -Ozonprofile	87
7	Die radiometrische Kalibration	97
7.1	Problemstellung	97
7.2	Kalibration der Sonnenirradianz	98
7.3	Kalibration der Erdradianz	98
7.4	Fehlerquellen der radiometrischen Kalibration	100
7.5	Korrekturen der radiometrischen Kalibration	101
7.5.1	Anpassung der Sonnenmessungen an <i>SSBUV-8</i>	101
7.5.2	Korrektur der Degradation von <i>PMD1</i>	103
7.5.3	Korrektur der η -Funktion	103
7.5.4	Auswerteparameter zur Kalibrationskorrektur	108
7.6	Zusammenfassung	111
8	Profilauswertung mit Wolken	113
8.1	Einfluß von Wolken auf die <i>GOME</i> -Messungen	113
8.2	Beschreibung bewölkter Szenarien in <i>FURM</i>	114
8.3	Bestimmung der Wolkenparameter	116
8.3.1	Die <i>PMD</i> -Messungen	116
8.3.2	Die <i>ISCCP</i> -Klimatologie	116
8.4	Sensitivitätsuntersuchungen	118
8.4.1	Sensitivität bezüglich des Wolkentyps	118
8.4.2	Sensitivität bezüglich der optischen Dicke der Wolke	119
8.4.3	Sensitivität bezüglich der Wolkenhöhe	120
8.5	Auswertung realer <i>GOME</i> -Messungen	122
8.6	Die Scan-Simulation	125
8.7	Zusammenfassung	126
III	Validation der <i>GOME</i>-Ozonprofile	131
	Überblick	133
9	Vergleich mit Ozonsondenmessungen	135
9.1	Meßprinzip der Ozonsonden	135
9.2	Auswahl der Sondenmessungen	136
9.3	Vergleich des <i>FURM</i> - und <i>DOAS</i> -Gesamtozons	137
9.4	Einzelprofilvergleiche	142
9.4.1	Hohenpeißenberg	142
9.4.2	Ny-Ålesund	145
9.5	Vergleich der Teilsäulengehalte	150
9.6	Vergleich mit geglätteten Sondenprofilen	159
9.7	Diskussion ausgewählter Monatsmittelwerte	165

9.8 Zusammenfassung	171
10 Vergleich mit <i>SAGE-II</i>-Ozonprofilen	173
Zusammenfassung und Ausblick	181
IV Anhang	185
A Quellennachweis	187
B Daten der Sondenmessungen	189
C Einzelprofilvergleich für Ny-Ålesund	193
D Vergleich mit <i>SAGE II</i>	201
Abkürzungsverzeichnis	217
Abbildungsverzeichnis	219
Tabellenverzeichnis	223
Literaturverzeichnis	225

Motivation und Ziele der Arbeit

Brächte man die gesamte Erdatmosphäre auf Normalbedingungen (0°C, 1013 hPa), so ergäbe sich eine Schicht von ungefähr 8 km Dicke. Davon entfallen nur etwa 3.5 mm auf das Spurengas Ozon. Trotz seines geringen Anteils an der Gesamtatmosphäre hat Ozon für das Leben auf der Erde eine besondere Bedeutung, denn es absorbiert die solare UV-Strahlung zwischen 240 und 290 nm nahezu vollständig. Strahlung in diesem Spektralbereich ist energiereich genug, um Proteine und Nukleinsäuren - die Bausteine des Lebens - zu zerstören. Die uns bekannte Vielfalt irdischer Lebensformen konnten sich daher erst entwickeln, nachdem sich genügend Ozon in der Erdatmosphäre angereichert hatte.

Die Ozonkonzentration weist ein ausgeprägtes Maximum zwischen etwa 15 und 30 km Höhe auf. *Chapman* stellte 1930 die erste photochemische Theorie auf, die die Existenz dieser stratosphärischen Ozonschicht qualitativ erklärte. In den sechziger Jahren wurden allerdings im Zuge verbesserter Labor- und Feldmessungen deutliche Unterschiede zwischen den gemessenen und den in Modellrechnungen vorhergesagten atmosphärischen Ozonkonzentrationen offenbar. Diese Diskrepanzen konnten durch die Erweiterung der Theorie um verschiedene katalytische Ozonabbauzyklen behoben werden. Daß auch diese erweiterte Theorie noch unvollständig war, zeigte sich, als zu Beginn der achtziger Jahre das antarktische Ozonloch entdeckt wurde. Dieses Phänomen war mit den damaligen Vorstellungen über die Ozonchemie nicht in Einklang zu bringen. Die offensichtliche Bedrohung der Ozonschicht führte in den folgenden Jahren zu intensiven Forschungsaktivitäten. Mit Hilfe von Labor- und Feldmessungen sowie Verbesserungen der chemischen Modelle konnten innerhalb weniger Jahre die Prozesse, die zur Entstehung des Ozonlochs führen, weitgehend aufgeklärt werden. Insbesondere wurden die seit den dreißiger Jahren stetig zunehmenden anthropogenen Emissionen von Fluorchlorkohlenwasserstoffen (*FCKW*) und Halonen als Hauptursache des drastischen Ozonabbaus identifiziert. Im Abkommen von Montreal (1987) und in den Nachfolgevereinbarungen wurde daher auf internationaler Ebene ein Zeitplan für die schrittweise Rückführung der Produktion der meisten schädlichen *FCKW* und Halone festgelegt. Selbst bei Einhaltung dieses Zeitplans wird jedoch frühestens in der Mitte des nächsten Jahrhunderts mit einer Erholung der Ozonschicht gerechnet.

Neben den dramatischen Ozonverlusten in der Antarktis wird seit Beginn der achtziger Jahre auch außerhalb der Antarktis eine Abnahme des stratosphärischen

Ozongehalts beobachtet. Im Gegensatz dazu haben die Ozonkonzentrationen in den untersten Kilometern der Atmosphäre in den Industrieländern in den vergangenen Jahrzehnten zugenommen. Hauptursache hierfür ist die vermehrte Emission von Ozonvorläufersubstanzen infolge des zunehmenden Straßenverkehrs. Insbesondere während sogenannter Sommersmogereignisse können die bodennahen Ozonkonzentrationen so stark erhöht sein, daß die starke oxidative Wirkung des Ozons die Gesundheit des Menschen beeinträchtigen kann.

In den vergangenen fünfzehn Jahren wurden bedeutende Fortschritte bei der Aufklärung der dynamischen und chemischen Prozesse, die die atmosphärische Ozonverteilung bestimmen, erzielt. Dennoch werden die Erforschung und Überwachung der globalen Ozonverteilung noch auf lange Sicht eine große Bedeutung haben. Dafür werden insbesondere globale Messungen der Ozonvertikalverteilung mit hinreichender räumlicher und zeitlicher Auflösung benötigt. Derartige Messungen können nur vom Satelliten aus mit vertretbarem Aufwand durchgeführt werden. Einen wichtigen Beitrag hierzu leistet das im April 1995 auf dem europäischen Forschungssatelliten *ERS-2* gestartete *Global Ozone Monitoring Experiment (GOME)*. Hierbei handelt es sich um den Prototyp einer neuen Generation von Satelliteninstrumenten, die dank der Verwendung von Dioden-Array-Detektoren Messungen mit relativ hoher spektraler Auflösung ermöglichen. *GOME* liefert Erd- und Sonnenspektren im ultravioletten, sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich mit einer spektralen Auflösung von 0.1-0.3 nm.

Vorrangiges Ziel der *GOME*-Mission ist die Bestimmung von Ozonvertikal säulengehalten mit globaler Überdeckung. Aus den *GOME*-Messungen können jedoch auch Ozonprofile abgeleitet werden. Die Möglichkeit, aus Satellitenmessungen der rückgestreuten ultravioletten Strahlung auf die Ozonvertikalverteilung zu schließen, wurde bereits in den fünfziger Jahren erkannt. In den folgenden Jahrzehnten wurde dieses Verfahren im Rahmen verschiedener Missionen erfolgreich angewendet. Zu den bekanntesten zählen die *BUV*-Geräte (*Backscattered Ultra-Violet*) der *NASA*, die seit Beginn der siebziger Jahre auf verschiedenen Satelliten eingesetzt werden. Diese Instrumente messen die rückgestreute Strahlung bei 12 Wellenlängen im ultravioletten Spektralbereich mit einer Bandbreite von etwa 1.1 nm. Die *GOME*-Messungen haben eine wesentlich höhere spektrale Auflösung und decken auch die im sichtbaren Spektralbereich gelegenen Chappuis-Banden von Ozon ab. Daher weisen die *GOME*-Messungen einen im Vergleich zu den *BUV*-Messungen potentiell höheren Informationsgehalt auf.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Entwicklung und Validation eines Verfahrens für die Auswertung von Ozonprofilen aus *GOME*-Messungen. Dabei soll erstmals die sogenannte *Kozlov-Informationsmatrix-Methode* als Inversionsverfahren für die Auswertung von Satellitenmessungen angepaßt und getestet werden. Als weitere Neuerung gegenüber bereits existierenden *BUV*-Auswerteverfahren sollen neben dem Ozonprofil weitere atmosphärische Parameter ausgewertet werden. Deshalb wird der neu entwickelte Auswertalgorithmus als *FUll Retrieval Method (FURM)* bezeichnet. Anhand eines systematischen Vergleichs

der *GOME*-Ozonprofile mit unabhängigen Messungen soll eine Aussage über die Qualität der *GOME*-Ozonprofile getroffen werden. Mögliche Ursachen systematischer Abweichungen von den Vergleichsmessungen sollen identifiziert und soweit möglich korrigiert werden.

Gliederung der Arbeit

Die Arbeit gliedert sich in drei Teile und einen Anhang. Dieser enthält im wesentlichen Tabellen und Abbildungen, die den Hauptteil der Arbeit ergänzen.

Teil I führt in die Grundlagen der Arbeit ein. Kapitel 1 enthält einen kurzen Abriss der Ozonchemie. Kapitel 2 gibt einen Überblick über einige der wichtigsten Satelliteninstrumente zur Fernerkundung von Ozonvertikalverteilungen. Das Instrument *GOME* wird in Kapitel 3 vorgestellt. In Kapitel 4 werden die Strahlungstransportgleichung im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich diskutiert und ihre Lösung im Rahmen des Strahlungstransportmodells *GOMETRAN* skizziert. Kapitel 5 führt in die Inversionstheorie ein und erläutert die im *FURM*-Algorithmus verwendete Kozlov-Informationsmatrix-Methode.

Teil II enthält eine detaillierte Beschreibung des Auswertalgorithmus *FURM* (Kapitel 6). Ein wichtiger Aspekt ist dabei die Abschätzung der Vertikalauflösung und der Genauigkeit der *GOME*-Ozonprofile. In Kapitel 7 werden einige Korrekturen der radiometrischen Kalibration der *GOME*-Spektren diskutiert, die die Qualität der ausgewerteten Ozonprofile deutlich verbessern. In Kapitel 8 werden zwei Ansätze zur Auswertung bewölkter Szenarien vorgestellt, die anhand von Sensitivitätsuntersuchungen mit simulierten Spektren und anhand von Auswertungen echter Messungen getestet werden.

Teil III enthält die Ergebnisse der ersten Validation der *GOME*-Ozonprofile. Den Schwerpunkt von Kapitel 9 bildet der Vergleich von *GOME*-Ozonprofilen mit etwa 200 Ozonsondenmessungen mehrerer europäischer Stationen. Dabei wird insbesondere untersucht, wie groß der Informationsgewinn aus den *GOME*-Messungen in verschiedenen Höhenschichten ausfällt. Um eine quasi-globale Validation zu erreichen, wird außerdem ein Vergleich mit Messungen des Satelliteninstruments *SAGE II* durchgeführt, der in Kapitel 10 diskutiert wird.

Abschließend folgt eine Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse und ein Ausblick auf zukünftige Weiterentwicklungen und Einsatzmöglichkeiten des Auswertalgorithmus *FURM*.

Teil I

Grundlagen

Überblick zu Teil I

Dieser Teil führt in die Grundlagen der vorliegenden Arbeit ein:

- **Kapitel 1** erläutert zunächst die Bedeutung des Ozons in der Atmosphäre. Es folgt ein kurzer Abriß der chemischen und dynamischen Prozesse, die die Verteilung des atmosphärischen Ozons bestimmen. Abschließend werden die wichtigsten Trends der globalen Ozonverteilung diskutiert.
- Um diese Arbeit in einen größeren Zusammenhang einzuordnen, wird in **Kapitel 2** ein Überblick über einige der bekanntesten Satelliteninstrumente zur Fernerkundung von Ozonvertikalverteilungen gegeben.
- In **Kapitel 3** wird das Instrument *GOME* vorgestellt. Ferner wird kurz auf die wichtigsten wissenschaftlichen Ziele des Projekts *GOME* eingegangen.
- Wesentlicher Bestandteil des in dieser Arbeit entwickelten Profilauswertalgorithmus ist das Strahlungstransportmodell *GOMETRAN*, mit dem sich das Strahlungsfeld in der Atmosphäre und die Gewichtsfunktionen mit relativ geringem Rechenaufwand bei gleichzeitig hoher Genauigkeit berechnen lassen. In **Kapitel 4** wird die Strahlungstransportgleichung für den ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich erläutert und ihre Lösung im Rahmen des Strahlungstransportmodells *GOMETRAN* skizziert.
- **Kapitel 5** führt in die Inversionstheorie ein. Zunächst werden verschiedene Verfahren zur Lösung des linearen Inversionsproblems vorgestellt. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Kozlov-Informationmatrix-Methode, die im Rahmen dieser Arbeit erstmals für die Auswertung von Satellitendaten verwendet wurde. Es folgen eine Fehleranalyse und die Einführung verschiedener Größen zur Charakterisierung des Meßsystems. Schließlich werden die Ergebnisse der linearen Inversionstheorie auf den nichtlinearen Fall übertragen.

Kapitel 1

Atmosphärisches Ozon

1.1 Die Bedeutung des Ozons in der Atmosphäre

Das Spurengas Ozon wird in der Atmosphäre aus Vorläufergasen produziert. Etwa 90 % des atmosphärischen Ozons befinden sich in der stratosphärischen Ozonschicht, die sich zwischen 15 und 50 km Höhe erstreckt. Auf die Troposphäre, die ungefähr 90 % der Gesamtmasse der Atmosphäre enthält, entfallen entsprechend nur 10 % des Gesamt Ozons.

Die überragende Bedeutung der stratosphärischen Ozonschicht für die Biosphäre erklärt sich aus der Tatsache, daß Ozon die für lebende Organismen schädliche solare UV-Strahlung zwischen 240 und 290 nm nahezu vollständig und oberhalb von 290 nm teilweise absorbiert. Kein anderes atmosphärisches Spurengas hat in diesem Spektralbereich eine vergleichbare Filterwirkung.¹ Darüber hinaus führt die Absorption solarer Strahlung durch Ozon in der Stratosphäre zu einer Temperaturzunahme mit der Höhe. Dies hat dort eine im Gegensatz zur Troposphäre stabile Schichtung der Luft zur Folge, wodurch der Austausch mit der Troposphäre stark unterdrückt wird. Änderungen der stratosphärischen Ozonverteilung können daher Auswirkungen auf die Dynamik der gesamten Atmosphäre haben.

In der Troposphäre beruht die Strahlungswirkung von Ozon vor allem auf der starken Absorption infraroter Strahlung. Als Treibhausgas beeinflusst Ozon die Strahlungsbilanz im terrestrischen Spektralbereich und damit die bodennahe Lufttemperatur. Für die troposphärische Chemie spielt Ozon ebenfalls eine entscheidende Rolle, denn die Photolyse von Ozon in Gegenwart von Wasserdampf ist die wichtigste Primärquelle für Hydroxyl-Radikale (OH). Letztere sind für die oxidative Entfernung einer Vielzahl von Spurengasen aus der Troposphäre verantwortlich, weshalb sie häufig als das „Waschmittel“ der Atmosphäre bezeichnet werden.

¹UV-Strahlung mit Wellenlängen unterhalb von 240 nm wird durch die Absorption des molekularen Sauerstoffs in den Herzberg-Banden und im Schumann-Runge-Kontinuum herausgefiltert.

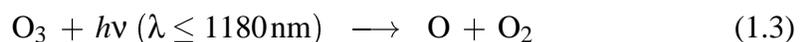
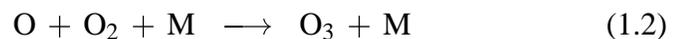
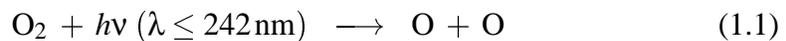
Die direkten Auswirkungen des Ozons auf lebende Organismen sind in den vergangenen Jahren eingehend untersucht worden. Das zunehmende wissenschaftliche und öffentliche Interesse an diesem Thema erklärt sich vor allem damit, daß in den vergangenen Jahrzehnten die Häufigkeit sogenannter Sommersmog-Ereignisse mit deutlich erhöhten Werten des bodennahen Ozons stark zugenommen hat. Ozon ist ein starkes Oxidationsmittel, das in hohen Konzentrationen bei empfindlichen Personen zu Reizungen der Schleimhäute führen kann. Auch das Pflanzenwachstum kann durch erhöhte Ozonkonzentrationen negativ beeinflußt werden [104].

1.2 Grundlagen der Ozonchemie

Die Verteilung des Ozons in der Atmosphäre wird durch das Zusammenwirken dynamischer Effekte und einer komplexen Photochemie bestimmt. Im folgenden wird die stratosphärische und troposphärische Ozonchemie in groben Zügen erläutert. Für eine detaillierte Darstellung wird auf die einschlägige Literatur verwiesen (z. B. [15], [53], [167]).

1.2.1 Stratosphärisches Ozon

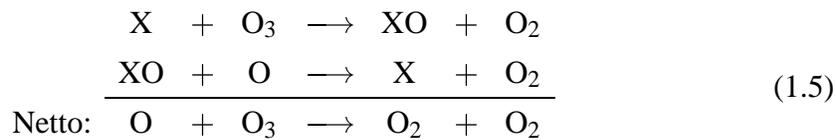
Die erste Erklärung der stratosphärischen Ozonschicht geht auf *Chapman* zurück, der 1930 den nach ihm benannten **Chapman-Zyklus** vorschlug [30]:



Ozon wird also durch Photolyse von O_2 durch UV-Strahlung und anschließende Addition von O an O_2 gebildet. In Reaktion (1.2) steht M dabei für einen zur Gewährleistung der Energie- und Impulserhaltung erforderlichen Stoßpartner, in der Regel N_2 oder O_2 . Das Ozonmolekül kann wiederum photolysiert werden, wobei ein Sauerstoffatom freigesetzt wird, das sofort mit einem Sauerstoffmolekül ein Ozonmolekül rückbilden kann. Die zweite und dritte Reaktion in obigem Schema bewirken also die schnelle Einstellung eines photochemischen Gleichgewichts zwischen O und O_3 , die man zusammen als „ungeraden Sauerstoff“ (*odd oxygen*) bezeichnet. Gleichung (1.1) beschreibt folglich die Bildung von ungeradem Sauerstoff, während Gleichung (1.4) einen Verlustprozeß für ungeraden Sauerstoff darstellt. Die Ozon-Produktionsrate hängt einerseits von der O_2 -Konzentration und andererseits vom Angebot an für die O_2 -Photolyse hinreichend energiereicher Strahlung ab. Die O_2 -Konzentration nimmt mit zunehmender Höhe exponentiell ab, während die zur Photolyse geeignete Strahlung mit der Höhe stark

zunimmt. Daher ist die Ozonproduktion in einem mittleren Höhenbereich maximal. Der Chapman-Zyklus liefert so eine qualitative Erklärung für das Auftreten der stratosphärischen Ozonschicht.

Durch verbesserte Labormessungen der Reaktionskonstanten in den sechziger Jahren zeigte sich, daß die Abbaureaktion (1.4) bei stratosphärischen Temperaturen nur sehr langsam abläuft [9]. Selbst unter Berücksichtigung der stratosphärischen Transportprozesse, auf die weiter unten noch eingegangen wird, waren daher die nach dem Chapman-Zyklus vorhergesagten Ozonkonzentrationen deutlich größer als die gemessenen Werte. Zur Überbrückung dieser Diskrepanz wurden verschiedene **katalytische Ozon-Abbauprozesse** der Form



vorgeschlagen. Die ersten in der stratosphärischen Chemie berücksichtigten katalytischen Abbauzyklen waren die sogenannten HO_x -Zyklen, bei denen das OH-Radikal als Katalysator fungiert [6, 85]. Es kann durch Reaktion mit atomarem Sauerstoff entsprechend dem obigen Schema zurückgewonnen werden. Dieser Abbauzyklus dominiert in der obersten Stratosphäre und Mesosphäre. Aufgrund der geringen O-Konzentration in der unteren Stratosphäre reagiert HO_2 dort vorwiegend mit Ozon zu OH und zwei Sauerstoffmolekülen. Bei diesem Abbauzyklus, der entscheidend für den Ozonabbau zwischen etwa 10 und 25 km Höhe ist, werden netto zwei Ozonmoleküle in drei Sauerstoffmoleküle umgewandelt. Der wichtigste Abbauzyklus in der mittleren Stratosphäre (circa 25-40 km) ist der NO_x -Zyklus mit dem Katalysator NO [35, 87], während in der oberen Stratosphäre der durch Chlor-Atome katalysierte Ozonabbau überwiegt [115, 154]. Analog zu diesem ClO_x -Zyklus können auch Bromatome zum katalytischen Ozonabbau beitragen [171].

Neben den genannten gibt es eine Vielzahl weiterer Reaktionen, die in der stratosphärischen Ozonchemie eine Rolle spielen und die insbesondere die verschiedenen katalytischen Abbauzyklen miteinander koppeln, so daß deren Effekte nicht additiv sind. Besonders wichtig sind hierbei Reaktionen, die die aktiven Radikale in inaktive **Reservoirsubstanzen** umwandeln. In der Tat ist der größte Teil des stratosphärischen Chlors, Stickstoffs und Wasserstoffs in diesen Reservoirsubstanzen gebunden, wobei hier vor allem HCl, $ClONO_2$, HNO_3 und N_2O_5 zu nennen sind. Für Brom ist bisher kein effizientes Reservoir bekannt, weshalb Brom pro Molekül wesentlich mehr Ozon abbauen kann als Chlor. Allerdings sind gegenwärtig die stratosphärischen Brom-Konzentrationen noch um Größenordnungen kleiner als die Chlor-Konzentrationen. Die aktiven Radikale sind in den Reservoirsubstanzen nicht dauerhaft gebunden, sondern werden nach einer gewissen Zeit wieder freigesetzt. Erst wenn die Reservoirsubstanzen infolge

stratosphärisch-troposphärischer Austauschprozesse in die Troposphäre gelangen, können sie aufgrund ihrer in der Regel hohen Wasserlöslichkeit durch nasse Deposition aus der Atmosphäre entfernt werden.

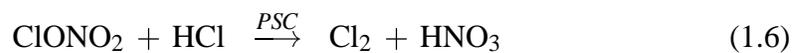
Die wichtigsten **Vorläufersubstanzen** für die HO_x - und NO_x -Radikale sind Methan (CH_4) bzw. Distickstoffoxid (N_2O), die in großen Mengen von Mikroorganismen produziert werden und somit natürlichen Ursprungs sind. Ein Teil des stratosphärischen Chlors geht auf Emissionen von Methylchlorid (CH_3Cl) durch marine Algen sowie infolge von Biomasseverbrennung zurück. Aktuelle Schätzungen zufolge sind derzeit allerdings 80 % des stratosphärischen Chlors anthropogen [173]. Hier sind in erster Linie die Emissionen von *FCKW* (*Fluorchlorkohlenwasserstoffen*) zu nennen. Dabei handelt es sich um Verbindungen aus Kohlenstoff, Chlor und Fluor, die als Kühlmittel in Kühlschränken und Klimaanlage, als Lösungsmittel in der Halbleiterindustrie sowie als Treibgase Verwendung finden. Gegenwärtig sind vor allem CCl_3F (CFC-11) und CCl_2F_2 (CFC-12) für den durch *FCKW* verursachten Ozonabbau verantwortlich. Die troposphärischen *FCKW*-Konzentrationen erreichten 1993 ihr Maximum und nehmen seitdem um etwa 1 % pro Jahr ab. Berücksichtigt man eine Transportdauer von mehreren Jahren von der Troposphäre in die Stratosphäre sowie die hohe atmosphärische Lebensdauer der *FCKW* (circa 60 Jahre für CFC-11 und 100 Jahre für CFC-12 [167]), so wird das Maximum der stratosphärischen Chlorkonzentration um die Jahrtausendwende erwartet. Unter der Annahme, daß die Vereinbarungen des Protokolls von Montreal von 1987 sowie der Nachfolgekonzferenzen in London (1990) und Kopenhagen (1992) erfüllt werden, sollte die Chlorkonzentration in den folgenden Jahrzehnten deutlich abnehmen und sich in der Mitte des nächsten Jahrhunderts auf dem zu Beginn der achtziger Jahre herrschenden Niveau einpendeln [50]. Wichtigste Vorläufersubstanzen für stratosphärisches Brom sind das von Meeralgen emittierte sowie als Pestizid verwendete Methylbromid (CH_3Br) und die als Feuerlöschgase eingesetzten *Halone* (Verbindungen aus Kohlenstoff, Brom, Fluor und in einigen Fällen Chlor, z. B. CF_3Br oder CF_2BrCl). Im Gegensatz zu den Chloremissionen dominieren bei den Bromemissionen gegenwärtig noch die natürlichen Quellen. Allen Vorläufersubstanzen gemeinsam ist ihre hohe troposphärische Lebensdauer, aufgrund derer sie bis in die Stratosphäre gelangen können. Die Umwandlung in die entsprechenden Radikale erfolgt dort zumeist durch Photolyse mittels kurzweiliger UV-Strahlung oder durch Reaktion mit angeregtem atomarem Sauerstoff.

Das Ozonloch

Bis in die Mitte der achtziger Jahre hinein ging man davon aus, die stratosphärische Chemie durch die oben skizzierten **homogenen Gasphasen-Reaktionen** vollständig beschreiben zu können. Diese Einschätzung änderte sich mit der Entdeckung des antarktischen Ozonlochs, das durch die Modellrechnungen nicht vorhergesagt worden war. Forscher des *British Antarctic Survey* hatten in Halley

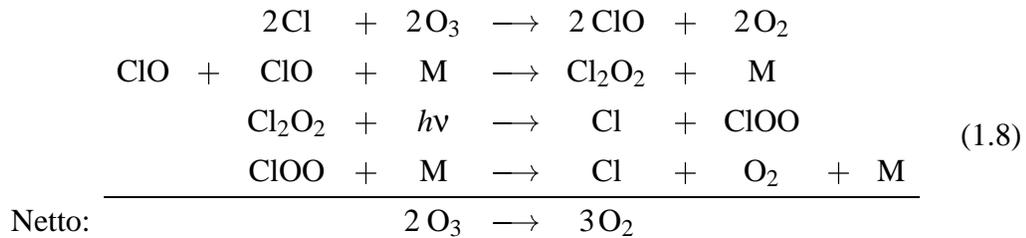
Bay seit Ende der siebziger Jahre im antarktischen Frühjahr anormal niedrige Gesamt ozonwerte gemessen und diese mit dem ebenfalls beobachteten Anstieg der Konzentration des atmosphärischen Chlors in Verbindung gebracht [52]. Das ganze Ausmaß des Ozonabbaus zeigte sich schließlich in den Messungen des *Total Ozone Mapping Spectrometers (TOMS)*, eines auf dem amerikanischen Satelliten *Nimbus-7* eingesetzten Instruments zur Bestimmung globaler Gesamt ozonverteilungen [155]. Seit 1990 wird regelmäßig im antarktischen Frühjahr in einem Gebiet, das größer als die Antarktis ist, ein Ozonabbau von 50 % und mehr beobachtet. Die stärksten Ozonverluste treten dabei in der unteren Stratosphäre auf, wo es zu einem fast vollständigen Ozonabbau kommt.

Nach heutigem Kenntnisstand wird das **antarktische Ozonloch** durch das Zusammenwirken verschiedener dynamischer und chemischer Phänomene verursacht. Ausgangspunkt der Erklärung ist die starke Abkühlung der winterlichen polaren Stratosphäre, wodurch sich ein thermisch induzierter, sehr stabiler zirkumpolarer Wirbel, der sogenannte *polare Vortex*, ausbildet. Aufgrund der hohen Windgeschwindigkeiten sind die Luftmassen innerhalb dieses Wirbels nahezu vollständig von der umgebenden Stratosphäre isoliert. Wegen der fehlenden Sonneneinstrahlung kann sich die polare Stratosphäre im Winter so stark abkühlen, daß sich in der unteren Stratosphäre sogenannte *Polar Stratospheric Clouds (PSCs)* bilden können, bei denen zwischen verschiedenen Typen unterschieden wird. Als *PSCs* vom Typ I werden feste *NAT*-Partikel (*NAT*: Nitric Acid Trihydrate $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) sowie flüssige Teilchen, die durch ternäre Kondensation von H_2O , H_2SO_4 und HNO_3 entstehen, bezeichnet. Diese *PSCs* können sich bei Temperaturen unterhalb von etwa 195 K ausbilden. Für die Bildung von *PSCs* vom Typ II, die im wesentlichen aus H_2O -Eispartikeln bestehen, sind Temperaturen unterhalb von 185 K erforderlich. Einen Überblick über die aktuellen Theorien zur *PSC*-Bildung findet man in [50]. An der Oberfläche der *PSCs* können relativ schnelle **heterogene chemische Reaktionen** ablaufen, durch die das Chlor aus seinen Reservoirsubstanzen in photolabile Substanzen, z. B. Cl_2 oder HOCl , übergeführt wird. Die wichtigsten Reaktionen sind dabei



Diese Reaktionen können ohne Einwirkung von Sonnenlicht während der Polarnacht ablaufen und so die innerhalb des polaren Vortex wie in einem Reaktionsgefäß eingeschlossene Luft **vorkonditionieren**. Mit dem ersten Sonnenlicht im Frühjahr werden die Chloratome durch Photolyse aus den photolabilen Substanzen freigesetzt und dadurch der **katalytische Ozonabbau** gestartet. Die Rückbildung der Reservoirsubstanzen ist zunächst erschwert, denn durch die Kondensation von HNO_3 an den Wolkenteilchen werden der Gasphase Stickoxide und Wasserdampf entzogen, die zum Teil durch Sedimentation der Wolkenteilchen irreversibel aus der Stratosphäre entfernt werden (*Denitrifizierung*, *Dehydrierung*)

oder erst nach Verdampfen der *PSCs* wieder zur Reservoirbildung zur Verfügung stehen. Wegen der bei niedrigem Sonnenstand geringen Konzentration von atomarem Sauerstoff in der unteren Stratosphäre verläuft der katalytische Ozonabbau nicht gemäß dem Abbauzyklus (1.5), sondern hauptsächlich entsprechend dem folgenden ClO-Dimer-Zyklus [114]:



Aufgrund der thermischen Instabilität von Cl_2O_2 kann dieser Abbauzyklus nur bei sehr niedrigen Temperaturen ablaufen. Die extrem niedrigen Temperaturen im polaren Vortex sind also sowohl für die Vorkonditionierung als auch für den katalytischen Ozonabbau selbst entscheidend. Folgende Reaktion, die eine Kopplung zwischen Chlor- und Bromchemie darstellt, ist ebenfalls wesentlich an der Entstehung des Ozonlochs beteiligt [110]:



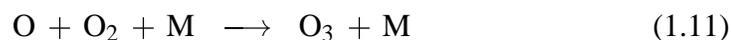
Mit zunehmender Sonneneinstrahlung erwärmt sich die polare Stratosphäre, und der polare Vortex bricht auf. Dadurch kann ozon- und stickoxidreiche Luft aus mittleren Breiten in die polaren Gebiete einströmen. Auch das Verdampfen der *PSCs* trägt dazu bei, daß sich die Konzentration der zur Reservoirbildung benötigten Stickoxide wieder erhöht. Die **Regeneration der Ozonschicht** erfolgt so innerhalb weniger Wochen.

Der antarktische Kontinent kann in grober Näherung als um den Südpol zentrierte Scheibe, die sich ungefähr bis zum südlichen Polarkreis erstreckt, betrachtet werden. Er ist von einem breiten Streifen offenen Ozeans umgeben, über dem sich ungehindert starke zirkumpolare Strömungen ausbilden können. Im Gegensatz dazu wird die zirkumpolare Strömung in der **Arktis** durch die dort komplexere Land-Meer-Verteilung gestört, so daß der polare Vortex in der Arktis weniger stabil ist als in der Antarktis. Daher kühlt die arktische Stratosphäre im Winter nicht so stark ab wie die antarktische. Dies hat eine geringere *PSC*-Bildung und damit eine geringere Chloraktivierung und Denitrifizierung zur Folge. Ferner ist der Ozonabbau durch den ClO-Dimer-Zyklus aufgrund der thermischen Instabilität von Cl_2O_2 nicht so effektiv wie bei den niedrigeren antarktischen Temperaturen. Dies erklärt, warum der chemische Ozonabbau in der Arktis weniger dramatisch ist als in der Antarktis und außerdem sehr stark von den meteorologischen Bedingungen des jeweiligen Winters abhängt. Es konnten jedoch auch in der Arktis lokal bedeutende chemische Ozonverluste nachgewiesen werden (z. B. [67], [116]).

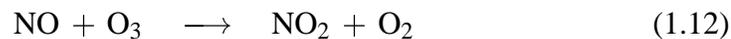
1.2.2 Troposphärisches Ozon

Infolge stratosphärisch-troposphärischer Austauschprozesse kann ozonreiche Luft aus der Stratosphäre in die Troposphäre gelangen. Diese Quelle troposphärischen Ozons läßt sich allerdings nur schwer quantifizieren (siehe z. B. [91] und die darin angegebenen Referenzen).

Eine weitere Quelle für troposphärisches Ozon ist die photochemische Produktion in der Troposphäre, bei der zunächst durch Photolyse von NO_2 atomarer Sauerstoff gebildet wird, der dann mit O_2 zu Ozon reagiert:



NO kann wieder mit O_3 reagieren, wobei NO_2 rückgebildet wird:



Die Reaktionen (1.10) bis (1.12) bewirken die schnelle Einstellung eines photochemischen Gleichgewichts zwischen O_3 , NO und NO_2 . Zu einer **Nettoproduktion von Ozon** kommt es nur dann, wenn die Ozonabbaureaktion (1.12) umgangen wird. Tatsächlich kann NO_2 auch durch Reaktion von NO mit HO_2 und anderen Peroxyradikalen regeneriert werden:



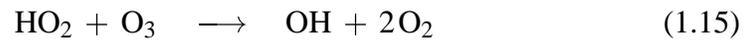
Bei dem organischen Rest R handelt es sich im einfachsten Fall um CH_3 , es sind aber auch längere organische Ketten der allgemeinen Form $\text{R}_i = \text{C}_i\text{H}_{2i+1}$ möglich. HO_2 und die Peroxyradikale RO_2 werden bei der Oxidation von Kohlenmonoxid und von Kohlenwasserstoffen gebildet (Details siehe z. B. [167]).

Die für die Ozonproduktion als Katalysator benötigten Stickoxide sind größtenteils anthropogen. Hier ist vor allem die Hochtemperaturverbrennung fossiler Brennstoffe in Straßenverkehr, Industrie und Haushalten zu nennen, bei der stets NO gebildet wird. Insbesondere im Straßenverkehr werden auch große Mengen von Kohlenwasserstoffen emittiert, die den für die Ozonproduktion erforderlichen Brennstoff liefern. In stark durch Autoabgase verschmutzten Gebieten können sich daher unter Bedingungen mit geringem Luftmassenaustausch und hoher solarer Einstrahlung deutlich erhöhte Ozonkonzentrationen entwickeln. Gleichzeitig wird dabei eine Vielzahl anderer starker Oxidantien, z. B. HNO_3 , HO_2 und Peroxyacetylnitrat (*PAN*), gebildet. Dieser sogenannte **photochemische Smog** wurde erstmals in den vierziger Jahren in Los Angeles registriert. In den letzten Jahrzehnten tritt dieses Phänomen auch verstärkt in Europa auf.

Eine weiteres Szenario für erhöhte troposphärische Ozonbildung ist großflächige **Biomasseverbrennung** in den Tropen, bei der ebenfalls Stickoxide und

Kohlenwasserstoffe in großen Mengen freigesetzt werden. So wurden beispielsweise über dem Südatlantik erhöhte Ozonkonzentrationen infolge von Biomasseverbrennung in Südamerika und Afrika beobachtet (z. B. [36], [56], [57]).

Wenn das Verhältnis von NO- zu O₃-Konzentration einen Wert von ungefähr 2.5×10^{-4} unterschreitet, reagiert das HO₂-Radikal bevorzugt mit O₃, was zu einem **Nettoabbau von Ozon** führt:



Die Reaktionen mit den Peroxyradikalen verlaufen analog. Die für einen Ozonabbau durch Kohlenwasserstoff- und Kohlenmonoxidoxidation erforderlichen geringen NO-Konzentrationen sind allerdings nur in entlegenen, nicht anthropogen beeinflussten Regionen der Erde gegeben.

1.3 Dynamische Prozesse

Die photochemische Ozonproduktionsrate entsprechend Gleichung (1.1) erreicht ihr Maximum in Äquatornähe. Integriert man die Ozonkonzentration vom Erdboden bis zum Oberrand der Atmosphäre, so findet man jedoch in den Tropen relativ niedrige Gesamtsäulen von typischerweise 250 DU.² In mittleren Breiten liegen die Ozongesamtsäulen je nach Jahreszeit typischerweise zwischen 300-500 DU, wobei in der Nordhemisphäre tendenziell höhere Werte beobachtet werden. In polaren Breiten können noch höhere Werte auftreten. Die Höhe des Maximums der Ozonkonzentration nimmt, der Tropopausenhöhe folgend, vom Äquator zu den Polen hin ab. Es liegt in den Tropen in circa 25 km Höhe, in mittleren Breiten in etwa 20 km Höhe sowie in den Polarregionen in ungefähr 15 km Höhe, und damit generell niedriger als das Maximum der Ozonproduktionsrate. Diese Beobachtungen lassen sich nur mit Hilfe meridionaler und vertikaler Transportprozesse erklären. Ihr Beitrag zur Ozonverteilung in verschiedenen Höhen läßt sich anhand der höhenabhängigen photochemischen Lebensdauer des Ozons abschätzen. Diese liegt oberhalb von 40 km bei wenigen Stunden, so daß die Ozonkonzentration hier hauptsächlich durch die Photochemie bestimmt wird. Mit abnehmender Höhe nimmt die Lebensdauer zu und erreicht in der unteren Stratosphäre einige Monate bis Jahre. Entsprechend dominieren hier die Transportprozesse. Von herausragender Bedeutung ist die saisonal variierende **Brewer-Dobson-Zirkulation**, eine meridionale stratosphärische Strömung, die sehr effektiv Ozon aus den tropischen Produktionsgebieten in die untere Stratosphäre in der Nähe des jeweiligen Winterpols transportiert.

Lokal wirken sich in mittleren Breiten auch **Hoch- und Tiefdrucksysteme** in der oberen Troposphäre, die zu einer Anhebung bzw. Absenkung der Tropopause

²1 DU entspricht einer Ozonschicht der Dicke 0.001 cm unter Normalbedingungen ($T = 273 \text{ K}$, $p = 1013 \text{ hPa}$).

und damit in der unteren Stratosphäre zu einem horizontalen Aus- bzw. Einströmen von Luftmassen führen, auf die Ozonsäulen aus. Mit ausgeprägten Hochdruckgebieten sind häufig Ozonwerte verbunden, die um mehr als 100 DU unter denen der Umgebung liegen [157, 141].

In den Tropen werden dynamisch bedingte Variationen der Ozonsäule in der Größenordnung einiger Prozent aufgrund von *ENSO*-Ereignissen (*El Niño/Southern Oscillations*) und aufgrund der *QBO* (*Quasi-biennial Oscillation*) der äquatorialen zonalen Winde beobachtet [144]. Schließlich sei noch der Einfluß des elfjährigen Sonnenzyklus erwähnt, der zu Variationen des global gemittelten Gesamtzongehalts von etwa 1-2 % führt [77, 108].

1.4 Trends in der Ozonverteilung

In diesem Abschnitt werden kurz die aktuellen Trends der globalen Ozonverteilung skizziert, wobei die Antarktis explizit ausgenommen wird. Die Analyse globaler Ozonmeßreihen der Jahre 1979 bis 1994 mit boden- und satellitengestützten Geräten zeigt für das **Gesamtozon** in mittleren Breiten für alle Jahreszeiten einen negativen Trend von -4 bis -7 % pro Dekade [68]. Der größte negative Trend wurde dabei für mittlere nördliche Breiten im Winter und Frühjahr ermittelt. In den Tropen ließ sich dagegen kein statistisch signifikanter Trend nachweisen. Die Ozonabnahme in mittleren nördlichen Breiten wird zumindest teilweise auf die Zunahme heterogener Prozesse an stratosphärischem Sulfataerosol infolge erhöhter Aerosolkonzentrationen in Verbindung mit wachsenden stratosphärischen Chlor- und Bromkonzentrationen zurückgeführt [148]. Als Gründe für die Zunahme des Sulfataerosols kommen vor allem die Ausbrüche der Vulkane El Chichón (1982) und Pinatubo (1991) in Frage. So wurden nach dem Ausbruch des Pinatubo einige Jahre lang erhöhte stratosphärische Aerosolgehalte beobachtet, die vor allem in der tropischen Stratosphäre einen deutlichen Ozonabbau zur Folge hatten [64, 169]. Berücksichtigt man in der Trendanalyse nur Daten bis 1991, wird der Trend etwa 1 % positiver. Im Zusammenhang mit der Gesamtzoonabnahme in mittleren Breiten wird auch die seit einigen Jahren beobachtete Abkühlung der Stratosphäre diskutiert, die auf die Zunahme der Treibhausgaskonzentrationen in der Atmosphäre zurückgeführt wird und besonders stark in den Wintermonaten auf der Nordhemisphäre ausgeprägt ist [97]. Diese Temperaturabnahme begünstigt die Aerosolbildung aus den Vorläufergasen und erhöht die Reaktionsgeschwindigkeiten der heterogenen Reaktionen, was zu einem verstärkten Ozonabbau führt. Dieser zieht wiederum eine Abnahme der stratosphärischen Temperaturen nach sich, was einer positiven Rückkopplung entspricht und die Unterscheidung zwischen Ursache und Wirkung erschwert. Trends in der Dynamik der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre haben ebenfalls einen nachweisbaren Einfluß auf die Ozontrends in mittleren Breiten [78, 152]. Auch heterogene Ozonabbaureaktionen an von Flugzeugen emittierten Rußpartikeln werden als ei-

ne mögliche Ursache für die Ozonverluste in mittleren Breiten diskutiert [8]. Der Transport ozonarmer und/oder ClO-angereicherter Luft aus der Vortex-Region in mittlere Breiten ist dagegen zu gering, um bei der winterlichen Ozonabnahme in mittleren Breiten eine Rolle zu spielen [88, 166]. Auch die von *Solomon et al.* [147] aufgestellte Hypothese, daß ein durch Jod katalysierter Ozon-Abbauzyklus einen wesentlichen Beitrag zur beobachteten Verringerung des Ozongehalts in der unteren Stratosphäre mittlerer Breiten leisten könnte, scheint sich angesichts der dort beobachteten niedrigen Jod-Konzentrationen nicht zu bestätigen [128].

Besonders interessant ist die Antwort auf die Frage, in welchen Höhenbereichen Änderungen der Ozonkonzentration auftreten. Dies erleichtert nicht nur die Identifizierung möglicher Ursachen für die Gesamtozonänderungen, sondern ist auch entscheidend bei der Beurteilung der Auswirkungen von Ozonänderungen auf den globalen Strahlungshaushalt und das Klima. Im Rahmen der oben zitierten Studie wurden neben den Gesamtsäulen auch **Ozonvertikalverteilungen** analysiert, die aus Ozonsonden- und Umkehrmessungen sowie aus Messungen des Satelliteninstruments *SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment)* abgeleitet wurden. Aufgrund des kleineren Datensatzes sowie der im Vergleich zu den Gesamtozonmessungen insgesamt schlechteren Datenqualität sind die Trendangaben hier allerdings mit größeren Fehlern behaftet. Zwischen 40 und 45 km wurde, weitgehend unabhängig von der geographischen Breite, ein Ozonverlust von 5-10 % pro Dekade beobachtet. Unterhalb von 40 km nimmt der Ozonverlust bis in etwa 25 km Höhe ab, um in der unteren Stratosphäre wieder zuzunehmen, wobei hier die verschiedenen Meßmethoden deutlich voneinander abweichende Ergebnisse liefern. Die Ozonänderungen in der unteren Stratosphäre wirken sich aufgrund der dort sehr hohen Ozonkonzentrationen besonders stark auf das Gesamtozon aus. Die Analyse der troposphärischen Ozontrends liefert regional sehr unterschiedliche Ergebnisse. Sowohl in hohen nördlichen Breiten als auch in der Antarktis wird seit den frühen achtziger Jahren eine deutliche Abnahme des troposphärischen Ozongehalts registriert, die vermutlich mit der Ozonabnahme in der unteren Stratosphäre zusammenhängt. Im selben Zeitraum war in Europa ein deutlich positiver Trend zu beobachten, der sich allerdings seit Mitte der achtziger Jahre abzuschwächen scheint. Ähnliche Beobachtungen wurden auch im Osten der Vereinigten Staaten und in Japan gemacht [121].

Kapitel 2

Satellitenfernerkundung von Ozonvertikalverteilungen

2.1 Absorptionsstrukturen von Ozon

Als dreiatomiges gewinkeltes Molekül besitzt das Ozonmolekül ein permanentes Dipolmoment und weist daher im Mikrowellenbereich ein **Rotationsspektrum** mit einer Vielzahl starker Absorptionslinien auf.

Im infraroten Spektralbereich verfügt Ozon über zwei relativ schwache **Vibrations-Rotationsbanden** bei $9.01\ \mu\text{m}$ und $14.2\ \mu\text{m}$ sowie über eine sehr starke Bande bei $9.6\ \mu\text{m}$.

Im Rahmen dieser Arbeit interessieren vor allem die im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich liegenden **Kontinuumsübergänge** von Ozon. In Abbildung 2.1 sind die mit dem *GOME*-Instrument im Labor gemessenen O_3 Absorptionsquerschnitte dargestellt. Ihr Maximum von circa $1.1 \times 10^{-17}\ \text{cm}^2$ liegt bei ungefähr $255\ \text{nm}$ in den **Hartley-Banden**. Diese gehen bei etwa $300\ \text{nm}$ in die **Huggins-Banden** über, die eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit aufweisen (siehe Abb. 2.2). Zwischen etwa 450 und $750\ \text{nm}$ liegen die relativ schwachen **Chappuis-Banden**, die ihr Absorptionsmaximum bei circa $600\ \text{nm}$ erreichen.

2.2 Ausgewählte Satelliteninstrumente

Wie in Kapitel 1 dargelegt, hat die stratosphärische Ozonschicht eine herausragende Bedeutung für den Schutz der Biosphäre vor schädlicher UV-Strahlung. In den letzten Jahrzehnten wurde allerdings immer deutlicher, wie empfindlich die Ozonschicht auf anthropogene Einflüsse reagiert. Die Überwachung der globalen Ozonverteilung sowie Messungen der anderen an der Ozonchemie beteiligten Spezies sind daher unerlässlich, um einerseits Änderungen des globalen Ozongehalts rechtzeitig zu erkennen und andererseits die chemischen und dynamischen Prozesse, die die Ozonkonzentration bestimmen, zu erforschen.

Boden-, ballon-, flugzeug- und raketengestützte Meßsysteme können immer nur einen lokal begrenzten Einblick in die Ozonverteilung geben. Die meisten derartigen Meßkampagnen wurden und werden dabei in Nord- und Mitteleuropa, Nordamerika sowie der Antarktis durchgeführt. Für globale Messungen mit vertretbarem ökonomischem Aufwand ist man auf Satellitenmessungen angewiesen. Auf der Grundlage der Rotations-, Vibrations-Rotations- und Kontinuumsübergänge von Ozon wurde in den letzten dreißig Jahren eine Vielzahl von satellitengestützten Instrumenten zur Fernerkundung von Ozonvertikalverteilungen entwickelt. Um die Bedeutung und die Möglichkeiten des *GOME*-Instrumentes in einen größeren Zusammenhang einzuordnen, werden in den folgenden Abschnitten die wichtigsten derzeit operationellen Instrumente und einige ihrer Vorläufer kurz vorgestellt.

2.2.1 *MLS*

Der *Microwave Limb Sounder (MLS)* wurde 1991 an Bord des *Upper Atmosphere Research Satellite (UARS)* der NASA ins All gebracht [129]. *MLS* ist das erste Satelliteninstrument, das Mikrowellenmessungen in Limb-Geometrie durchführt (siehe Abb. 2.3). Eine detaillierte Instrumentenbeschreibung findet sich in [2]. Aus Messungen der thermischen Emission von Ozon bei 183 GHz bzw. bei 205 GHz können Ozonprofile zwischen circa 15 und 80 km Höhe mit einer Vertikalauflösung von etwa 3 bis 5 km abgeleitet werden.¹ Die zuverlässigsten Ergebnisse werden im Höhenbereich zwischen 22 und 1 hPa erzielt. Die Genauigkeit wird hier mit 5 bis 10 % angegeben. Bei niedrigeren Höhen steigt der Fehler schnell auf 50 % und mehr an [60].

Mikrowellenmessungen sind nicht auf die Sonne als Lichtquelle angewiesen und können daher auch bei Nacht durchgeführt werden. Ein weiterer Vorteil ist die Tatsache, daß im Gegensatz zu Messungen im infraroten und sichtbaren Spektralbereich die Streuung an Aerosolpartikeln und Wolken aufgrund der relativ zum Teilchenradius großen Wellenlängen vernachlässigbar ist.

2.2.2 *HALOE*

Ebenfalls auf *UARS* befindet sich das *Halogen Occultation Experiment (HALOE)*, das in [140] beschrieben wird. *HALOE* mißt die Transmission der solaren Strahlung in mehreren Infrarot-Kanälen in solarer Okkultation, d. h. die Sonnenscheibe wird jeweils bei Sonnenauf- und -untergang abgetastet. *HALOE* sieht je 15 Sonnenauf- und -untergänge pro Tag. Bedingt durch die relative Position von Erde, Sonne und Instrument können jeden Tag nur zwei schmale Breitengradstreifen (je einer bei Sonnenauf- und -untergang) abgedeckt werden, wobei zu einer gegebenen Jahreszeit nur bestimmte geographische Breiten zugänglich sind.

¹Das 183 GHz Radiometer ist seit April 1993 nicht mehr in Betrieb.

Diese eingeschränkte geographische Überdeckung ist generell der größte Nachteil von Messungen in solarer Okkultation. Die Ozonvertikalverteilung wird aus den Messungen im $9.6\ \mu\text{m}$ -Kanal abgeleitet, d. h. aus der Stärke der Absorption in der ν_3 -Vibrationsbande von Ozon. Die Vertikalauflösung beträgt ungefähr 2 km. Zwischen 100 und 0.03 hPa stimmen die *HALOE*-Profile innerhalb der jeweiligen Fehlergrenzen mit Vergleichsmessungen überein. Zwischen 30 und 1 hPa liegt die Genauigkeit bei etwa 5 % [19].

Bei der Ableitung der Profile wird das Verhältnis aus transmittierter Strahlung und mit denselben optischen Komponenten gemessener solarer Referenzstrahlung ausgewertet, so daß sich mögliche Änderungen in den Instrumenteneigenschaften weitgehend herausdividieren. Die Messungen sind also selbstkalibrierend und daher besonders gut für die Bestimmung von Langzeittrends geeignet. Dies trifft auch für die im folgenden Abschnitt vorgestellten *SAGE*-Messungen zu.

2.2.3 *SAGE II*

Das zweite *Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE II)* der NASA wurde 1984 an Bord des *Earth Radiation Budget Satelliten (ERBS)* gestartet. Es mißt wie *HALOE* in solarer Okkultation, allerdings im sichtbaren und im nahen infraroten Spektralbereich. Ozonverteilungen mit einer Vertikalauflösung von etwa 1 km werden aus der Transmission im Maximum der Chappuis-Banden bei etwa $0.6\ \mu\text{m}$ bestimmt [31]. Der Vergleich der *SAGE*-Profile, deren Genauigkeit mit 5 bis 10 % angegeben wird, mit unabhängigen Messungen zeigt generell eine sehr gute Übereinstimmung im Höhenbereich von etwa 20 bis 50 km [4, 37, 160]. Wie bei *HALOE* ist auch bei *SAGE* die Ableitung troposphärischer Ozongehalte aufgrund der starken Streuung an Wolken und Aerosolen nicht möglich.

2.2.4 *BUV/SBUV*

Die Bestimmung von Ozonprofilen aus *GOME* Messungen beruht auf denselben physikalischen Prinzipien, die auch den *SBUV*-Geräten zugrunde liegen. Daher ist es angebracht, auf diese Instrumentenfamilie etwas genauer einzugehen.

Die Ableitung atmosphärischer Ozonprofile aus Satellitenmessungen des rückgestreuten ultravioletten Lichts in Nadir-Geometrie wurde erstmals in den fünfziger Jahren von *Singer und Wentworth* vorgeschlagen [145]. Nadir-Messungen liefern, im Gegensatz zu den auf die oberen Schichten der Atmosphäre beschränkten Limb-Messungen, wertvolle Informationen über die Zusammensetzung der Troposphäre. Ferner kann in Nadir-Geometrie eine bessere horizontale Auflösung als in Limb-Geometrie erzielt werden. Allerdings ist die Vertikalauflösung bei Nadir-Messungen nicht so gut wie bei Limb-Messungen.

Die optischen Eigenschaften der Atmosphäre werden im nahen und mittleren ultravioletten Spektralbereich durch Ozonabsorption und Rayleigh-Streuung bestimmt. Andere Spurengase, die ebenfalls in diesem Spektralbereich absorbieren,

sind in der Regel nur in sehr geringen Mengen vorhanden. Ihre Absorption ist daher im Vergleich zur Ozonabsorption vernachlässigbar. Eine Ausnahme sind lokal stark erhöhte Schwefeldioxidkonzentrationen nach Vulkanausbrüchen, die sowohl mit *TOMS*² als auch mit *GOME* nachgewiesen werden konnten [93, 48].

Zwischen 255 nm und 340 nm nimmt der Ozonabsorptionsquerschnitt um etwa vier Größenordnungen ab (Abb. 2.1), während der Rayleigh-Streukoeffizient mit λ^{-4} abnimmt. Die solare Strahlung dringt daher mit zunehmender Wellenlänge immer tiefer in die Atmosphäre ein, „sieht“ also einen immer größeren Höhenbereich der Atmosphäre. Bei fester Wellenlänge nimmt die transmittierte Strahlung mit zunehmender Eindringtiefe in die Atmosphäre sehr stark ab. Gleichzeitig steigt die Luftdichte und damit die Streumasse exponentiell an. Zusammen führen diese beiden Effekte zu einem relativ breiten Maximum in der Zahl der rückgestreuten Photonen, dessen Höhe bei gegebenem Sonnenzenitwinkel mit zunehmender Wellenlänge abnimmt. Setzt man die Ozonabsorptionsquerschnitte, das Luftdichteprofil und den Sonnenzenitwinkel als bekannt voraus, so kann man aus dem rückgestreuten Spektrum unterhalb von circa 300 nm höhenaufgelöste Information über die Ozonverteilung ableiten. Licht mit Wellenlängen von mehr als 310 nm kann bis in die unterste Troposphäre gelangen, wo es Mehrfachstreuungsprozessen an Luftmolekülen, Aerosol- und Wolkenteilchen, sowie der Reflexion am Erdboden unterworfen ist. Die bei diesen Wellenlängen rückgestreute Strahlung liefert im wesentlichen Informationen über den Gesamtzongehalt.

Das erste Satelliteninstrument, das speziell für die Bestimmung von Ozonvertikalverteilungen aus UV-Nadirmessungen entwickelt wurde, war das *BUV*-Instrument³ der *NASA*, das 1970 auf *Nimbus 4* gestartet wurde [72]. Dabei handelte es sich um ein Spektrometer mit Doppelmonochromator, das Messungen der direkten Sonnenstrahlung sowie der von der Erde rückgestreuten Strahlung bei 12 festen Wellenlängen zwischen 250 und 340 nm durchführte. Die Bandbreite der Spektrometerkanäle betrug etwa 1.1 nm.

Aufbauend auf den positiven Erfahrungen mit dem *BUV*-Gerät wurde 1978 ein verbessertes Nachfolgeinstrument, *SBUV*⁴ genannt, auf *Nimbus 7* gestartet [71, 70]. Dieses Gerät war bis 1990 aktiv.

Bei den seit 1984 auf verschiedenen *NOAA*-Satelliten⁵ eingesetzten *SBUV/2*-Instrumenten handelt es sich um für den Routineeinsatz adaptierte Versionen der *SBUV*-Instrumente. Gegenwärtig sind noch zwei Geräte in Betrieb. Bei beiden Instrumenten gibt es allerdings Probleme mit der Kalibration, weshalb die abgeleiteten Ozonprofile als relativ unzuverlässig gelten [61]. Die Fortsetzung der *SBUV/2*-Serie bis ins 21. Jahrhundert ist geplant.

Schließlich sei noch das *SSBUV*-Instrument⁶ erwähnt, das zwischen 1989

²*TOMS*: Total Ozone Mapping Spectrometer

³*BUV*: Backscattered UltraViolet

⁴*SBUV*: Solar Backscattered UltraViolet

⁵*NOAA*: National Oceanic and Atmospheric Administration

⁶*SSBUV*: Shuttle Solar Backscattered UltraViolet

und 1996 bei insgesamt acht Space-Shuttle-Missionen zum Einsatz kam [76]. Dieses Gerät wird sowohl vor als auch nach dem Flug nach sehr strengen Standards im Labor kalibriert und kann daher zur Überprüfung und Nachbesserung der Kalibration der Satellitengeräte herangezogen werden [74].

Im Laufe der Zeit wurden nicht nur die *buv*-Instrumente selbst sondern auch die Auswerteverfahren stetig verbessert. Die klein geschriebene Abkürzung „*buv*“ soll im folgenden die „backscattered ultraviolet“-Technik bezeichnen, während mit „*BUV*“ das Instrument selbst gemeint ist. Der erste Algorithmus für die Auswertung von *BUV*-Daten geht auf *Mateer* zurück [107]. Die mittlerweile aktuelle Version 6 wird in [12] beschrieben. Die Ozonverteilung wird aus der Reflektivität der Atmosphäre, d. h. aus dem Verhältnis der von der Erde rückgestreuten und der direkten Sonnenstrahlung, abgeleitet. Die acht kürzesten Wellenlängen liefern dabei das stratosphärische Ozonprofil. Die vier längsten Wellenlängen werden zur Ableitung des Gesamtzongehalts verwendet. Die zuverlässigsten Ergebnisse werden zwischen 30 und 50 km Höhe erzielt. Die Vertikalauflösung liegt hier bei 8-10 km. Die Genauigkeit (1σ -Fehler) wird mit etwa 5 % angegeben. Oberhalb und unterhalb des genannten Höhenbereiches wird das abgeleitete Ozonprofil zunehmend von der in die Auswertung eingehenden A-priori-Information beeinflusst.

Von technischer Seite her betrachtet gibt es vor allem zwei kritische Punkte, die sich direkt auf die Genauigkeit der aus *buv*-Messungen abgeleiteten Ozonprofile auswirken: Erstens muß über den gesamten, mehrere Größenordnungen überdeckenden Dynamikbereich der rückgestreuten Strahlung ein ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis sichergestellt sein. Zweitens müssen für eine exakte Kalibration der Messungen alle Instrumenteneigenschaften, die in die Kalibration eingehen, vor dem Start genau vermessen und während des Einsatzes im All kontinuierlich überwacht werden. Letzteres ist erforderlich, um eine mögliche Degradation der optischen Komponenten bei der Kalibration zu berücksichtigen. Besonders wichtig ist dabei die genaue Kenntnis der bidirektionalen Reflexionsfunktion des Sonnendiffusers, der nur für die Messung der direkten Sonnenstrahlung in den Strahlengang gebracht wird und dessen Eigenschaften sich folglich bei der Berechnung der atmosphärischen Reflektivität nicht herausdividieren.

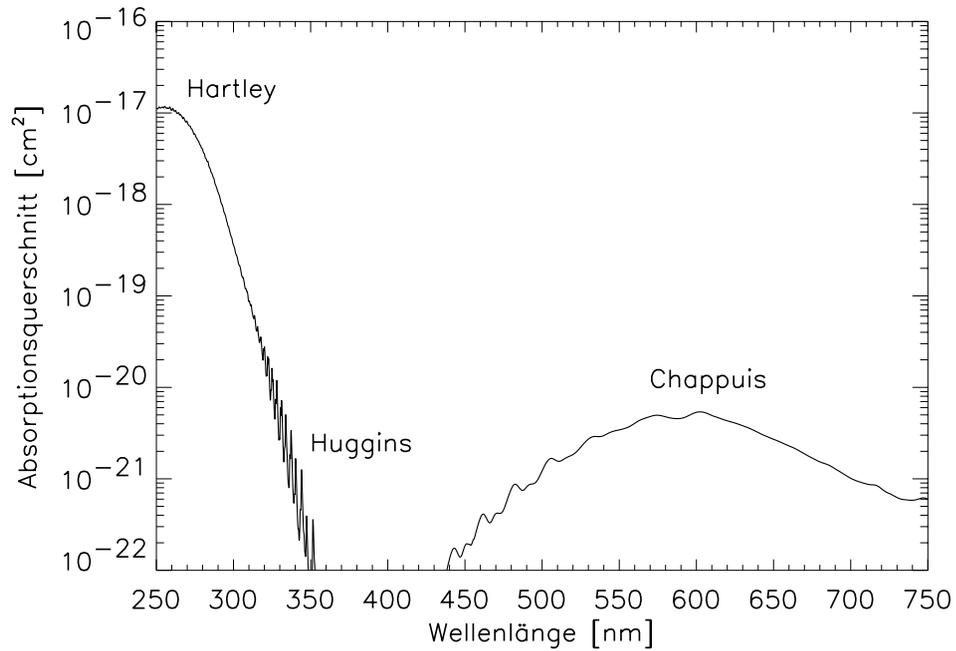


Abbildung 2.1: Die Absorptionsquerschnitte von Ozon in den Hartley-, Huggins- und Chappuis-Banden [24].

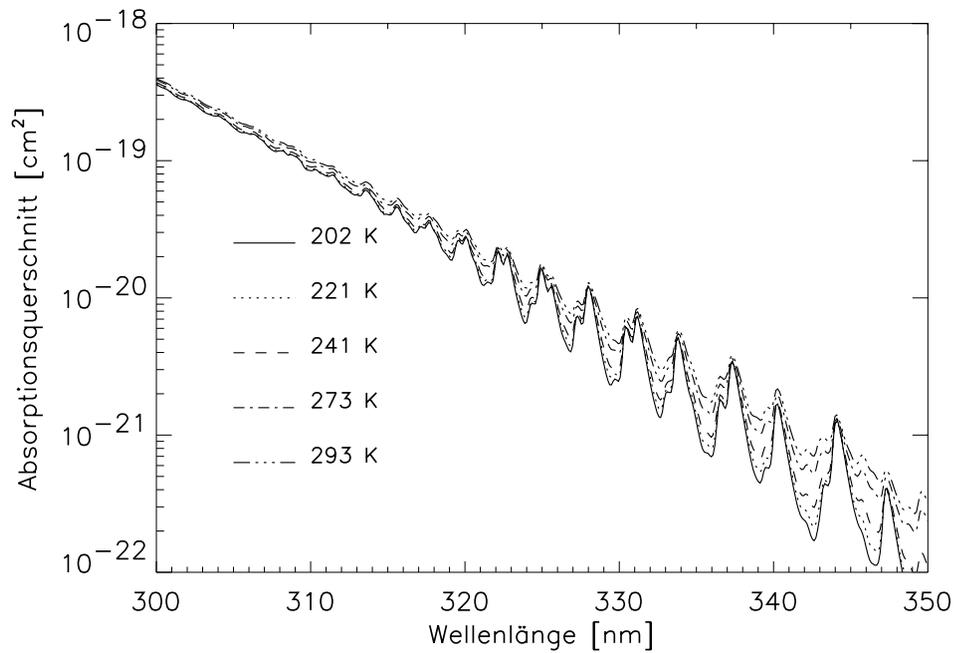


Abbildung 2.2: Die Absorptionsquerschnitte von Ozon in den Huggins-Banden als Funktion der Temperatur [24].

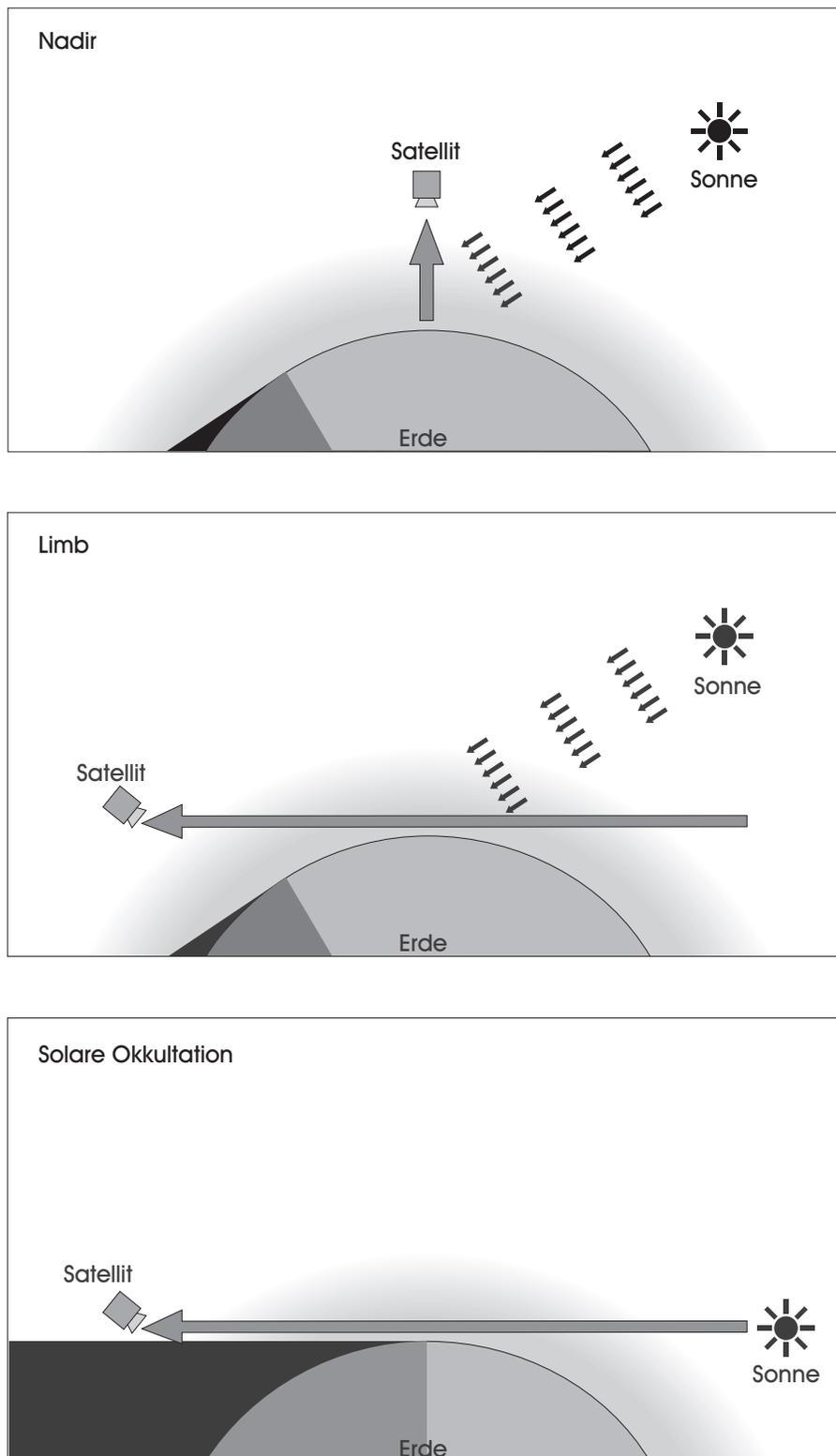


Abbildung 2.3: Die grundlegenden Satellitenbeobachtungsgeometrien (Abb. von S. Noël, IUP, Universität Bremen)

Kapitel 3

Das Projekt *GOME*

3.1 Der Satellit *ERS-2*

Am 21. April 1995 wurde *GOME* als eines von insgesamt sechs wissenschaftlichen Instrumenten an Bord des zweiten europäischen Fernerkundungssatelliten (*ERS-2*) der *ESA* ins All gebracht. Die übrigen Instrumente, das *Synthetic Aperture Radar SAR*, das *Wind Scatterometer*, das *Radar Altimeter RA*, das *Along-Track Scanning Radiometer ATSR* und das *Precise Range and Range-rate Equipment PRARE*, sollen vor allem Aufschluß über die Beschaffenheit der Erd- und Ozeanoberflächen liefern. Baugleiche Geräte wurden bereits erfolgreich auf dem 1991 gestarteten Satelliten *ERS-1* eingesetzt und sind zum Teil noch aktiv. Die *ERS-1*-Mission wird also durch *ERS-2* nicht nur fortgeführt, sondern mit Hilfe von *GOME*, das einen wichtigen Beitrag zur Erforschung der Atmosphärenchemie leisten soll, sogar noch erweitert [43].

ERS-2 umkreist die Erde in einer mittleren Höhe von etwa 780 km auf einem polaren, sonnensynchronen Orbit mit einer Inklination von 98.5° . Die Nord-Süd-Überquerung des Äquators erfolgt gegen 10:30 Uhr lokaler Zeit. Die Dauer eines Orbits beträgt ungefähr 100 Minuten, was zu 14 Orbits pro Tag führt. Alle 35 Tage folgt der Satellit wieder derselben Spur auf dem Erdboden. Seine Geschwindigkeit über Grund ist dabei 7 km/s.

3.2 Das Instrument *GOME*

GOME ist eine verkleinerte Version des *SCanning Imaging Absorption spectrometer for Atmospheric CHartography (SCIAMACHY)*, das im Jahr 2000 an Bord des ersten europäischen Umweltsatelliten *ENVISAT-1* der *ESA* gestartet werden soll. Im Gegensatz zu *GOME* mißt *SCIAMACHY* nicht nur in Nadir-sondern auch in Limb-Geometrie sowie in solarer Okkultation. Darüber hinaus erstreckt sich der Spektralbereich von *SCIAMACHY* weiter ins nahe Infrarot.

Mit *SCIAMACHY* lassen sich daher mehr Spurengase in deutlich besserer Vertikalaufösung beobachten als mit *GOME* [25, 23].

Eine detaillierte Beschreibung des *GOME* Instruments findet man im *GOME Users Manual* [51]. In diesem Abschnitt werden die für diese Arbeit relevanten Komponenten anhand der schematischen Darstellung des optischen Aufbaus in Abbildung 3.2 kurz erläutert.

3.2.1 Der Scan-Spiegel und das Teleskop

GOME mißt die von der Erdoberfläche und der Atmosphäre in den Weltraum reflektierte bzw. rückgestreute Strahlung in Nadir-Beobachtungsrichtung. Der Lichtstrahl wird über den Scan-Spiegel auf das aus zwei Zylinderspiegeln bestehende Teleskop gelenkt, welches ihn auf den Eintrittsspalt des Spektrometers fokussiert. Die Brennweite des Teleskops und die Abmessungen des Eintrittsspalts bestimmen das instantane Blickfeld des Instruments. Es beträgt $2.9^\circ \times 0.14^\circ$ (parallel \times senkrecht zur Flugrichtung), was einer räumlichen Ausdehnung von $40 \times 2 \text{ km}^2$ auf dem Erdboden entspricht. Mit *GOME* sind sowohl statische als auch dynamische Beobachtungsmodi möglich. Im statischen Fall verharrt der Scan-Spiegel während der Messung in einer festen Position. Dieser Beobachtungsmodus wird vor allem für Kalibrationsmessungen verwendet. Im dynamischen Fall wird der Scan-Spiegel innerhalb vorgegebener Winkelgrenzen geschwenkt, wobei fünf diskrete Scan-Amplituden zwischen $\pm 30^\circ$ und $\pm 2.4^\circ$ möglich sind. Dadurch wird das instantane Blickfeld senkrecht zur Flugrichtung über den Erdboden bewegt, wobei für einen Vorwärtsscan 4.5 Sekunden benötigt werden. Das Rückführen des Spiegels in die Ausgangsposition (Backscan) erfolgt in 1.5 Sekunden. Beim gegenwärtigen normalen Betriebsmodus erfolgt der Scan im Bereich $\pm 30^\circ$. Ein Vorwärtsscan entspricht daher einer Fläche von $960 \times 40 \text{ km}^2$ auf dem Erdboden. Globale Überdeckung wird so innerhalb von drei Tagen erzielt.

3.2.2 Das Spektrometer

Im Spektrometer wird der Lichtstrahl zunächst kollimiert und in einem Quarzprisma spektral vorzerlegt. Der kurzwellige Teil des vorzerlegten Strahls wird in einem weiteren Prisma in zwei Teilstrahlen aufgespalten, die dann in die Spektrometerkanäle 1 und 2 eingekoppelt werden, während der langwellige Teil mit Hilfe eines dichroischen Filters in die Kanäle 3 und 4 aufgespalten wird. Die vier Kanäle bestehen jeweils aus einem Beugungsgitter zur spektral hochaufgelösten Zerlegung des Lichts und einem Objektiv, das das Spektrum auf den Detektor abbildet. Als Detektoren werden aktiv gekühlte Silizium-Diodenarrays verwendet, die jeweils aus 1024 Pixeln bestehen. Dies ermöglicht die simultane Messung des gesamten Spektrums, d. h. es ist kein bewegliches Gitter für den Wellenlängen-Scan erforderlich. Aufgrund des großen Dynamikbereichs der Signalleistung ist die Integrationszeit nicht für alle vier Kanäle identisch. Für Kanal 2, 3, und 4

Kanal	Band	Spektralbereich [nm]	Integrationszeit [s]	Auflösung	
				spektral [nm]	räumlich [km ²]
1	A	238–307	12	0.2	960 × 100
	B	307–314	1.5		320 × 40
2		311–404			
3		394–611			
4		578–794			

Tabelle 3.1: Spektralbereich, Integrationszeit, spektrale und räumliche Auflösung der GOME-Diodenarray-Detektoren. Die räumliche Auflösung gilt für einen Scan-Bereich von $\pm 30^\circ$.

beträgt sie 1.5 Sekunden, d. h. während eines Vorwärtsscans werden die entsprechenden Detektoren dreimal ausgelesen, was zu einem Grundpixel der Größe $320 \times 40 \text{ km}^2$ führt. Diese Grundpixel werden im folgenden als Standard-Pixel bezeichnet. Kanal 1 ist in zwei Bänder, A und B genannt, aufgeteilt. Während Band 1B ebenfalls eine Integrationszeit von 1.5 Sekunden hat, integriert Band 1A 12 Sekunden lang. Die Größe des 1A-Pixels beträgt entsprechend $960 \times 100 \text{ km}^2$. Die Wellenlängenbereiche der einzelnen Kanäle, ihre spektrale Auflösung, sowie die Integrationszeit und die Größe des zugehörigen Grundpixels sind in Tabelle 3.1 zusammengestellt. Abbildung 3.1 veranschaulicht die verschiedenen Grundpixel.

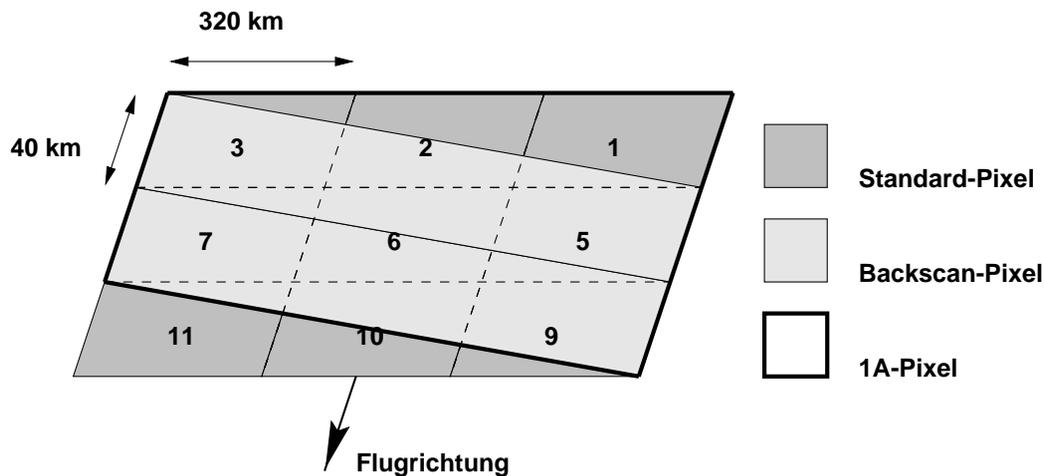


Abbildung 3.1: Die verschiedenen GOME-Grundpixel.

3.2.3 Die PMDs

Die Strahlungsempfindlichkeit von *GOME* hängt von der Polarisation des einfallenden Lichts ab. Für eine korrekte radiometrische Kalibration muß deshalb der Polarisationszustand des Lichts bekannt sein. Dieser hängt von der Wellenlänge, der Meßgeometrie, der Zusammensetzung der Atmosphäre und der Beschaffenheit der Erdoberfläche ab und muß daher für jede Messung separat bestimmt werden. Dies geschieht mit Hilfe von drei *Polarisation Monitoring Devices (PMDs)*. Dabei handelt es sich um breitbandige Detektoren, die das am Dispersionsprisma ausgekoppelte, parallel zum Eintrittsspalt polarisierte Licht messen. *PMD1* überdeckt den Spektralbereich 300-400 nm, *PMD2* den Bereich 400-580 nm und *PMD3* den Bereich 580-750 nm. Während der 1.5 Sekunden dauernden Integrationszeit der Diodenarray-Detektoren werden die *PMDs* insgesamt 16mal ausgelesen. Dies entspricht bei einem Scan-Winkel von $\pm 30^\circ$ einem Grundpixel der Größe $20 \times 40 \text{ km}^2$. Aufgrund dieser im Vergleich zu den *GOME*-Standardpixeln erhöhten räumlichen Auflösung können aus den *PMD*-Messungen neben dem Polarisationsgrad auch Informationen über horizontale Inhomogenitäten der Standardpixel, z. B. durchbrochene Bewölkung, abgeleitet werden. Darauf wird in Abschnitt 8.3.1 noch näher eingegangen.

3.2.4 Die Kalibrationseinheit

Mittels der spektralen Kalibration wird jedem Detektorpixel die entsprechende Wellenlänge zugeordnet. Wegen möglicher unvorhersagbarer Veränderungen der optischen Komponenten des Instruments ist eine einmalige spektrale Kalibration vor dem Start nicht ausreichend. Es müssen vielmehr regelmässige Kalibrationen im Orbit durchgeführt werden. Dafür wird die in der Kalibrationseinheit angebrachte Pt/Cr/Ne-Gasentladungslampe verwendet. Diese emittiert eine Vielzahl von Spektrallinien, deren Wellenlängen sehr genau bekannt sind und die hinreichend gut über den Spektralbereich von *GOME* verteilt sind.

Einmal täglich mißt *GOME* die direkte solare Strahlungsflußdichte, die über den Zeitraum eines Tages als konstant angenommen werden kann. Die solare Strahlung wird von einem speziellen Sonnen-Spiegel über einen Diffusor auf den Scan-Spiegel gelenkt. Jenseits des Scan-Spiegels durchläuft die direkte Sonnenstrahlung denselben optischen Weg wie die von der Erde kommende Strahlung. Bildet man den Quotienten der von der Erde kommenden Strahldichte („radiance“) und der solaren Strahlungsflußdichte („irradiance“), so kürzen sich Instrumenteneigenschaften zu einem großen Teil heraus. Diese *sonnennormierte Strahlung* reagiert daher weniger empfindlich auf Änderungen im Spektrometer als die Erdradianz selbst. Degradationen in der Kalibrationseinheit, insbesondere des Sonnen-Spiegels und des Diffusors, müssen allerdings berücksichtigt werden.

3.3 Die wissenschaftlichen Ziele von GOME

In diesem Abschnitt werden die wichtigsten wissenschaftlichen Möglichkeiten, die GOME bietet, kurz skizziert. Einen detaillierteren Überblick über das Konzept des Experiments sowie erste wissenschaftliche Resultate gewinnt man in [26]. Das Hauptziel besteht in der Routinemessung von Ozon-Gesamtsäulen mit globaler Überdeckung. Als Auswertemethode wird das DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) Verfahren verwendet. Mit DOAS wurde ursprünglich eine Methode zur spektroskopischen Langpfadmessung troposphärischer Spurengase mit künstlichen Lichtquellen bezeichnet (z. B. [124], [126]). In der Folgezeit wurde das Verfahren erfolgreich für Boden-, Flugzeug- und Ballonmessungen der verschiedensten Spurengase eingesetzt. Dabei dient die Sonne als Lichtquelle. Die relativ gute spektrale Auflösung der GOME Messungen erlaubt erstmals den Einsatz des DOAS-Verfahrens vom Weltraum aus. Beim DOAS-Verfahren wird die schräge Säule des betrachteten Spurengases bestimmt, indem man in einem relativ schmalen Spektralbereich eine Linearkombination differentieller Referenz-Absorptionsquerschnitte sowie eines Polynoms niedriger Ordnung zur Beschreibung breitbandiger spektraler Strukturen an die gemessene optische Dicke anpaßt [26]. Diese schräge Säule wird dann mit Hilfe des Luftmassenfaktors in die vertikale Säule umgewandelt. Für wolkenlose Szenarien geschieht dies durch einfache Division der schrägen Säule durch den Luftmassenfaktor.

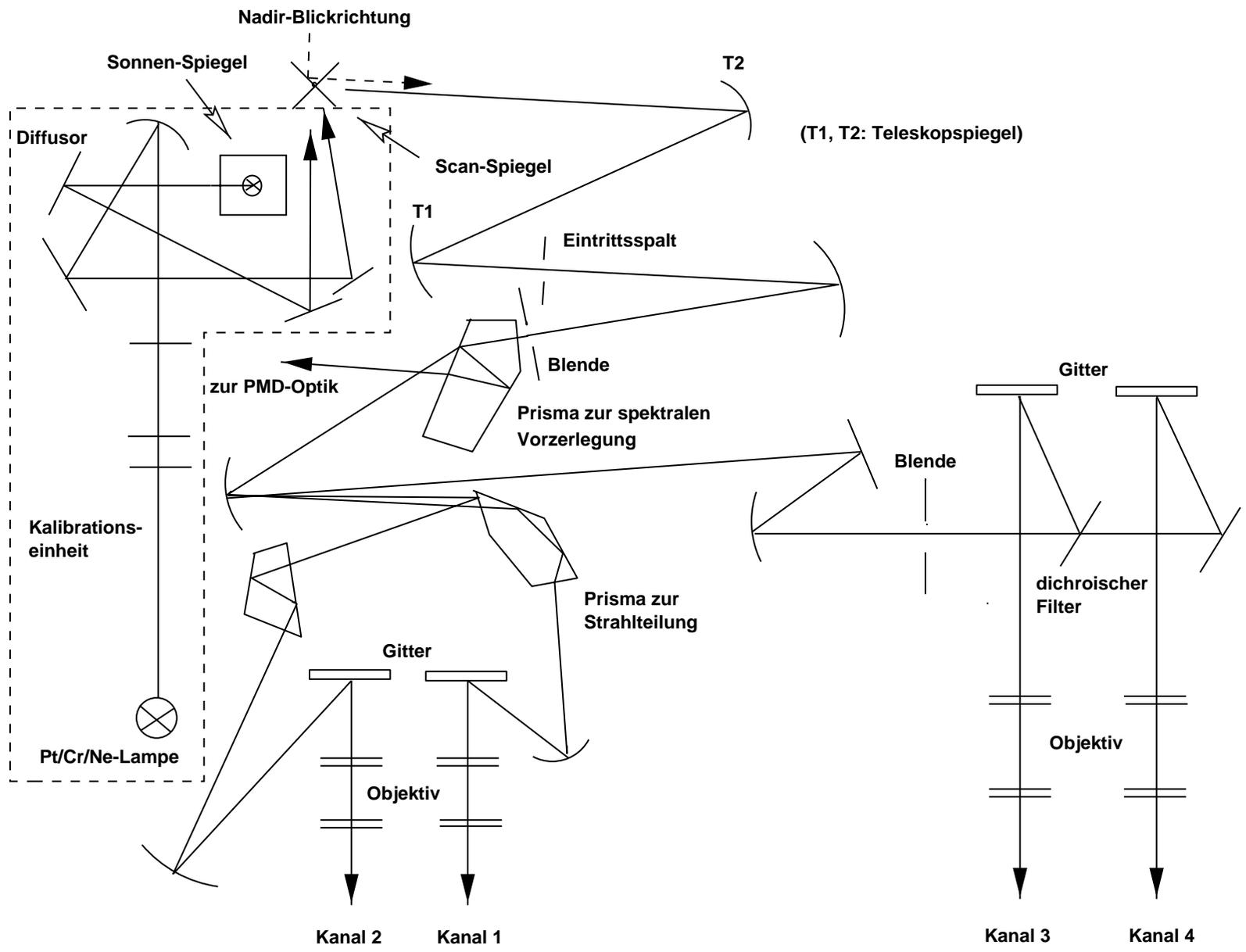
Die aus GOME-Messungen abgeleiteten Ozonsäulen wurden mit einer Vielzahl unabhängiger Messungen verglichen, wobei sich generell eine sehr gute Übereinstimmung zeigte (z. B. [99], [100]). Die DOAS-Methode läßt sich auch für andere Spurengase anwenden, die im Spektralbereich von GOME schmalbandige Absorptionsstrukturen mit hinreichender optischer Dicke aufweisen. Dies ist häufig nur unter bestimmten atmosphärischen Bedingungen und/oder Meßgeometrien der Fall. Im polaren Frühjahr können beispielsweise BrO- und OCIO-Säulen abgeleitet werden (z. B. [22], [73]). Ferner wurden lokal erhöhte SO₂-Säulen nach Vulkanausbrüchen und aus der Verbrennung von Braunkohle sowie erhöhte HCHO-Säulen infolge von Biomasseverbrennung nachgewiesen [48, 47, 123]. NO₂-Verteilungen werden dagegen routinemäßig global ausgewertet. Weitere potentiell nachweisbare Spurengase, deren optische Dicken jedoch nahe an der Nachweisgrenze liegen, sind NO₃ und ClO.

Deutlich sichtbar sind in den GOME-Messungen die Absorptionsstrukturen von O₂ und O₄, deren Tiefe in Kombination mit den PMD-Messungen zur Bestimmung einer effektiven Wolkenhöhe und eines effektiven Bedeckungsgrades verwendet werden kann. Auch H₂O-Absorptionsstrukturen sind zu erkennen. Eine Quantifizierung ist hier allerdings deutlich schwieriger als bei den bereits genannten Gasen. Neben den Spurengasen hinterlassen auch Aerosole, Wolken sowie die Erdoberfläche Spuren in den GOME Spektren, die zumindest qualitative Aussagen zulassen.

Ein weiteres, von der DOAS-Methode grundsätzlich verschiedenes Auswer-

teverfahren ist das *buv*-Verfahren, dessen Prinzip bereits in Kapitel 2.2.4 erläutert wurde. Anders als beim *DOAS*-Verfahren werden bei der *buv*-Methode absolut radiometrisch kalibrierte Spektren ausgewertet. Dies ermöglicht bei hinreichend breitem Spektralbereich die Ableitung von Ozon-Vertikalverteilungen. Im Gegensatz zu den im vorigen Kapitel vorgestellten *buv*-Instrumenten, die Messungen in 12 festen Kanälen zwischen 250 und 340 nm mit einer Bandbreite von etwa 1.1 nm durchführen, überdeckt *GOME* den gesamten UV-sichtbaren Spektralbereich mit einer spektralen Auflösung von 0.2-0.4 nm. Diese Messungen enthalten also mehr Information aus den temperaturabhängigen Huggins-Banden sowie den Chappuis-Banden. Dies verspricht ein gewisses Potential für die Verbesserung der unterhalb des Ozonmaximums abgeleiteten Ozonverteilungen. Voraussetzung hierfür ist allerdings eine sehr gute spektrale und vor allem radiometrische Kalibration der Meßspektren.

Abbildung 3.2: Der optische Aufbau von GOME(Abb. nach [168]).



Kapitel 4

Strahlungstransport in der Atmosphäre

4.1 Aufgabenstellung

Auf seinem Weg durch die Atmosphäre durchläuft ein Lichtstrahl eine Vielzahl von Streu- und/oder Absorptionsprozessen an Luftmolekülen, Aerosol- und Wolkenteilchen, durch die seine Intensität und sein Polarisationszustand geändert werden können. Die mathematische Beschreibung dieser Vorgänge ist Gegenstand der Strahlungstransporttheorie. In diesem Kapitel werden zunächst die vektorielle und die skalare Strahlungstransportgleichung eingeführt. Da die korrekte Beschreibung des Strahlungstransports für das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Verfahren zur Ableitung von Ozonprofilen von zentraler Bedeutung ist, folgt daran anschließend eine ausführliche Darstellung des verwendeten Strahlungstransportmodells *GOMETRAN*.

4.1.1 Die vektorielle Strahlungstransportgleichung

Ausgangspunkt der folgenden Betrachtungen ist der *Stokes-Vektor* $\mathbf{I}(\mathbf{r}, \theta, \phi)$, der in der Form $\mathbf{I} = (I, Q, U, V)^T$ dargestellt werden kann [159]. Die erste Komponente, $I(\mathbf{r}, \theta, \phi)$, ist die *spektrale Strahldichte* („radiance“). Sie entspricht der Leistung, die bei der betrachteten Wellenlänge am Ort \mathbf{r} pro Flächen- und Wellenlängeneinheit in den Einheitsraumwinkel um die durch den *Zenitwinkel* θ und den *Azimutwinkel* ϕ definierte Ausbreitungsrichtung abgestrahlt wird (Einheit: z. B. $1 \text{ W m}^{-2} \text{ nm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$). Der Zenitwinkel ist dabei der Winkel zwischen der Ausbreitungsrichtung des Lichts und der nach außen gerichteten Normalen auf die Erdoberfläche (Wertebereich: $[0^\circ, 180^\circ]$). Die übrigen Komponenten Q , U und V beschreiben den Polarisationszustand des Lichts. Zur Vereinfachung der Notation wird die Wellenlängenabhängigkeit von \mathbf{I} sowie aller anderen im folgenden verwendeten Strahlungsgrößen nicht explizit vermerkt.

Definiert man ds als infinitesimales Wegelement in Ausbreitungsrichtung des Lichts, so wird die Änderung von \mathbf{I} entlang ds durch die *vektorielle Strahlungstransportgleichung*

$$\frac{d\mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu, \phi)}{ds} = -\sigma_e(\mathbf{r}) [\mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu, \phi) - \mathbf{J}(\mathbf{r}, \mu, \phi)] \quad (4.1)$$

beschrieben [29]. Hier wurde bereits, wie in der Strahlungstransporttheorie üblich, statt des Zenitwinkels θ die Größe $\mu = \cos \theta$ (Wertebereich: $[-1, 1]$) als Winkelvariable verwendet.

Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung (4.1) beschreibt die Abschwächung des Lichtstrahls durch Absorption und/oder Streuung. Diese *Extinktion* ist proportional zur eingestrahnten Strahldichte. Die Proportionalitätskonstante σ_e wird als *Extinktionskoeffizient* bezeichnet (Einheit: z. B. 1 m^{-1}) und entspricht der Summe aus *Streukoeffizient* σ_s und *Absorptionskoeffizient* σ_a . Im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich wird der Streukoeffizient durch die Streuung an Luftmolekülen sowie an Aerosol- und Wolkenteilchen bestimmt. Die an Luftmolekülen gestreute Strahlung zeigt in erster Näherung die Strahlungscharakteristik eines oszillierenden Dipols. Diese Art der Streuung wird als *Rayleigh-Streuung* bezeichnet. Die Streuung an Aerosol- und Wolkenteilchen wird in der Regel mit Hilfe der Mie-Theorie beschrieben und daher unter dem Begriff *Mie-Streuung* zusammengefaßt. Der Absorptionskoeffizient wird von der Spurengasabsorption dominiert. Die Absorption an Aerosol- und Wolkenpartikeln spielt dagegen eine untergeordnete Rolle.

Die Verstärkung des Lichtstrahls wird durch den zweiten Term auf der rechten Seite von Gleichung (4.1) beschrieben, wobei man \mathbf{J} als *vektorielle Quellfunktion* bezeichnet. \mathbf{I} kann durch *lokale thermische Emission* verstärkt werden, die, falls sich die Atmosphäre im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht befindet, durch das Produkt aus Planck-Funktion und Absorptionskoeffizient gegeben ist. Bei typischen atmosphärischen Temperaturen ist die thermische Emission im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich um Größenordnungen kleiner als die solare Strahlung und kann daher vernachlässigt werden. Eine weitere Möglichkeit der Strahlungsverstärkung besteht in der *Streuung* von Licht aus der Richtung (μ', ϕ') in die Richtung (μ, ϕ) . Dabei werden im folgenden nur elastische Streuprozesse berücksichtigt. Auf die inelastische Streuung wird kurz in Abschnitt 4.2.4 eingegangen. Die Gesamtverstärkung erhält man durch Integration über alle Raumwinkel:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, \mu, \phi) = \frac{\omega_0(\mathbf{r})}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' \mathbf{P}(\mathbf{r}, \mu, \mu', \phi, \phi') \cdot \mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu', \phi'). \quad (4.2)$$

Dabei ist die *Einfachstreueralbedo* ω_0 definiert als

$$\omega_0(\mathbf{r}) = \frac{\sigma_s(\mathbf{r})}{\sigma_e(\mathbf{r})}. \quad (4.3)$$

Sie beschreibt den Anteil der Streuung an der Gesamtextinktion. Falls $\omega_0 = 1$, spricht man von *konservativer Streuung*. Die (4×4) -Matrix \mathbf{P} nennt man *Streuphasenmatrix*. Für homogene, optisch isotrope, sphärische Teilchen läßt sich \mathbf{P} mit Hilfe der auf der klassischen Elektrodynamik basierenden Mie-Theorie berechnen. Der interessierte Leser sei hier auf die umfangreiche Literatur verwiesen (z. B. [14], [103], [159]). Die Normierung der Matrix \mathbf{P} wird durch die Normierung ihres (1,1)-Elements, der sogenannten *Streuphasenfunktion* $p(\mathbf{r}, \mu, \mu', \phi, \phi')$, bestimmt [62]:

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' p(\mathbf{r}, \mu, \mu', \phi, \phi') \stackrel{!}{=} 1. \quad (4.4)$$

Diese Normierung gewährleistet die Energieerhaltung für konservative Streuung. Für unpolarisierte Strahlung gilt $Q = U = V = 0$. In diesem Fall ist $\frac{p}{4\pi} d\Omega$ der Bruchteil der in die Richtung (μ, ϕ) gestreuten Strahlung, der aus dem Raumwinkelement $d\Omega$ um die Richtung (μ', ϕ') kommt.

Setzt man Gleichung (4.2) und (4.3) in Gleichung (4.1) ein, so erhält

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu, \phi)}{ds} &= -\sigma_e(\mathbf{r}) \mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu, \phi) \\ &+ \frac{\sigma_s(\mathbf{r})}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' \mathbf{P}(\mathbf{r}, \mu, \mu', \phi, \phi') \cdot \mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu', \phi'). \end{aligned} \quad (4.5)$$

Die Lösung dieser vektoriellen Integro-Differentialgleichung, d. h. die Bestimmung des Strahlungsfeldes $\mathbf{I}(\mathbf{r}, \mu, \phi)$, ist sehr aufwendig. Es gibt daher nur wenige Strahlungstransportmodelle, die dies leisten.

4.1.2 Die skalare Strahlungstransportgleichung

Ist man nicht am Polarisationszustand sondern nur an der Strahldichte des Lichts interessiert, und ist das einfallende Licht außerdem unpolarisiert, d. h. $Q = U = V = 0$, so kann man in Gleichung (4.5) den Stokes-Vektor \mathbf{I} durch seine erste Komponente, d. h. die Strahldichte I , und die Streuphasenmatrix \mathbf{P} durch ihr (1,1)-Element, d. h. die Streuphasenfunktion p , ersetzen. Betrachtet man zur weiteren Vereinfachung eine planparallele, horizontal homogene Atmosphäre, so hängt I nur von der Höhe z sowie den Winkelvariablen μ und ϕ ab. Das Wegelement ds durch eine im Winkel θ durchstrahlte infinitesimale Schicht der Dicke dz ist dann gegeben durch $ds = dz/\mu$. Diese Annahmen führen zur *skalaren Strahlungstrans-*

portgleichung (STG) für eine planparallele Atmosphäre:

$$\mu \frac{dI(z, \mu, \phi)}{dz} = -\sigma_e(z) I(z, \mu, \phi) + \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' p(z, \mu, \mu', \phi, \phi') I(z, \mu', \phi'). \quad (4.6)$$

Wenn im folgenden der Begriff „Strahlungstransportgleichung“ verwendet wird, ist damit immer die skalare Strahlungstransportgleichung gemeint.

Die von der Sonne emittierte Strahlung ist zunächst unpolarisiert. Durch den ersten Streuprozess in der Atmosphäre wird sie jedoch, in Abhängigkeit von der Wellenlänge, vom Streuwinkel sowie von Größe, Form und Brechungsindex des streuenden Teilchens, teilweise polarisiert. Für den zweiten und höhere Streuprozesse gilt also $Q = U = V = 0$ nicht mehr! Die Lösung von Gleichung (4.6) liefert folglich nur dann exakte Ergebnisse für I , wenn die Mehrfachstreuung vernachlässigbar ist. Andernfalls können die aus Gleichung (4.5) und (4.6) abgeleiteten Strahldichten deutlich voneinander abweichen [98, 113, 149]. Wie sich die Vernachlässigung der Polarisations-eigenschaften des Lichts in *GOMETRAN* auf die abgeleiteten Ozonprofile auswirkt, wird in Kapitel 6.5 diskutiert.

Auf den Oberrand der Atmosphäre treffe nun aus der Richtung (μ_0, ϕ_0) solare Strahlung der spektralen Flußdichte πF („irradiance“, Einheit: $1 \text{ W m}^{-2} \text{ nm}^{-1}$) auf. Die am Oberrand der Atmosphäre (Höhe $z = z_0$) nach unten gerichtete Strahldichte ist folglich

$$I^-(z_0, \mu, \phi) = \pi F \delta(\mu - \mu_0) \delta(\phi - \phi_0). \quad (4.7)$$

In dieser Notation, die im folgenden beibehalten wird, bedeutet ein Minuszeichen als Superskript an I nach unten gerichtete Strahlung, während ein Pluszeichen nach oben gerichtete Strahlung bezeichnet. Entsprechend hat die Zenitkoordinate μ nun den Wertebereich $[0, 1]$. Die Randbedingung am Unterrand der Atmosphäre hängt von der Beschaffenheit der Erdoberfläche ab. Für eine Lambertsche Oberfläche mit der Albedo A ist sie durch

$$I^+(0, \mu, \phi) = \frac{A}{\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' \mu' I^-(0, \mu', \phi') \quad (4.8)$$

gegeben.

Zur Lösung der im Vergleich zu Gleichung (4.5) schon deutlich vereinfachten Gleichung (4.6) unter den Randbedingungen (4.7) und (4.8) wurde eine Vielzahl numerischer Methoden entwickelt, die jeweils spezifische Vor- und Nachteile haben. Einen Überblick findet man in [102].

4.2 Das Strahlungstransportmodell GOMETRAN

4.2.1 Entwicklung und Anwendungsgebiete

Ein für die Auswertung von *GOME*-Messungen geeignetes Strahlungstransportmodell (*STM*) muß folgenden Anforderungen genügen:

1. Der gesamte *GOME*-Wellenlängenbereich (240–790 nm) muß in der spektralen Auflösung des Instruments abgedeckt werden. Es müssen also alle im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich signifikant absorbierenden Spurengase einbezogen werden. Bei der Beschreibung der Streuung an Luftmolekülen, Aerosol- und Wolkenpartikeln ist die Mehrfachstreuung zu berücksichtigen.
2. Alle relevanten Meßgeometrien, definiert durch die Richtung der einfallenden solaren Strahlung und die Blickrichtung des Instruments, müssen zulässig sein. Dies bedeutet insbesondere, daß für große Sonnenzenitwinkel die Krümmung der Erdatmosphäre berücksichtigt werden muß.
3. Um die Auswertung globaler Datensätze zu ermöglichen, müssen sich sowohl die am Instrument ankommende Strahldichte als auch die Gewichtsfunktionen (siehe Abschnitt 4.2.3) mit geringem Rechenzeitaufwand bei gleichzeitig hoher Genauigkeit berechnen lassen.

Da keines der bereits bestehenden, öffentlich verfügbaren Strahlungstransportmodelle alle genannten Anforderungen erfüllen konnte, wurde am *IUP* das *STM GOMETRAN* neu entwickelt [138].

Der Anwendungsbereich von *GOMETRAN* beschränkt sich allerdings nicht auf die Auswertung von *GOME*-Messungen. So existiert beispielsweise eine leicht modifizierte Version des Modells, *PHOTOGT* genannt, mit der sich der aktinische Fluß in einer beliebigen Höhe der Atmosphäre berechnen läßt [13]. *PHOTOGT* kann also zur Berechnung von Photolyseraten in atmosphärischen Chemiemodellen eingesetzt werden. Gegenwärtig wird *GOMETRAN* für den Einsatz im Rahmen des Projekts *SCIAMACHY* erweitert. Dies bedeutet insbesondere die Ausdehnung des Spektralbereichs auf $2.4\ \mu\text{m}$ sowie die Einbeziehung zusätzlicher Meßgeometrien.

4.2.2 Mathematische Grundlagen

In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Schritte bei der Lösung der *STG* in *GOMETRAN* kurz skizziert. Eine detaillierte Beschreibung der mathematischen Grundlagen findet man in [20].

Die Aufspaltung in direkte und diffuse Strahlung

Zur numerischen Lösung der *STG* muß das Integral über die Zenitkoordinate μ durch eine geeignete Quadraturformel approximiert werden. Allerdings weist die Strahldichte I bei der Einfallrichtung der solaren Strahlung eine Singularität auf, die die Genauigkeit der numerischen Quadratur beeinträchtigt. Dieses Problem läßt sich umgehen, indem man die Strahldichte in einen ungestreuten (*direkten*) und einen mindestens einmal gestreuten (*diffusen*) Anteil aufspaltet:

$$I^\pm = I_{dir}^\pm + I_{dif}^\pm. \quad (4.9)$$

Die *STG* wird dann für die direkte und die diffuse Strahlung getrennt gelöst.

Die in der Höhe z nach unten bzw. nach Reflexion am Boden nach oben gerichtete direkte Strahlung läßt sich in planparalleler Geometrie sehr einfach berechnen:

$$\begin{aligned} I_{dir}^-(z, \mu, \phi) &= \pi F \delta(\mu - \mu_0) \delta(\phi - \phi_0) e^{-\frac{\tau(z)}{\mu}} \\ I_{dir}^+(z, \mu, \phi) &= AF \mu_0 e^{-\frac{\tau_0}{\mu_0}} e^{-\frac{\tau_0 - \tau(z)}{\mu}}, \end{aligned} \quad (4.10)$$

wobei

$$\tau(z) = \int_z^{z_0} \sigma_e(z') dz' \quad \text{und} \quad \tau_0 = \int_0^{z_0} \sigma_e(z') dz'. \quad (4.11)$$

$\tau(z)$ nennt man die *optische Tiefe* der Atmosphäre von ihrem Oberrand bis zur Höhe z , während τ_0 die *optische Dicke* der gesamten Atmosphäre ist. Die direkte Strahlung wird in *GOMETRAN* jedoch nicht in planparalleler sondern in sphärischer Geometrie berechnet, denn die Vernachlässigung der Erdkrümmung führt bei großen Sonnenzenitwinkeln ($\theta > 75^\circ$) zu nicht unerheblichen Fehlern [44]. Diese pseudo-sphärische Approximation liefert für Sonnenzenitwinkel kleiner als etwa 92° sehr genaue Nadir-Radianzen [27].

Unter Verwendung von Gleichung (4.9) und (4.10) kann man die *STG* (4.6) in zwei gekoppelte Differentialgleichungen erster Ordnung für die nach oben

bzw. unten gerichtete diffuse Strahlung umformen:

$$\begin{aligned}
\mu \frac{dI_{dif}^+(z, \mu, \phi)}{dz} &= -\sigma_e(z) I_{dif}^+(z, \mu, \phi) \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' p(z, \mu, \mu', \phi, \phi') I_{dif}^+(z, \mu', \phi') \\
&+ \frac{\sigma_s(s)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' p(z, \mu, -\mu', \phi, \phi') I_{dif}^-(z, \mu', \phi') \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} AF \mu_0 e^{-\frac{\tau_0}{\mu_0}} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' p(z, \mu, \mu', \phi') e^{-\frac{\tau_0 - \tau(z)}{\mu'}} \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4} F e^{-\frac{\tau(z)}{\mu_0}} p(z, \mu, -\mu_0, \phi, \phi_0) \\
\mu \frac{dI_{dif}^-(z, \mu, \phi)}{dz} &= -\sigma_e(z) I_{dif}^-(z, \mu, \phi) \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' p(z, -\mu, \mu', \phi, \phi') I_{dif}^+(z, \mu', \phi') \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' p(z, -\mu, -\mu', \phi, \phi') I_{dif}^-(z, \mu', \phi') \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} AF \mu_0 e^{-\frac{\tau_0}{\mu_0}} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' p(z, -\mu, \mu', \phi, \phi') e^{-\frac{\tau_0 - \tau(z)}{\mu'}} \\
&+ \frac{\sigma_s(z)}{4} F e^{-\frac{\tau(z)}{\mu_0}} p(z, -\mu, -\mu_0, \phi, \phi_0)
\end{aligned} \tag{4.12}$$

An dieser Stelle sei noch einmal daran erinnert, daß die Winkelkoordinate μ den Wertebereich $[0,1]$ hat. Nach oben (unten) gerichtete Strahlung wird durch das Superskript $+$ ($-$) an I bzw. durch das Argument μ ($-\mu$) von p gekennzeichnet. Der erste Term auf der rechten Seite beschreibt jeweils die Extinktion, der zweite und dritte Term die mehrfach gestreute Strahlung aus dem unteren bzw. oberen Halbraum, der vierte Term die Strahlung, die nach Reflexion am Boden einmal gestreut wurde, und der fünfte Term die Strahlung, die einmal gestreut wurde, ohne vorher am Boden reflektiert worden zu sein. Die Randbedingungen für die

diffuse Strahlung lauten:

$$I_{dif}^-(z_0, \mu, \phi) = 0$$

$$I_{dif}^+(0, \mu, \phi) = \frac{A}{\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^1 d\mu' \mu' I_{dif}^-(0, \mu', \phi'). \quad (4.13)$$

An dieser Stelle wird deutlich, warum eine getrennte Betrachtung der nach oben und nach unten gerichteten Strahlung sinnvoll ist: Am Oberrand der Atmosphäre ist die nach unten gerichtete diffuse Strahlung Null, während die nach oben gerichtete Strahlung einen endlichen Wert größer als Null annimmt. An der Stelle $\theta = 90^\circ$ hat I_{dif} also eine Unstetigkeitsstelle, die durch die Einführung von I_{dif}^+ und I_{dif}^- vermieden wird. Das Argument z und das Subskript „*dif*“ werden im folgenden zur Vereinfachung der Notation weggelassen.

Die Separation der Azimutabhängigkeit

Um das Gleichungssystem (4.12) zu lösen, werden die Strahlung I^\pm und die Phasenfunktion p in eine Fourier-Reihe nach dem relativen Azimutwinkel $\phi - \phi_0$ zwischen der Beobachtungsrichtung und der Einfallsrichtung der solaren Strahlung entwickelt:

$$I^\pm(\mu, \phi) = \sum_{m=0}^M (2 - \delta_{m0}) I^{\pm m}(\mu) \cos[m(\phi - \phi_0)]$$

$$p(\mu, \mu', \phi, \phi') = \sum_{m=0}^M (2 - \delta_{m0}) p^m(\mu, \mu') \cos[m(\phi - \phi')]. \quad (4.14)$$

Die Entwicklung der Phasenfunktion in eine Fourier-Reihe beruht auf der Annahme, daß die Phasenfunktion nur vom Streuwinkel Θ abhängt, der mit den Zenit- und Azimutwinkeln des einfallenden und des gestreuten Strahls über die Beziehung

$$\cos \Theta = \cos \theta \cos \theta' + \sqrt{1 - \cos^2 \theta} \sqrt{1 - \cos^2 \theta'} \cos(\phi - \phi') \quad (4.15)$$

verknüpft ist. Diese Annahme ist für sphärische sowie zufällig orientierte nicht-sphärische Streuer erfüllt. Sie gilt jedoch nicht mehr für in einer Vorzugsrichtung orientierte, nicht-sphärische Streuer, z. B. absinkende Eiskristalle in einer Cirruswolke. Die Entwicklungskoeffizienten p^m lassen sich mit Hilfe der assoziierten Legendre-Polynome berechnen [102].

Durch Einsetzen der Fourier-Reihen (4.14) in das Gleichungssystem (4.12) zerfällt dieses in $M + 1$ nicht mehr vom Azimutwinkel abhängige Gleichungssysteme.

steme für die Entwicklungskoeffizienten $I^{\pm m}$:

$$\begin{aligned}
\mu \frac{dI^{+m}}{dz} &= -\sigma_e I^{+m}(\mu) \\
&+ \frac{\sigma_s}{2} \int_0^1 d\mu' p^m(\mu, \mu') I^{+m}(\mu') \\
&+ \frac{\sigma_s}{2} \int_0^1 d\mu' p^m(\mu, -\mu') I^{-m}(\mu') \\
&+ \delta_{m0} \frac{\sigma_s}{2} A F \mu_0 e^{-\frac{\tau_0}{\mu_0}} \int_0^1 d\mu' p^m(\mu, \mu') e^{-\frac{\tau_0 - \tau}{\mu'}} \\
&+ \frac{\sigma_s}{4} F e^{-\frac{\tau}{\mu_0}} p^m(\mu, -\mu_0) \\
\mu \frac{dI^{-m}}{dz} &= -\sigma_e I^{-m}(\mu) \\
&+ \frac{\sigma_s}{2} \int_0^1 d\mu' p^m(-\mu, \mu') I^{+m}(\mu') \\
&+ \frac{\sigma_s}{2} \int_0^1 d\mu' p^m(-\mu, -\mu') I^{-m}(\mu') \\
&+ \delta_{m0} \frac{\sigma_s}{2} A F \mu_0 e^{-\frac{\tau_0}{\mu_0}} \int_0^1 d\mu' p^m(-\mu, \mu') e^{-\frac{\tau_0 - \tau}{\mu'}} \\
&+ \frac{\sigma_s}{4} F e^{-\frac{\tau}{\mu_0}} p^m(-\mu, -\mu_0)
\end{aligned} \tag{4.16}$$

Die zugehörigen Randbedingungen lauten:

$$\begin{aligned}
I^{-m}(z_0, \mu) &= 0, & m = 0, \dots, M \\
I^{+m}(0, \mu) &= 2A \int_0^1 d\mu' \mu' I^{-m}(0, \mu'), & m = 0 \\
I^{+m}(0, \mu) &= 0, & m = 1, \dots, M.
\end{aligned} \tag{4.17}$$

Die Aufgabe besteht nun in der Bestimmung der $I^{\pm m}$. Im folgenden wird auf das Superskript m zur Bezeichnung des m -ten Fourier-Koeffizienten verzichtet.

Die Methode der finiten Differenzen

Zur Lösung des Gleichungssystems (4.16) wird in *GOMETRAN* die von *Barkstrom* entwickelte *Methode der finiten Differenzen* verwendet [3]. Dazu werden zunächst die neuen Variablen H und J eingeführt:

$$\begin{aligned} H(\mu) &= \frac{1}{2}[I^+(\mu) - I^-(\mu)] \\ J(\mu) &= \frac{1}{2}[I^+(\mu) + I^-(\mu)] \end{aligned} \quad (4.18)$$

Damit läßt sich das Gleichungssystem (4.16) in ein System gekoppelter Differentialgleichungen für H und J umformen:

$$\begin{aligned} \mu \frac{dH(\mu)}{dz} + \sigma_e J(\mu) + \frac{\sigma_s}{2} \int_0^1 d\mu' p^+(\mu, \mu') J(\mu') &= Q^+(\mu) \\ \mu \frac{dJ(\mu)}{dz} + \sigma_e H(\mu) + \frac{\sigma_s}{2} \int_0^1 d\mu' p^-(\mu, \mu') H(\mu') &= Q^-(\mu). \end{aligned} \quad (4.19)$$

In Q^+ und Q^- sind die Einfachstreuterme zusammengefaßt. Ferner werden die Abkürzungen

$$\begin{aligned} p^+(\mu, \mu') &= p(\mu, \mu') + p(-\mu, \mu') \\ p^-(\mu, \mu') &= p(\mu, \mu') - p(-\mu, \mu') \end{aligned} \quad (4.20)$$

verwendet. Die neuen Randbedingungen lauten:

$$\begin{aligned} J(z_0, \mu) - H(z_0, \mu) &= 0, & m = 0, \dots, M \\ J(0, \mu) + H(0, \mu) &= 2A \int_0^1 d\mu' \mu' [J(0, \mu') - H(0, \mu')], & m = 0 \\ J(0, \mu) + H(0, \mu) &= 0, & m = 1, \dots, M \end{aligned} \quad (4.21)$$

In einem weiteren Schritt wird nun die Zenitkoordinate μ diskretisiert und das Integral über μ durch eine Gauß-Quadratur (siehe z. B. [127]) approximiert. Für jede Winkelstützstelle μ_l ergibt sich somit ein Gleichungssystem der Form (4.19).

Schließlich werden eine ungerade Anzahl von Höhenstützstellen z_i eingeführt und die Ableitungen nach der Höhe durch diskrete Ausdrücke ersetzt:

$$\left. \frac{dH}{dz} \right|_{z_i} = \frac{H(z_{i+1}) - H(z_{i-1}))}{z_{i+1} - z_{i-1}} \quad \text{und} \quad \left. \frac{dJ}{dz} \right|_{z_i} = \frac{J(z_{i+1}) - J(z_{i-1}))}{z_{i+1} - z_{i-1}}. \quad (4.22)$$

Dabei wird die symmetrische Summe J auf den Höhenstützstellen mit ungeradem Index berechnet, während die antisymmetrische Summe H auf den geraden Stützstellen sowie den Endpunkten des Höhengitters verwendet wird.

Das in dieser Form diskretisierte Gleichungssystem (4.19) einschließlich der Randbedingungen (4.21) läßt sich als Matrixgleichung schreiben:

$$\mathbf{C} \cdot \mathbf{L} = \mathbf{R} \quad (4.23)$$

In die Matrix \mathbf{C} und den Vektor \mathbf{R} gehen nur bekannte Größen ein. Bei N Höhen- und L Winkelstützstellen hat \mathbf{C} die Dimension $[(N+2)L] \times [(N+2)L]$. Der Lösungsvektor \mathbf{L} wird mit Hilfe der sogenannten *LU-Zerlegung* berechnet [127]. Für jede Höhe z_i enthält \mathbf{L} in alternierender Folge die Werte $H(\mu_l)$, $l = 1, \dots, L$, und $J(\mu_l)$, $l = 1, \dots, L$, aus denen sich die gesuchten Fourier-Entwicklungskoeffizienten I^\pm für diese Höhe rekonstruieren lassen. Dazu muß zunächst $H(J)$ auf die ungeraden (geraden) Höhenstützstellen interpoliert werden. Es sei an dieser Stelle noch einmal darauf hingewiesen, daß für jede der $M+1$ Fourier-Komponenten eine Matrixgleichung der Form (4.23) zu lösen ist. Einsetzen der Entwicklungskoeffizienten in Gleichung (4.14) liefert schließlich das gesuchte diffuse Strahlungsfeld. Durch Addition der direkten Strahlung erhält man schließlich das Gesamtstrahlungsfeld.

Abschließend sei erwähnt, daß für die mit der Methode der finiten Differenzen diskretisierte *STG* ebenso wie für die exakte *STG* bei einer konservativen Atmosphäre die Flußerhaltung gewährleistet ist [3]. Bei hinreichend feiner Diskretisierung der Höhen- und Zenitvariablen lassen sich auch solche Atmosphären behandeln, die vertikal sehr inhomogen sind oder stark anisotrop streuen. In der Praxis wird jedoch die zur Verfügung stehende Rechnerkapazität die Anzahl der Höhen- und Winkelstützstellen limitieren.

4.2.3 Die Berechnung der Gewichtsfunktionen

Für die folgenden Betrachtungen wird der Vektor $\mathbf{p}(z) = (p_1(z), \dots, p_J(z))^T$ eingeführt, der die atmosphärischen Parameter $p_j(z)$ enthält, die das Strahlungsfeld beeinflussen (z. B. das Ozonprofil). Die bei den aktuellen Parametern $\mathbf{p}(z)$ am Meßinstrument ankommende spektrale Strahldichte werde mit $I_I(\boldsymbol{\omega}_I, \mathbf{p}(z))$ bezeichnet. In der Größe $\boldsymbol{\omega} := \{z, \mu, \phi\}$ sind dabei die Höhenvariable z , die Zenitvariable $\mu = \cos \theta$ und die Azimutvariable ϕ zusammengefaßt. Die Entwicklung von I_I in eine funktionale Taylor-Reihe um einen mittleren Atmosphärenzustand $\bar{\mathbf{p}}(z)$ liefert in erster Ordnung:

$$I_I(\boldsymbol{\omega}_I, \mathbf{p}(z)) = I_I(\boldsymbol{\omega}_I, \bar{\mathbf{p}}(z)) + \sum_{j=1}^J \int_0^{z_0} \frac{\delta I_I(\boldsymbol{\omega}_I, \mathbf{p}(z))}{\delta p_j(z)} \Big|_{\bar{\mathbf{p}}(z)} \delta p_j(z) dz, \quad (4.24)$$

wobei z_0 die Höhe am Oberrand der Atmosphäre ist. Die Funktional-Ableitungen

$$w_j(z, \boldsymbol{\omega}_I) := \frac{\delta I_I(\boldsymbol{\omega}_I, \mathbf{p}(z))}{\delta p_j(z)} \Big|_{\bar{\mathbf{p}}(z)} \quad (4.25)$$

bezeichnet man als *Gewichtsfunktionen*. Sie hängen vom „mittleren“ Atmosphärenzustand $\bar{\mathbf{p}}(z)$, von der Meßgeometrie und von der betrachteten Wellenlänge ab. Die Größe $w_j(z, \boldsymbol{\omega}_I) \delta p_j(z) dz$ beschreibt die durch eine infinitesimale Variation des Parameters p_j in der Höhe z hervorgerufene Änderung der am Instrument ankommenden Strahldichte. Gleichung (4.24) und (4.25) lassen sich zusammenfassen zu

$$\delta I_I(\boldsymbol{\omega}_I) = \sum_{j=1}^J \int_0^{z_0} w_j(z, \boldsymbol{\omega}_I) \delta p_j(z) dz. \quad (4.26)$$

Hierbei handelt es sich um eine *Fredholmsche Integralgleichung 1. Art* mit den Kernen $w_j(z, \boldsymbol{\omega}_I)$. Die Lösung dieser Gleichung, d. h. die Bestimmung der Abweichungen δp_j der aktuellen Atmosphärenparameter p_j von einem „mittleren“ klimatologischen Wert \bar{p}_j ist gerade das Ziel der Inversion von *GOME* Messungen. Darauf wird ausführlich in Kapitel 5 eingegangen.

Die Gewichtsfunktionen lassen sich natürlich immer gemäß ihrer funktionalen Definition (4.25) mit Hilfe numerischer Störungsrechnung bestimmen. Diese Vorgehensweise ist allerdings bei der großen Anzahl von Höhengniveaus und Wellenlängen, die für die Ableitung von Ozonprofilen aus *GOME*-Messungen erforderlich ist, sehr rechenzeitintensiv. Die in *GOMETRAN* angewendete Methode der finiten Differenzen erlaubt jedoch die quasi-analytische Berechnung der Gewichtsfunktionen, wodurch die Auswertung großer Datenmengen überhaupt erst möglich wird. Eine detaillierte Beschreibung dieses neuartigen Verfahrens findet sich in [139]. Die mathematischen Grundlagen werden im folgenden kurz skizziert.

Die *STG* für die diffuse Strahlung läßt sich unter Verwendung des Integro-Differentialoperators

$$P := \mu \frac{d}{dz} + \sigma_e(z) - \frac{\sigma_s(z)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' p(z, \mu, \mu', \phi, \phi') \quad (4.27)$$

schreiben als (vgl. Gl. (4.12))

$$PI(\boldsymbol{\omega}) = Q(\boldsymbol{\omega}). \quad (4.28)$$

Im „Quellterm“ Q werden dabei die Einfachstreuterme zusammengefaßt. Führt man nun eine kleine Störung der atmosphärischen Parameter ein, so hat dies entsprechende Variationen von I , Q und P zur Folge. Für eine kleine Störung besteht folgender linearer Zusammenhang zwischen den Variationen:

$$P\delta I(\boldsymbol{\omega}) = \delta Q(\boldsymbol{\omega}) - \delta PI(\boldsymbol{\omega}) =: \delta R(\boldsymbol{\omega}). \quad (4.29)$$

Diese Gleichung für δI ist das Analogon zu Gleichung (4.28) für I , wobei die Variation δR als Quelle der Variationen der diffusen Strahlung interpretiert werden

kann. Da in beiden Gleichungen derselbe Operator P auftaucht und außerdem dieselben Randbedingungen gelten, lassen sich I_I und δI_I mit Hilfe der zum Operator P gehörigen Green-Funktion $G(\boldsymbol{\omega}_I, \boldsymbol{\omega})$ darstellen als

$$I_I(\boldsymbol{\omega}_I) = \int_{V(\boldsymbol{\omega})} d\boldsymbol{\omega} G(\boldsymbol{\omega}_I, \boldsymbol{\omega}) Q(\boldsymbol{\omega}), \quad (4.30)$$

$$\delta I_I(\boldsymbol{\omega}_I) = \int_{V(\boldsymbol{\omega})} d\boldsymbol{\omega} G(\boldsymbol{\omega}_I, \boldsymbol{\omega}) \delta R(\boldsymbol{\omega}). \quad (4.31)$$

Die Integration über das Volumen $V(\boldsymbol{\omega})$ ist dabei gegeben durch

$$\int_{V(\boldsymbol{\omega})} d\boldsymbol{\omega} = \int_0^{z_0} dz \int_0^{2\pi} d\phi \int_{-1}^1 d\mu. \quad (4.32)$$

Die Variation δR kann man formal schreiben als

$$\delta R(\boldsymbol{\omega}) = \sum_{j=1}^J \int_0^{z_0} dz' \vartheta_j(z', \boldsymbol{\omega}) \delta p_j(z'), \quad (4.33)$$

wobei sich die Hilfsfunktionen ϑ_j aus bekannten Größen ableiten lassen. Einsetzen von Gleichung (4.33) in Gleichung (4.31) und Vertauschen der Summations- und Integrationsreihenfolge liefert

$$\delta I_I(\boldsymbol{\omega}_I) = \sum_{j=1}^J \int_0^{z_0} dz' \delta p_j(z') \int_{V(\boldsymbol{\omega})} d\boldsymbol{\omega} \vartheta_j(z', \boldsymbol{\omega}) G(\boldsymbol{\omega}_I, \boldsymbol{\omega}). \quad (4.34)$$

Durch Vergleich mit Gleichung (4.26) ergibt sich

$$w_j(z, \boldsymbol{\omega}_I) = \int_{V(\boldsymbol{\omega})} d\boldsymbol{\omega} \vartheta_j(z, \boldsymbol{\omega}) G(\boldsymbol{\omega}_I, \boldsymbol{\omega}). \quad (4.35)$$

Dieser Ausdruck für die Gewichtsfunktionen enthält keine Funktional-Ableitung mehr, sondern nur noch die Hilfsfunktionen ϑ_j und die Green-Funktion $G(\boldsymbol{\omega}_I, \boldsymbol{\omega})$. Für die numerische Lösung der *STG* werden die Operatoren durch ihre darstellenden Matrizen ersetzt. Die Green-Funktion entspricht dann gerade der Inversen der den Operator P darstellenden Matrix. Diese Inverse muß für die Lösung der *STG* in jedem Fall berechnet werden. Die Gewichtsfunktionen ergeben sich daraus automatisch ohne nennenswerten zusätzlichen Rechenaufwand. Dies ist ein entscheidender Vorteil gegenüber der zeitaufwendigen Berechnung der Gewichtsfunktionen mittels numerischer Störungsrechnung.

4.2.4 Die Beschreibung der Atmosphäre und der Erdoberfläche

In diesem Abschnitt wird ein kurzer Überblick über die in *GOMETRAN* implementierten Atmosphärenbestandteile und ihren Einfluß auf das Strahlungsfeld gegeben.

Spurengase

In *GOMETRAN* werden alle atmosphärischen Spurengase berücksichtigt, die im UV-sichtbaren Spektralbereich nennenswerte Absorption aufweisen (siehe Tabelle 4.1). Das Vertikalprofil des Absorptionskoeffizienten eines Spurengases erhält man durch Multiplikation des entsprechenden Absorptionsquerschnitts mit dem Teilchenzahldichteprofil. Die in dieser Arbeit verwendeten Absorptionsquerschnitte von O_3 und NO_2 wurden mit dem *GOME* Instrument selbst gemessen und sind daher bereits mit der *GOME* Spaltfunktion gefaltet [21, 24]. Um die Temperaturabhängigkeit der Absorptionsquerschnitte korrekt beschreiben zu können, wurden die Messungen bei verschiedenen für die Atmosphäre relevanten Temperaturen durchgeführt. In *GOMETRAN* werden dann für jede Höschicht die der dort herrschenden Temperatur entsprechenden Absorptionsquerschnitte verwendet. Die Teilchenzahldichteverteilungen stammen aus einer globalen „Klimatologie“, die mit dem zweidimensionalen chemo-dynamischen Modell des Max-Planck Instituts für Chemie berechnet wurde [18]. Für jeden Monat stehen Teilchenzahldichteprofile für die in Tabelle 4.1 genannten Spurengase mit einer meridionalen Auflösung von 10° zur Verfügung. Die einzige Ausnahme ist die Teilchendichteverteilung für SO_2 , die der US-Standardatmosphäre entnommen wird. Für Ozon kann alternativ auch die aus Satellitendaten und Ozonsondenmessungen zusammengestellte Klimatologie von *Fortuin und Kelder* [59] verwendet werden.

Spurengas	Referenz
O_3	Burrows et al., 1998b
NO_2	Burrows et al., 1998a
ClO	Simon et al., 1989
OCIO	Wahner et al., 1987
BrO	Wahner et al., 1988
HCHO	R. Meller (persönl. Mitteilung)
SO_2	Hearn und Jones, 1991
NO_3	NASA/JPL, 1992
O_4	Greenblatt et al., 1990

Tabelle 4.1: Referenzen für die Absorptionsquerschnitte der in *GOMETRAN* implementierten Spurengase.

Rayleigh-Streuung und Ring-Effekt

Die Streuung elektromagnetischer Strahlung an Teilchen, deren Lineardimension sehr viel kleiner als die eingestrahlte Wellenlänge ist, wird als *Rayleigh-Streuung* bezeichnet. In der Atmosphäre ist Rayleigh-Streuung im solaren Spektralbereich im wesentlichen Streuung an N_2 - und O_2 -Molekülen, die in trockener Luft zusammen etwa 99 Volumenprozent ausmachen. Der *Rayleigh-Streuquerschnitt* C_R ist gegeben durch [62]:

$$C_R = \frac{32\pi^3(m-1)^2}{3N^2\lambda^4} F_K. \quad (4.36)$$

Dabei ist λ die eingestrahlte Wellenlänge, N die Teilchendichte und m der (wellenlängenabhängige) Brechungsindex von Luft bei dem gegebenen Druck und der gegebenen Temperatur. Der *King-Korrekturfaktor* F_K läßt sich schreiben als

$$F_K = \frac{6+3\delta}{6-7\delta}, \quad (4.37)$$

wobei der *Depolarisationsfaktor* δ ein Maß für die Anisotropie der Streuer ist. Für isotrope Streuer ist $\delta = 0$ und damit $F_K = 1$. In der Literatur werden für den Depolarisationsfaktor von Luft Werte zwischen 0.0279 und 0.0350 angegeben [175]. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die wellenlängenabhängigen Werte von *Bates* verwendet [5]. Der *Rayleigh-Streukoeffizient* folgt aus der Multiplikation von C_R mit der Luftdichte. Die auf 4π normierte *Rayleigh-Phasenfunktion* als Funktion des Streuwinkels Θ ist gegeben durch

$$p_R(\Theta) = \frac{3}{2} \cdot \frac{(1+\delta) + (1-\delta)\cos^2\Theta}{2+\delta}. \quad (4.38)$$

Dieser Ausdruck geht für $\delta = 0$ in die Phasenfunktion eines idealen Dipols über.

Der größte Teil der gemäß Gleichung (4.36) gestreuten Strahlung wird elastisch gestreut. Einige Prozent der eingestrahlten Strahlung werden aber auch inelastisch gestreut, d. h. das gestreute Photon hat eine andere Wellenlänge als das eingestrahlte. Der mit Abstand wichtigste inelastische Streuprozess ist die *Rotations-Raman-Streuung (RRS)*. Wieviel Energie dabei auf die einzelnen Raman-Linien entfällt, läßt sich aus den quantenmechanischen Parametern von O_2 und N_2 ableiten [28]. Die inelastische Streuung solarer Strahlung hat zur Folge, daß die solaren Fraunhofer-Linien im direkten Sonnenlicht tiefer sind als in gestreuter Sonnenstrahlung. Für diese „Auffüllung“ der solaren Fraunhofer-Linien, die erstmals von *Shefov* [143] sowie von *Grainger und Ring* [63] beschrieben wurde, hat sich der Name *Ring-Effekt* eingebürgert. Am *IUP* wurde eine Version von *GOMETRAN* entwickelt, die die *RRS* berücksichtigt und die im folgenden als *GOMETRAN-RRS* bezeichnet wird [161]. Die entsprechenden Strahlungstransportrechnungen sind allerdings extrem rechenzeitintensiv, was die „on-line“ Verwendung für die *GOME* Datenauswertung ausschließt. Statt dessen wird auf

eine mit *GOMETRAN-RRS* berechnete Datenbank sogenannter *Ring-Spektren* zurückgegriffen, die wie folgt definiert sind:

$$RS = \ln \frac{I_{rrs}}{I_{no\ rrs}}. \quad (4.39)$$

Dabei bezeichnet I_{rrs} bzw. $I_{no\ rrs}$ die am Oberrand der Atmosphäre in Zenitrichtung gestreute Erdradianz mit bzw. ohne Berücksichtigung der *RRS*. Diese Ring-Spektren hängen vom Sonnenzenitwinkel und von der Zusammensetzung der Atmosphäre ab. Abbildung 4.1 zeigt ein typisches Beispiel.

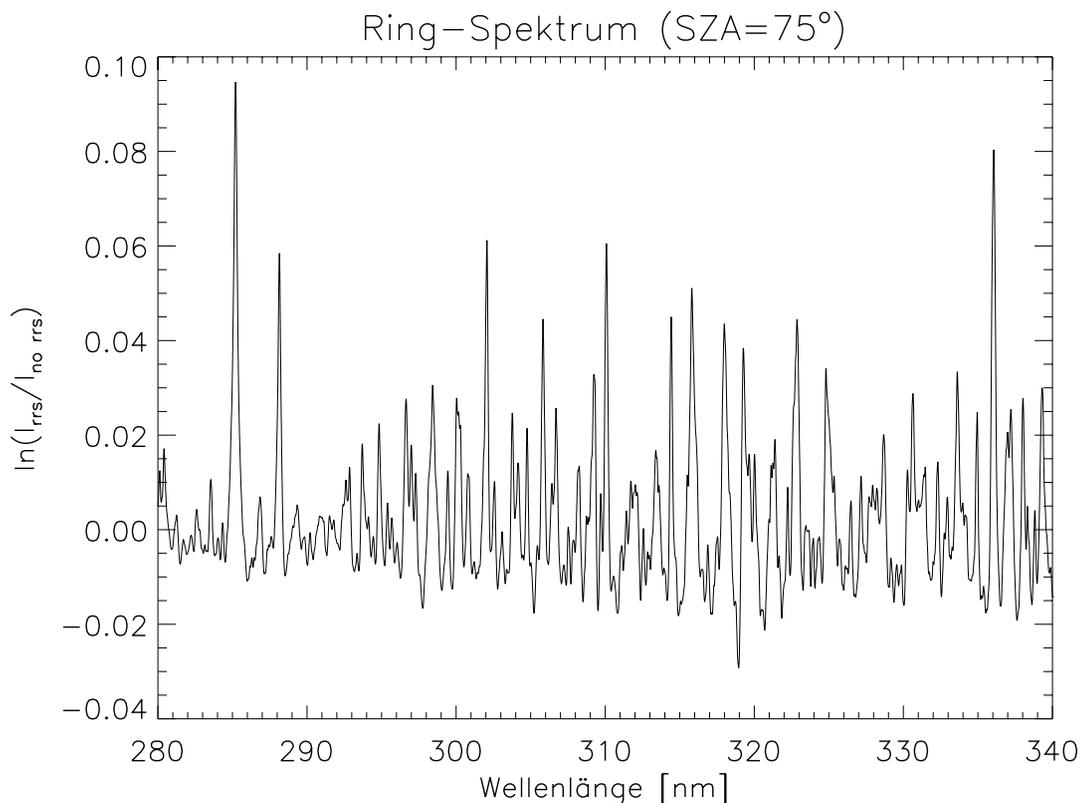


Abbildung 4.1: Ring-Spektrum für einen Sonnenzenitwinkel von 75° und eine typische maritime Atmosphäre in mittleren nördlichen Breiten.

Aerosole

Als Aerosolpartikel bezeichnet man Schwebeteilchen in der Luft mit typischen Radien zwischen $0.01\ \mu\text{m}$ und $10\ \mu\text{m}$. Sie beeinflussen den Strahlungstransport im solaren Spektralbereich vor allem durch Streuung, während Absorption eine

relativ geringe Rolle spielt. Der *Aerosolstreuoeffizient* $\sigma_{s,aer}$ und der *Aerosolabsorptionskoeffizient* $\sigma_{a,aer}$ sind gegeben durch:

$$\sigma_{s,aer}(z) = C_{s,aer} \rho_{aer}(z) \quad (4.40)$$

$$\sigma_{a,aer}(z) = C_{a,aer} \rho_{aer}(z), \quad (4.41)$$

Dabei ist $C_{s,aer}$ bzw. $C_{a,aer}$ der Aerosolstreu- bzw. -absorptionsquerschnitt und ρ_{aer} die Aerosolteilchenzahldichte. Im Gegensatz zum Rayleigh-Streuquerschnitt und zur Rayleigh-Phasenfunktion, die sich mit Gleichung (4.36) und (4.38) sehr einfach berechnen lassen, sind die entsprechenden Größen für Aerosole komplizierte, nicht mehr analytisch darstellbare Funktionen der Wellenlänge und der mikrophysikalischen Teilcheneigenschaften (Brechungsindex, Größenspektrum der Teilchen, Teilchenform). Letztere sind ebenso wie die Teilchenzahldichteverteilung räumlich und zeitlich sehr variabel, was die modellhafte Beschreibung zusätzlich erschwert. Grob gesprochen zeigt die Aerosolextinktion eine $\lambda^{-1.5}$ - bis $\lambda^{-0.5}$ - Abhängigkeit von der Wellenlänge.

Für die Klasse der homogenen, sphärischen Teilchen lassen sich die optischen Parameter aus der *Mie-Theorie* ableiten. Am IUP wurde hierfür das Programm IUPMIE [80] entwickelt, welches auf dem Mie-Code von Wiscombe [170] aufbaut. Mit diesem Programm wurden entsprechend den Empfehlungen der WMO [172] Streu- und Absorptionsquerschnitte sowie Phasenfunktionen für eine Vielzahl sogenannter *Aerosolkomponenten* (z. B. Ruß, Seesalzpartikel etc.) berechnet. Diese können in GOMETRAN zu beliebigen *Aerosoltypen* zusammengemischt werden. Auch die Vertikalverteilung der Teilchenzahldichte kann frei vorgegeben werden. Zusätzlich zu dieser Aerosolparametrisierung, die im Detail in [79] beschrieben ist, ist in GOMETRAN das LOWTRAN-7-Aerosolmodell implementiert [89].

Wolken

Bereits die Alltagserfahrung zeigt, daß Wolken einen großen Einfluß auf den atmosphärischen Strahlungstransport haben. Für GOMETRAN wurden zwei Parametrisierungen für troposphärische Wasserwolken entwickelt [94, 96]:

1. Wolken als Lagen:

Wolken werden als planparallele, homogene Schichten endlicher vertikaler Ausdehnung in die Atmosphäre eingefügt. Die Wolkenober- und -untergrenzen sind dabei frei wählbar. Es stehen verschiedene Wolkentypen zur Verfügung, die durch ihr Tropfengrößenspektrum definiert sind. Der Strahlungstransport innerhalb der Wolke wird unter Berücksichtigung der Mehrfachstreuung exakt berechnet. Aufgrund der häufig hohen optischen Dicke von Wolken und ihrer stark asymmetrischen Phasenfunktionen ist dazu allerdings eine sehr feine Höhen- und Winkeldiskretisierung erforderlich. Dies hat einen sehr hohen Rechenaufwand zur Folge, weshalb diese Parametrisierung im Rahmen dieser Arbeit nicht verwendet wurde.

2. Wolken als reflektierende Oberflächen:

Ist man nicht am Strahlungsfeld innerhalb und unterhalb der Wolke sondern nur an ihrem Reflexionsverhalten interessiert, so kann man die Wolke als bidirektional reflektierende Oberfläche behandeln. Das für den jeweiligen Wolkentyp charakteristische Reflexionsmuster wird dabei durch Reflexionsfunktionen beschrieben, die von den Zenitwinkeln des einfallenden und des reflektierten Strahls sowie dem relativen Azimutwinkel beider Strahlen abhängen. Diese Parametrisierung ist nicht auf Wolken unendlicher optischer Dicke beschränkt, sondern kann bei Verwendung geeigneter Korrekturterme auch auf Wolken endlicher optischer Dicke $\tau > 9$ angewendet werden.

Erdoberfläche

GOMETRAN erlaubt die Beschreibung des Erdbodens als bidirektional reflektierende Oberfläche. Allerdings gibt es nur für eine sehr begrenzte Anzahl von Oberflächentypen Messungen der bidirektionalen Albedo. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher angenommen, daß die Erdoberfläche gemäß dem Lambertschen Kosinusetz reflektiert, wobei die Wellenlängenabhängigkeit der Albedo berücksichtigt wird.

Kapitel 5

Inversionstheorie

5.1 Aufgabenstellung

Bei Fernerkundungsmessungen wird die interessierende Größe nicht direkt, sondern indirekt gemessen. Ist die direkte Messung beispielsweise zu aufwendig oder gar unmöglich, so wird stattdessen eine andere Größe gemessen, die mit der eigentlichen Zielgröße in einem bekannten Zusammenhang steht.

GOME mißt nicht direkt die Ozonverteilung in der Atmosphäre, sondern die von der Erdoberfläche und der Atmosphäre in den Weltraum reflektierte bzw. rückgestreute Strahlung. Die Messung erfolgt bei diskreten Wellenlängen und kann daher durch einen *Meßvektor* \mathbf{y} beschrieben werden:

$$\mathbf{y} = [y_1, y_2, \dots, y_m]^T, \quad m : \text{Anzahl der Wellenlängen.} \quad (5.1)$$

Der *Zustandsvektor* \mathbf{x} ,

$$\mathbf{x} = [x_1, x_2, \dots, x_n]^T, \quad n : \text{Anzahl der Parameter,} \quad (5.2)$$

enthält die Parameter, die durch die Messung bestimmt werden sollen, in dieser Arbeit also das Ozonprofil sowie weitere „skalare“ Parameter (z. B. die Bodenalbedo), auf die in Abschnitt 6.1 noch näher eingegangen wird. Das Ozonprofil ist eine kontinuierliche Funktion der Höhe, die aber zur numerischen Lösung des Problems geeignet diskretisiert werden muß. So kann man beispielsweise die Ozonkonzentrationen an vorgegebenen diskreten Höhen auswerten. Eine andere Möglichkeit ist die Entwicklung des Ozonprofils nach vorgegebenen Funktionen. In diesem Fall sind dann die Entwicklungskoeffizienten zu bestimmen. Der Zusammenhang zwischen Messung und Zielgröße wird, abgesehen vom Meßfehler $\boldsymbol{\varepsilon}$, durch das *Vorwärtsmodell* F beschrieben:

$$\mathbf{y} = F(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}. \quad (5.3)$$

Dabei werden mit dem *Modellparametervektor* \mathbf{b} weitere Parameter berücksichtigt, die zwar die Meßgröße beeinflussen, aber als bekannt vorausgesetzt werden

und daher nicht aus der Messung abgeleitet werden sollen. Dazu zählen beispielsweise die Absorptionsquerschnitte der Spurengase oder die Aerosolphasenfunktionen. Im folgenden wird der Modellparametervektor \mathbf{b} nur noch dort explizit angegeben, wo es zum Verständnis erforderlich ist. Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Vorwärtsmodell *GOMETRAN* wurde bereits in Kapitel 4 vorgestellt.

Häufig können die Vorwärtsmodelle die tatsächlichen physikalischen Vorgänge nicht exakt wiedergeben, d. h. Gleichung (5.3) gilt nur näherungsweise. Abweichungen von der Wirklichkeit können beispielsweise auftreten, wenn die realen Prozesse nicht vollständig bekannt sind, oder wenn sie so kompliziert sind, daß man sich mit Näherungen behelfen muß. Diese sogenannten *Vorwärtsmodellfehler* spielen natürlich bei der Fehleranalyse in Abschnitt 5.4 eine Rolle, werden aber bis dahin zur Vereinfachung der Notation vernachlässigt.

Die Vorhersage des Meßergebnisses \mathbf{y} aus einem gegebenen Zustandsvektor \mathbf{x} wird als *Vorwärtsrechnung* bezeichnet. Das umgekehrte Problem, nämlich die Ableitung einer Schätzung $\hat{\mathbf{x}}$ des Zustandsvektors aus einer gegebenen Messung, bezeichnet man als *Inversion*. Eine ausführliche Darstellung der diskreten Inversionstheorie findet man z. B. in [112] oder in [133]. In den folgenden Abschnitten werden einige Aspekte dargestellt, die für den im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Auswertalgorithmus *FURM* relevant sind: Zunächst werden verschiedene Inversionsverfahren für das lineare Inversionsproblem vorgestellt, wobei der Schwerpunkt auf den beiden in *FURM* implementierten Verfahren, der *Optimal-Estimation-Methode* und der *Kozlov-Informationmatrix-Methode*, liegt. Es folgt die Fehleranalyse sowie die Einführung verschiedener diagnostischer Größen, die eine Aussage über den Informationsgehalt der Messung erlauben. Daran schließt sich die Behandlung nichtlinearer Inversionsprobleme an.

5.2 Linearisierung des Inversionsproblems

Zwischen der am Oberrand der Atmosphäre in den Weltraum abgegebenen Strahlung und der Zusammensetzung der Atmosphäre wird ein moderat nichtlinearer Zusammenhang angenommen. Das Inversionsproblem ist also innerhalb der Fehlergrenzen der Lösung linear, die Lösung selbst muß jedoch iterativ bestimmt werden. Dazu wird im Iterationsschritt $i + 1$ das Vorwärtsmodell $F(\mathbf{x})$ um die vorhergehende Schätzung \mathbf{x}_i linearisiert:

$$\mathbf{y} = \mathbf{y}_i + \mathbf{K}_i(\mathbf{x} - \mathbf{x}_i) + \boldsymbol{\varepsilon}. \quad (5.4)$$

Dabei ist \mathbf{y}_i das mit der Schätzung \mathbf{x}_i berechnete Meßspektrum. Die $(m \times n)$ -Matrix \mathbf{K}_i bezeichnet man als *Gewichtsfunktionsmatrix*. Sie ist gegeben durch

$$\mathbf{K}_i = \nabla_{\mathbf{x}} F(\mathbf{x})|_{\mathbf{x}_i} \quad \text{mit den Elementen} \quad K_{i,kl} = \left. \frac{\partial F_k(\mathbf{x})}{\partial x_l} \right|_{\mathbf{x}_i}. \quad (5.5)$$

Die Inversionsaufgabe hat sich also auf die Lösung eines inhomogenen linearen Gleichungssystems reduziert. Daher werden in diesem Kapitel zunächst Lösungsverfahren für das lineare Problem vorgestellt. Hierbei wird etwas weiter ausgeholt, um die Vorteile der in dieser Arbeit verwendeten Informationsmatrix-Methode herauszuarbeiten. Die Übertragung auf moderat nichtlineare Probleme erfolgt in Abschnitt 5.5.1.

5.3 Inversionsverfahren für lineare Probleme

5.3.1 Die direkte Inversion

Ausgangspunkt ist das lineare Gleichungssystem

$$\mathbf{y} = \mathbf{K}\mathbf{x} \quad \text{mit} \quad \mathbf{y} \in \mathbb{R}^m, \quad \mathbf{x} \in \mathbb{R}^n, \quad \mathbf{K} \in \mathbb{R}^{m \times n}, \quad (5.6)$$

bestehend aus m Gleichungen und n Unbekannten. Die Anzahl linear unabhängiger Gleichungen nennt man auch *Rang* r der Matrix \mathbf{K} .

Falls $r = m = n$ ist, nennt man das Gleichungssystem *wohlbestimmt*. Die Matrix \mathbf{K} ist dann *regulär* und somit invertierbar, was die eindeutige Lösung

$$\mathbf{x} = \mathbf{K}^{-1}\mathbf{y} \quad (5.7)$$

liefert. Dieser Idealfall tritt bei physikalischen Anwendungen äußerst selten auf. Häufig stehen weniger linear unabhängige Gleichungen als Unbekannte zur Verfügung, d. h. $r < n$. Derartige Gleichungssysteme bezeichnet man als *unterbestimmt*. Die Matrix \mathbf{K} ist dann *singulär*, die Inverse \mathbf{K}^{-1} existiert also nicht. Unter einem *schlecht konditionierten* Problem versteht man ein Problem mit fast singulärer Matrix \mathbf{K} . In diesem Fall existiert die Inverse \mathbf{K}^{-1} zwar, sie hat aber sehr große Eigenwerte, was dazu führt, daß bereits kleine Änderungen in \mathbf{y} (z. B. Meßfehler) drastische Änderungen in \mathbf{x} nach sich ziehen können. Die Folge dieser Fehlerverstärkung sind stark oszillierende, instabile Lösungen.

5.3.2 Die Lösung im Sinne der kleinsten Quadrate

Häufig liegen bei einem Experiment mehr Messungen als gesuchte Größen vor. So werden beispielsweise bei der Ableitung von O_3 -Profilen aus *GOME*-Daten zur Bestimmung von weniger als hundert Parametern Messungen bei mehreren hundert Wellenlängen verwendet. Ist insbesondere $m > n = r$, so spricht man von einem *überbestimmten* Problem im strengen Sinne. Allerdings werden meist alle Probleme mit $m > n$ als überbestimmt bezeichnet. Falls aber $n > r$, ist das Problem gleichzeitig unterbestimmt. Man sollte hier also treffender von *gemischtbestimmten* Problemen sprechen, bei denen einige Komponenten des Lösungsvektors überbestimmt, andere jedoch unterbestimmt sind.

Bei überbestimmten Problemen widersprechen sich in der Regel einige der Gleichungen, so daß keine exakte Lösung existiert. Man sucht daher meist die beste Annäherung an die Lösung, indem man die quadratische Abweichung zwischen \mathbf{Kx} und \mathbf{y} minimiert. Dazu berechnet man die Ableitung des Ausdrucks $(\mathbf{Kx} - \mathbf{y})^T (\mathbf{Kx} - \mathbf{y})$ nach \mathbf{x} und setzt diese gleich Null. Als Ergebnis dieser Minimierungsaufgabe erhält man

$$\hat{\mathbf{x}} = (\mathbf{K}^T \mathbf{K})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{y}. \quad (5.8)$$

Die Schreibweise $\hat{\mathbf{x}}$ soll andeuten, daß es sich nicht um eine exakte Lösung des Gleichungssystems handelt, sondern um die beste Schätzung im Sinne der kleinsten Quadrate („least squares“). Ähnlich wie bei der direkten Inversion können sich auch bei der Methode der kleinsten Quadrate instabile Lösungen ergeben, wenn die Matrix $\mathbf{K}^T \mathbf{K}$ fast singulär ist.

5.3.3 Die Lösung mit Zusatzbedingungen

Bei schlecht konditionierten Problemen läßt sich die Lösung stabilisieren, indem man von der Messung unabhängige Zusatzbedingungen an den Zustand \mathbf{x} stellt. Aus mathematischer Sicht können diese Zusatzbedingungen im Prinzip willkürlich gewählt werden. Sie sollen ja lediglich die Matrix $\mathbf{K}^T \mathbf{K}$ regularisieren. Tatsächlich wird man aber die Zusatzbedingungen an das jeweils vorliegende Problem anpassen. In der Regel werden einfache quadratische Formen des Typs $\mathbf{x}^T \mathbf{Hx}$ minimiert. Die *Regularisierungsmatrix* \mathbf{H} ist gewöhnlich eine einfache, (nahezu) diagonale Matrix. Sucht man beispielsweise die Lösung mit der kleinsten Norm $\mathbf{x}^T \mathbf{x}$, so ist \mathbf{H} die $(n \times n)$ -Einheitsmatrix. Ebenso kann man die Norm der ersten oder zweiten Ableitung von \mathbf{x} minimieren. Die entsprechenden Regularisierungsmatrizen werden in [158] explizit angegeben.

Im Gegensatz zur Methode der kleinsten Quadrate wird bei der Inversion mit Zusatzbedingung („constrained linear inversion“) nicht das Minimum von $(\mathbf{Kx} - \mathbf{y})^T (\mathbf{Kx} - \mathbf{y})$ gesucht. Man geht vielmehr davon aus, daß die quadratische Abweichung zwischen \mathbf{Kx} und \mathbf{y} ungefähr dem Meßfehler entspricht. Man betrachtet also alle Lösungen, die die folgende Bedingung erfüllen:

$$(\mathbf{Kx} - \mathbf{y})^T (\mathbf{Kx} - \mathbf{y}) = \boldsymbol{\varepsilon}^T \boldsymbol{\varepsilon} = \text{const}. \quad (5.9)$$

Aus dieser Lösungsmenge wird dann mit Hilfe der Minimierungsbedingung

$$\mathbf{x}^T \mathbf{Hx} \stackrel{!}{=} \min \quad (5.10)$$

die Lösung $\hat{\mathbf{x}}$ ausgewählt. Mathematisch äquivalent kann man auch sagen: Man minimiert die quadratische Form $\mathbf{x}^T \mathbf{Hx}$ unter der Nebenbedingung $(\mathbf{Kx} - \mathbf{y})^T (\mathbf{Kx} - \mathbf{y}) - \boldsymbol{\varepsilon}^T \boldsymbol{\varepsilon} = 0$. Gemäß der *Lagrangeschen Multiplikatormethode* muß die Lösung dieser Minimierungsaufgabe notwendigerweise folgende Bedingung erfüllen:

$$\nabla_{\mathbf{x}}(\mathbf{x}^T \mathbf{Hx}) = \lambda \nabla_{\mathbf{x}}[(\mathbf{Kx} - \mathbf{y})^T (\mathbf{Kx} - \mathbf{y}) - \boldsymbol{\varepsilon}^T \boldsymbol{\varepsilon}], \quad (5.11)$$

wobei die eindeutig bestimmte Zahl λ als *Lagrange-Multiplikator* bezeichnet wird. Unter Verwendung des *Regularisierungsparameters* $\gamma = \lambda^{-1}$ kann man diese Bedingung auch folgendermaßen formulieren:

$$(\mathbf{K}\mathbf{x} - \mathbf{y})^T (\mathbf{K}\mathbf{x} - \mathbf{y}) + \gamma \mathbf{x}^T \mathbf{H} \mathbf{x} \stackrel{!}{=} \min. \quad (5.12)$$

Als Lösung dieser Minimierungsaufgabe findet man

$$\hat{\mathbf{x}} = (\mathbf{K}^T \mathbf{K} + \gamma \mathbf{H})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{y}. \quad (5.13)$$

Es muß also nicht mehr die fast singuläre Matrix $\mathbf{K}^T \mathbf{K}$ invertiert werden, sondern die regularisierte Matrix $(\mathbf{K}^T \mathbf{K} + \gamma \mathbf{H})$. Der Wert von γ ist im Prinzip im Rahmen des Lagrange-Formalismus festgelegt. In der Praxis wird er jedoch empirisch bestimmt, denn durch geschickte Wahl von γ läßt sich die Stärke der Regularisierung an das jeweils vorliegende Problem anpassen.

5.3.4 Die Optimal-Estimation-Methode

Für viele Regionen der Erde liegen teilweise jahrzehntelange Meßreihen atmosphärischer Ozonprofile vor, aus denen sich klimatologische Mittelwerte sowie die Variabilität der Profile ableiten lassen. Diese bereits vor der aktuellen Messung vorhandene Information über die zu bestimmende Größe bezeichnet man als *A-priori-Wissen*. Es ist naheliegend, das A-priori-Wissen als Zusatzbedingung für die Regularisierung des Inversionsproblems zu verwenden, indem man die Lösung mit der geringsten Abweichung vom klimatologischen Mittelwert, dem sogenannten A-priori-Zustand \mathbf{x}_a , bestimmt. Statt durch den Regularisierungsparameter γ kann man die Stärke der Regularisierung auch durch das Verhältnis der Meßfehlerkovarianzmatrix \mathbf{S}_y und der A-priori-Kovarianzmatrix \mathbf{S}_a festlegen. In diesem Fall lautet die Minimierungsaufgabe

$$(\mathbf{K}\mathbf{x} - \mathbf{y})^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{K}\mathbf{x} - \mathbf{y}) + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \stackrel{!}{=} \min. \quad (5.14)$$

Die Diagonalelemente $S_{a,ii}$ der A-priori-Kovarianzmatrix entsprechen den Varianzen der Parameter x_i , die Nichtdiagonalelemente $S_{a,i \neq j}$ sind die Kovarianzen der Parameter x_i und x_j . Die Meßfehlerkovarianzmatrix \mathbf{S}_y ist in der Regel eine Diagonalmatrix, d. h. die einzelnen Meßfehler sind voneinander unabhängig. Je größer der (in den Zustandsraum transformierte) Meßfehler im Vergleich zur Variabilität der gesuchten Parameter ist, desto stärker wird die Lösung vom A-priori-Zustand beeinflusst. Umgekehrt wird bei kleinem Meßfehler die Lösung im wesentlichen von der Messung bestimmt. Die Lösung der Minimierungsaufgabe (5.14) lautet explizit:

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}_a). \quad (5.15)$$

Diese Gleichung wird als n -Form der Optimal-Estimation-Lösung bezeichnet, da die $(n \times n)$ -Matrix $(\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})$ invertiert werden muß. Die zugehörige Lösungskovarianzmatrix ist durch

$$\hat{\mathbf{S}} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \quad (5.16)$$

gegeben. Äquivalent zu Gleichung (5.15) ist die m -Form der Optimal-Estimation-Lösung, bei der eine $(m \times m)$ -Matrix zu invertieren ist:

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T (\mathbf{K} \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T + \mathbf{S}_y)^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}_a). \quad (5.17)$$

Die Lösungskovarianzmatrix lautet in diesem Fall

$$\hat{\mathbf{S}} = \mathbf{S}_a - \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T (\mathbf{K} \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T + \mathbf{S}_y)^{-1} \mathbf{K} \mathbf{S}_a. \quad (5.18)$$

Je nachdem, ob m oder n größer ist, ist die eine oder andere Form der Optimal-Estimation-Lösung numerisch vorteilhafter. Im Algorithmus *FURM* ist die n -Form der Optimal-Estimation-Lösung implementiert. Die m -Form wird daher im folgenden nicht weiter betrachtet.

In Ergänzung zu obiger eher intuitiver Herleitung der Optimal-Estimation-Gleichung sei an dieser Stelle auf die Herleitung aus dem Satz von Bayes verwiesen, die besonders klar die statistische Bedeutung der Optimal-Estimation-Lösung verdeutlicht [130, 133]: Von allen Lösungen des Inversionsproblems, die mit der Messung und der A-priori-Information konsistent sind, ist die Optimal-Estimation-Lösung die wahrscheinlichste.

5.3.5 Die Kozlov-Informationsmatrix-Methode

In den bisherigen Ausführungen wurde stets angenommen, daß die Elemente des Zustandsvektors \mathbf{x} die gesuchten physikalischen Größen selbst sind. Insbesondere bei der Inversion von Vertikalprofilen ist die Anzahl der Elemente des Zustandsvektors häufig deutlich größer als der Rang der Matrix \mathbf{K} . Im Falle der Ableitung von Ozonprofilen aus *GOME*-Messungen besteht \mathbf{x} beispielsweise aus den Ozonkonzentrationen auf 81 äquidistanten Höhengniveaus zwischen 0 und 80 km Höhe, während der Rang von \mathbf{K} typischerweise von der Größenordnung 10 ist. Aus Gründen der numerischen Effizienz ist es wünschenswert, daß der Zustandsvektor nur so viele Elemente hat, wie tatsächlich unabhängige Informationen in der Messung enthalten sind. Bei der Inversion von Profilen kann man die Dimension von \mathbf{x} sehr einfach reduzieren, indem man die Anzahl der Höhengniveaus verringert. Die Auswahl der Höhengniveaus ist allerdings mit einer gewissen Willkür behaftet. Außerdem führt diese Vorgehensweise zu unphysikalischen Diskontinuitäten des Gradienten der betrachteten Größe, z. B. der Ozonkonzentration, an den Stützstellen. Dieses Verfahren ist also nur bedingt zu empfehlen. Eine Alternative ist die Entwicklung des Zustandsvektors nach einer begrenzten Anzahl geeigneter

Vektoren. Dieser Ansatz wird bei der sogenannten *Kozlov-Informationmatrix-Methode* verfolgt. Die theoretischen Grundlagen dieses Verfahrens gehen auf die Arbeit von *Kozlov* zurück [92]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde es erstmals für die Auswertung von Satellitenmessungen adaptiert und getestet.

Ausgangspunkt ist eine Eigenvektorentwicklung der Abweichung zwischen dem gesuchten Zustand \mathbf{x} und dem A-priori-Zustand \mathbf{x}_a :

$$\mathbf{x} - \mathbf{x}_a = \sum_i \beta_i \boldsymbol{\psi}_i. \quad (5.19)$$

Die $\boldsymbol{\psi}_i$ sind die Eigenvektoren der Matrix \mathbf{P} , die folgendermaßen definiert ist:

$$\mathbf{P} = \mathbf{S}_a \mathbf{G} \quad \text{mit} \quad \mathbf{G} = \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}. \quad (5.20)$$

Die Matrix \mathbf{P} ist eng mit dem Informationsgehalt der Messung verknüpft, worauf weiter unten noch näher eingegangen wird. Sie wird daher in dieser Arbeit *Kozlov-Informationmatrix* genannt¹. Bezeichnet man die zugehörigen Eigenwerte mit λ_i , so lautet die Eigenwertgleichung

$$\mathbf{P} \boldsymbol{\psi}_i = \lambda_i \boldsymbol{\psi}_i. \quad (5.21)$$

Die $\boldsymbol{\psi}_i$ bilden eine Basis des Zustandsraums. Da die Matrix \mathbf{P} nicht symmetrisch ist, handelt es sich allerdings nicht um ein orthogonales Basissystem. Wie aus der Definition von \mathbf{P} ersichtlich, hängen die Basisvektoren sowohl von den statistischen Eigenschaften des gesuchten Zustands als auch von Eigenschaften des Meßsystems ab. Ersetzt man in der Optimal-Estimation-Lösung (5.15) den Ausdruck $\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a$ durch die Entwicklung $\sum_i \hat{\beta}_i \boldsymbol{\psi}_i$, so erhält man

$$\sum_i \hat{\beta}_i \boldsymbol{\alpha}_i + \sum_i \hat{\beta}_i \mathbf{S}_a^{-1} \boldsymbol{\psi}_i = \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}_a), \quad (5.22)$$

wobei die Abkürzung

$$\boldsymbol{\alpha}_i = \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} \boldsymbol{\psi}_i \quad (5.23)$$

verwendet wurde. Die $\boldsymbol{\alpha}_i$ bilden eine weitere Basis des Zustandsraums. Für die $\boldsymbol{\alpha}_i$ und $\boldsymbol{\psi}_j$ gilt die Bi-Orthogonalitätsbeziehung

$$\boldsymbol{\psi}_j^T \boldsymbol{\alpha}_i = \delta_{ij} N_i, \quad (5.24)$$

die sich folgendermaßen beweisen läßt: $\boldsymbol{\psi}_j$ ist ein rechter Eigenvektor von $\mathbf{P} = \mathbf{S}_a \mathbf{G}$, d. h. $\mathbf{S}_a \mathbf{G} \boldsymbol{\psi}_j = \lambda_j \boldsymbol{\psi}_j$. Multipliziert man beide Seiten dieser Eigenwertgleichung mit \mathbf{G} , so ergibt sich $\mathbf{G} \mathbf{S}_a \mathbf{G} \boldsymbol{\psi}_j = \lambda_j \mathbf{G} \boldsymbol{\psi}_j$, d. h. $\boldsymbol{\alpha}_j = \mathbf{G} \boldsymbol{\psi}_j$ ist ein rechter

¹In der Informationstheorie hat sich für die Matrix \mathbf{G} der Name (Fisher-)Informationsmatrix eingebürgert.

Eigenvektor von \mathbf{GS}_a und damit ein linker Eigenvektor von $(\mathbf{GS}_a)^T = \mathbf{S}_a\mathbf{G}$. Linke und rechte Eigenvektoren einer Matrix sind aber zueinander orthogonal, was zu beweisen war. Aus Gleichung (5.20), (5.21) und (5.23) folgt

$$\mathbf{S}_a^{-1}\boldsymbol{\psi}_i = \frac{1}{\lambda_i}\boldsymbol{\alpha}_i. \quad (5.25)$$

Multipliziert man Gleichung (5.22) von links mit $\boldsymbol{\psi}_i^T$ und verwendet Gleichung (5.25) und die Orthogonalitätsbeziehung (5.24), so ergibt sich

$$\hat{\beta}_i N_i + \hat{\beta}_i \frac{N_i}{\lambda_i} = \boldsymbol{\psi}_i^T \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}_a). \quad (5.26)$$

Dies läßt sich in folgenden Ausdruck für die gesuchten Entwicklungskoeffizienten $\hat{\beta}_i$ umformen:

$$\hat{\beta}_i = \frac{\lambda_i}{N_i(1 + \lambda_i)} \boldsymbol{\psi}_i^T \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K}\mathbf{x}_a). \quad (5.27)$$

Man erhält also im Gegensatz zur ursprünglichen Optimal-Estimation-Lösung ohne weitere Matrixinversion direkt die gesuchten Entwicklungskoeffizienten. Dies ist eine Folge der Bi-Orthogonalität der Basissysteme $\{\boldsymbol{\psi}_i\}$ und $\{\boldsymbol{\alpha}_i\}$.

Abschließend bleibt zu klären, wieviele Eigenvektoren von \mathbf{P} bei der Entwicklung des Zustandsvektors berücksichtigt werden müssen. Diese Frage läßt sich beantworten, indem man sich den Zusammenhang zwischen der Matrix \mathbf{P} und dem Informationsgehalt der Messung verdeutlicht. Den mit der Messung von \mathbf{x} verbundenen Informationsgewinn kann man durch Vergleich der A-priori-Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung $p_a(\mathbf{x})$ mit der Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung $p_y(\mathbf{x})$ abschätzen. Dabei ist $p_a(\mathbf{x}) d\mathbf{x}$ die Wahrscheinlichkeit vor der Messung dafür, daß \mathbf{x} zwischen \mathbf{x} und $\mathbf{x} + d\mathbf{x}$ liegt, während $p_y(\mathbf{x}) d\mathbf{x}$ die Wahrscheinlichkeit dafür ist, daß \mathbf{x} bei gegebenem Meßergebnis \mathbf{y} zwischen \mathbf{x} und $\mathbf{x} + d\mathbf{x}$ liegt. Diesen Wahrscheinlichkeitsdichteverteilungen kann man eine Entropie gemäß

$$S[p(\mathbf{x})] = - \int p(\mathbf{x}) \log[p(\mathbf{x})/m(\mathbf{x})] d\mathbf{x} \quad (5.28)$$

zuordnen. Die Integration erstreckt sich dabei über den gesamten Zustandsraum. Die Maßfunktion $m(\mathbf{x})$ sorgt dafür, daß das Argument des Logarithmus die Einheit 1 hat, und kann als Konstante gewählt werden. Den Informationsgehalt H der Messung kann man nun als den Betrag interpretieren, um den die Entropie von p_y kleiner als die von p_a ist, d. h.

$$H = S[p_a(\mathbf{x})] - S[p_y(\mathbf{x})]. \quad (5.29)$$

Diese Definition des Informationsgehalts geht auf *Shannon* zurück, der in den vierziger Jahren die Grundlagen der mathematischen Kommunikationstheorie entwickelte [142]. In der Kommunikationstheorie wird bei der Berechnung der Entropie der Logarithmus zur Basis 2 bevorzugt, was die Entropie in „bits“ liefert.

Aus Gründen der mathematischen Bequemlichkeit wird hier aber der natürliche Logarithmus verwendet. In guter Näherung gehorchen $p_a(\mathbf{x})$ und $p_y(\mathbf{x})$ einer Normalverteilung, d. h.

$$\begin{aligned} p_a(\mathbf{x}) &= \frac{1}{(2\pi)^{n/2} |\mathbf{S}_a|^{1/2}} \exp\left[-\frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)\right], \\ p_y(\mathbf{x}) &= \frac{1}{(2\pi)^{n/2} |\hat{\mathbf{S}}|^{1/2}} \exp\left[-\frac{1}{2}(\mathbf{x} - \hat{\mathbf{x}})^T \hat{\mathbf{S}}^{-1} (\mathbf{x} - \hat{\mathbf{x}})\right], \end{aligned} \quad (5.30)$$

wobei mit $|\mathbf{S}_a|$ und $|\hat{\mathbf{S}}|$ die Determinanten von \mathbf{S}_a und $\hat{\mathbf{S}}$ bezeichnet werden. Damit ergibt sich für den Informationsgehalt der Messung [132]

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2} \ln |\mathbf{S}_a| - \frac{1}{2} \ln |\hat{\mathbf{S}}| \\ &= \frac{1}{2} \ln |\mathbf{S}_a \hat{\mathbf{S}}^{-1}|. \end{aligned} \quad (5.31)$$

Dieser Ausdruck läßt sich unter Verwendung von Gleichung (5.16) und (5.20) weiter umformen zu

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2} \ln |\mathbf{S}_a \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{I}_n| \\ &= \frac{1}{2} \ln |\mathbf{P} + \mathbf{I}_n|. \end{aligned} \quad (5.32)$$

Wegen $|\mathbf{P} + \mathbf{I}_n| = \prod_i (\lambda_i + 1)$ erhält man schließlich

$$H = \frac{1}{2} \sum_i \ln(\lambda_i + 1). \quad (5.33)$$

Die Matrix \mathbf{P} ist positiv definit, d. h. alle Eigenwerte sind größer als Null. Jedoch liefern nur Eigenwerte $\lambda_i \gtrsim 1$ einen relevanten Beitrag zum Informationsgehalt. Die zugehörigen Eigenvektoren beschreiben unabhängige Strukturen des gesuchten Zustands, die aus der Messung abgeleitet werden können. Alle anderen Strukturen sind entweder Linearkombinationen dieser Eigenvektoren, verschwinden im Meßrauschen oder können aufgrund der begrenzten Vertikalauflösung des Meßsystems nicht erfaßt werden. Man kann sich also in der Entwicklung (5.19) auf die Eigenvektoren beschränken, deren Eigenwerte von der Größenordnung Eins und größer sind. Diese Eigenvektoren sind eine Basis des mit der Messung tatsächlich zugänglichen *effektiven Zustandsraums*. Seine Dimension ist in der Regel kleiner als die Dimension des Zustandsraums, der durch die Zeilen der Gewichtsfunktionsmatrix \mathbf{K} aufgespannt wird. Es müssen also nur wenige Eigenvektoren berechnet werden, weshalb die Kozlov-Informationsmatrix-Methode numerisch relativ effizient ist. Bei der Auswertung echter Meßspektren kann es aufgrund von Meßfehlern zu instabilen Lösungen kommen. Durch sukzessives Weglassen der höheren Eigenvektoren läßt sich die Lösung häufig ohne zusätzlichen Rechenaufwand stabilisieren. Diese Flexibilität ist ein großer Vorteil der Kozlov-Informationsmatrix-Methode.

5.4 Fehleranalyse und Charakterisierung

Im vorherigen Abschnitt wurden explizite Ausdrücke für die Inversionslösung $\hat{\mathbf{x}}$ und die Lösungskovarianzmatrix $\hat{\mathbf{S}}$ hergeleitet. $\hat{\mathbf{S}}$ berücksichtigt allerdings nur zwei Fehlerquellen, nämlich den Fehler aufgrund des Meßrauschens und den Fehler aufgrund der Einbeziehung von A-priori-Information. An dieser Stelle soll daher die vollständige Fehleranalyse nachgeholt werden (siehe auch [131] und [133]).

Ganz allgemein läßt sich der Meßvektor \mathbf{y} ausdrücken als

$$\mathbf{y} = f(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}. \quad (5.34)$$

Dabei beschreibt die *Vorwärtsfunktion* f den korrekten Zusammenhang zwischen dem durch \mathbf{x} und \mathbf{b} repräsentierten wahren Zustand und der Messung. Im folgenden wird zur Vereinfachung angenommen, daß die Messung frei von systematischen Fehlern ist, so daß $\boldsymbol{\varepsilon}$ dem zufälligen Meßrauschen entspricht.

Die Inversionslösung $\hat{\mathbf{x}}$ hängt von der Messung \mathbf{y} , der Schätzung $\hat{\mathbf{b}}$ der Modellparameter sowie dem A-priori-Zustand \mathbf{x}_a ab:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} &= R(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a) \\ &= R(f(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a). \end{aligned} \quad (5.35)$$

Das für die Inversion verwendete *Vorwärtsmodell* F ist eine mehr oder weniger gute Annäherung an die tatsächliche Vorwärtsfunktion f , d. h.

$$f(\mathbf{x}, \mathbf{b}) = F(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \Delta f(\mathbf{x}, \mathbf{b}). \quad (5.36)$$

Linearisiert man das Vorwärtsmodell um $\mathbf{x} = \mathbf{x}_a$ und $\mathbf{b} = \hat{\mathbf{b}}$ und setzt den sich ergebenden Ausdruck in Gleichung (5.35) ein, so erhält man

$$\hat{\mathbf{x}} = R[F(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}) + \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \Delta f(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a], \quad (5.37)$$

wobei

$$\mathbf{K}_x = \nabla_x F(\mathbf{x}, \mathbf{b}) \quad \text{und} \quad \mathbf{K}_b = \nabla_b F(\mathbf{x}, \mathbf{b}). \quad (5.38)$$

Die Zeilen der Matrix \mathbf{K}_x , die sogenannten *Gewichtsfunktionen* („weighting functions“), geben die Empfindlichkeit der Messung bei der entsprechenden Wellenlänge bezüglich Änderungen des zugehörigen Parameters wieder. Je größer diese Empfindlichkeit ist, desto geringere Variationen in \mathbf{x} lassen sich also in der Messung nachweisen.

Die Linearisierung des Inversionsmodells R bezüglich \mathbf{y} um \mathbf{x}_a und $\hat{\mathbf{b}}$ liefert weiter

$$\hat{\mathbf{x}} = R[F(\mathbf{x}_a, \hat{\mathbf{b}}), \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a] + \mathbf{D}_y[\mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \Delta f(\mathbf{x}, \mathbf{b}) + \boldsymbol{\varepsilon}]. \quad (5.39)$$

Die Zeilen der Matrix

$$\mathbf{D}_y = \nabla_y R(\mathbf{y}, \hat{\mathbf{b}}, \mathbf{x}_a) \quad (5.40)$$

nennt man *Beitragsfunktionen* („contribution functions“). Sie sind ein Maß dafür, wie stark die Messungen bei den verschiedenen Wellenlängen das entsprechende Element \hat{x}_i des Lösungsvektors $\hat{\mathbf{x}}$ beeinflussen. Für die Optimal-Estimation-Lösung findet man durch Differenzieren von Gleichung (5.15) explizit

$$\mathbf{D}_y = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1}. \quad (5.41)$$

Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung (5.39) entspricht der Lösung, die man bei Inversion eines fehlerfreien, aus dem A-priori-Zustand mit dem Vorwärtsmodell berechneten Spektrums erhält. Für ein gut konzipiertes Inversionsverfahren ist diese Lösung gerade wieder der A-priori-Zustand. Berücksichtigt man dies und verwendet ferner die Abkürzung

$$\mathbf{A} = \mathbf{D}_y \mathbf{K}_x, \quad (5.42)$$

so läßt sich Gleichung (5.39) umformen in

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x} &= (\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \\ &+ \mathbf{D}_y \boldsymbol{\epsilon} \\ &+ \mathbf{D}_y \mathbf{K}_b (\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) \\ &+ \mathbf{D}_y \Delta f(\mathbf{x}, \mathbf{b}). \end{aligned} \quad (5.43)$$

Die letzten drei Terme dieser Gleichung beschreiben Abweichungen der Inversionslösung vom wahren Zustand aufgrund des Meßrauschens sowie aufgrund von Fehlern in der Vorwärtsrechnung.

Für den *Fehler aufgrund des Meßrauschens* ist die Kovarianzmatrix gegeben durch

$$\mathbf{S}_R = \mathbf{D}_y \mathbf{S}_y \mathbf{D}_y^T. \quad (5.44)$$

Dabei ist \mathbf{S}_y die Kovarianzmatrix des Meßrauschens.

Die Kovarianzmatrix des *Fehlers aufgrund der Modellparameterfehler* läßt sich schreiben als

$$\mathbf{S}_P = \mathbf{D}_y \mathbf{K}_b \mathbf{S}_b \mathbf{K}_b^T \mathbf{D}_y^T, \quad (5.45)$$

wobei \mathbf{S}_b die Kovarianzmatrix von \mathbf{b} ist. Falls \mathbf{K}_b und \mathbf{S}_b bekannt sind, kann man \mathbf{S}_P direkt berechnen. Häufig bestimmt man \mathbf{S}_P jedoch mit Hilfe von Sensitivitätstests. Dabei wird für einen bekannten Zustand \mathbf{x} eine Messung simuliert und diese dann invertiert, wobei die Modellparameter im Rahmen ihrer Unsicherheit variiert werden. Die statistische Auswertung der Inversionsergebnisse liefert dann eine Schätzung für \mathbf{S}_P .

Fehler in $\hat{\mathbf{x}}$ aufgrund von Vorwärtsmodellfehlern lassen sich relativ einfach abschätzen, wenn ein quasi-exaktes Vorwärtsmodell zum Vergleich zur Verfügung steht. Der größte Vorwärtsmodellfehler des Strahlungstransportmodells *GOMTRAN* besteht darin, daß lediglich die skalare und nicht die vektorielle Strahlungstransportgleichung gelöst wird. Die Auswirkungen dieser Vernachlässigung der Polarisationsseigenschaften des Lichts auf die mit *FURM* invertierten Ozonprofile werden in Kapitel 6.5 diskutiert.

Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung (5.43) beschreibt den Fehler in $\hat{\mathbf{x}}$, der auf die Einbeziehung von A-priori-Information zurückzuführen ist. Diese Fehlerkomponente wird als *Glättungsfehler* („smoothing error“) bezeichnet [133]. Die zugehörige Kovarianzmatrix ist durch

$$\mathbf{S}_G = (\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)\mathbf{S}_a(\mathbf{A} - \mathbf{I}_n)^T \quad (5.46)$$

gegeben, wobei \mathbf{S}_a die A-priori-Kovarianzmatrix ist. Unter Verwendung von Gleichung (5.41) und (5.42) zeigt man

$$\mathbf{S}_R + \mathbf{S}_G = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1}. \quad (5.47)$$

Dieser Ausdruck ist mit der Lösungskovarianzmatrix $\hat{\mathbf{S}}$ identisch.

Neben \mathbf{K}_x und \mathbf{D}_y ist die Matrix \mathbf{A} von besonderer Bedeutung für die Charakterisierung des Meßsystems. Wie aus der Definition (5.42) ersichtlich ist, beschreibt \mathbf{A} die Empfindlichkeit der Lösung $\hat{\mathbf{x}}$ bezüglich des wahren Zustands \mathbf{x} , d. h. $\mathbf{A} = \partial \hat{\mathbf{x}} / \partial \mathbf{x}$. Für die Zeilen von \mathbf{A} sind die Bezeichnungen *Auflösungsfunktionen* („model resolution functions“) und *Glättungsfunktionen* („averaging kernels“) gebräuchlich. Falls der Zustandsvektor \mathbf{x} ein Profil ist, ist die Matrix \mathbf{A} eng mit der Vertikalauflösung der Inversionslösung verknüpft. Dies wird besonders deutlich, wenn man Gleichung (5.43) umformt in

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{D}_y[\boldsymbol{\varepsilon} + \mathbf{K}_b(\mathbf{b} - \hat{\mathbf{b}}) + \Delta f(\mathbf{x}, \mathbf{b})]. \quad (5.48)$$

Abgesehen vom Fehlerterm $\mathbf{D}_y[\dots]$ entspricht die Lösung für eine bestimmte Höhe also der Summe aus dem A-priori-Wert für eben diese Höhe und den mit der Matrix \mathbf{A} gewichteten Abweichungen zwischen dem wahren und dem A-priori-Profil. Für ein idealisiertes Meßsystem sind die Glättungsfunktionen Delta-Funktionen, die ihr Maximum gerade in der Höhe haben, auf die sie sich beziehen. In diesem Fall wird die Lösung ausschließlich durch das wahre Profil bestimmt. Bei realen Meßsystemen führt die endliche Schärfe der Glättungsfunktionen jedoch dazu, daß sich Strukturen im wahren Profil über einen mehr oder weniger großen Höhenbereich „verschmiert“ im invertierten Profil wiederfinden. Man kann also die Breite der Glättungsfunktionen als qualitatives Maß für die Vertikalauflösung der Inversionslösung betrachten.

5.5 Behandlung nichtlinearer Probleme

5.5.1 Lösung mittels Newton Iteration

Die in Abschnitt 5.3.4 entwickelte Lösung des linearen Inversionsproblems soll nun auf nichtlineare Probleme übertragen werden. Dazu wird in der Minimierungsbedingung (5.14) der Term $\mathbf{K}\mathbf{x}$ durch das Vorwärtsmodell F ersetzt, das eine beliebige Funktion des Zustands \mathbf{x} sein kann:

$$[F(\mathbf{x}) - \mathbf{y}]^T \mathbf{S}_y^{-1} [F(\mathbf{x}) - \mathbf{y}] + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \stackrel{!}{=} \min. \quad (5.49)$$

Zur Bestimmung des Minimums wird die erste Ableitung nach \mathbf{x} Null gesetzt:

$$\begin{aligned} & [\nabla_{\mathbf{x}} F(\mathbf{x})]^T \mathbf{S}_y^{-1} [F(\mathbf{x}) - \mathbf{y}] + \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \\ & [F(\mathbf{x}) - \mathbf{y}]^T \mathbf{S}_y^{-1} \nabla_{\mathbf{x}} F(\mathbf{x}) + (\mathbf{x} - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} \stackrel{!}{=} 0. \end{aligned} \quad (5.50)$$

Verwendet man die Abkürzung $\mathbf{K}(\mathbf{x}) = \nabla_{\mathbf{x}} F(\mathbf{x})$, muß $\hat{\mathbf{x}}$ also die Bedingung

$$\hat{\mathbf{K}}^T \mathbf{S}_y^{-1} [F(\hat{\mathbf{x}}) - \mathbf{y}] + \mathbf{S}_a^{-1} (\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a) = 0 \quad (5.51)$$

erfüllen, wobei $\hat{\mathbf{K}} = \mathbf{K}(\hat{\mathbf{x}})$. Für nicht zu stark nichtlineare Funktionen ist das *Newton-Iterationsverfahren* eine bewährte Methode zur Nullstellenbestimmung. Analog zum skalaren Fall findet man für eine vektorwertige Funktion $f(\mathbf{x})$ die Nullstelle mit Hilfe des folgenden Iterationsschemas.

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i - f(\mathbf{x}_i) [\nabla_{\mathbf{x}} f(\mathbf{x}_i)]^{-1}. \quad (5.52)$$

Der Ausdruck $[\nabla_{\mathbf{x}} f(\mathbf{x}_i)]^{-1}$ ist dabei eine Matrixinverse. Ersetzt man $f(\mathbf{x})$ durch Gleichung (5.51), dann ist $\nabla_{\mathbf{x}} f(\mathbf{x}_i)$ gegeben durch

$$\nabla_{\mathbf{x}} f(\mathbf{x}_i) = \mathbf{S}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_i - (\nabla_{\mathbf{x}} \mathbf{K}_i^T) \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{y}_i), \quad (5.53)$$

wobei $\mathbf{K}_i = \mathbf{K}(\mathbf{x}_i)$ und $\mathbf{y}_i = F(\mathbf{x}_i)$. Berücksichtigt man, daß für nicht zu stark nichtlineare Probleme der dritte Term in Gleichung (5.53) vernachlässigbar ist (für lineare Probleme verschwindet er ganz), so liefert Einsetzen in Gleichung (5.52)

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i + (\mathbf{S}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_i)^{-1} [\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{y}_i) - \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)]. \quad (5.54)$$

Alternativ kann \mathbf{x}_{i+1} auch als Abweichung von \mathbf{x}_a dargestellt werden:

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_i + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{y}_i + \mathbf{K}_i (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)]. \quad (5.55)$$

Häufig verwendet man als Startwert für die Iteration den A-priori-Zustand, d. h. $\mathbf{x}_0 = \mathbf{x}_a$. Es sind jedoch auch andere sinnvolle Startzustände denkbar, z. B. im Falle von *GOME* das Inversionsergebnis des dem aktuellen Pixel vorangehenden Pixels. Für moderat lineare Inversionsprobleme, die innerhalb der Fehlergrenzen

der Lösung linear sind, hat die Lösungskovarianzmatrix dieselbe Form wie für das lineare Problem:

$$\hat{\mathbf{S}} = (\hat{\mathbf{K}}^T \mathbf{S}_y^{-1} \hat{\mathbf{K}} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1}. \quad (5.56)$$

Obige Überlegungen lassen sich sehr einfach auf die Kozlov-Informationsmatrix-Methode übertragen. Für die Berechnung der $i+1$ -ten Iteration ist die Kozlov-Informationsmatrix definiert als

$$\mathbf{P}_i = \mathbf{S}_a \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_i. \quad (5.57)$$

Die Eigenvektoren von \mathbf{P}_i werden mit $\boldsymbol{\psi}_{i,k}$ bezeichnet, die zugehörigen Eigenwerte mit $\lambda_{i,k}$. Dann sind die Entwicklungskoeffizienten analog zu Gleichung (5.27) gegeben durch

$$\hat{\beta}_{i,k} = \frac{\lambda_{i,k}}{N_{i,k}(1 + \lambda_{i,k})} \boldsymbol{\psi}_{i,k}^T \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{y}_i + \mathbf{K}_i(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)]. \quad (5.58)$$

5.5.2 Charakterisierung

In Abschnitt 5.4 wurde davon ausgegangen, daß das Vorwärtsmodell und die Inversionsmethode über den Bereich zwischen A-priori-Zustand, wahren Zustand und Inversionsergebnis linear sind. Im folgenden wird gezeigt, daß sich die Ergebnisse der Fehleranalyse und die diagnostischen Größen zur Charakterisierung des Meßsystems auch auf moderat nichtlineare Probleme übertragen lassen. Dabei werden zur Vereinfachung der Notation die Vorwärtsmodellfehler und die Modellparameterfehler vernachlässigt, was aber an den Schlußfolgerungen nichts ändert.

Unter Verwendung von

$$\mathbf{D}_i = (\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \mathbf{K}_i + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_y^{-1} \quad (5.59)$$

läßt sich Gleichung (5.55) in der Form

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_a + \mathbf{D}_i [\mathbf{y} - F(\mathbf{x}_i) + \mathbf{K}_i(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)] \quad (5.60)$$

schreiben. Für große i konvergiert \mathbf{x}_i gegen $\hat{\mathbf{x}}$, so daß Gleichung (5.60) in den Ausdruck

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + \hat{\mathbf{D}} [\mathbf{y} - F(\hat{\mathbf{x}}) + \hat{\mathbf{K}}(\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a)] \quad (5.61)$$

übergeht. Ersetzt man nun \mathbf{y} durch $F(\mathbf{x}) + \boldsymbol{\varepsilon}$ und verwendet die im moderat nichtlinearen Fall zulässige Näherung $F(\mathbf{x}) = F(\hat{\mathbf{x}}) + \hat{\mathbf{K}}(\mathbf{x} - \hat{\mathbf{x}})$, erhält man schließlich

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + \hat{\mathbf{D}} [\hat{\mathbf{K}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \boldsymbol{\varepsilon}] = \mathbf{x}_a + \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \hat{\mathbf{D}}\boldsymbol{\varepsilon}, \quad (5.62)$$

wobei $\hat{\mathbf{A}} = \hat{\mathbf{D}}\hat{\mathbf{K}}$. Dieser hier für den moderat nichtlinearen Fall abgeleitete Ausdruck entspricht Gleichung (5.48) für den linearen Fall.

Teil II

Der Inversionsalgorithmus FURM

Überblick zu Teil II

Der erste Teil dieser Arbeit hat in die Grundlagen des atmosphärischen Strahlungstransports und der Inversionstheorie eingeführt. Im vorliegenden Teil geht es um die konkrete Umsetzung der Theorie in einen Auswertalgorithmus zur Ableitung von Ozonprofilen aus *GOME*-Daten. Die dargestellten Ergebnisse wurden auf der Grundlage umfangreicher Testrechnungen mit synthetischen und realen *GOME*-Daten entwickelt.

- **Kapitel 6** enthält eine ausführliche Beschreibung des Auswertalgorithmus *FURM*. Zunächst werden die Auswertparameter erläutert. Es folgen einige Überlegungen zur Auswahl des für die Auswertung verwendeten Spektralbereichs. Daran schließt sich eine Beschreibung des Programmablaufs an, bei der die besonderen Aspekte, die sich bei der Auswertung echter *GOME*-Meßspektren ergeben, im Vordergrund stehen. Es folgt eine Abschätzung der Vertikalauflösung und der Fehler der Ozonprofile.
- Die korrekte spektrale und radiometrische Kalibration der *GOME*-Spektren ist für die Ozonprofilauswertung entscheidend. Die gegenwärtig im offiziellen Datenprodukt verwendete radiometrische Kalibration genügt den hohen Anforderungen allerdings nicht. In **Kapitel 7** werden daher einige Korrekturen der radiometrischen Kalibration diskutiert, die die Qualität der ausgewerteten Ozonprofile deutlich verbessern.
- Da nahezu alle *GOME*-Messungen durch Wolken beeinflusst werden, stellte sich während der Entwicklung von *FURM* die Frage nach einer adäquaten Behandlung bewölkter Szenarien. In **Kapitel 8** werden zwei Ansätze entwickelt und mittels Sensitivitätsuntersuchungen mit synthetischen Daten und Vergleichen von *GOME*-Profilen mit Ozonsondenmessungen getestet.

Kapitel 6

Programmbeschreibung

6.1 Beschreibung der Auswerteparameter

6.1.1 Das Ozonprofil

Die Ozonvertikalverteilung ist eine kontinuierliche Funktion der Höhe, die zur numerischen Lösung des Inversionsproblems geeignet diskretisiert werden muß. Um unnötige Interpolationen zu vermeiden, wird das Ozonprofil im Inversions teil des Auswertalgorithmus auf demselben Höhengitter betrachtet, das auch im Strahlungstransportprogramm *GOMETRAN* verwendet wird, d. h. auf 80 äquidistanten Höhenniveaus zwischen 0 und 80 km Höhe. Für Oberflächenhöhen oberhalb Normalnull werden die untersten Höhenlevels entsprechend angepaßt. Dieses feine, relativ hoch reichende Höhengitter ist für exakte Strahlungstransportrechnungen erforderlich.

Einen ersten Eindruck davon, wieviel Information über die Ozonvertikalverteilung aus den Messungen gewonnen werden kann, erhält man durch Betrachtung der Ozongewichtsfunktionen. In Abbildung 6.1 sind exemplarisch Gewichtsfunktionen für ausgewählte Wellenlängen zwischen 260 und 360 nm bei den Sonnenzenitwinkeln 30° und 70° dargestellt. Unter der Annahme, daß die atmosphärischen Parameter in absoluten Einheiten ausgewertet werden, beschreiben die Gewichtsfunktionen, d. h. die Spalten der Gewichtsfunktionsmatrix \mathbf{K} , die Variation der Meßgröße bei der zugehörigen Wellenlänge bei Änderung des betrachteten Auswerteparameters um eine Einheit (vgl. Gleichung (5.5)). Die Ozonteilchendichte ist von der Größenordnung $10^{17} \text{ km}^{-1} \text{ cm}^{-2}$, während die im nächsten Abschnitt eingeführten skalaren Auswerteparameter von der Größenordnung Eins sind. Um entsprechend viele Größenordnungen unterscheiden sich die zugehörigen Gewichtsfunktionen, was aus numerischer Sicht sehr ungünstig ist. Daher werden im *FURM*-Algorithmus die relativen Abweichungen der atmosphärischen Parameter von ihren A-priori-Werten als Auswerteparameter verwendet. Die Gewichtsfunktionen beschreiben in diesem Fall die Änderung der Meßgröße bei einer relativen Änderung des betrachteten Auswerteparameters um 100 %.

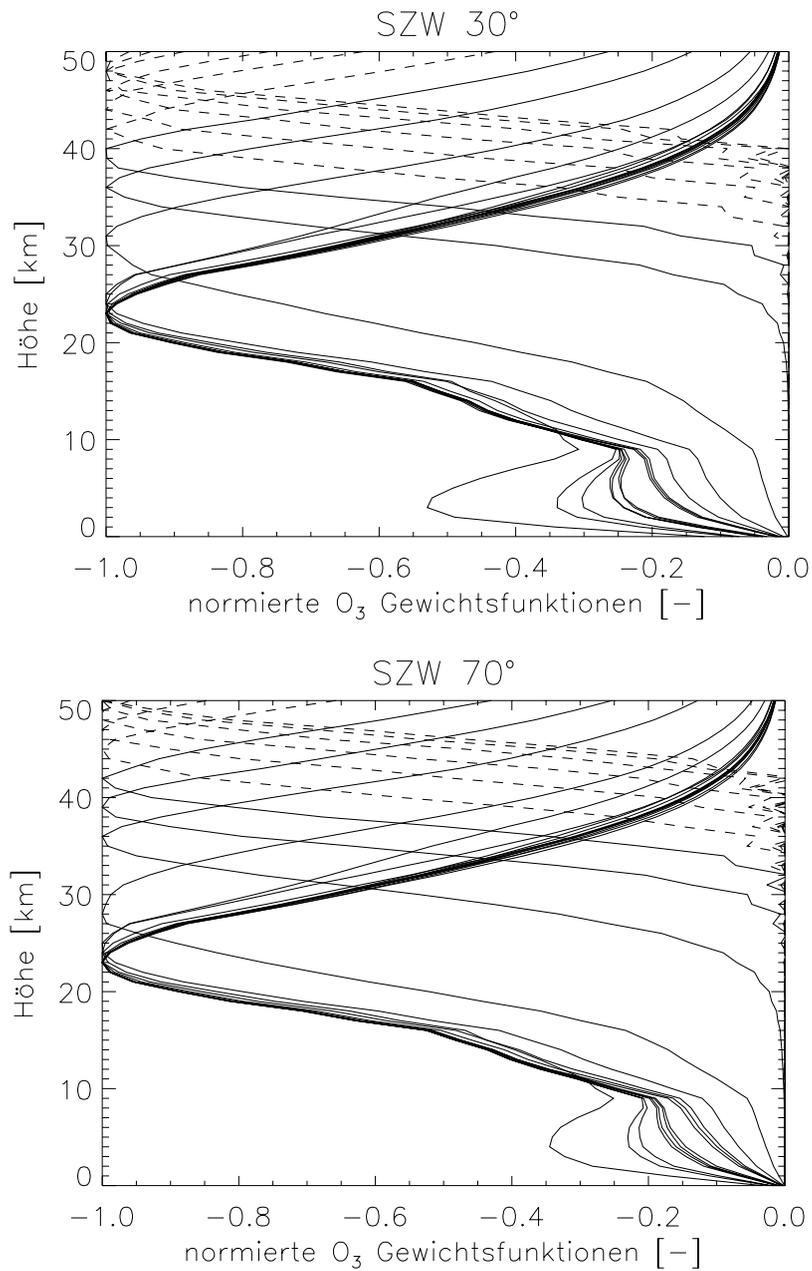


Abbildung 6.1: Normierte GOME-Ozongewichtsfunktionen zwischen 260 und 360 nm in 5 nm-Schritten für einen Sonnenzenitwinkel von 30° (oben) bzw. 70° (unten). Die oberste Gewichtsfunktion entspricht jeweils der kürzesten Wellenlänge. Die Gewichtsfunktionen für Wellenlängen kleiner als 290 nm sind gestrichelt dargestellt. Den Gewichtsfunktionen liegt ein typisches Juli-Szenario für mittlere nördliche Breiten zugrunde.

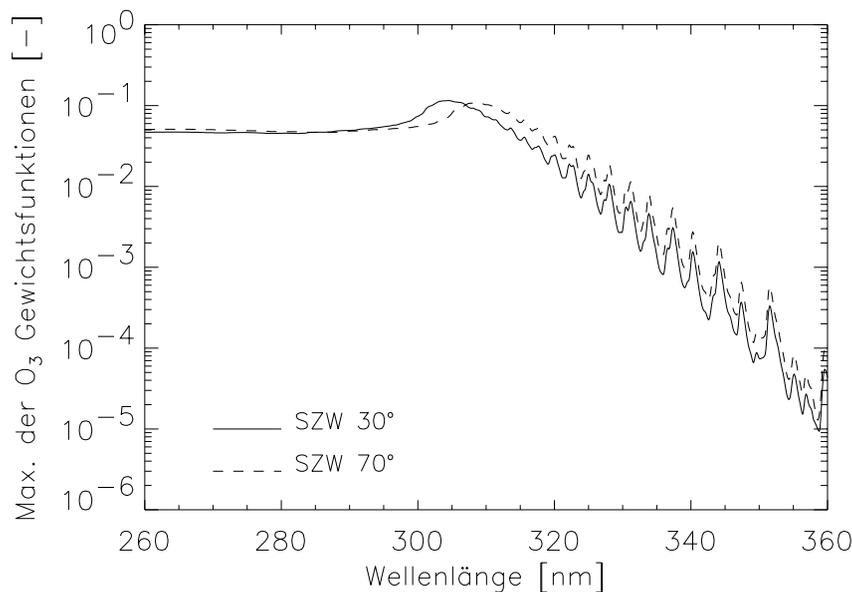


Abbildung 6.2: Betragsmaxima der GOME-Ozongewichtsfunktionen aus Abbildung 6.1.

Da in dieser Arbeit als Meßgröße der natürliche Logarithmus der sonnennormierten Strahlung verwendet wird, sind die Gewichtsfunktionen also dimensionslos. Die Verwendung relativer Auswerteparameter ändert prinzipiell nichts an der Herleitung der Optimal-Estimation-Gleichung bzw. des Ausdrucks für die Entwicklungskoeffizienten bei der Informationsmatrix-Methode. In den Gleichungen (5.55) und (5.58) ist lediglich der Ausdruck $\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a$ durch $(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)/\mathbf{x}_a$ zu ersetzen. Entsprechend ist die a priori Kovarianzmatrix in relativen Einheiten zu verwenden. Aufgrund der starken Wellenlängenabhängigkeit der Ozonabsorptionsquerschnitte im ultravioletten Spektralbereich variieren die Betragsmaxima der Ozongewichtsfunktionen hier ebenfalls sehr stark. Daher wurden die Gewichtsfunktionen in Abbildung 6.1 jeweils auf ihr Betragsmaximum normiert. Wie man sieht, verschiebt sich im Spektralbereich zwischen 260 und 315 nm der Peak der Ozongewichtsfunktionen mit zunehmender Wellenlänge zu niedrigeren Höhen hin. Bei einer gegebenen Wellenlänge nimmt die Höhe des Peaks mit dem Sonnenzenitwinkel ab. Für Wellenlängen größer als etwa 315 nm kann die solare Strahlung bis tief in die Troposphäre vordringen. Das absolute Betragsmaximum der Ozongewichtsfunktionen bleibt in ungefähr 22 km Höhe lokalisiert. Zusätzlich tauchen sekundäre Betragsmaxima in der Troposphäre auf, die auf den wachsenden Einfluß der Mehrfachstreuung und die größeren Ozonabsorptionquerschnitte in den relativ warmen untersten Kilometern der Atmosphäre zurückzuführen sind (vgl. Abb. 2.2).

In Ergänzung zu Abbildung 6.1 sind in Abbildung 6.2 die Betragsmaxima der Ozongewichtsfunktionen als Funktion der Wellenlänge dargestellt. Unterhalb von 300 nm sind diese Werte relativ konstant. Je nach Sonnenzenitwinkel erreichen sie zwischen 300 und 310 nm ihr Maximum und nehmen dann bis zu 360 nm um etwa vier Größenordnungen ab, wobei die typischen Strukturen der Huggins-Banden deutlich zu erkennen sind. Dieses Verhalten spiegelt im wesentlichen den Spektralverlauf der Ozonabsorptionsquerschnitte wieder (vgl. Abb. 2.1).

6.1.2 Die skalaren Auswerteparameter

Die Erdradianz wird im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich nicht nur durch die Ozonabsorption beeinflusst, sondern auch durch weitere Atmosphärenparameter, die a priori nicht mit hinreichender Genauigkeit bekannt sind und daher entweder als zusätzliche Auswerteparameter oder als Fehlerquelle bei der Auswertung berücksichtigt werden müssen. Die meisten dieser Parameter weisen eine breitbandige spektrale Signatur auf, die zum Beispiel beim *DOAS*-Verfahren mit einem Polynom niedriger Ordnung mathematisch beschrieben wird. In dem in dieser Arbeit entwickelten Auswerteverfahren werden diese Größen jedoch als physikalische Parameter berücksichtigt, weshalb das Auswerteverfahren **FULL Retrieval Method (FURM)** genannt wird. Anhand von Tests mit simulierten und gemessenen Spektren hat sich herausgestellt, daß die Einbeziehung der folgenden „skalaren“ Auswerteparameter sinnvoll ist: Skalierungsfaktoren für die Oberflächenalbedo, das Aerosol-Teilchendichteprofil, das NO_2 -Teilchendichteprofil und das Druckprofil, sowie ein Parameter, der eine höhenkonstante Verschiebung des Temperaturprofils beschreibt.

Typische Gewichtsfunktionen für den Druck-, Albedo-, Aerosol- und Temperaturparameter sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Die Meßstrahlung wird im gesamten Wellenlängenbereich stark durch die Rayleigh-Strahlung beeinflusst und ist daher sehr sensitiv bezüglich Variationen des Luftdrucks. Aerosol-Extinktion¹ und Reflexion am Erdboden sind bei Wellenlängen unterhalb von etwa 300 nm vernachlässigbar. Mit zunehmender Wellenlänge werden diese Prozesse immer wichtiger, wohingegen der relative Einfluß der Rayleigh-Streuung abnimmt. Bei gegebenem Atmosphärenszenario beginnt der Einfluß der Aerosole und des Erdbodens bei umso kürzeren Wellenlängen und ist umso ausgeprägter, je kleiner der Sonnenzenitwinkel ist. Während die Druck-, Albedo- und Aerosolgewichtsfunktionen die Änderung des Logarithmus der sonnennormierten Strahlung bei einer Erhöhung des zugehörigen Parameters um 100 % beschreiben, geben die Temperaturgewichtsfunktionen die Änderung der Meßgröße bei einer Verschiebung des Temperaturprofils um 1 K wieder. Dabei wird der Einfluß von Temperaturvariatio-

¹Da während der Betriebszeit von *GOME* bisher keine bedeutenden Vulkanausbrüche stattgefunden haben, wird in dieser Arbeit stets davon ausgegangen, daß sich der Hauptanteil des Gesamtaerosols in den untersten beiden Kilometern der Atmosphäre befindet und in der Stratosphäre Hintergrundbedingungen herrschen.

nen auf die Rayleigh-Streukoeffizienten und auf die Ozonabsorptionsquerschnitte berücksichtigt. Folglich finden sich die spektralen Signaturen beider Größen in den Gewichtsfunktionen wieder.

In Abbildung 6.3 erkennt man, daß sich vor allem die Aerosol- und Albedo-Gewichtsfunktionen in ihrem Spektralverlauf stark ähneln. Derartige Korrelationen der skalaren Gewichtsfunktionen untereinander können zu unphysikalischen Werten für die skalaren Auswerteparameter führen. Um dies zu verhindern, werden den skalaren Parametern physikalisch sinnvolle Grenzen gesetzt, die bei der Auswertung nicht über- bzw. unterschritten werden dürfen. Stößt einer der skalaren Parameter an diese Grenzen, so ist dies in der Regel ein Indiz für Probleme bei der Auswertung, die ihre Ursache meist in schlecht kalibrierten Meßspektren haben. Bei der physikalischen Interpretation der skalaren Parameter, insbesondere des Albedo- und des Aerosolparameters, ist in jedem Fall Vorsicht geboten. Die Auswertung unabhängiger Ergebnisse für die skalaren Parameter ist jedoch auch nicht das Hauptziel des *FURM*-Algorithmus. Daher werden in dieser Arbeit die Auswerteergebnisse für die skalaren Parameter nicht angegeben.

6.2 Auswahl des Spektralbereichs

Wieviel Ozoninformation in den verschiedenen Höhenbereichen aus den *GO-ME*-Spektren abgeleitet werden kann, hängt stark von dem für die Auswertung verwendeten Spektralbereich ab. Aus den in Abbildung 6.1 dargestellten Ozon-Gewichtsfunktionen wird deutlich, daß mit dem Spektralbereich 260-360 nm die Stratosphäre zwischen 20 und 50 km Höhe sowie (mit geringerer Empfindlichkeit) die Troposphäre abgedeckt werden kann. Für die Profilauswertungen in dieser Arbeit wird die kurzwellige Grenze des Spektralbereichs allerdings bei 290 nm gewählt. Ein Grund dafür ist die starke NO_γ -Emission unterhalb von 290 nm (siehe z. B. Abb. 2 in [111]). Diese Emissionsstrukturen können mit *GOMETRAN* nicht simuliert werden und wirken sich daher negativ auf die Profilauswertung aus. Ein weiterer Grund ist die Tatsache, daß das Meßrauschen, das oberhalb von 290 nm von der Größenordnung 1 % in Kanal 1 und 0.1 % in Kanal 2 ist, unterhalb von 290 nm schnell auf 10 % und mehr zunimmt. Schließlich gibt es Probleme bei der radiometrischen Kalibration der Spektren, insbesondere zwischen 260 und 290 nm [75]. Auf diesen Punkt wird in Kapitel 7 noch näher eingegangen.

Die Beschränkung auf Wellenlängen oberhalb von 290 nm hat zur Folge, daß die Messungen nur wenig Information über die Ozonverteilung oberhalb von etwa 40 km enthalten. In diesem Höhenbereich nähert sich das ausgewertete Ozonprofil stark an das A-priori-Profil an. Die Auswerteergebnisse in niedrigeren Höhen werden dadurch allerdings kaum beeinflusst, da sich oberhalb von 40 km Höhe nur wenige Prozent des Gesamtozons befinden. Darüber hinaus ist die Ozonvariabilität in der oberen Stratosphäre relativ gering, so daß klimatologische Werte im Rahmen dieser Arbeit vollkommen ausreichend sind.

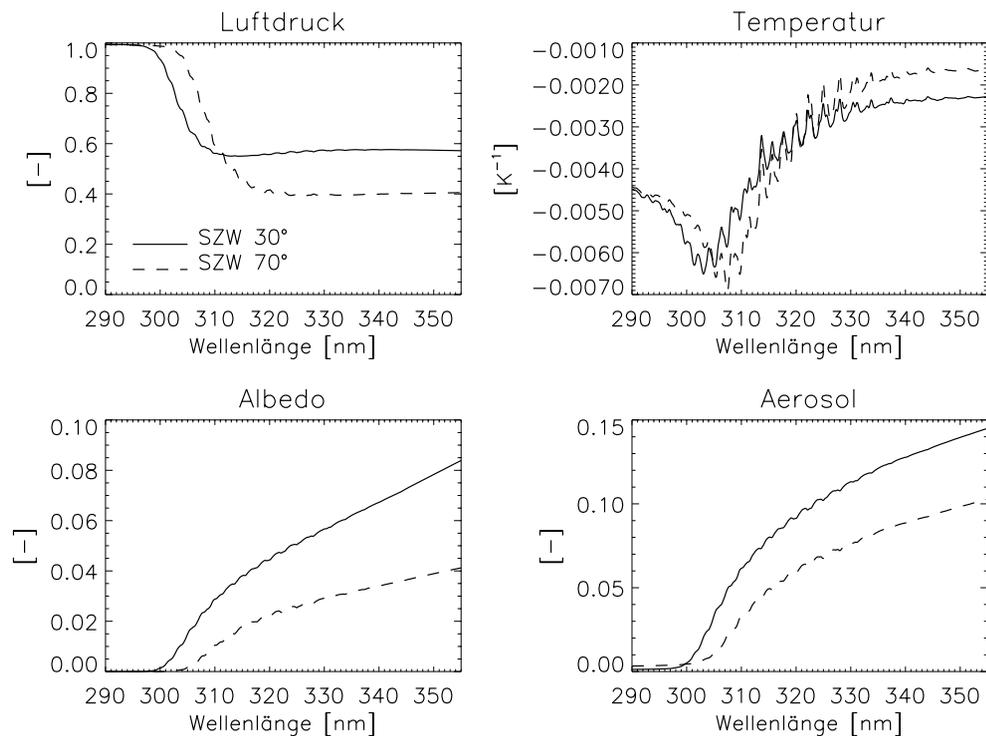


Abbildung 6.3: Druck-, Temperatur-, Albedo- und Aerosolgewichtsfunktionen zwischen 290 und 355 nm für einen Sonnenzenitwinkel von 30° (durchgezogene Linie) bzw. 70° (gestrichelte Linie). Das Atmosphärenszenario ist dasselbe wie in Abbildung 6.1.

Die Obergrenze des für die Auswertung verwendeten Spektralbereichs liegt in dieser Arbeit bei 355 nm. Strahlung dieser Wellenlänge kann auch bei großen Sonnenzenitwinkeln bis auf den Erdboden vordringen, was die Auswertung der skalaren Parameter, insbesondere des Aerosol- und des Albedoparameters, erleichtert. Zwischen etwa 360 und 450 nm ist die Ozonabsorption so gering, daß die Meßstrahlung kaum von der Ozonverteilung beeinflusst wird. Im Bereich der Chappuis-Banden zwischen 450 und 750 nm nimmt die Ozonabsorption wieder zu, wobei das Maximum bei ungefähr 600 nm erreicht wird. Die Verwendung von Messungen im Bereich der Chappuis-Banden wurde anhand von synthetischen Meßspektren von *de Beek* untersucht [38]. Die Ozonabsorption ist in den Chappuis-Banden ähnlich gering wie in den Huggins-Banden oberhalb von etwa 330 nm. Aus Nadir-Messungen in diesen Spektralbereichen allein können lediglich Ozonsäulengehalte bestimmt werden. Das im sichtbaren Spektralbereich bessere Signal-zu-Rausch-Verhältnis der *GOME*-Messungen sowie die im Vergleich zum UV-Bereich etwas größere Sensitivität bezüglich troposphärischer Ozonver-

teilungen läßt eine Verbesserung der Profilergebnisse durch Einbeziehung der Chappuis-Banden erwarten. Dies wird tatsächlich beobachtet, solange die Nicht-Ozonparameter a priori exakt bekannt sind und nicht ausgewertet werden müssen. Sobald jedoch die skalaren Auswerteparameter berücksichtigt werden, können die Korrelationen der Gewichtsfunktionen untereinander sogar zu einer Verschlechterung der Ergebnisse bei Verwendung der Chappuis-Banden führen. In jedem Fall ist selbst mit synthetischen (d. h. exakt kalibrierten) Meßspektren keine eindeutige Verbesserung der Profilergebnisse nachweisbar, so daß der zusätzliche Rechenaufwand bei Verwendung der Chappuis-Banden nicht gerechtfertigt erscheint. Darüber hinaus ist die Qualität der echten *GOME*-Spektren im sichtbaren Spektralbereich aufgrund der bereits erwähnten Probleme mit der radiometrischen Kalibration derzeit nicht ausreichend für die Auswertung mit dem *FURM*-Algorithmus.

6.3 Programmablauf

In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Schritte des Auswertalgorithmus *FURM* erläutert.

6.3.1 Vorbereitung der Meßgrößen y und S_y

Grundlage für die Ozonprofilauswertung sind geographisch zugeordnete, spektral und radiometrisch kalibrierte Erdradianzen und Sonnenirradienzen sowie die zugehörigen Meßfehler. Dieses sogenannte Level-1-Produkt wird mittels des beim Deutschen Fernerkundungsdatenzentrum des Deutschen Forschungszentrums für Luft- und Raumfahrt (*DFD/DLR*) installierten *GOME Data Processors (GDP)* aus den Rohdaten (Level-0-Produkt) gewonnen. Details der Level-0 \rightarrow 1-Prozessierung können in der Beschreibung des *GDP* nachgelesen werden [41].

Bei der Vorbereitung der Meßspektren ist zu beachten, daß die Integrationszeit in Kanal 1A 12 s beträgt, während sie in den übrigen Kanälen bei 1.5 s liegt. Um zu gewährleisten, daß über den gesamten Spektralbereich dieselbe Szene beobachtet wird, müssen also die Messungen in Kanal 1B und 2 (Kanal 3 und 4 werden in dieser Arbeit nicht benutzt) über die acht dem 1A-Grundpixel entsprechenden Standard-Pixel gemittelt werden.

Als Meßgröße für die Auswertung wird der natürliche Logarithmus der sonnennormierten Strahlung verwendet, d. h.

$$y = \ln \frac{\pi I^{rad}}{I^{irrad}}. \quad (6.1)$$

I^{rad} ist die Erdradianz bei der betrachteten Wellenlänge und I^{irrad} die zugehörige Sonnenirradianz. Auf die Verwendung eines Wellenlängenindex wird hier aus Gründen der Übersichtlichkeit verzichtet. Wegen $d \ln y = \frac{dy}{y}$ entsprechen die

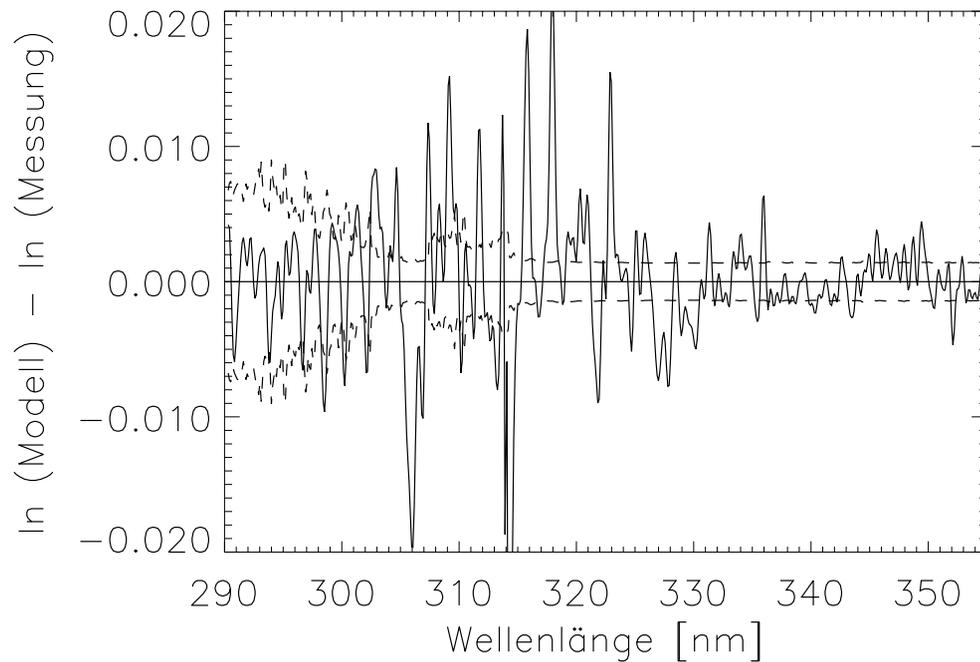


Abbildung 6.4: Typisches GOME-Fit-Residuum zwischen 290 und 355 nm (durchgezogen). Wegen $d \ln y = \frac{dy}{y}$ entspricht die Differenz der Logarithmen des mit dem Auswertergebnis modellierten und des gemessenen Spektrums in guter Näherung der relativen Differenz der absoluten Spektren. Zum Vergleich ist auch der relative Fehler der gemessenen sonnennormierten Strahlung eingezeichnet (gestrichelt).

Diagonalelemente der Meßkovarianzmatrix S_y gerade den Quadraten der relativen Fehler der sonnennormierten Strahlung. Letztere lassen sich wiederum mit Hilfe der Gesetze der Fehlerfortpflanzung aus den relativen Fehlern der Erdradianz und der Sonnenirradianz berechnen. Die Nichtdiagonalelemente von S_y werden Null gesetzt, da die Meßfehler bei verschiedenen Wellenlängen in guter Näherung als unkorreliert angenommen werden können. Beim Vergleich der so berechneten zufälligen Fehler der Meßgröße mit den Fit-Residuen zeigt sich in Kanal 1A eine recht gute Übereinstimmung der jeweiligen Amplituden. In der Nähe der Grenzen zwischen Kanal 1A und 1B (bei etwa 307 nm) und zwischen Kanal 1B und 2 (bei etwa 314 nm) sowie in Kanal 2 ist die Amplitude des Fit-Residuums jedoch deutlich größer als der relative Fehler der Meßgröße (siehe Abb. 6.4). Dies liegt in erster Linie an den Kalibrationsfehlern, die ins-

besondere an den Kanalgrenzen eine Erhöhung des Residuums bewirken. Auch die nur näherungsweise Beschreibung des Ring-Effekts im *FURM*-Algorithmus kann in Verbindung mit relativen spektralen Verschiebungen zwischen den verschiedenen Spektren zu quasi-zufälligen Strukturen im Fit-Residuum führen, die in den Fehlerangaben im *GOME*-Level-1-Produkt nicht enthalten sind (siehe auch Abschnitte 6.3.4 und 6.3.5). Aus der Analyse einer Vielzahl ausgewerteter Ozonprofile und der zugehörigen Fit-Residuen hat sich für den relativen Zufallsfehler der Meßgröße ein empirisch bestimmter Wert von 1 % für den gesamten Spektralbereich als sinnvoll erwiesen. Für die Auswertung sind mehrere Fit-Fenster beliebiger spektraler Breite zulässig. In dieser Arbeit wird stets ein einziges Fenster, das sich von 290 bis 355 nm erstreckt und ungefähr 580 Spektralpunkte enthält, verwendet.

6.3.2 Bereitstellung der A-priori-Information \mathbf{x}_a und \mathbf{S}_a

Die A-priori-Werte der Auswerteparameter werden in Abhängigkeit vom Datum und der geographischen Breite der *GOME*-Messung festgelegt. Klimatologische Druck- und Temperaturprofile sowie Profile der Volumenmischungsverhältnisse der verschiedenen Spurengase zwischen 0 und 60 km Höhe können der in Abschnitt 4.2.4 vorgestellten *MPI*-Klimatologie entnommen werden. Da das Höhengitter in *GOMETRAN* bis in 80 km Höhe reicht, werden oberhalb von 60 km Höhe der Druck logarithmisch, die Temperatur linear und die Volumenmischungsverhältnisse konstant extrapoliert.

Die *MPI*-Klimatologie beruht nicht auf Messungen sondern auf Rechnungen mit einem chemo-dynamischen Modell und ist daher strenggenommen keine Klimatologie. Im Falle von Ozon gibt es aber einige tatsächlich aus Messungen abgeleitete globale Klimatologien. In dieser Arbeit werden die A-priori-Ozonprofile der mit Hilfe von Ozonsonden- und Satellitenmessungen erstellten Klimatologie von *Fortuin und Kelder* entnommen, die Volumenmischungsverhältnisse zwischen 1000 und 0.3 hPa liefert [59]. Neben dem A-priori-Ozonprofil \mathbf{x}_a wird für die Auswertung auch die A-priori-Kovarianzmatrix \mathbf{S}_a benötigt. Für letztere liegen keine globalen, aus Messungen abgeleitete Angaben für den gesamten Höhenbereich zwischen 0 und 80 km vor. Zwischen 1000 und 10 hPa stehen allerdings die Varianzen einer aus Ozonsondenmessungen berechneten Vorläuferversion der oben genannten Klimatologie von *Fortuin und Kelder* zur Verfügung [58]. Diese können direkt als Diagonalelemente von \mathbf{S}_a verwendet werden. Die Kovarianzen, d. h. die Nichtdiagonalelemente von \mathbf{S}_a , werden dann folgendermaßen berechnet:

$$S_{a,kl} = \sigma_{a,k}\sigma_{a,l}\exp(-|z_k - z_l|/r_c). \quad (6.2)$$

Hier ist z_k das k -te Höhenniveau, $\sigma_{a,k}^2$ die zugehörige Varianz, und r_c die sogenannte Korrelationslänge, für die in dieser Arbeit ein Wert von 5 km angenommen wird. Vor allem in den Tropen und Subtropen standen nur wenige Ozonsondenmessungen zur Verfügung, weshalb die Varianzen für diese Regionen der Erde

relativ unzuverlässig sind (P. Fortuin, *KNMI*, persönl. Mitteilung, 1998). Dasselbe gilt für polare Breiten.

An dieser Stelle sei noch einmal darauf hingewiesen, daß die A-priori-Kovarianzmatrix immer im Zusammenhang mit der Meßfehlerkovarianzmatrix gesehen werden muß, denn die Stärke der Regularisierung des Inversionsproblems wird durch das relative Verhältnis von \mathbf{S}_a und \mathbf{S}_y bestimmt (siehe Abschnitt 5.3.4). In der Praxis hat sich die Wahl einer höhenkonstanten A-priori-Standardabweichung von 30 % in Verbindung mit einem konstanten Meßfehler von 1 % für den gesamten Spektralbereich als gute Standard-Regularisierung für die meisten *GO-ME*-Auswertungen erwiesen. Diese Kombination wird daher, soweit nicht anders vermerkt, für alle Auswertungen in dieser Arbeit verwendet.

Eine Verbesserung gegenüber den klimatologischen Druck- und Temperaturprofilen stellt die Verwendung aktueller meteorologischer Daten dar. In dieser Arbeit wird daher, wenn möglich, auf die Analysen des National Meteorological Center (*NMC*) zurückgegriffen, die täglich und global Druck- und Temperaturwerte auf 17 Standarddruckniveaus zwischen 1000 und 1 hPa liefern. Die entsprechenden Daten können über den Automailer des Goddard Space Flight Center der *NASA* bezogen werden. Die relative Standardabweichung des Druckprofils wird auf 0.5 % geschätzt, die absolute Standardabweichung der Temperatur auf 5 K.

Die A-priori-Werte der Bodenalbedo werden einem von *Guzzi* zusammengestellten globalen Datensatz entnommen (R. Guzzi, *IMGA/CNR*, persönl. Mitteilung, 1997). Er enthält die Oberflächentiefe und den Oberflächentyp (Sand, Erde, Vegetation, Schnee, Wasser) mit einer räumlichen Auflösung von $1^\circ \times 1^\circ$. Darüber hinaus ist für jeden Oberflächentyp die wellenlängenabhängige Albedo zwischen 240 und 800 nm angegeben. Für die Standardabweichung der Bodenalbedo wird ein Wert von 50 % angenommen.

Über die Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols steht so gut wie keine globale A-priori-Information zu Verfügung. In Fällen mit stratosphärischem Hintergrundaerosol sind jedoch bereits grobe Annahmen ausreichend, da mit der Oberflächenalbedo ein weiterer Auswerteparameter mit breitbandiger spektraler Signatur zur Verfügung steht, der mögliche Ungenauigkeiten in der Beschreibung der Aerosoleigenschaften ausgleichen kann. Falls der stratosphärische Aerosolgehalt durch Vulkanausbrüche erhöht ist, ist allerdings eine genauere Kenntnis der stratosphärischen Aerosoleigenschaften von Vorteil. In dieser Arbeit werden die Aerosolextinktions- und -absorptionsprofile sowie die zugehörigen Henyey-Greenstein-Phasenfunktionen des *LOWTRAN*-Aerosolmodells verwendet. Die Standardabweichung des Aerosolparameters wird auf 50 % geschätzt.

6.3.3 Berechnung der synthetischen Spektren y_i und der Gewichtsfunktionen \mathbf{K}_i

Für die Berechnung der synthetischen Meßspektren y_i und der zugehörigen Gewichtsfunktionen \mathbf{K}_i wird innerhalb des *FURM*-Programms das Strahlungstrans-

portprogramm *GOMETRAN* aufgerufen. Das erste synthetische Meßspektrum y_0 und die Gewichtsfunktionen \mathbf{K}_0 werden in dieser Arbeit stets auf der Grundlage des A-priori-Szenarios berechnet. Dies ist zwar eine naheliegende Wahl, aber keinesfalls die einzige Möglichkeit. Soll beispielsweise ein ganzer *GOME*-Orbit ausgewertet werden, ist es sinnvoll, für die Berechnung von y_0 und \mathbf{K}_0 anstelle des klimatologischen A-priori-Profiles das beim vorherigen Grundpixel ausgewertete Ozonprofil zu verwenden, das sich in der Regel weniger vom tatsächlichen Ozonprofil des aktuellen Grundpixels unterscheidet als das A-priori-Profil. Auf diese Art und Weise werden weniger Iterationsschritte benötigt, und es kann typischerweise ein Faktor zwei bei der Rechenzeit eingespart werden.

6.3.4 Berücksichtigung des Ring-Effekts

Im Rahmen des Auswerteprozesses wird versucht, die gemäß Gleichung (6.1) definierte Meßgröße durch die entsprechende modellierte Größe möglichst gut zu approximieren, d. h.

$$y^{mess} = \ln \frac{\pi I_{rad}^{mess}}{I_{irr}^{mess}} \approx \ln \frac{\pi I_{rad, rrs}^{mod}}{I_{irr}^{mod}}. \quad (6.3)$$

Bei der Berechnung der Modellradianz $I_{rad, rrs}^{mod}$ müssen alle für den betrachteten Spektralbereich relevanten atmosphärischen Prozesse berücksichtigt werden. Wie bereits in Abschnitt 4.2.4 erwähnt, wird aber die Rotations-Raman-Streuung (RRS) an Luftmolekülen in der im *FURM*-Algorithmus verwendeten Version von *GOMETRAN* nicht mitsimuliert. Statt dessen wird auf einen Satz vorberechneter Ring-Spektren zurückgegriffen, die wie folgt definiert sind:

$$RS = \ln \frac{\tilde{I}_{rad, rrs}^{mod}}{\tilde{I}_{rad, no rrs}^{mod}}. \quad (6.4)$$

$\tilde{I}_{rad, rrs}^{mod}$ und $\tilde{I}_{rad, no rrs}^{mod}$ sind die mit bzw. ohne Rotations-Raman-Streuung modellierten Erdradianzen. Die Tilde soll andeuten, daß das dafür verwendete Szenario (definiert durch Atmosphärenzustand und Sonnenzenitwinkel) nicht notwendigerweise mit dem Szenario der aktuellen Auswertung identisch ist. Die Meßgröße y^{mess} läßt sich dann durch

$$\begin{aligned} \ln \frac{\pi I_{rad, rrs}^{mod}}{I_{irr}^{mod}} &= \ln \frac{\pi I_{rad, no rrs}^{mod}}{I_{irr}^{mod}} + \ln \frac{I_{rad, rrs}^{mod}}{I_{rad, no rrs}^{mod}} \\ &\approx \ln \frac{\pi I_{rad, no rrs}^{mod}}{I_{irr}^{mod}} + f * RS \end{aligned} \quad (6.5)$$

approximieren, wobei der Skalierungsfaktor f mit einem least-squares-Fit bestimmt wird. Diese Gleichung ist im *FURM*-Algorithmus dergestalt umgesetzt,

daß als Meßgröße y der Logarithmus der gemessenen sonnennormierten Strahlung abzüglich des mit f skalierten modellierten Ring-Spektrums verwendet wird. Die Modellstrahlung y_i entspricht dann direkt dem Logarithmus der mit *GOMETRAN* berechneten sonnennormierten Strahlung ohne *RRS*.

6.3.5 Shift-und-Squeeze Korrektur

Im Gegensatz zur Erdradianz ist die Sonnenirradianz aufgrund der Relativbewegung zwischen Sonne und Satellit einer Doppler-Verschiebung unterworfen. Dies hat spektrale Verschiebungen („shifts“) und Verformungen („squeezes“) zwischen der Erdradianz und der Sonnenirradianz zur Folge, deren Größe aus der Relativgeschwindigkeit zwischen Sonne und Satellit berechnet werden kann und die daher im Prinzip sofort korrigiert werden können. Weitere Verschiebungen und Verformungen der beiden Spektren relativ zueinander rühren daher, daß die Erd- und die Sonnenspektren in verschiedenen Positionen des Orbits und damit bei verschiedenen Temperaturen des Instruments aufgenommen werden. Die Temperaturschwankungen im Laufe eines Orbits führen zu Verformungen der Diodenzeilendetektoren, die sich direkt auf die Wellenlängenzuordnung auswirken. Die Shifts und Squeezes führen zu unerwünschten spektralen Strukturen in der Meßgröße y , die die Profilauswertung negativ beeinflussen. Für eine korrekte Auswertung müssen sich alle beteiligten Spektren auf dasselbe Wellenlängengitter beziehen. Daher werden im *FURM*-Algorithmus bei jeder Iteration mit Hilfe eines Shift-und-Squeeze-Moduls die Sonnenirradianz, die mit *GOMETRAN* modellierte sonnennormierte Strahlung, das Ring-Spektrum sowie optional die Gewichtsfunktionen relativ zur gemessenen Erdradianz, deren Wellenlängengitter als Referenz dient, ausgerichtet. Der Meßvektor wird dann für jeden Iterationsschritt aus der Erdradianz und den geshifteten und gesqueezten Sonnenirradianz- und Ring-Spektren neu berechnet.

6.3.6 Berechnung einer Schätzung für den Parametervektor x

Nach Durchlaufen der in Abschnitt 6.3.1 bis 6.3.5 beschriebenen Schritte sind alle Größen bereitgestellt, die für die Schätzung des Parametervektors benötigt werden. Die Berechnung von x_i kann wahlweise mittels des Optimal-Estimation-Verfahrens oder der Kozlov-Informationsmatrix-Methode erfolgen. Testrechnungen mit synthetischen, d. h. exakt kalibrierten Messungen zeigen, daß die mit den beiden Verfahren erzielten Auswerteergebnisse innerhalb der erwarteten numerischen Ungenauigkeiten übereinstimmen. Wegen ihrer in Abschnitt 5.3.5 dargelegten Vorteile wird in dieser Arbeit jedoch stets die Kozlov-Informationsmatrix-Methode verwendet. Mit der neuen Schätzung werden ein neues simuliertes Spektrum und neue Gewichtsfunktionen berechnet. Falls noch keine Konvergenz eingetreten ist, folgt nach der Shift-und-Squeeze-Korrektur der nächste Iterationsschritt.

6.3.7 Konvergenz- und Qualitätstest

Als Kriterium für den Abbruch der Iteration kann die Abweichung der neuen Schätzung \mathbf{x}_{i+1} von der vorhergehenden Schätzung \mathbf{x}_i oder auch die Abweichung der zugehörigen Modellspektren \mathbf{y}_{i+1} und \mathbf{y}_i verwendet werden. Da im Falle der Ozonprofil-Auswertung aus GOME-Messungen die Dimension von \mathbf{x} in der Regel kleiner ist als die von \mathbf{y} , ist es numerisch effizienter, den Konvergenztest im Zustandsraum durchzuführen. Als Konvergenzkriterium dient folgende Beziehung:

$$(\mathbf{x}_{i+1} - \mathbf{x}_i)^T \mathbf{S}_{i+1}^{-1} (\mathbf{x}_{i+1} - \mathbf{x}_i) < \varepsilon, \quad (6.6)$$

wobei \mathbf{S}_{i+1} die Lösungskovarianzmatrix nach der $i+1$ -ten Iteration ist. Die Schranke ε sollte mindestens eine Größenordnung kleiner als die Dimension des Zustandsvektors gewählt werden.

Als Maß für die Qualität des Auswertergebnisses $\hat{\mathbf{x}}$ wird der χ^2 -Wert der Abweichung der mit $\hat{\mathbf{x}}$ modellierten Meßgröße $\hat{\mathbf{y}}$ von der Messung \mathbf{y} betrachtet, der für einen guten Fit ungefähr der Anzahl m der Wellenlängen entsprechen sollte, d. h.

$$\chi^2(\hat{\mathbf{y}} - \mathbf{y}) = (\hat{\mathbf{y}} - \mathbf{y})^T \mathbf{S}_{\hat{\mathbf{y}}}^{-1} (\hat{\mathbf{y}} - \mathbf{y}) \approx m. \quad (6.7)$$

Dabei ist die Kovarianzmatrix $\mathbf{S}_{\hat{\mathbf{y}}}$ der Differenz von $\hat{\mathbf{y}}$ und \mathbf{y} gegeben durch

$$\mathbf{S}_{\hat{\mathbf{y}}} = \mathbf{S}_{\mathbf{y}} (\hat{\mathbf{K}} \mathbf{S}_a \hat{\mathbf{K}}^T + \mathbf{S}_{\mathbf{y}})^{-1} \mathbf{S}_{\mathbf{y}}. \quad (6.8)$$

6.4 Vertikalauflösung der GOME-Ozonprofile

Eine Größe, die sich besonders gut zur Charakterisierung des Einflusses des wahren Zustandsvektors \mathbf{x} auf das Auswertergebnis $\hat{\mathbf{x}}$ eignet, ist die Matrix der Glättungsfunktionen (vgl. Abschnitt 5.4). Mit ihrer Hilfe läßt sich $\hat{\mathbf{x}}$ unter Vernachlässigung der Meß- und Modellfehler durch den Ausdruck

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \quad (6.9)$$

approximieren. Ist der Zustandsvektor ein Profil, dann entspricht das Auswertergebnis in der nominellen Höhe z_i also der Summe des A-priori-Wertes $x_{a,i}$ in eben dieser Höhe und der mit der i -ten Zeile der Matrix $\hat{\mathbf{A}}$ gewichteten Abweichung des wahren vom A-priori-Profil. Im Idealfall ist die Glättungsmatrix gleich der Einheitsmatrix, d. h. das Auswertergebnis wird ausschließlich durch den wahren Atmosphärenzustand bestimmt. Für reale Meßsysteme haben die Glättungsfunktionen jedoch ein mehr oder weniger stark ausgeprägtes Maximum endlicher Breite.

In Abschnitt 6.2 wurde ausführlich dargelegt, warum für die Auswertungen echter GOME-Messungen in dieser Arbeit der Wellenlängenbereich 290-355 nm

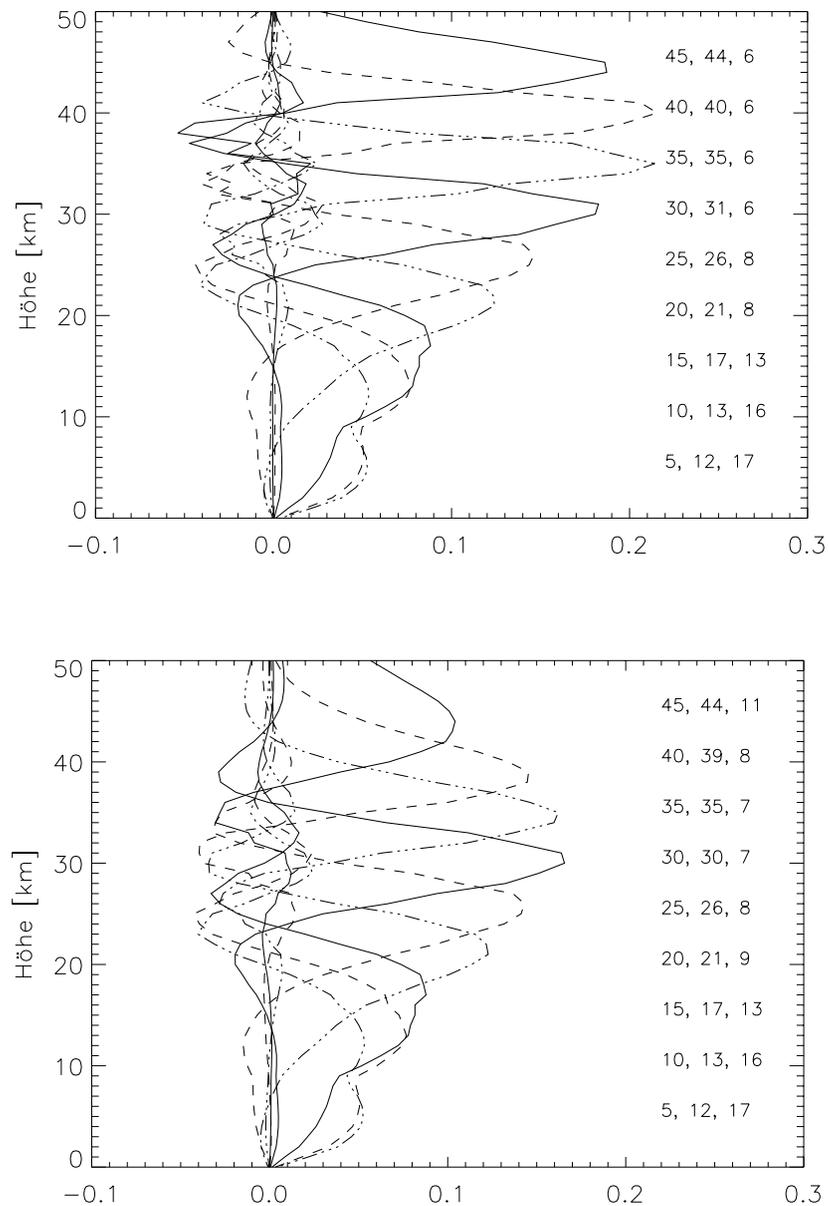


Abbildung 6.5: GOME-Glättungsfunktionen („averaging kernels“) für den Wellenlängenbereich 260-355 nm (oben) und 290-355 nm (unten) für ein Juli-Szenario mittlerer nördlicher Breiten und einen Sonnenzenitwinkel von 70° . Für jede Glättungsfunktion sind die nominelle und die aktuelle Höhe sowie die Halbwertsbreite (FWHM) des Hauptmaximums angegeben.

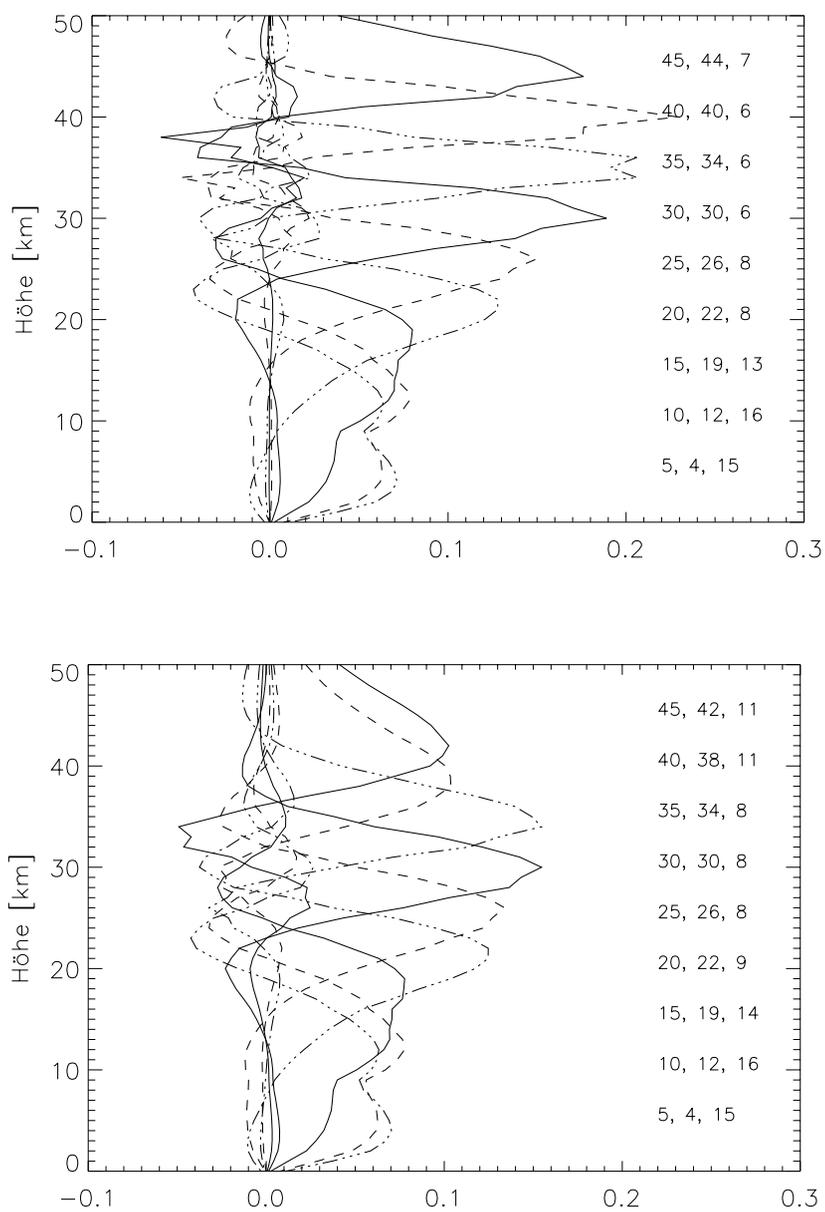


Abbildung 6.6: Wie Abb. 6.5 für einen Sonnenzenitwinkel von 30° .

verwendet wird. Um den durch eine Erweiterung des Spektralbereichs zu kleineren Wellenlängen hin erzielbaren Informationsgewinn zu demonstrieren, sind in den Abbildungen 6.5 und 6.6 typische *GOME*-Glättungsfunktionen für die Sonnenzenitwinkel 70° und 30° jeweils für die Wellenlängenbereiche 260-355 nm und 290-355 nm dargestellt. Für jede Glättungsfunktion sind die nominelle Höhe, auf die sie sich bezieht, sowie die aktuelle Höhe und die Halbwertsbreite des Hauptmaximums angegeben. Für beide Wellenlängenbereiche stimmen die nominelle und die aktuelle Höhe der Maxima zwischen 20 und 45 km gut überein. Unterhalb von 20 km weichen die beiden Höhen allerdings um mehrere Kilometer voneinander ab. Beispielsweise wird das der Höhe 10 km entsprechende Auswertergebnis im Falle des *SZW* 70° am stärksten durch den wahren Wert in 13 km Höhe beeinflusst. Die Halbwertsbreite (FWHM) des Hauptmaximums, die als Maß für die Vertikalauflösung des ausgewerteten Profils interpretiert werden kann, liegt im Falle des Wellenlängenbereiches 260-355 nm oberhalb von 20 km Höhe zwischen 6 und 8 km und nimmt unterhalb von 20 km schnell auf Werte von mehr als 10 km zu. Bei Wahl des kleineren Spektralintervalls bleiben die Halbwertsbreiten in der unteren Stratosphäre und in der Troposphäre unverändert. Oberhalb von 20 km Höhe sind die Halbwertsbreiten dagegen größer als im Fall des Spektralintervalls 260-355 nm: 7-9 km zwischen 20 und 40 km Höhe und 11 km in 45 km Höhe. Für beide Spektralbereiche ist bei 70° *SZW* die Übereinstimmung zwischen nomineller und aktueller Höhe besser, und die Halbwertsbreite ist geringer als bei 30° *SZW*. Bei der Interpretation der Halbwertsbreiten der Hauptmaxima als Vertikalauflösung der ausgewerteten Profile sollte man die Bedeutung der negativen Nebenmaxima nicht ganz außer acht lassen. Letztere beschreiben eine Antikorrelation zwischen dem Auswertergebnis bei der nominellen Höhe und den wahren Werten in mehr oder weniger entfernten Höhen. Zusammenfassend zeigt die Betrachtung der Glättungsfunktionen, daß für das Spektralintervall 290-355 nm zwischen 20 und 35 km Höhe Profilergebnisse mit einer Vertikalauflösung von besser als 10 km erwartet werden können. Außerdem ist die Auswertung eines Säulengehalts für die untere Stratosphäre realistisch. Bei der Bewertung der Auswertergebnisse für die Troposphäre ist zu beachten, daß die Halbwertsbreite der troposphärischen Glättungsfunktionen größer als die Schichtdicke der Troposphäre ist. Dies bedeutet, daß die aus den *GOME*-Messungen ausgewerteten troposphärischen Ozongehalte relativ stark mit den Ozonkonzentrationen in der unteren Stratosphäre korrelieren.

Aufschlußreich sind auch die für die Entwicklung (5.19) verwendeten Eigenvektoren der Kozlov-Informationsmatrix. Exemplarisch sind in Abbildung 6.7 und 6.8 die für dasselbe Atmosphärenszenario und denselben Sonnenzenitwinkel wie in Abbildung 6.5 bzw. 6.6 berechneten Eigenvektoren mit Eigenwerten größer als Eins dargestellt. Sie entsprechen unabhängigen Strukturen im Ozonprofil, die aus den Messungen abgeleitet werden können. Alle anderen Strukturen sind entweder Linearkombinationen dieser Eigenvektoren, oder sie verschwinden im Meßrauschen, oder sie lassen sich aufgrund der begrenzten Vertikalauflösung des

Meßsystems nicht auflösen. Bei Verwendung des Spektralintervalls 260-355 nm stehen zwei Eigenvektoren mehr zur Verfügung als bei Verwendung des kleineren Wellenlängenbereichs 290-355 nm. Wie bei der Analyse der Glättungsfunktionen erkennt man auch anhand der Eigenvektoren, daß sich bei Verwendung des größeren Spektralintervalls oberhalb von 20 km feinere Vertikalstrukturen auflösen lassen. Die Zenitwinkelabhängigkeit der Auswertung zeigt sich darin, daß bei gegebenem Spektralbereich bei 30° SZW ein Eigenvektor weniger zur Verfügung steht als bei 70° SZW.

Anstatt die hochabgetasteten GOME-Ozonprofile direkt zu verwenden, ist es für viele wissenschaftliche Anwendungen sinnvoller, Ozonsäulengehalte für einzelne Höhenschichten zu berechnen, deren Grenzen die vertikale Auflösung der Profile widerspiegeln. Es sei jedoch betont, daß das Auswertergebnis im eigentlichen Sinn das Ozonprofil auf dem feinen Höhengitter ist, das in den Strahlungstransportrechnungen verwendet wird, um die Messung zu reproduzieren.

6.5 Fehlerabschätzung für die GOME-Ozonprofile

Fehler in den ausgewerteten Ozonprofilen können auf drei Hauptursachen zurückgeführt werden: auf die Unterbestimmtheit des betrachteten Inversionsproblems, die zum sogenannten Glättungsfehler führt, auf Fehler in den Meßspektren und schließlich auf Fehler im Vorwärtsmodell. Bei letzteren wird weiter unterschieden zwischen Fehlern in der Beschreibung der dem Strahlungstransport zugrunde liegenden physikalischen Prozesse (Vorwärtsmodellfehler im eigentlichen Sinne) und Fehlern der in das Vorwärtsmodell einfließenden Parameter, die nicht gleichzeitig auch Auswerteparameter sind (Modellparameterfehler).

Die Kovarianzmatrix der Summe des Glättungsfehlers und des Fehlers aufgrund des Meßrauschens läßt sich relativ einfach berechnen (siehe Abschnitt 5.4 und 5.5.1):

$$\hat{\mathbf{S}} = (\hat{\mathbf{K}}^T \mathbf{S}_y^{-1} \hat{\mathbf{K}} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1}. \quad (6.10)$$

Die Standardabweichungen der Lösung, d. h. die Quadratwurzeln der Diagonalelemente von $\hat{\mathbf{S}}$, können als Fehlerbalken des Auswertergebnisses verwendet werden. Dabei sollte jedoch nicht vergessen werden, daß die Fehler der einzelnen Auswerteparameter miteinander korreliert sind. Sie hängen bei gegebenem Meßrauschen vor allem von der Wahl der A-priori-Kovarianzmatrix ab. In den Abbildungen 6.9 und 6.10 sind die Lösungsstandardabweichung sowie das Verhältnis der Lösungsstandardabweichung zur A-priori-Standardabweichung für eine Auswertung im Spektralbereich 290-355 nm bei einem Sonnenzenitwinkel von 70° bzw. 30° dargestellt. Das Atmosphärenszenario ist dasselbe wie in Abbildung 6.1. In jedem Plot sind jeweils die Ergebnisse für eine höhenkonstante A-priori-Standardabweichung von 30 % sowie die A-priori-Standardabweichungen aus der KNMI-Klimatologie gegenübergestellt (siehe Abschnitt 6.3.2). Während

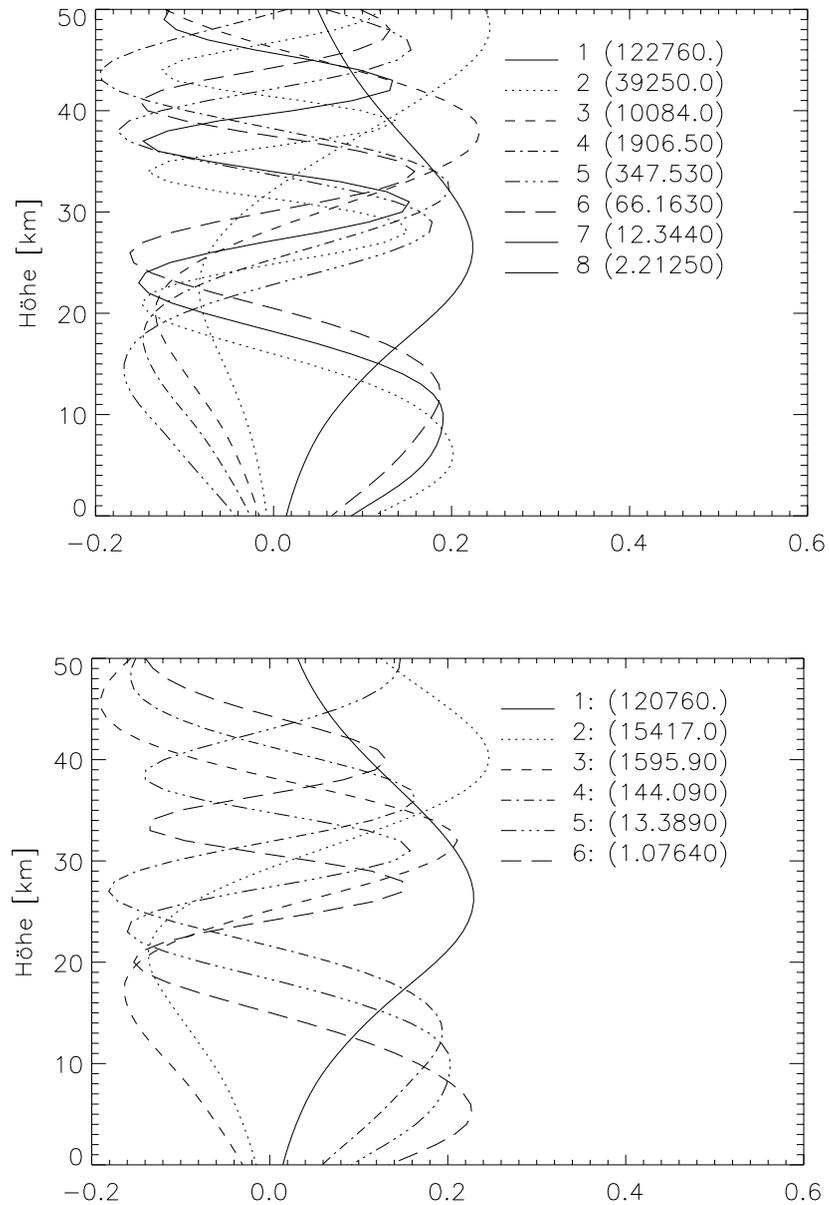


Abbildung 6.7: Eigenvektoren der Kozlov-Informationsmatrix mit Eigenwerten größer als Eins für den Wellenlängenbereich 260-355 nm (oben) und 290-355 nm (unten) für ein Juli-Szenario mittlerer nördlicher Breiten und einen Sonnenzenitwinkel von 70° . Die Eigenvektoren sind nach abnehmenden Eigenwerten geordnet. Die Eigenwerte sind in der Legende angegeben. Die höheren Eigenvektoren zeigen die stärkeren Oszillationen.

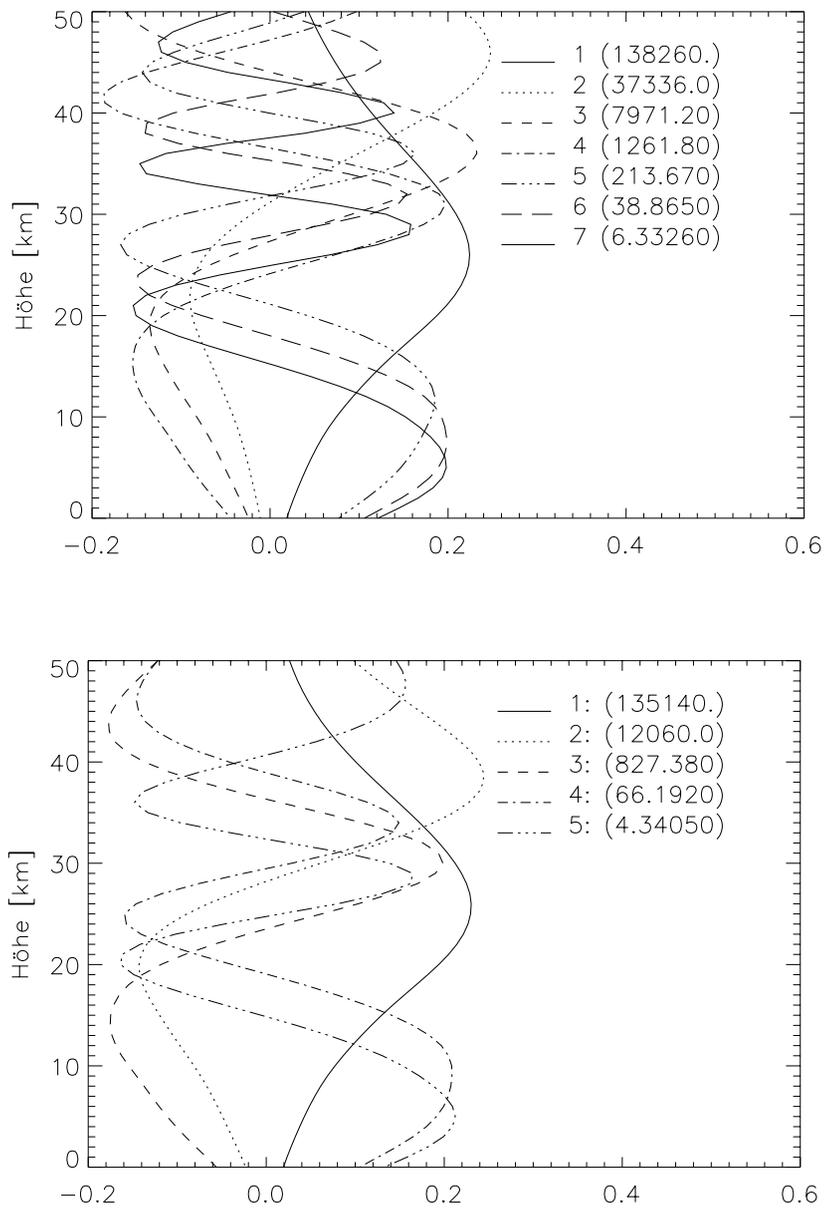


Abbildung 6.8: Wie Abb. 6.7 für einen Sonnenzenitwinkel von 30° .

unterhalb von etwa 20 km Höhe die Lösungsstandardabweichung in beiden Fällen zwischen 20 und 30 % liegt, ist oberhalb von 20 km die mit der *KNMI*-Klimatologie berechnete Standardabweichung deutlich kleiner als die Standardabweichung, die sich unter Verwendung einer A-priori-Standardabweichung von 30 % ergibt. Dies ist darauf zurückzuführen, daß die aus der *KNMI*-Klimatologie abgeleitete A-priori-Standardabweichung in diesem Höhenbereich deutlich kleiner als 30 % ist. Wesentlich aufschlußreicher als die Lösungsstandardabweichung selbst ist ihr Verhältnis zur A-priori-Standardabweichung. Je kleiner dieser Wert ist, umso mehr Information wurde aus der Messung gewonnen. Man erkennt, daß dieser „Informationsparameter“ kaum von der verwendeten A-priori-Standardabweichung abhängt. Zwischen etwa 20 und 45 km ist er kleiner als 0.6, d. h. in diesem Höhenbereich wird das Wissen über die aktuelle Ozonverteilung durch die Messung deutlich verbessert. In der Troposphäre und oberhalb von ungefähr 45 km Höhe geht der Informationsparameter gegen 1, was auf einen geringen Informationsgewinn durch die Messung hinweist.

In der unteren Stratosphäre und in der Troposphäre ist die Vertikalauflösung der Ozonprofile relativ gering und der Einfluß des A-priori-Profiles hoch. Entsprechend wird in diesen Höhenbereichen der Gesamtfehler im wesentlichen durch den Glättungsfehler bestimmt und kann daher gut durch Gleichung (6.10) approximiert werden. Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Spektralbereich wird das ausgewertete Profil oberhalb von etwa 40 km Höhe ebenfalls relativ stark vom A-priori-Profil beeinflusst, so daß auch hier der aus Gleichung (6.10) abgeleitete Fehler eine gute Schätzung für den Gesamtfehler darstellt. In der mittleren Stratosphäre wird der Gesamtfehler dagegen durch Gleichung (6.10) etwas unterschätzt.

Für wissenschaftliche Anwendungen ist man häufig nicht am hochabgetasteten Ozonprofil sondern an Ozonsäulengehalten in bestimmten Höhenbereichen interessiert. Die Lösungskovarianzmatrix für die Säulengehalte ergibt sich aus der ursprünglichen Kovarianzmatrix $\hat{\mathbf{S}}$ durch die Transformation $\mathbf{T}^T \hat{\mathbf{S}} \mathbf{T}$. Dabei stellt die Matrix \mathbf{T} den Integrationsoperator dar. In Tabelle 6.1 sind typische Werte für die Lösungsstandardabweichungen von Ozonsäulengehalten aufgeführt. Die Schichteinteilung wurde so gewählt, daß sie die Vertikalauflösung der Ozonprofile widerspiegelt.

Die *GOME*-Messungen sind nicht nur mit zufälligen sondern auch mit nicht vernachlässigbaren systematischen Fehlern behaftet. Diese Fehler werden teilweise durch in den Auswerteprozess einbezogene Kalibrationskorrekturen kompensiert (siehe Kapitel 7). Resteffekte sind schwierig zu quantifizieren. Dasselbe gilt auch für die Auswirkungen der Vorwärtsmodell- und der Modellparameterfehler. Hier sind vor allem die Unsicherheiten in den Ozonabsorptionsquerschnitten, die vereinfachte Beschreibung der Erdoberfläche als Lambertscher Reflektor, die grobe Approximation durchbrochener Bewölkung (siehe Kapitel 8), die näherungsweise Beschreibung der Aerosoleigenschaften mit Hilfe des *LOWTRAN*-Aerosolmodells, und schließlich die Tatsache, daß *GOMETRAN* ein skalares und kein vektorielles Strahlungstransportmodell ist, zu erwähnen. Die Auswir-

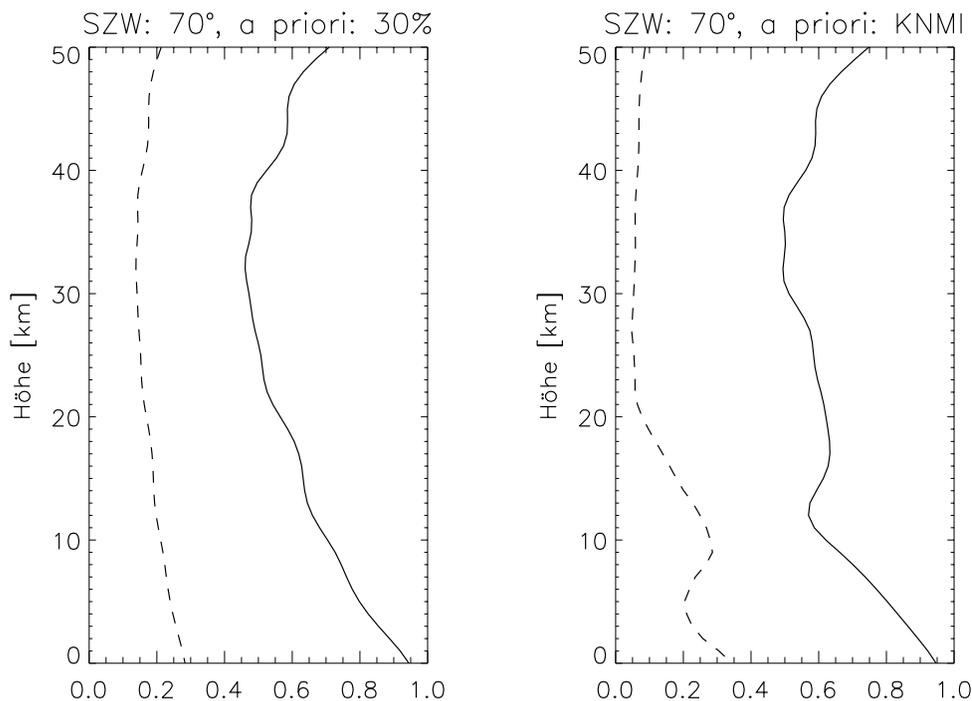


Abbildung 6.9: Lösungsstandardabweichung in Bruchteilen des ausgewerteten Profils (gestrichelte Linie) und Verhältnis der Lösungsstandardabweichung zur A-priori-Standardabweichung (durchgezogene Linie) für eine höhenkonstante A-priori-Standardabweichung von 30% (links) und die Standardabweichung aus der KNMI-Klimatologie (rechts). Für die Auswertung wurde der Spektralbereich 290-355 nm verwendet. Der Sonnenzenitwinkel betrug 70° . Das Atmosphärenszenario war dasselbe wie in Abb. 6.1.

kungen dieser letzten Fehlerquelle werden im folgenden noch näher untersucht. Der Netto-Effekt all dieser Fehlerquellen auf das ausgewertete Ozonprofil variiert mit der Höhe und hängt vom Atmosphärenzustand, der Meßgeometrie und dem verwendeten Spektralbereich ab. Dies macht allgemeine Angaben über die Größe des Fehlers sehr schwierig. In jedem Fall ist derzeit die grobe unzureichende Kalibration der GOME-Spektren die Hauptfehlerquelle, weshalb in dieser Arbeit auf die detaillierte Untersuchung der im Vergleich zu den Kalibrationsfehlern kleinen Modellparameterfehler verzichtet wurde.

Abschließend sei betont, daß die in diesem Abschnitt präsentierten Fehlerbetrachtungen sich auf Einzelprofile beziehen. Häufig werden jedoch aus den Einzelprofilen zeitliche oder räumliche Mittelwerte gebildet, für die sich die durch das

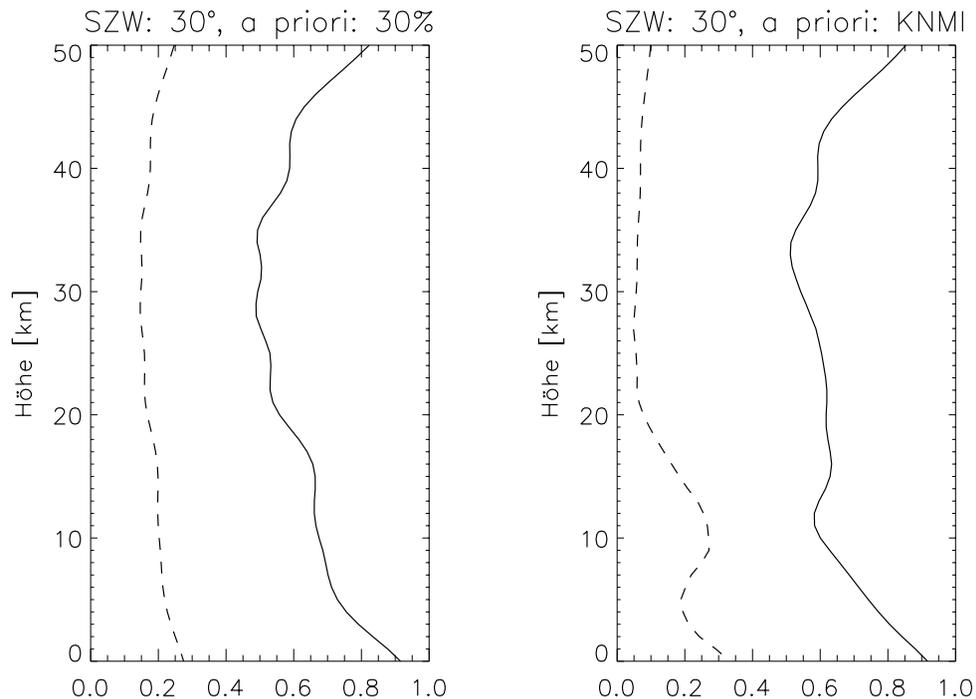


Abbildung 6.10: Wie Abbildung 6.9, aber für einen Sonnenzenitwinkel von 30° .

Meßrauschen verursachte Komponente des Profilfehlers entsprechend der Anzahl der gemittelten Profile verringert.

Vorwärtsmodellfehler

In Abschnitt 4.1.1 wurde die vektorielle Strahlungstransportgleichung (*STG*) eingeführt, deren Lösung der vollständige Stokes-Vektor ist. Die einfachere skalare *STG* berücksichtigt dagegen nur die Strahldichte, nicht jedoch den Polarisationszustand des Lichts (siehe Abschnitt 4.1.2). Für Wellenlängen, bei denen die Mehrfachstreuung nicht vernachlässigbar ist, unterscheiden sich die Lösungen der skalaren und der exakten vektoriellen *STG* je nach Meßgeometrie und Zusammensetzung der Atmosphäre mehr oder weniger stark voneinander.

In diesem Abschnitt wird untersucht, wie sich die Tatsache, daß *GOMETRAN* ein skalares Strahlungstransportmodell ist und somit den realen Strahlungstransport nicht exakt beschreiben kann, auf die abgeleiteten *GOME*-Ozonprofile auswirkt. Für diese Untersuchung ist ein Strahlungstransportmodell erforderlich, daß sowohl im vektoriellen als auch im skalaren Modus betrieben werden kann. Ein solches Modell ist das auf der Doubling-Adding-Methode beruhende Strahlungs-

Schichtgrenzen [km]	Fehler [%]
0-10	15-20
10-20	6-8
20-27	4-6
27-33	6-8
33-40	6-8
40-48	8-12

Tabelle 6.1: Typische 1σ -Fehlerbereiche (in Prozent des Auswertergebnisses) für GOME-Ozonsäulengehalte in ausgewählten Höhenschichten.

transportmodell *DAK* des *KNMI* [39, 150]. Die im vektoriellen Modus berechneten Strahldichten werden im folgenden als „polarisierte“ Strahldichten bezeichnet, die im skalaren Modus berechneten als „unpolarisierte“ Strahldichten. Abbildung 6.11 zeigt die relative Differenz zwischen polarisierter und unpolarisierter Nadir-Strahldichte für drei ausgewählte Sonnenzenitwinkel, die als repräsentativ für die möglichen Meßgeometrien angesehen werden können. Unterhalb von etwa 300 nm, wo Mehrfachstreuung nahezu keine Rolle spielt, sind die Abweichungen vernachlässigbar. Bei größeren Wellenlängen können sie je nach Sonnenzenitwinkel mehrere Prozent betragen.

Um Einflüsse der Unterschiede zwischen *DAK* und *GOMETRAN* auf die Profilergebnisse auszuschließen, wurden nicht direkt die *DAK*-Spektren ausgewertet. Statt dessen wurden mit demselben Atmosphärenszenario, das auch für die Berechnung der *DAK*-Spektren verwendet wurde, unpolarisierte *GOMETRAN*-Spektren berechnet. Die maximalen Differenzen zwischen den unpolarisierten *DAK*- und *GOMETRAN*-Spektren betragen bei allen drei untersuchten Sonnenzenitwinkeln etwa 1 %. Unterschiede dieser Größenordnung sind angesichts der völlig verschiedenen Ansätze zur Lösung der *STG*, der unterschiedlichen Höhen- und Winkeldiskretisierung und der unterschiedlichen Interpolations- und Integrationsverfahren in beiden Programmen zu erwarten. Zu den unpolarisierten *GOMETRAN*-Spektren wurden dann die mit dem *DAK*-Modell berechneten Differenzen zwischen polarisiertem und unpolarisiertem Spektrum addiert. Um den Einfluß der Vernachlässigung der Polarisierungseigenschaften des Lichts auf die Profilauswertung von anderen Störeinflüssen zu separieren, wurde für die Auswertung angenommen, daß alle Atmosphärenparameter a priori bekannt sind. Die Ergebnisse der Profilauswertungen sind in Abbildung 6.12 dargestellt. Die maximale relative Abweichung zwischen dem Auswertergebnis der unpolarisierten Strahlung und der wahren Ozonkonzentration liegt bei allen drei Sonnenzenitwinkeln in der Größenordnung von 10^{-13} , was der numerischen Genauigkeit des Auswertverfahrens entspricht. Im Vergleich zu diesen Referenz-Ergebnissen sind nun die Auswertergebnisse der polarisierten Spektren zu sehen. Für den Sonnenzenitwinkel 53° , bei dem die Differenzen zwischen polarisierter und unpola-

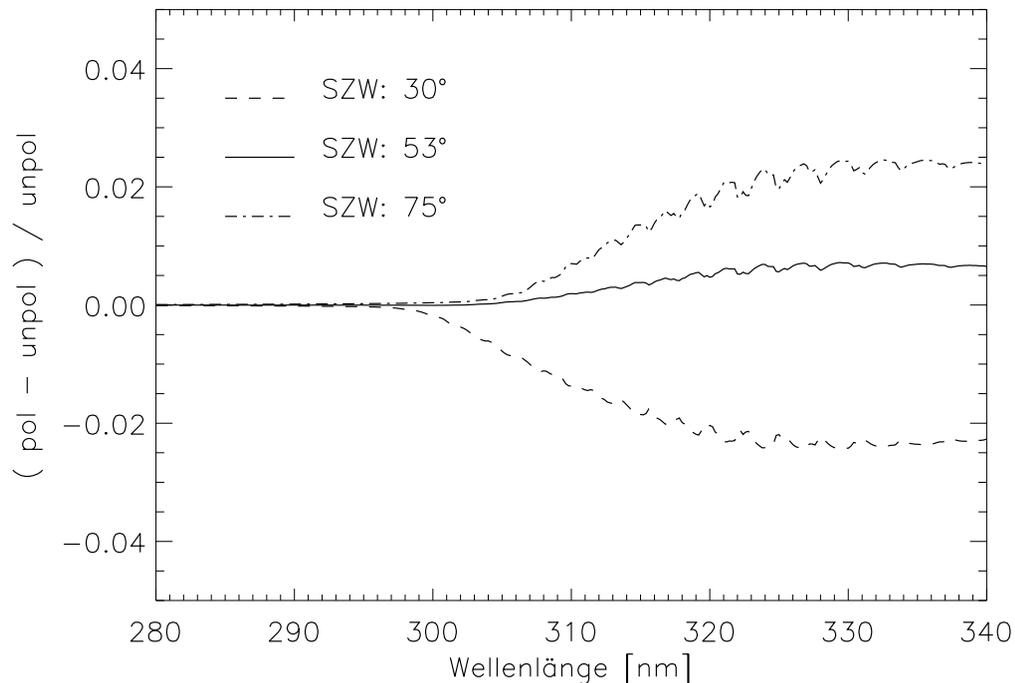


Abbildung 6.11: Relative Differenz zwischen polarisierter und unpolarisierter Nadir-Strahldichte für die Sonnenzenitwinkel 30° , 53° und 75° . Die Strahldichten wurden mit dem Strahlungstransportmodell DAK des KNMI berechnet.

risierter Strahldichte gering sind (unter 0.7 %), weicht das aus dem polarisierten Spektrum abgeleitete Ozonprofil um maximal 2 % vom wahren Profil ab. Dagegen beträgt die maximale Abweichung zwischen ausgewerteter und wahrer Ozonkonzentration für den SZW 30° etwa 5.5 % und für den SZW 75° sogar 8.5 %.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Vernachlässigung der Polarisati-on in *GOMETRAN* je nach Atmosphärenszenario und Sonnenzenitwinkel Fehler von mehreren Prozent in der Nadir-Strahldichte zur Folge haben kann. Bei der Profilauswertung mit dem *FURM*-Algorithmus wird ein Großteil dieses „Strahlungsfehlers“ durch die breitbandigen skalaren Auswerteparameter aufgefangen. Es können jedoch immer noch Profilfehler von mehreren Prozent auftreten, die als Vorwärtsmodellfehler bei der Abschätzung des Gesamtfehlers zu berücksichtigen sind.

Auch wenn die Erweiterung von *GOMETRAN* zu einem Vektor-Strahlungstransportmodell theoretisch möglich ist, würde dies einen nicht unerheblichen Entwicklungsaufwand nach sich ziehen. Außerdem würde ein Vektor-*GOMETRAN* sehr viel Rechenzeit beanspruchen, was seine Anwendung im Rahmen

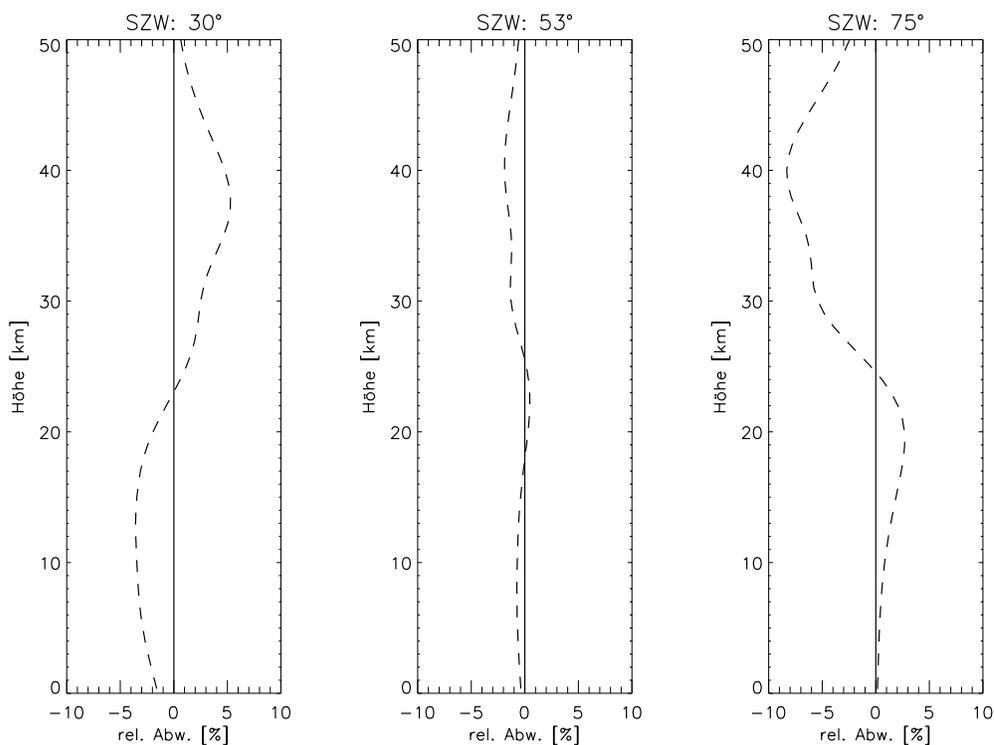


Abbildung 6.12: Relative Differenz zwischen dem wahren Ozonprofil und dem Auswertergebnis für das unpolarisierte (durchgezogene Linie) und das polarisierte Meßspektrum (gestrichelte Linie) für die Sonnenzenitwinkel 30° , 53° und 75° . Ein negativer Wert der Differenz bedeutet, daß die ausgewertete Ozonkonzentration niedriger als die wahre Ozonkonzentration ist.

globaler Profilauswertungen ausschließt. Eine Annäherung an den vektoriellen Strahlungstransport im Sinne der Störungsrechnung wurde von Zege und Chai-kovskaya vorgeschlagen [176]. Die Umsetzung eines derartigen Ansatzes in GOMETRAN wäre allerdings ebenfalls mit einem hohen Entwicklungsaufwand verbunden.

Kapitel 7

Die radiometrische Kalibration

7.1 Problemstellung

Verwendet man für die Ozonprofilauswertung im Spektralbereich 290-350 nm die *GOME*-Messungen mit der radiometrischen Kalibration des *GOME Data Processor* (*GDP*), so erhält man in der Regel relativ unbefriedigende Ergebnisse. Häufig konvergiert das Auswerteverfahren nicht und die Ozonprofile sind mehr oder weniger stark verzerrt. Im spektralen Residuum, d. h. der Differenz zwischen dem Meßspektrum und dem Spektrum, das mit den ausgewerteten Atmosphärenparametern simuliert wurde, werden charakteristische spektrale Strukturen beobachtet, die durch keinen der physikalischen Auswerteparameter beschrieben werden können. Dies deutet auf Fehler in der radiometrischen Kalibration der Messungen hin. Die spektrale Kalibration in Kanal 1 und 2 kann dagegen in erster Ordnung als hinreichend genau betrachtet werden.

In diesem Kapitel werden einige Korrekturen der radiometrischen Kalibration diskutiert, die die Qualität der Ozonprofile deutlich verbessern. Im Einzelnen geht es dabei um

1. die Anpassung der *GOME*-Irradianzen an die *SSBUV-8*-Messungen,
2. die Korrektur der Degradation von *PMD1*,
3. die Korrektur der sogenannten η -Funktion in Kanal 1,
4. die Einbeziehung der Koeffizienten eines Chebyshev-Polynoms dritten Grades als zusätzliche Auswerteparameter.

Auf die einzelnen Kalibrationsschritte wird nur soweit eingegangen, wie es zum Verständnis dieser Arbeit erforderlich ist. Für eine detaillierte Darstellung wird auf die *GDP*-Algorithmenbeschreibung verwiesen [41].

Ausgangspunkt der folgenden Betrachtungen sind die auf die Integrationszeit normierten und spektral kalibrierten Sonnenirradienzen I_{BU}^{irrad} [BU s^{-1}] und Erdradianzen I_{BU}^{rad} [$\text{BU s}^{-1} \text{sr}^{-1}$]. Diese Größen enthalten bereits Korrekturen für

Dunkelstrom, Leckstrom, Streulicht sowie die unterschiedliche Empfindlichkeit der einzelnen Detektorpixel. Ziel der radiometrischen Kalibration ist die Umwandlung von I_{BU}^{irrad} und I_{BU}^{rad} in absolute physikalische Einheiten.

7.2 Kalibration der Sonnenirradianz

Die Sonnenirradianz I_{phys}^{irrad} in physikalischen Einheiten ergibt sich aus folgender Kalibrationsformel:

$$I_{phys}^{irrad}(\lambda_i) = I_{BU}^{irrad}(\lambda_i) / BSDF(\lambda_i, Az, El) / H_S(\lambda_i)$$

$$\left[\frac{\text{Photonen}}{\text{s m}^2 \text{ nm}} \right] = \left[\frac{\text{BU}}{\text{s}} \right] / \left[\frac{1}{\text{sr}} \right] / \left[\frac{\text{BU s}^{-1}}{\text{Photonen s}^{-1} \text{ m}^{-2} \text{ nm}^{-1} \text{ sr}^{-1}} \right]. \quad (7.1)$$

Die Funktion H_S beschreibt die Radianzempfindlichkeit („radiance sensitivity“) des Instruments bezüglich unpolarisierter Strahlung. Sie hängt von der Wellenlänge sowie der Position des Scan-Spiegels ab (siehe Abb. 3.2). Das Subskript „S“ soll andeuten, daß sich der Scan-Spiegel in der Position für Sonnenmessungen befindet. Formal kann die Radianzempfindlichkeit in der Form $H = 0.5(a_s + a_p)$ geschrieben werden, wobei a_s und a_p die Empfindlichkeiten bezüglich senkrecht und parallel zum Eintrittsspalt polarisierter Strahlung sind. Die relativ schwach von der Wellenlänge abhängige $BSDF$ („bi-directional scattering distribution function“) beschreibt das vom Elevations- und vom Azimutwinkel der Sonne abhängige Streuverhalten des Sonnendifusors. Die $BSDF$ und die H -Funktion wurden im Rahmen der „Pre-Flight-Kalibration“ des Instruments bei *TPD/TNO* gemessen. Sie sind für die radiometrische Kalibration von *GOME* entscheidend und werden daher als Schlüsselparameter („key parameters“) bezeichnet.

7.3 Kalibration der Erdradianz

Im Gegensatz zur unpolarisierten direkten Sonnenstrahlung ist die von der Atmosphäre in den Weltraum rückgestreute Strahlung mehr oder weniger stark polarisiert. Bei der Kalibration der Spektren wird dies durch die fraktionale Polarisation p , d. h. den Anteil der parallel polarisierten Strahlung an der Gesamtstrahlung, beschrieben. Für unpolarisierte Strahlung gilt also $p = 0.5$. Bei gegebener Wellenlänge hängt die fraktionale Polarisation vor allem von der Meßgeometrie, aber auch von der Zusammensetzung der Atmosphäre ab.

GOME ist unterschiedlich sensitiv bezüglich senkrecht und parallel polarisierter Strahlung, d. h. $a_s \neq a_p$. Da sich die Radianzempfindlichkeit H auf unpolarisierte Strahlung bezieht, muß die Erdradianz (mit der fraktionalen Polarisation p) zunächst in das äquivalente unpolarisierte Signal umgerechnet werden. Dies geschieht durch Multiplikation mit dem Polarisationskorrekturfaktor C_p , d. h.

$$I_{phys}^{rad}(\lambda_i) = I_{BU}^{rad}(\lambda_i) C_p(\lambda_i) / H_E(\lambda_i), \quad (7.2)$$

wobei

$$C_p(\lambda_i) = \frac{1}{2} \cdot \frac{1 + \eta_E(\lambda_i)}{p(\lambda_i)[1 - \eta_E(\lambda_i)] + \eta_E(\lambda_i)}. \quad (7.3)$$

Die Größe η entspricht dem Verhältnis der Sensitivitäten bezüglich senkrecht und parallel polarisierter Strahlung, d. h. $\eta = a_s/a_p$. Sie ist ebenfalls einer der Schlüsselparameter, die während der „Pre-Flight-Kalibration“ gemessen wurden. Wie die H -Funktion hängt auch η von der Wellenlänge und der Position des Scan-Spiegels ab. Das Subskript „ E “ bedeutet, daß sich der Scan-Spiegel in der Position für Erdmessungen befindet. Auf die Unterscheidung in Nadir-, Ost- und Westpixel wird hier der Übersichtlichkeit halber verzichtet.

Bestimmung der fraktionalen Polarisation

Unterhalb von etwa 300 nm dominiert die Einfachstreuung an Luftmolekülen den atmosphärischen Strahlungstransport. Die fraktionale Polarisation ist in diesem Spektralbereich wellenlängenunabhängig und läßt sich mit Hilfe einer einfachen Beziehung, die lediglich vom lokalen Streuwinkel in einer als repräsentativ betrachteten Höhe (circa 30 km) abhängt, berechnen. Dieser theoretisch bestimmte Polarisationswert wird im folgenden als p_{theo} bezeichnet.

Bei Wellenlängen oberhalb von 300 nm kann die solare Strahlung bis in die Troposphäre und auf den Erdboden vordringen. Entsprechend gewinnt die Mehrfachstreuung sowie die Reflexion an der Erdoberfläche zunehmend an Bedeutung. Die fraktionale Polarisation kann daher im sichtbaren Spektralbereich nicht mehr aus einfachen geometrischen Überlegungen abgeleitet werden. Im folgenden wird die Bestimmung der Polarisation mit Hilfe der PMD -Messungen kurz skizziert. Bezeichnet man die am Instrument ankommende Erdradianz mit I^{rad} , so kann man I_{BU}^{rad} durch

$$I_{BU}^{rad}(\lambda_i) = a_p(\lambda_i) p I^{rad}(\lambda_i) + a_s(\lambda_i) (1 - p) I^{rad}(\lambda_i) \quad (7.4)$$

ausdrücken. Für die breitbandigen PMD -Messungen gilt die analoge Beziehung

$$I_{BU}^{PMD} = d_p p I^{PMD}, \quad (7.5)$$

wobei d_p die breitbandige Sensitivität des PMD bezüglich parallel polarisierter Strahlung ist. Die Sensitivität der $PMDs$ bezüglich senkrecht polarisierter Strahlung ist vernachlässigbar klein. Unter Verwendung der schmalbandigen Sensitivität $d_p(\lambda_i)$ kann man I_{BU}^{PMD} auch durch die sogenannte „virtuelle Pixelsumme“ ausdrücken:

$$I_{BU}^{PMD} = \sum_i d_p(\lambda_i) p I^{rad}(\lambda_i). \quad (7.6)$$

Die Summation erstreckt sich dabei über den ganzen, von dem jeweiligen *PMD* überdeckten Spektralbereich. Tatsächlich wurde während der „Pre-Flight-Kalibration“ nicht direkt $d_p(\lambda_i)$ bestimmt, sondern das Verhältnis $\xi(\lambda_i) = d_p(\lambda_i)/a_p(\lambda_i)$. Aus Gleichung (7.4) und (7.6) ergibt sich damit

$$I_{BU}^{PMD} = \sum_i \xi(\lambda_i) p \frac{I_{BU}^{rad}}{\eta_E(\lambda_i) + p[1 - \eta_E(\lambda_i)]}. \quad (7.7)$$

Nimmt man an, daß p in dem Spektralbereich, in dem ξ von Null verschieden ist, nicht mit der Wellenlänge variiert, so läßt sich aus dieser Gleichung die fraktionale Polarisation ableiten. Die den *PMDs* 1 bis 3 entsprechenden Polarisationswerte werden im folgenden mit p_1 , p_2 und p_3 bezeichnet.

Die vier Polarisationswerte p_{theo} , p_1 , p_2 und p_3 entsprechen den effektiven Wellenlängen $\lambda_{theo} = 300$ nm, $\lambda_1 = 370$ nm, $\lambda_2 = 500$ nm und $\lambda_3 = 700$ nm. Für Wellenlängen $\lambda_i < \lambda_{theo}$ wird $p(\lambda_i) = p_{theo}$ gesetzt. Zwischen λ_1 und λ_3 zeigt die fraktionale Polarisation nur eine schwache Wellenlängenabhängigkeit, so daß $p(\lambda_i)$ in diesem Spektralbereich durch eine einfache Interpolation zwischen p_1 , p_2 und p_3 gewonnen werden kann. Schwieriger ist die Bestimmung der Polarisation zwischen λ_{theo} und λ_1 . In diesem Spektralbereich wird $p(\lambda_i)$ durch eine analytische Funktion (die „Generalized-Distribution-Funktion“ (*GDF*) [41]) mit wenigen freien Parametern beschrieben, die entsprechend dem vermuteten Spektralverlauf von p angepaßt werden. Besonders kritisch ist dabei der Bereich zwischen 300 und 325 nm, in dem die fraktionale Polarisation relativ stark mit der Wellenlänge abnimmt.

7.4 Fehlerquellen der radiometrischen Kalibration

Wie aus den vorangegangenen Abschnitten ersichtlich ist, können Fehler in der radiometrischen Kalibration aus Fehlern in den Schlüsselparametern sowie aus Fehlern bei der Bestimmung der fraktionalen Polarisation resultieren. Die aktuellen Schlüsselparameter können sich vor allem aus zwei Gründen von den im Labor bestimmten Werten unterscheiden:

1. Der Einfluß der kurzwelligen UV-Strahlung bewirkt eine Degradation der optischen Komponenten des Instruments im Orbit. Die zeitlichen Veränderungen des Sonnendiffusers, des Sonnen- und des Scan-Spiegels sowie der Spektrometer-Optik können im Prinzip anhand von Sonnen-, Mond- und Lampenmessungen verfolgt werden. Um eine exakte Kalibration der Meßspektren zu gewährleisten, müssen die Schlüsselparameter auf der Grundlage derartiger Messungen regelmäßig überprüft und gegebenenfalls nachgebessert werden. Die Notwendigkeit dieser Vorgehensweise ist allgemein anerkannt und es wurden bereits erste Schritte auf dem Weg zu ihrer Umsetzung für *GOME* unternommen.

2. Viele Parameter wurden im Labor nicht bei den tatsächlich im Orbit herrschenden Temperaturen gemessen. Entsprechend gibt es Differenzen zwischen den im Labor bestimmten und den im Orbit gültigen Schlüsselparametern, die derzeit noch nicht exakt quantifiziert sind.

Auch für Fehler in der fraktionalen Polarisierung gibt es verschiedene Ursachen, von denen hier nur die für die Ozonprofilauswertung wichtigsten aufgezählt werden:

1. Fehler in p_{theo} können auftreten, wenn die für die Berechnung des Streuwinkels verwendeten geometrischen Parameter fehlerhaft sind. Hier ist insbesondere die effektive Streuhöhe zu nennen.
2. Fehler in p_1 können sich aus fehlerhaften Schlüsselparametern η und ξ ergeben. Ferner wird in Gleichung (7.7) davon ausgegangen, daß die fraktionale Polarisierung über den Spektralbereich, in dem ξ von Null verschieden ist, nicht von der Wellenlänge abhängt. Diese Annahme ist jedoch vor allem für *PMD1* eine relativ grobe Näherung.
3. Selbst bei korrekt bestimmten Stützstellen p_{theo} und p_1 ist die Beschreibung der fraktionalen Polarisierung zwischen λ_{theo} und λ_1 durch die *GDF* nur eine je nach Meßgeometrie und Atmosphärenzustand mehr oder weniger gute Approximation.
4. Schließlich führen starke Absorptionsstrukturen wie die O_3 -Absorption in den Huggins-Banden zu einer Feinstruktur der fraktionalen Polarisierung, die bisher nicht berücksichtigt wird.

Die Fehler bei der Bestimmung der fraktionalen Polarisierung lassen sich nur schwer quantifizieren. Anhaltspunkte können sich durch detaillierte Vergleiche der gemessenen mit berechneten Polarisierungswerten ergeben (vgl. [1, 151]). Hierfür ist allerdings ein Vektor-Strahlungstransportmodell erforderlich.

7.5 Korrekturen der radiometrischen Kalibration

7.5.1 Anpassung der Sonnenmessungen an *SSBUV-8*

Beim Vergleich der kalibrierten *GOME*-Sonnenirradienzen mit der mittleren Irradianz, die vom *SSBUV* Instrument der *NASA* (siehe Abschnitt 2.2.4) während seiner 8. Mission im Januar 1996 gemessen wurde, zeigt sich eine deutliche Degradation der *GOME*-Spektren im UV-Bereich [168]. Ähnliche Beobachtungen wurden auch beim Vergleich mit Messungen des *SOLSTICE* Instruments auf *UARS* gemacht [122]. Diese Degradation ist darauf zurückzuführen, daß die Strahlungsempfindlichkeit der optischen Komponenten durch die Einwirkung der

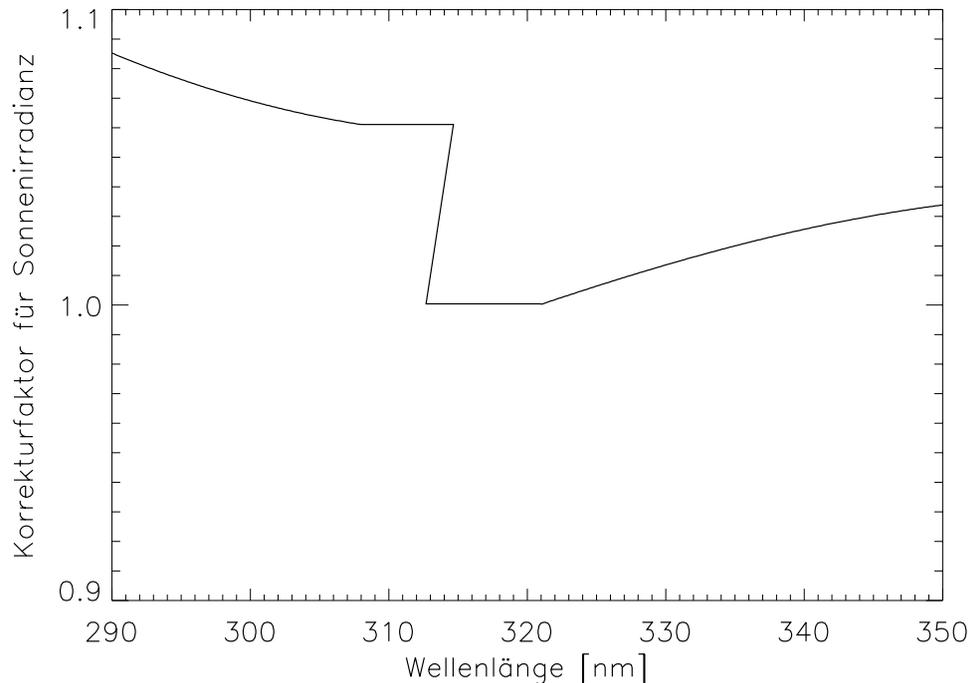


Abbildung 7.1: Korrekturfaktoren für die Anpassung der GOME-Sonnenirradianz an die mittlere SSBUV-8 Irradianz gültig für den 1. April 1997.

UV-Strahlung mit der Zeit abnimmt. Dieses Verhalten ist auch von anderen optischen Satelliteninstrumenten bekannt, die der kurzwelligen solaren Strahlung ausgesetzt sind. Bei den Mondmessungen von *GOME*, die ohne Umweg über die Kalibrationseinheit direkt über den Scan-Spiegel erfolgen, wird eine ähnliche Degradation wie bei den Sonnenmessungen beobachtet [42]. Daher wird vermutet, daß die Abnahme der Strahlungsempfindlichkeit vor allem den Spektrometer-teil und den Scan-Spiegel und in geringerem Maße den Sonnendiffusor und den Sonnen-Spiegel betrifft.

Das *SSBUV* Gerät wird vor jedem Einsatz besonders sorgfältig kalibriert und seine UV-Degradation ist aufgrund der kurzen Dauer der Missionen vernachlässigbar [74]. Die mittlere *SSBUV-8* Sonnenirradianz kann daher als Referenz verwendet werden, um die *GOME*-Irradianzen in erster Ordnung zu korrigieren. Die Korrektur besteht in einem wellenlängenabhängigen Korrekturfaktor, der dem Verhältnis der auf eine astronomische Einheit normierten *SSBUV-8*- und *GOME*-Irradianzen entspricht (M. Weber, *IUP*, Universität Bremen, persönl. Mitteilung). Die Korrekturfaktoren ändern sich entsprechend der Degradation von *GOME* mit

der Zeit. Als Beispiel sind in Abbildung 7.1 die Korrekturfaktoren für den 1. April 1997 dargestellt. Da sowohl die Sonnenirradianz als auch die Erdradianz von der UV-Degradation betroffen sind, ist für Auswertungen der sonnennormierten Strahlung die Anwendung der oben beschriebenen Sonnenkorrektur ohne gleichzeitige Korrektur der Erdmessungen nicht sinnvoll.

7.5.2 Korrektur der Degradation von *PMD1*

Ein Sonderfall von Gleichung (7.7) ergibt sich für Sonnenmessungen, bei denen $p = 0.5$ gilt:

$$I_{BU}^{PMD,Sonne} = \sum_i \xi(\lambda_i) \frac{I_{BU}^{irrad}(\lambda_i)}{\eta_S(\lambda_i) + 1}. \quad (7.8)$$

Diese Gleichung enthält keine Unbekannten und muß daher identisch erfüllt sein. Dies war für *PMD1* zu Beginn der *GOME*-Messungen im Juli 1995 auch tatsächlich der Fall. Seither wird jedoch eine stetige Abnahme von $I_{BU}^{PMD1,Sonne}$ im Vergleich zur virtuellen Pixelsumme von etwa 5 % pro Jahr beobachtet (K. Bramstedt, *IUP*, Universität Bremen, persönliche Mitteilung). Dies wird auf eine UV-Degradation von *PMD1* zurückgeführt. *PMD2* und *PMD3*, die den sichtbaren Spektralbereich abdecken, zeigen erwartungsgemäß keine derartige Degradation. Da die UV-Degradation von *PMD1* zu Fehlern bei der Bestimmung des Wertes p_1 führt, werden in dieser Arbeit die Messungen von *PMD1* vor der Bestimmung der fraktionalen Polarisation mit dem Korrekturfaktor

$$C_{PMD1} = \sum_i \xi(\lambda_i) \frac{I_{BU}^{irrad}(\lambda_i)}{\eta_S(\lambda_i) + 1} / I_{BU}^{PMD1} \quad (7.9)$$

skaliert.

7.5.3 Korrektur der η -Funktion

Da sowohl die Sonnenirradianz als auch die Erdradianz von der UV-Degradation betroffen sind, ist die in Abschnitt 7.5.1 beschriebene Korrektur der Irradianz allein nicht ausreichend. Es ist vielmehr auch eine entsprechende Korrektur der Erdradianzen erforderlich. In diesem Abschnitt wird ein Verfahren geschildert, daß es erlaubt, eine grobe Korrektur der η_E -Funktion in Kanal 1 vorzunehmen. Es beruht auf der Analyse der Residuen zwischen Spektren, die mit als bekannt angenommenen Atmosphärenparametern simuliert wurden, und tatsächlich gemessenen Spektren. Um den Einfluß der möglicherweise falsch bestimmten fraktionalen Polarisation gering zu halten, werden für die Analyse nur Spektren mit $p \approx 0.5$ herangezogen. Entsprechende Meßgeometrien treten vor allem in äquatorialen Breiten auf. Für den Residuenvergleich wurden 27 Koinzidenzen zwischen

SAGE-II- und *GOME*-Messungen zwischen 10°N und 20°S aus der Zeit zwischen dem 1. und 11. April 1997 ausgewählt. Als Koinzidenz wurden dabei alle Ereignisse gewertet, bei denen die *GOME*- und die *SAGE-II*-Messung am selben Tag stattfanden und die Zentren der jeweiligen Grundpixel nicht mehr als 300 km voneinander entfernt waren. Es kann davon ausgegangen werden, daß sich die Instrumentenfunktionen innerhalb des kurzen Vergleichszeitraums nicht verändert haben. Die fraktionale Polarisation variierte für die 27 Vergleichsbeispiele zwischen 0.5 und 0.565. Bei der Simulation der sonnennormierten Strahlung mit dem Strahlungstransportmodell *GOMETRAN* wurde zwischen 20 und 50 km Höhe das *SAGE-II*-Profil als „wahres“ Ozonprofil verwendet. Außerhalb dieses Höhenbereiches wurde auf das entsprechende klimatologische Profil zurückgegriffen.

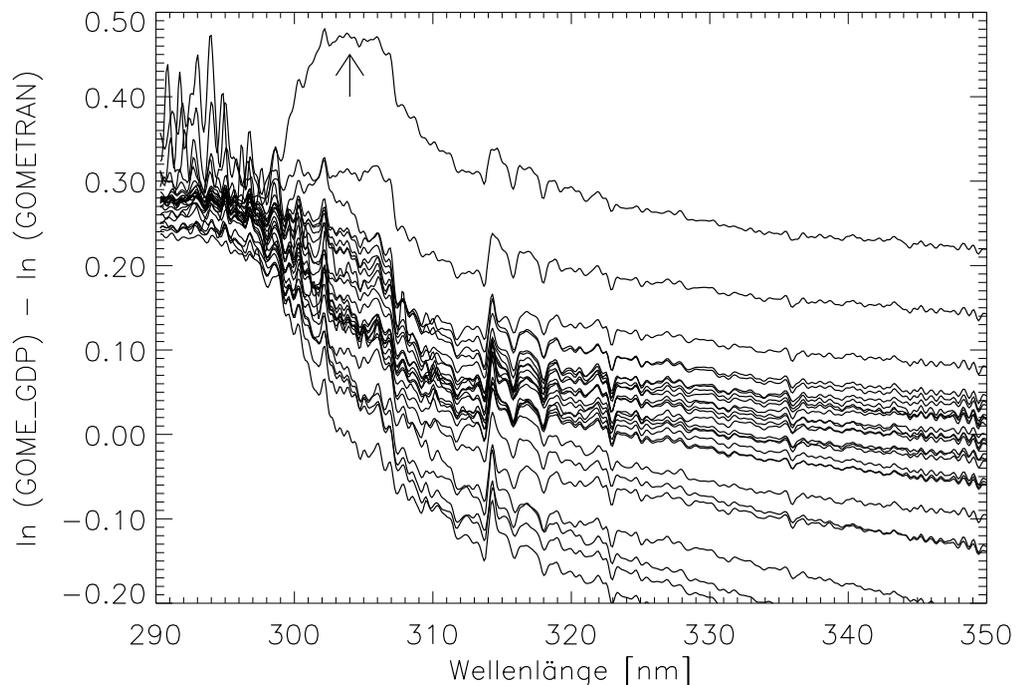


Abbildung 7.2: Die spektralen Residuen ($\ln(GOME) - \ln(GOMETRAN)$) vor der Korrektur der radiometrischen Kalibration. Der Pfeil markiert ein Beispiel, bei dem die für die Simulation verwendete Ozonverteilung unterhalb von 20 km Höhe deutlich von der tatsächlichen Ozonverteilung abweicht.

Abbildung 7.2 zeigt für die 27 Vergleichsfälle die Differenz zwischen den sich mit der *GDP*-Kalibration ergebenden *GOME*-Spektren und den entsprechenden *GOMETRAN*-Spektren. Auffälligstes Merkmal der spektralen Residuen sind die

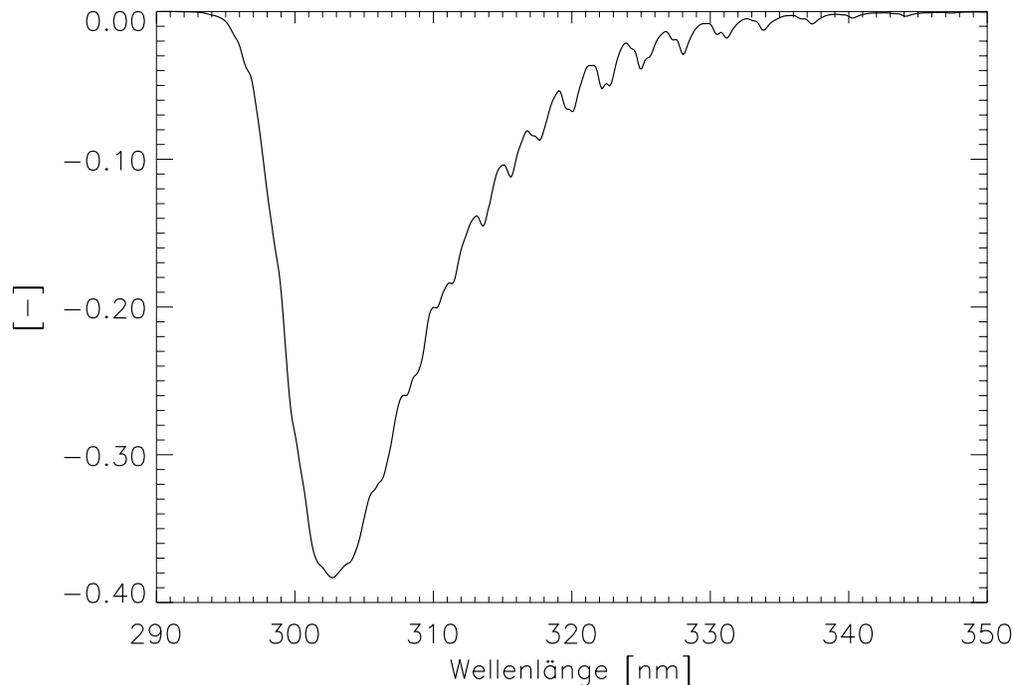


Abbildung 7.3: Über den Höhenbereich zwischen 0 und 20 km integrierte Ozongewichtsfunktion für ein tropisches Szenario und eine Sonnenzenitwinkel von 28° . Diese Gewichtsfunktion beschreibt die Änderung des Logarithmus der sonnennormierten Strahlung am Oberrand der Atmosphäre bei einer Erhöhung des Ozongehalts zwischen 0 und 20 km Höhe um 100 %.

im Vergleich zu den GOMETRAN-Spektren deutlich höheren GOME-Werte unterhalb von etwa 300 nm. In diesem Spektralbereich wird die sonnennormierte Strahlung im wesentlichen durch die Rayleigh-Streuung und die stratosphärische Ozonabsorption bestimmt, die in guter Näherung als bekannt vorausgesetzt werden können. Die spektralen Differenzen können daher größtenteils auf Fehler in der radiometrischen Kalibration zurückgeführt werden. Dies gilt ebenfalls für den deutlich sichtbaren Sprung an der Grenze zwischen Kanal 1 und 2 bei etwa 314 nm. Zwischen 300 und 310 nm zeigen die spektralen Residuen eine große Streuung. Diese ist in erster Linie darauf zurückzuführen, daß das tatsächliche Ozonprofil unterhalb von 20 km von dem für die Simulation verwendeten klimatologischen Profil mehr oder weniger stark abweicht. Besonders auffällig ist dies bei dem durch den Pfeil markierten Residuum, das in seinem Spektralverlauf zwischen 300 und 310 nm stark der über den Höhenbereich zwischen 0 und 20 km

integrierten Ozongewichtsfunktion ähnelt (siehe Abb. 7.3). Alle Beispiele, bei denen deutliche Abweichungen zwischen dem für die Simulation verwendeten und dem tatsächlichen Ozonprofil vermutet werden, müssen aus der weiteren Analyse ausgeschlossen werden. Nach dieser Selektion bleiben noch 19 Vergleichsbeispiele. Die Differenzen zwischen *GOME* und *GOMETRAN* oberhalb von etwa 310 nm sind zumindest teilweise auf die für die Simulation nur unzureichend bekannten Aerosol-, Albedo- und Wolkeneigenschaften zurückzuführen. In jedem Fall ist in diesem Spektralbereich eine Unterscheidung zwischen Differenzen, die durch Kalibrationsfehler verursacht werden, und Differenzen, die auf falschen Atmosphärenparametern bei der Spektrensimulation beruhen, nicht möglich. Daher muß sich der Versuch einer Korrektur der Instrumenteneigenschaften auf Kanal 1 beschränken.

Für die Profilauswertung wird die sonnennormierte Strahlung

$$y = \ln \frac{\pi I_{phys}^{rad}}{I_{phys}^{irrad}} \quad (7.10)$$

als Meßgröße verwendet. Sie ist mit I_{BU}^{rad} und I_{BU}^{irrad} über die Beziehung

$$y = \ln \frac{\pi I_{BU}^{rad}}{I_{BU}^{irrad}} + \ln \frac{H_S (\eta_E + 1) BSDF}{2H_E [p(1 - \eta_E) + \eta_E]} \quad (7.11)$$

verknüpft. Dieser Ausdruck läßt sich umformen in

$$y = \ln \frac{\pi I_{BU}^{rad}}{I_{BU}^{irrad}} + \ln \frac{a_{p,S} (1 + \eta_S) BSDF}{2a_{p,E}} - \ln [p(1 - \eta_E) + \eta_E]. \quad (7.12)$$

Der zweite Term auf der rechten Seite dieser Gleichung enthält nur Geräteeigenschaften und wird im folgenden mit dem Buchstaben G abgekürzt. Der dritte Term hängt dagegen über p auch vom aktuellen Atmosphärenzustand ab. Die gegenwärtig im *GDP*-Algorithmus verwendeten Schlüsselparameter (Version 8.00) und die damit kalibrierten Größen werden im folgenden durch einen Balken gekennzeichnet:

$$\bar{y} = \ln \frac{\pi I_{BU}^{rad}}{I_{BU}^{irrad}} + \bar{G} - \ln [\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E] \quad (7.13)$$

Die Größen

$$\delta y = y - \bar{y}, \quad \delta G = G - \bar{G}, \quad \delta \eta = \eta - \bar{\eta} \quad \text{und} \quad \delta p = p - \bar{p}$$

bezeichnen jeweils die Abweichung zwischen dem wahren und dem *GDP*-Wert. Abgesehen von $a_{p,E}$ enthält die Größe G nur Instrumenteneigenschaften, die sich auf die Sonnenirradianz beziehen. Nach der Anpassung an die *SSBUV-8*-Messungen können Kalibrationsfehler in den Sonnenirradienzen in erster Näherung

vernachlässigt werden. Geht man ferner davon aus, daß $a_{p,E} \approx a_{p,S}$, so kann in der Residuenanalyse $\delta G \approx 0$ gesetzt werden. Linearisiert man den dritten Term in Gleichung (7.12) um $\bar{\eta}_E$ und \bar{p} , so ergibt sich

$$\begin{aligned} \ln[p(1 - \eta_E) + \eta_E] &\approx \ln[\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E] \\ &+ \frac{1 - \bar{\eta}_E}{\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E} \delta p \\ &+ \frac{1 - \bar{p}}{\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E} \delta \eta_E. \end{aligned} \quad (7.14)$$

Damit ergibt sich für δy folgender Ausdruck:

$$\delta y \approx -\frac{1 - \bar{\eta}_E}{\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E} \delta p - \frac{1 - \bar{p}}{\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E} \delta \eta_E. \quad (7.15)$$

Diese Gleichung enthält mit $\delta \eta_E$ und δp immer noch zwei Unbekannte. Für Szenarien mit $p \approx 0.5$ ist der Polarisationskorrekturfaktor C_p ungefähr Eins, d. h. die fraktionale Polarisation wirkt sich kaum auf die radiometrische Kalibration aus (siehe Gl. (7.3)). Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung (7.15) kann also in diesem Fall bei der Residuenanalyse in grober Näherung vernachlässigt werden, d. h.

$$\delta y \approx -\frac{1 - \bar{p}}{\bar{p}(1 - \bar{\eta}_E) + \bar{\eta}_E} \delta \eta_E. \quad (7.16)$$

Eine Schätzung für $\delta \eta_E(\lambda_i)$ erhält man, wenn man für die Wellenlänge λ_i diese Gleichung für alle 19 oben genannten Vergleichsspektren formuliert und das sich so ergebende Gleichungssystem im Sinne der kleinsten Quadrate nach $\delta \eta_E(\lambda_i)$ auflöst. Das Ergebnis dieser Vorgehensweise zeigt Abbildung 7.4. Die spektrale Feinstruktur von $\delta \eta_E(\lambda_i)$ entspricht nicht realen Instrumenteneigenschaften, sondern ist vor allem auf die Approximation des Ring-Effekts bei der Berechnung von y , auf Meßrauschen in \bar{y} und auf Unterschiede zwischen dem echten und dem für die Simulation verwendeten Ozonprofil zurückzuführen. Daher wurde $\delta \eta_E(\lambda_i)$ durch ein Polynom dritten Grades in λ approximiert, mit dem dann die *GDP*-Werte für η_E korrigiert wurden. Anschaulich bedeutet $\delta \eta_E > 0$, daß die Empfindlichkeit des Instruments bezüglich parallel polarisierter Strahlung mit der Zeit stärker abgenommen hat, als die Empfindlichkeit bezüglich senkrecht polarisierter Strahlung. In diesem Zusammenhang ist zu betonen, daß aufgrund der zeitlichen Änderungen von η_E die einmalige Bestimmung einer Korrektur $\delta \eta_E$ nicht ausreichend ist. Es ist vielmehr eine regelmäßige Überprüfung und gegebenenfalls Anpassung von η_E erforderlich.

Die Residuen der 19 Vergleichsspektren nach der Korrektur der Sonnenirradianz, der *PMDI*-Messung und der η_E -Funktion in Kanal 1 sind in Abbildung 7.5 dargestellt. Man erkennt, daß die Differenz zwischen Messung und Simulation unterhalb von 300 nm deutlich abgenommen hat. Die Abweichungen zwischen

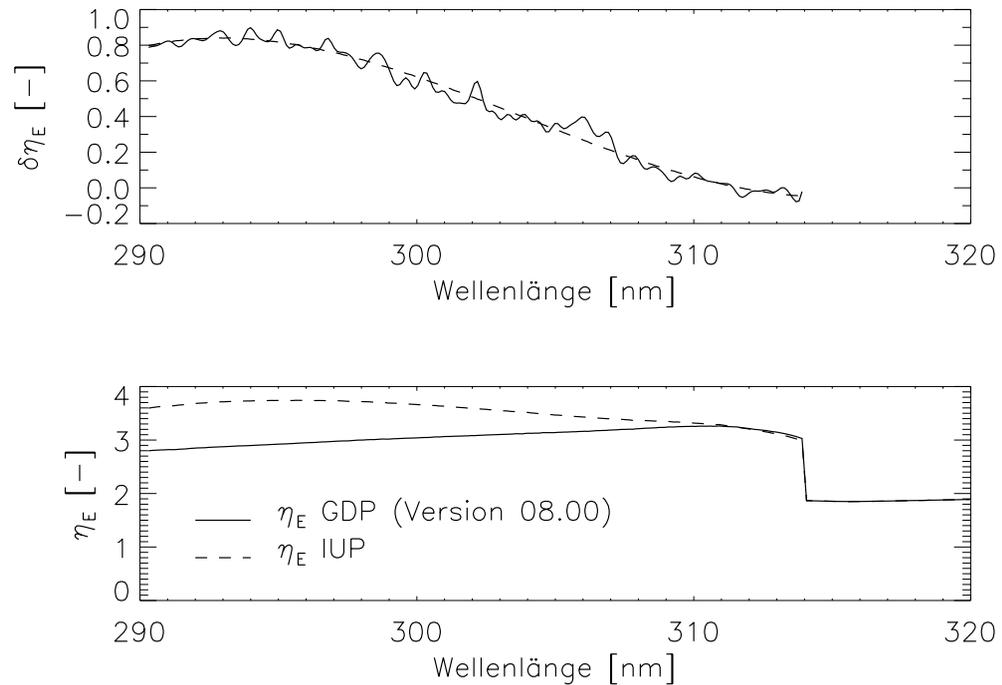


Abbildung 7.4: *Oben:* Aus der Residuenanalyse abgeleitete Korrektur $\delta\eta_E$. Die durchgezogene Linie ist das eigentliche Fit-Ergebnis, die gestrichelte Linie entspricht der Approximation durch ein Polynom dritten Grades.

Unten: Ursprüngliche η_E -Funktion aus dem GDP (durchgezogene Linie) und neue „IUP“- η_E -Funktion (gestrichelte Linie).

300 und 315 nm resultieren in erster Linie aus Unterschieden zwischen dem wahren und dem für die Simulation verwendeten Ozonprofil. Eine weitere mögliche Ursache sind Ungenauigkeiten bei der in diesem Spektralbereich besonders kritischen Bestimmung der fraktionalen Polarisation. Dieser Punkt bedarf weiterer Untersuchungen, die jedoch den Rahmen dieser Arbeit sprengen würden.

7.5.4 Auswerteparameter zur Kalibrationskorrektur

Die oben erwähnten Korrekturen der radiometrischen Kalibration sind allein noch nicht ausreichend für die Ableitung realistischer Ozonprofile aus *GOME*-Messungen. Wie aus Abbildung 7.5 ersichtlich, existiert auch nach Anwendung der Korrekturen der Sprung an der Grenze zwischen Kanal 1 und 2 weiter. Um die verbleibenden Kalibrationsfehler zumindest teilweise auffangen zu können, wird

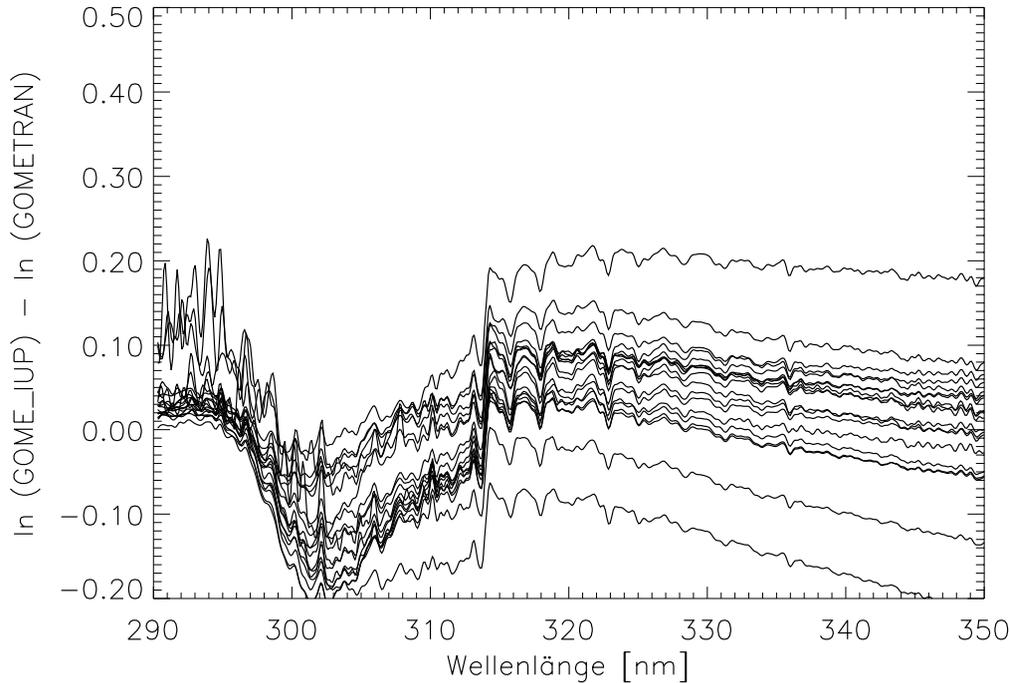


Abbildung 7.5: Die spektralen Residuen $\ln(GOME) - \ln(GOMETRAN)$ nach der Korrektur der Sonnenirradianz, der PMD1-Messung und der η_E -Funktion in Kanal 1.

daher eine Linearkombination von Chebychev-Polynomen nullten bis zweiten Grades als weitere Korrekturfunktion eingeführt. Die Polynom-Koeffizienten werden als zusätzliche Auswerteparameter in die Auswertung miteinbezogen, wobei die Koeffizienten in Kanal 1 und 2 getrennt angepaßt werden. Zur Berechnung der Chebyshev-Polynome werden die diskreten Wellenlängen λ_i linear auf den Wertebereich $[-1,1]$ transformiert:

$$t_i = \frac{2\lambda_i - \lambda_{max} - \lambda_{min}}{\lambda_{max} - \lambda_{min}}. \quad (7.17)$$

Die Wahl von λ_{min} und λ_{max} ist einer gewissen Willkür unterworfen. Für Kanal 1 haben sich die Werte $\lambda_{min} = 250\text{ nm}$ und $\lambda_{max} = 314\text{ nm}$, und für Kanal 2 die Werte $\lambda_{min} = 314\text{ nm}$ und $\lambda_{max} = 405\text{ nm}$ bewährt. Das Chebyshev-Polynom j -ten Grades ist gegeben durch

$$P_j(t_i) = \cos[j \arccos(t_i)]. \quad (7.18)$$

Zur Veranschaulichung sind in Abbildung 7.6 die Kalibrationsfunktion der sonnennormierten Strahlung, d. h. der zweite Term auf der rechten Seite von Glei-

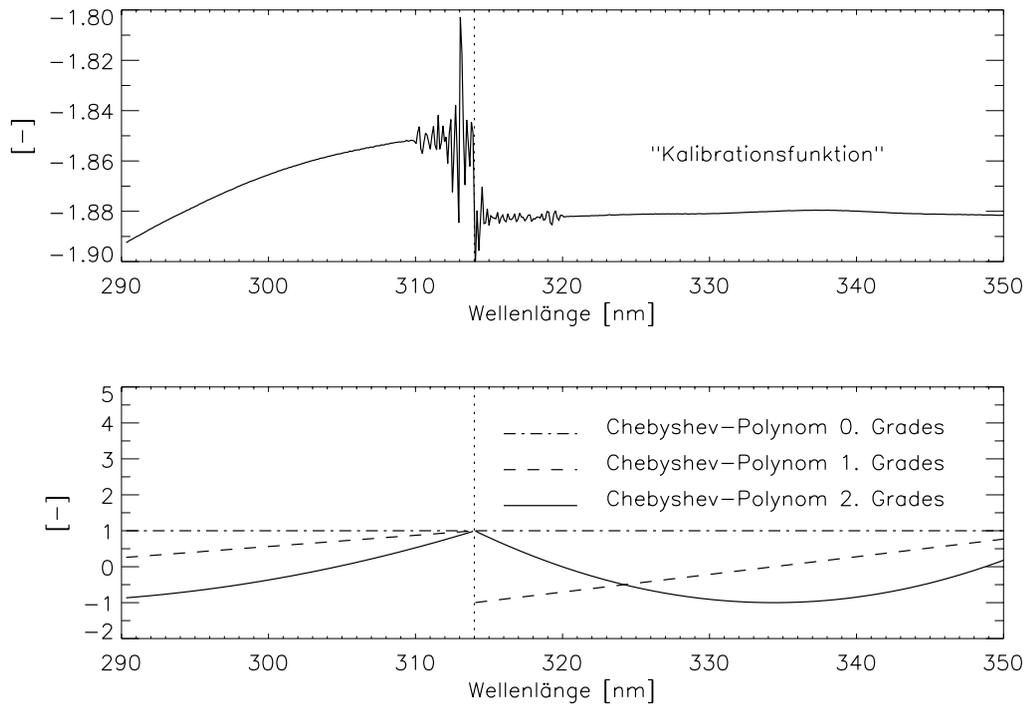


Abbildung 7.6: Typische GOME-Kalibrationsfunktion (oben) und die Chebyshev-Polynome nullten bis zweiten Grades (unten) zwischen 290 und 350 nm. Die gepunktete Linie bei 314 nm kennzeichnet die Grenze zwischen Kanal 1B und 2.

chung (7.11), sowie die Chebyshev-Polynome nullten bis zweiten Grades dargestellt. Mit einem Chebyshev-Polynom nullten Grades kann ein konstanter Offset der Kalibrationsfunktion berücksichtigt werden, während die Polynome ersten und zweiten Grades Änderungen der mittleren Steigung und teilweise auch der Krümmung auffangen können. Mit den Chebyshev-Koeffizienten werden zusätzliche Freiheitsgrade in das Inversionsproblem eingeführt, die keine physikalische Bedeutung haben. Dabei besteht immer die Gefahr, daß diese unphysikalischen Parameter einen Teil der tatsächlichen physikalischen Parameter absorbieren. Ein Vergleich von Abbildung 7.6 mit Abbildung 6.3 zeigt jedoch, daß die Chebyshev-Polynome relativ wenig Ähnlichkeit mit den Gewichtsfunktionen der skalaren Auswerteparameter aufweisen. Dies gilt auch für die Ozongewichtsfunktionen. Aufgrund dieser geringen Korrelationen mit den Gewichtsfunktionen der physikalischen Parameter ist die Einbeziehung der Chebyshev-Polynome durchaus vertretbar. Sie sollte allerdings stets als Hilfskonstruktion betrachtet werden, die eine korrekte radiometrische Kalibration nicht ersetzen kann.

7.6 Zusammenfassung

Die exakte spektrale und radiometrische Kalibration der *GOME*-Messungen ist entscheidend für die Qualität der ausgewerteten Ozonprofile. Während die spektrale Kalibration als hinreichend genau betrachtet werden kann, genügt die aktuelle radiometrische Kalibration des *GDP* den Anforderungen bei weitem nicht. Die wichtigsten Gründe hierfür wurden in Abschnitt 7.4 genannt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde versucht, die radiometrische Kalibration nachzubessern. Insbesondere bei der Korrektur der η_E -Funktion mittels Analyse der spektralen Residuen zwischen gemessenen und simulierten Spektren mußten stark vereinfachende Annahmen über den nur teilweise bekannten Atmosphärenzustand und die Instrumentenfunktionen gemacht werden. Die η_E -Korrektur kann daher, ebenso wie die anderen in Abschnitt 7.1 aufgeführten Korrekturen, nur eine Behelfslösung sein, die die sorgfältige „Pre-Flight-Kalibration“ im Labor und das „In-Orbit-Monitoring“ nicht ersetzen kann. Die in dieser Arbeit verwendeten Korrekturen beziehen ihre Rechtfertigung vor allem aus der deutlichen Verbesserung der Profilergebnisse, die sich bei ihrer Anwendung ergibt. Dies ist in Abbildung 7.7 illustriert, in der für die 19 Vergleichsbeispiele aus Abschnitt 7.5.3 jeweils das mittlere mit der *GDP*- und mit der *IUP*-Kalibration ausgewertete Ozonprofil mit dem mittleren *SAGE-II*-Profil verglichen wird. Ähnliche Verbesserungen wie in Abbildung 7.7 werden allgemein bei dem Vergleich der *GOME*-Ozonprofile mit *SAGE-II*-Profilen vom April 1997 in tropischen und subtropischen Breiten beobachtet. Vergleiche mit *SAGE-II*-Profilen desselben Monats aber höherer Breiten zeigen dagegen nur geringfügige oder gar keine Verbesserungen bei Anwendung der Sonnen-, *PMD*-, und η_E -Korrektur. Dies ist vermutlich darauf zurückzuführen, daß die bei der Residuenanalyse gemachte Annahme $p \approx 0.5$ hier nicht mehr erfüllt ist. Da η_E sich mit der Zeit verändert, ist nicht zu erwarten, daß die in Abbildung 7.4 dargestellte Korrektur auch für andere Zeitpunkte als April 1997 zu einer Verbesserung der Auswerteergebnisse führt. Durch umfangreiche Vergleiche von *GOME*-Ozonprofilen mit Ozonsondenmessungen hat sich gezeigt, daß für mittlere und hohe Breiten die Verwendung der Chebyshev-Polynome als Korrekturfunktion bei gleichzeitigem Verzicht auf die Sonnen- und die η_E -Korrektur die besten Profilergebnisse liefert. Die *PMD1*-Korrektur hat nur eine geringe Auswirkung auf die Profilergebnisse.

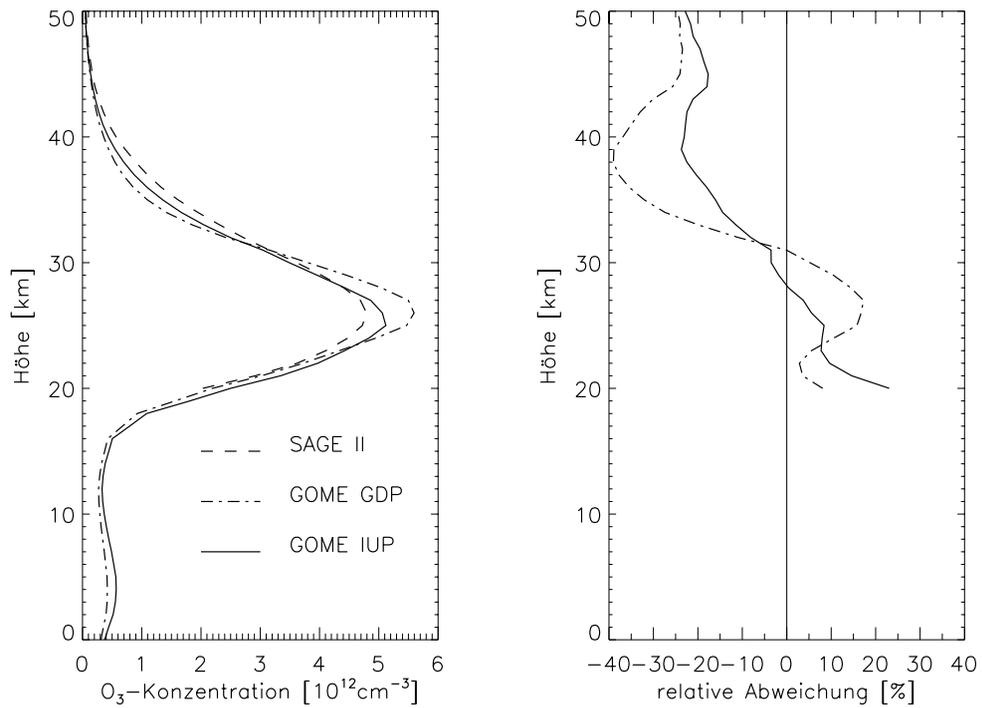


Abbildung 7.7: Links: Über die 19 GOME-SAGE-II-Koinzidenzen aus Abschnitt 7.5.3 gemittelte Ozonprofile.

Rechts: Relative Abweichung zwischen dem mittleren GOME-GDP-Profil und dem mittleren SAGE-II-Profil (strichpunktierte Linie) und zwischen dem mittleren GOME-IUP-Profil und dem mittleren SAGE-II-Profil (durchgezogene Linie).

Kapitel 8

Profilauswertung mit Wolken

8.1 Einfluß von Wolken auf die *GOME*-Messungen

Der mittlere globale Wolkenbedeckungsgrad beträgt etwa 60 % (65 % über den Ozeanen, 52 % über den Kontinenten [164, 165]). Bei Erd-Fernerkundungsmessungen ist die Wahrscheinlichkeit dafür, daß sich Wolken im Blickfeld des Instruments befinden, also relativ hoch. Dies gilt vor allem für Satellitenmessungen mit ihren häufig mehrere Quadratkilometer großen Grundpixeln. *Derrien* hat die Wahrscheinlichkeit für die Kontamination von Nadir-Messungen durch Wolken als Funktion der Abmessungen des Blickfeldes abgeschätzt [40]. Extrapoliert man die Ergebnisse dieser Studie auf die Größe des *GOME*-Standardpixels ($320 \times 40 \text{ km}^2$), so ergibt sich, daß mehr als 99.8 % aller *GOME*-Pixel zumindest teilweise bewölkt sind [94].

Häufig wird angenommen, daß Wolken lediglich bei der Auswertung troposphärischer Ozonverteilungen aus UV-VIS-Nadir-Messungen stören, da die entsprechenden Instrumente nicht durch die Wolkendecke hindurchsehen können. Aufgrund des nicht vernachlässigbaren Einflusses von Wolken auf die Erdradianz müssen sie aber auch für die Auswertung von Ozonverteilungen oberhalb der Wolke bei der Berechnung der Modellspektren und der Gewichtsfunktionen adäquat berücksichtigt werden. Zur Illustration des Einflusses von Wolken auf die Messungen zeigt Abbildung 8.1 typische Reflektivitäten, d. h. $(\pi \cdot \text{Erdradianz}) / (\text{Sonnenirradianz} \cdot \cos \text{SZW})$, für ein wolkenfreies und ein stark bewölkt *GOME*-Standardpixel. Die Reflektivität des bewölkten Pixels ist stets größer als die des unbewölkten Pixels, wobei die Differenz mit der Wellenlänge zunimmt. Oberhalb von etwa 340 nm zeigt die Reflektivität des bewölkten Pixels aufgrund der wellenlängenunabhängigen Streuung an Wolken nur einen geringen Spektralgang, wohingegen die Reflektivität im unbewölkten Fall entsprechend der λ^{-4} -Abhängigkeit der Rayleigh-Streuung deutlich mit der Wellenlänge abnimmt. Bei Wellenlängen unterhalb von 340 nm dominiert in beiden Fällen die Ozonabsorption in den Huggins-Banden. Die hochfrequenten Strukturen in den Reflektivitäten

sind hauptsächlich auf den Ring Effekt zurückzuführen. Deutlich sind die Fraunhofer Ca II K und H Linien (393-396 nm) zu erkennen.

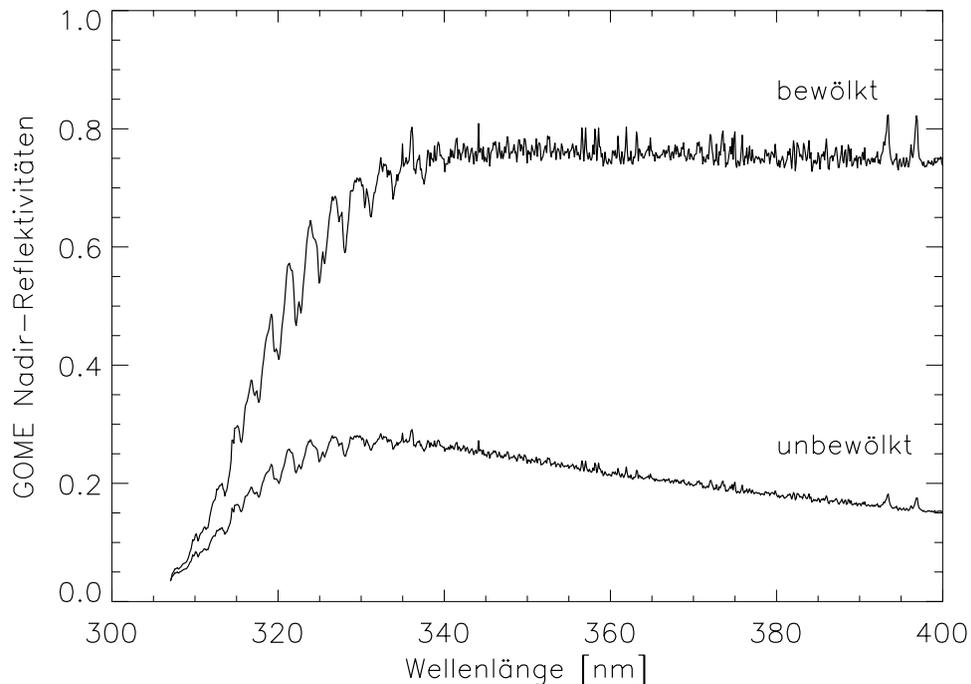


Abbildung 8.1: GOME-Nadir-Reflektivitäten in Kanal 1B und 2 für ein stark bewölktes und ein unbewölktes Standardpixel.

8.2 Beschreibung bewölkter Szenarien in *FURM*

GOMETRAN ist ein eindimensionales Strahlungstransportmodell, d. h. die Atmosphäre und der Erdboden werden als horizontal homogen angenommen. Entsprechend lassen sich nur unbewölkte oder vollständig bewölkte Szenarien beschreiben, wobei die Wolken wahlweise als Lagen streuender Wassertröpfchen oder als bidirektional reflektierende Oberflächen parametrisiert werden können (siehe Abschnitt 4.2.4 und die dort angegebenen Referenzen). Da die erste dieser beiden Parametrisierungen sehr viel Rechenzeit beansprucht, wird sie im folgenden nicht weiter in Betracht gezogen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei Ansätze zur Beschreibung teilweise bewölkter Szenarien im *FURM* Algorithmus untersucht:

1. Wolken als erhöhte Albedo (WaA):

Aus der Oberflächenalbedo A_O , der Wolkenalbedo A_W , die in dieser Arbeit unabhängig von der Wellenlänge mit 0.95 angenommen wurde, und dem Bedeckungsgrad f wird eine mittlere Albedo \bar{A} berechnet:

$$\bar{A} = fA_W + (1 - f)A_O. \quad (8.1)$$

Diese mittlere Albedo wird dann zur Berechnung der sonnennormierten Strahlung und der Gewichtsfunktionen für das teilweise bewölkte Szenario verwendet. Bei dieser Parametrisierung durchbrochener Bewölkung wird als einziger Wolkenparameter der Bedeckungsgrad des betrachteten Grundpixels benötigt.

2. Wolken als bidirektional reflektierende Oberflächen (WaO):

Sowohl die sonnennormierte Strahlung als auch die Gewichtsfunktionen werden jeweils für ein unbewölktes und ein vollständig bewölktes Szenario berechnet und dann mit dem Bedeckungsgrad gewichtet addiert. Die simulierte Strahlung für teilweise bewölkte Bedingungen wird also bei einer gegebenen Wellenlänge beschrieben durch

$$\bar{y} = fy_{bewölkt} + (1 - f)y_{klar}. \quad (8.2)$$

Bei der Berechnung der zugehörigen Gewichtsfunktionen ist zu beachten, daß die für die Profilauswertung verwendete Meßgröße der Logarithmus der sonnennormierten Strahlung ist. Die Sensitivität dieser Meßgröße bezüglich eines Auswerteparameters p läßt sich also unter teilweise bewölkten Bedingungen durch folgende Funktionalableitung darstellen:

$$\begin{aligned} \frac{\delta \ln \bar{y}}{\delta p} &= \frac{\delta \ln [fy_{bewölkt} + (1 - f)y_{klar}]}{\delta p} \\ &= \frac{1}{\bar{y}} \left[f \frac{\delta y_{bewölkt}}{\delta p} + (1 - f) \frac{\delta y_{klar}}{\delta p} \right]. \end{aligned} \quad (8.3)$$

Der Ausdruck $\delta \ln \bar{y} / \delta p$ entspricht gerade der für die Profilauswertung benötigten Gewichtsfunktion für den Logarithmus der sonnennormierten Strahlung, wohingegen $\delta y_{bewölkt} / \delta p$ und $\delta y_{klar} / \delta p$ Gewichtsfunktionen für die unlogarithmierte Strahlung sind.

Für die WaO-Beschreibung werden neben dem Bedeckungsgrad noch der Wolkentyp, die optische Dicke der Wolke und die Höhe der Wolkenobergrenze als Input-Parameter benötigt. Da die Strahlungstransportrechnungen sowohl für ein unbewölktes als auch für ein vollständig bewölktes Szenario durchgeführt werden müssen und da aufgrund der Anisotropie der bidirektionalen Reflexionseigenschaften der Wolkenoberfläche eine feinere Winkeldiskretisierung erforderlich ist als bei einer Lambertschen Oberfläche, ist der Rechenzeitbedarf wesentlich größer als bei Verwendung der WaA-Parametrisierung.

An den soeben beschriebenen und ähnlichen Ansätzen zur Beschreibung durchbrochener Bewölkung mittels eindimensionaler Strahlungstransportmodelle wird häufig kritisiert, daß damit eine Simulation von Effekten, die durch die dreidimensionale Struktur der Wolken verursacht werden, nicht möglich ist. Beispielsweise zeigt ein Vergleich von analog zu Gleichung (8.2) berechneten Nadir-Reflektivitäten mit Messungen des Scanner-Instruments an Bord des *Earth Radiation Budget Satelliten (ERBS)* deutliche Abweichungen bei optisch dicken Wolken und hohen Sonnenzenitwinkeln [105]. Aufgrund der Größe der *GOME*-Grundpixel und der Flughöhe von *ERS-2* mitteln sich allerdings in den *GOME*-Messungen viele dieser 3D-Effekte heraus, was von *Kurosu* exemplarisch demonstriert wurde [96].

8.3 Bestimmung der Wolkenparameter

8.3.1 Die *PMD*-Messungen

Sowohl für die *WaA*- als auch für die *WaO*-Parametrisierung wird der Wolkenbedeckungsgrad des betrachteten *GOME*-Pixels benötigt. Dieser kann aus den breitbandigen *PMD*-Messungen abgeleitet werden (siehe Abschnitt 3.2.3). Kombiniert man die gemessenen Intensitäten der drei *PMDs*, die ungefähr die Spektralbereiche rot, grün und blau abdecken, zu einem Echtfarnebild, so sind die Wolkenfelder bereits optisch erkennbar (siehe Abb. 8.2).

Für die Anwendung innerhalb des *FURM*-Programms ist die qualitative Wolkenerkennung anhand der *PMD*-Echtfarnebilder nicht ausreichend. Es ist vielmehr eine quantitative Analyse der *PMD*-Messungen erforderlich. Ein entsprechender Algorithmus wurde von *Kurosu* entwickelt [95]. Er beruht auf einer Kombination von Schwellwerttests, die sowohl auf die einzelnen *PMD*-Messungen selbst als auch auf Verhältnisse verschiedener *PMD*-Messungen angewendet werden. In Abhängigkeit vom Ergebnis der einzelnen Schwellwerttests wird dem betrachteten *PMD*-Sub-Pixel ein effektiver Bedeckungsgrad zwischen 0 und 100 % zugeordnet. Da die *PMD*-Messungen stark von der Oberflächenalbedo beeinflusst werden, müssen die Schwellwerte und ihre Toleranzintervalle an den jeweiligen Oberflächentyp angepaßt werden. Der *PMD*-Algorithmus erkennt Wolken in erster Linie daran, daß sie im sichtbaren Spektralbereich wesentlich stärker reflektieren als die Erdoberfläche. Entsprechend sind die Ergebnisse über dunklen Oberflächen, z. B. über den Ozeanen, am zuverlässigsten. Die Unterscheidung zwischen Schnee oder Eis und Wolken und damit die Wolkenerkennung über schnee- oder eisbedeckten Oberflächen ist dagegen nahezu unmöglich.

8.3.2 Die *ISCCP*-Klimatologie

Neben der Wolkenbedeckung werden für die *WaO*-Parametrisierung der Wolkentyp, die optische Dicke der Wolke und die Höhe ihrer Obergrenze benötigt. Diese

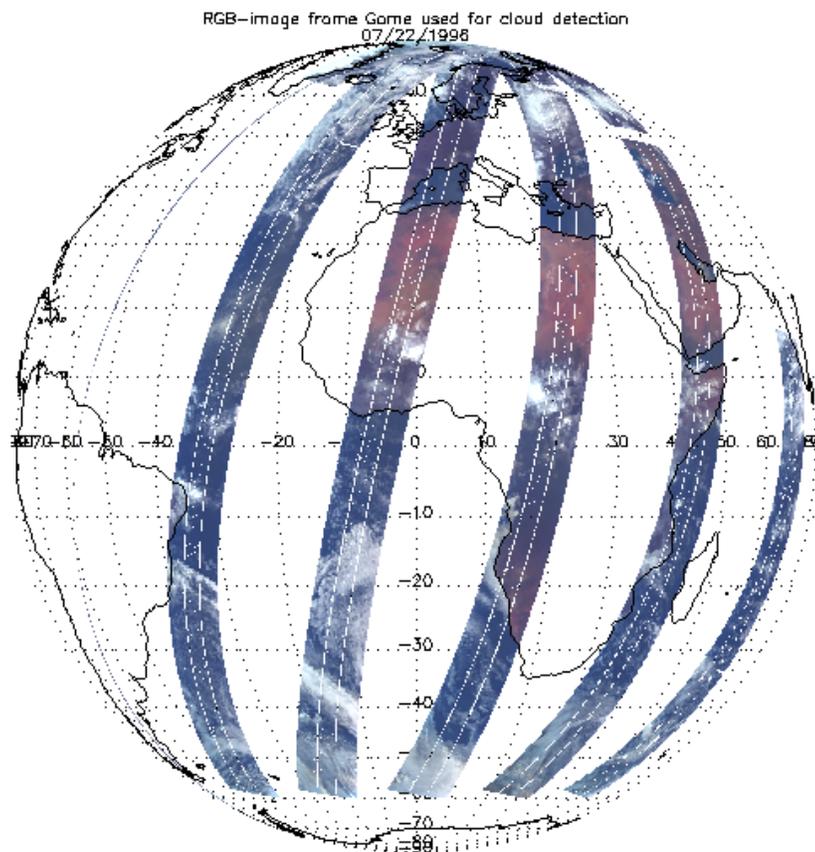


Abbildung 8.2: *Echtfarbendarstellung der PMD-Messungen vom 22. Juli 1997. Deutlich erkennbar sind Wolkenfelder sowie die Unterschiede zwischen Land- und Wasserflächen (Abb. von K. Bramstedt, IUP, Universität Bremen).*

Parameter werden derzeit dem *ISCCP*-Wolkendatensatz C2 entnommen¹. Das International Satellite Cloud Climatology Project *ISCCP* existiert seit 1982 als Teil des World Climate Research Program (*WCRP*) [136]. Ziel dieses Projekts ist die Ableitung von Wolken- und Oberflächenparametern aus Messungen verschiedener Satelliteninstrumente [134, 135, 137]. Der C2-Wolkendatensatz enthält Monatsmittelwerte des Bedeckungsgrades, der Temperatur und des Druckes an der Wolkenobergrenze sowie der optischen Dicke der Wolken für die Zeit von Juli 1983 bis Juni 1991. Anhand der optischen Dicke der Wolken und des Druckes an ihrem Oberrand wird ferner eine Klassifikation nach verschiedenen Wolkentypen vorgenommen. Die räumliche Auflösung beträgt $1^\circ \times 1^\circ$ bei glo-

¹Dieser Datensatz inklusive detaillierter Beschreibung und Extraktionsprogramm kann über die WWW-Adresse <http://isccp.giss.nasa.gov> bezogen werden.

baler Flächendeckung. Durch Mittelung über die Jahre 1983 bis 1991 wurden aus den C2-Monatsmittelwerten der einzelnen Jahre klimatologische Monatsmittelwerte abgeleitet. Jedem *PMD*-Sub-Pixel werden dann die klimatologischen C2-Parameter zugeordnet, die dem betrachteten Monat und der jeweiligen Geolokation entsprechen.

8.4 Sensitivitätsuntersuchungen

Der Wolkenbedeckungsgrad kann, zumindest über schneefreien Oberflächen, aus den *PMD*-Messungen mit für die Profilauswertung hinreichender Genauigkeit abgeschätzt werden. Im Gegensatz dazu liegen für den Wolkentyp, die optische Dicke und die Obergrenze der Wolke nur klimatologische Mittelwerte vor, die mehr oder weniger stark von den tatsächlichen Bedingungen abweichen können. Vor diesem Hintergrund ist es interessant zu untersuchen, wie stark sich Fehler in den letztgenannten Wolkenparametern auf das ausgewertete Ozonprofil auswirken. Zu diesem Zweck wurden für eine Sommeratmosphäre mittlerer nördlicher Breiten und eine Bodenalbedo von 0.05 Meßspektren im Spektralbereich 290-355 nm für die Sonnenzenitwinkel 30° und 70° simuliert. In die Modellatmosphäre wurde eine Nimbostratuswolke der optischen Dicke 40 und der Obergrenze 4 km eingefügt. Um die maximalen Effekte zu demonstrieren wurde ein Bedeckungsgrad von 100 % angenommen. Bei geringeren Bedeckungsgraden reagieren die Profilergebnisse entsprechend schwächer auf Fehler in den Wolkenparametern. Um die Sensitivität der ausgewerteten Ozonprofile bezüglich der einzelnen Wolkenparameter von anderen Störeinflüssen zu separieren, wurden, abgesehen vom dem zu untersuchenden Wolkenparameter, alle Atmosphärenparameter als bekannt vorausgesetzt. Die Ergebnisse der im folgenden diskutierten Sensitivitätsuntersuchungen wurden bereits in gekürzter Form veröffentlicht [81].

8.4.1 Sensitivität bezüglich des Wolkentyps

In *GOMETRAN* sind 10 Wolkentypen definiert, die sich in ihrem Tropfengrößenspektrum und damit in ihrem bidirektionalen Reflektivitätsverhalten unterscheiden [94]. Von diesen wurden für die Sensitivitätsuntersuchung fünf Typen ausgewählt, die ein breites Spektrum optischer Wolkeneigenschaften abdecken. Zusätzlich wurde eine Wolke, die wie eine Lambertsche Oberfläche reflektiert, berücksichtigt. Die Auswertergebnisse sind in Abbildung 8.3 als relative Abweichungen vom wahren Ozonprofil dargestellt. Man erkennt, daß die Profilergebnisse nahezu unabhängig von der Wahl des Wolkentyps sind. Für die realistischen Wolken liegen die Abweichungen zwischen ausgewertetem und wahren Ozonprofil für den SZW 30° unter 5 % und für den SZW 70° unter 2 %. Lediglich die unrealistische Wolke mit Lambertschen Reflexionseigenschaften liefert bei einem SZW von 30°

Abweichungen von mehr als 40 % und bei einem SZW von 70° Abweichungen von bis zu 20 % vom wahren Ozonprofil.

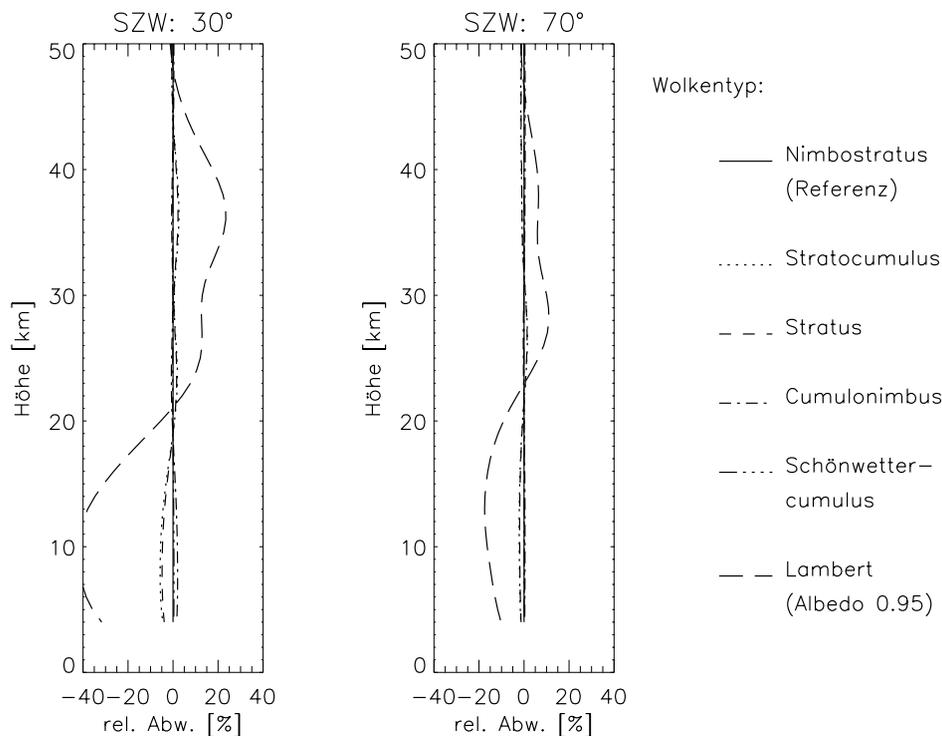


Abbildung 8.3: Relative Abweichung der mit verschiedenen Wolkentypen ausgewerteten Ozonprofile vom wahren Ozonprofil. Der wahre Wolkentyp ist „Nimbostratus“.

8.4.2 Sensitivität bezüglich der optischen Dicke der Wolke

Die Parametrisierung von Wolken als bidirektional reflektierende Oberflächen ist nur für optisch dicke Wolken mit $\tau > 9$ zulässig [94]. Ist in der ISCCP-Klimatologie für die optische Dicke ein Wert kleiner als 9 angegeben, so wird für die Profilauswertung stets der Wert 9 verwendet. Wie Abbildung 8.4 zeigt, reagiert das ausgewertete Ozonprofil nicht sehr empfindlich auf die optische Dicke der Wolke. Die wahre optische Dicke der Wolke war in dieser Abbildung $\tau = 40$. Das Unterschätzen dieser relativ hohen optischen Dicke um 75 % führt bei beiden Sonnenzenitwinkeln zu Fehlern im Ozonprofil von maximal 10 %, wohingegen ein Überschätzen der optischen Dicke um 75 % sich kaum auf das Ozonprofil auswirkt. Für eine optische Dicke von 0, d. h. keine Wolke, konvergiert das Auswerteverfahren nicht mehr.

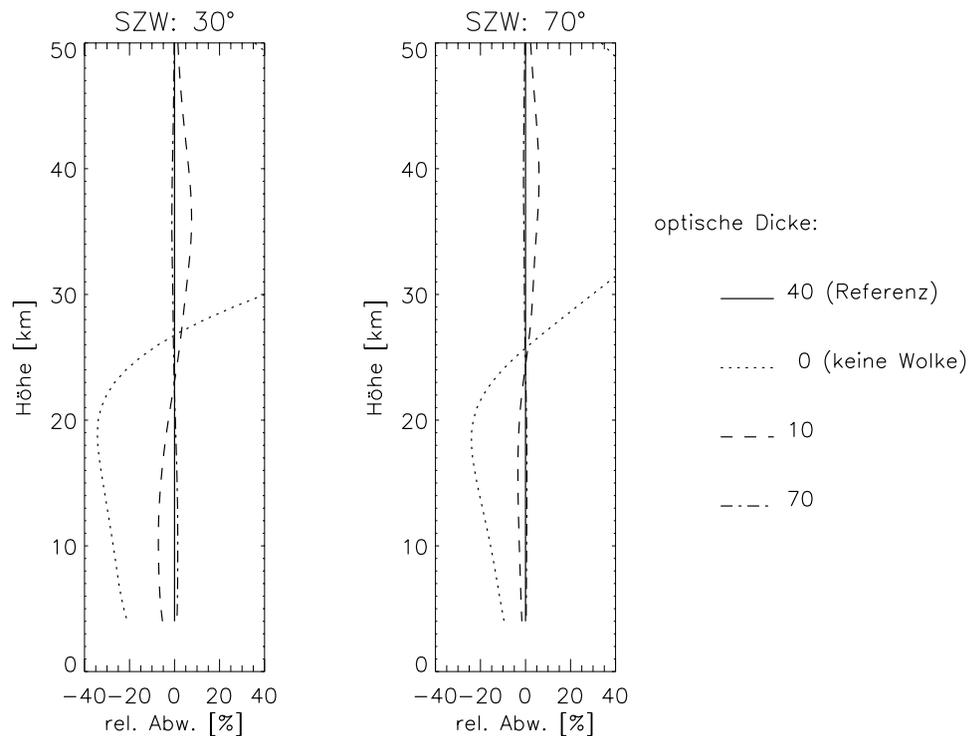


Abbildung 8.4: Relative Abweichung der mit verschiedenen optischen Dicken der Wolke ausgewerteten Ozonprofile vom wahren Ozonprofil. Die wahre optische Dicke der Wolke ist $\tau = 40$.

8.4.3 Sensitivität bezüglich der Wolkenhöhe

Der interessanteste Wolkenparameter ist die Höhe der Wolkenobergrenze, auf die das Profilergebn relativ empfindlich reagiert. Dies ist in Abbildung 8.5 illustriert. Das Unterschätzen der Wolkenhöhe hat unterhalb von etwa 20 km Höhe zu geringe Ozonkonzentrationen zur Folge und umgekehrt. Die Sensitivität des ausgewerteten Ozonprofils bezüglich Fehlern in der Wolkenhöhe nimmt dabei mit abnehmendem Sonnenzenitwinkel zu. Bei einem SZW von 30° führt bereits ein Fehler von ± 1 km in der Wolkenhöhe zu einem Fehler von ungefähr $\mp 10\%$ in der Ozonkonzentration unterhalb von 20 km.

In Anbetracht dieser Empfindlichkeit der Ozonprofile bezüglich der Wolkenhöhe ist die Möglichkeit, aus den GOME-Messungen selbst - genauer gesagt aus der Absorption von Sauerstoff in der O_2 -A-Bande bei ungefähr 760 nm - eine Schätzung für die aktuelle Wolkenhöhe zu gewinnen, von großem Interesse. Die Ableitung der Wolkenhöhe aus Satellitenmessungen in der O_2 -A-Bande wurde erstmals 1961 von Yamamoto und Wark vorgeschlagen [174]. Für eine ausführliche Beschreibung der Methode und Anwendungen auf Satellitenmes-

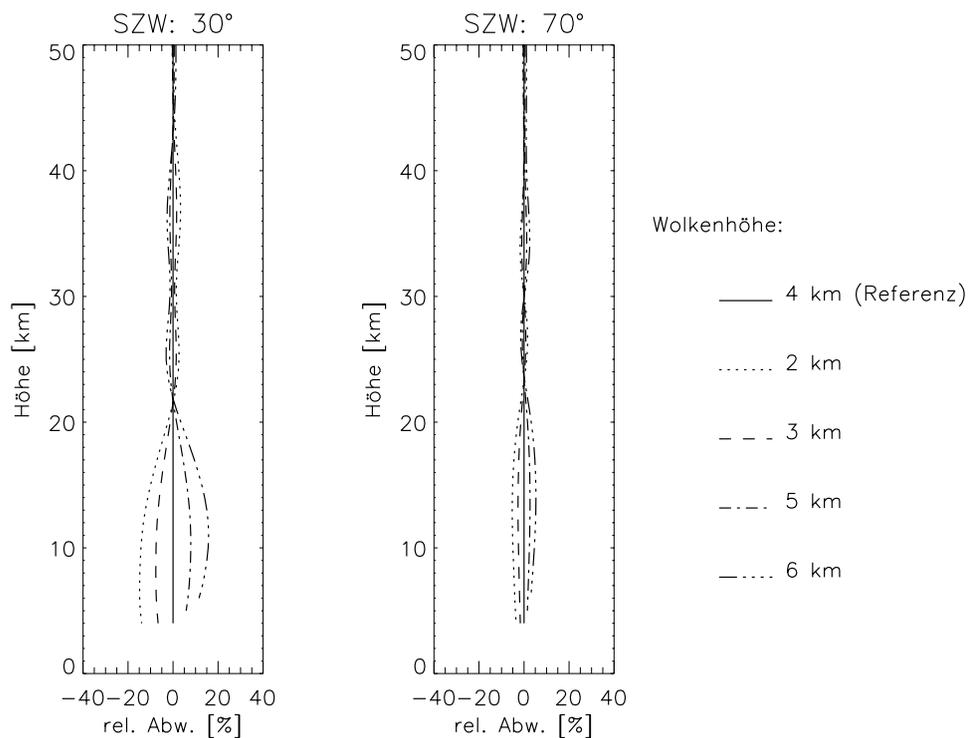


Abbildung 8.5: Relative Abweichung der mit verschiedenen Wolkenhöhen ausgewerteten Ozonprofile vom wahren Ozonprofil. Die wahre Wolkenhöhe beträgt 4 km.

sungen wird auf [54, 55] und die darin enthaltenen Referenzen verwiesen. Das Verfahren macht sich die Tatsache zunutze, daß das Volumenmischungsverhältnis von O_2 in der Atmosphäre bis in Höhen von etwa 100 km konstant ist und folglich das Vertikalprofil der O_2 -Konzentration im wesentlichen durch das Druck- und Temperaturprofil bestimmt wird. Vergleicht man die im Bereich der O_2 -A-Bande gemessene Transmission mit der Transmission bei einer benachbarten nicht absorbierten Referenzwellenlänge, so erhält man ein Maß für die oberhalb der reflektierenden Oberfläche (d. h. der Wolkenobergrenze im bewölkten Fall und des Erdbodens im unbewölkten Fall) durchstrahlten O_2 -Säule. Aus dieser läßt sich, da das Vertikalprofil der O_2 -Konzentration als bekannt angenommen werden kann, die Höhe der reflektierenden Oberfläche ableiten. Dieses Verfahren ist im Prinzip für jedes homogen in der Atmosphäre verteilte Gas mit hinreichender Absorption anwendbar. Die O_2 -A-Bande ist jedoch besonders gut geeignet, da sie sehr schmal ist und nicht mit den Absorptionsbanden anderer Spurengase überlappt. Im Falle durchbrochener Bewölkung erhält man mit dieser Methode ein kombiniertes Wolkenhöhe-Bedeckungsgrad-Maß. Nimmt man die *PMD*-Messungen hinzu, aus

denen sich der Bedeckungsgrad bestimmen läßt, so liefert die O_2 -A-Band-Methode einen unabhängigen Wert für die Wolkenhöhe. Ein entsprechender Wolkenauswertalgorithmus für *GOME* befindet sich gegenwärtig im Entwicklungsstadium. Der aktuelle Status ist in [66] dokumentiert.

8.5 Auswertung realer *GOME*-Messungen

Sowohl die *WaA*- als auch die *WaO*-Parametrisierung sind relativ grobe Beschreibungen der tatsächlichen atmosphärischen Gegebenheiten. Um ihre Eignung für die Auswertung realer Messungen zu testen, wurden *GOME*-Spektren, die den Zeitraum von Juli 1996 bis Juni 1997 umfassen, jeweils mit beiden Verfahren ausgewertet und mit Ozonsondenmessungen verglichen. Als Beispiel eines solchen Vergleichs sind in den Abbildungen 8.6 und 8.7 Einzelprofilvergleiche für relativ hohe Bedeckungsgrade über Süddeutschland bzw. Spitzbergen wiedergegeben. Bei dem Beispiel vom 5. Mai 1997 über Süddeutschland sind die Unterschiede zwischen den mit der *WaA*- und der *WaO*-Methode ausgewerteten Ozonprofilen relativ groß. In den meisten Fällen wird dagegen kaum ein Unterschied zwischen den beiden Ergebnissen beobachtet. In Abbildung 8.8 ist die statistische Auswertung des Vergleichs der *GOME*-Ozonprofile mit den Ozonsondenprofilen für die Stationen Hohenpeißenberg und Ny-Ålesund dargestellt. Angegeben sind dabei jeweils die mittlere relative Abweichung als Maß für eine systematische Abweichung zwischen den *GOME*-Ergebnissen und den Sondenmessungen sowie die mittlere quadratische Abweichung als Maß für die Streuung der *GOME*-Ergebnisse um die Sondenmessungen. Die Ozonsondenprofile wurden vor dem Vergleich durch Falten mit den *GOME*-Glättungsfunktionen geglättet (Näheres hierzu in Abschnitt 9.6). Details des Vergleichs *GOME*-Sonde sind an dieser Stelle ohne Belang, da es lediglich auf die Unterschiede der Vergleiche *WaA*-Sonde und *WaO*-Sonde ankommt. Im Falle der Station Hohenpeißenberg ist sowohl die mittlere relative Abweichung als auch die mittlere quadratische Abweichung für die *WaO*-Profile in der Tropopausenregion und unteren Stratosphäre deutlich größer als für die *WaA*-Profile. Im Gegensatz dazu sind bei Ny-Ålesund die *WaO*-Ergebnisse geringfügig besser. Bei der Station Hohenpeißenberg ist die Verschlechterung der *WaO*- im Vergleich zu den *WaA*-Ergebnissen zumindest zum Teil dadurch bedingt, daß bei dieser Station in den Vergleich 30 Profile aus der Zeit von Anfang November bis Ende April einfließen.² Diese Profile weisen im Vergleich zu den Profilen zwischen Anfang Mai und Ende Oktober einen deutlich höheren *PMD*-Bedeckungsgrad auf, der nur teilweise tatsächlicher Wolkenbedeckung entspricht. Ein nicht zu vernachlässigender Prozentsatz des *PMD*-Bedeckungsgrades ist auf schneebedeckte Oberflächen (v. a. in den

²Die Ny-Ålesund Profile stammen aus der Zeit von Ende März bis Mitte September. Von Ende September bis Ende März können keine Vergleiche durchgeführt werden, da *GOME* während der Polarnacht keine Erdradianzen messen kann.

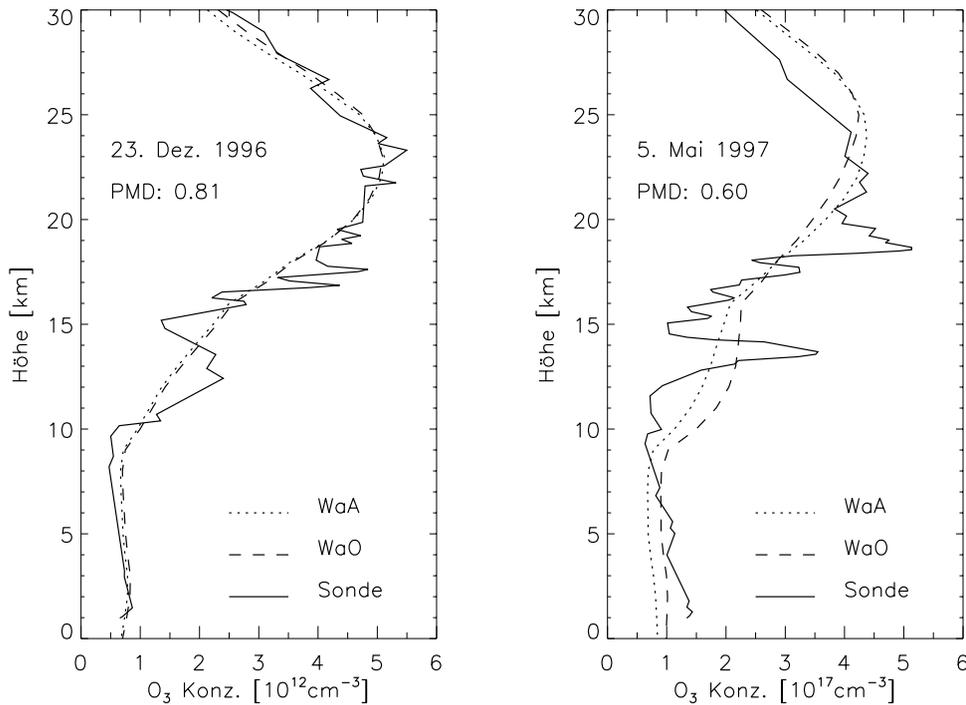


Abbildung 8.6: GOME-Profilauswertung über Süddeutschland mit WaA- bzw. WaO-Parametrisierung. Der aus den PMD-Messungen abgeleitete Bedeckungsgrad beträgt 0.81 (links) bzw. 0.6 (rechts). Zum Vergleich sind Ozonsondenmessungen der nahegelegenen Station Hohenpeißenberg vom selben Tag dargestellt.

Alpen) zurückzuführen, die vom PMD-Algorithmus fälschlicherweise als Bewölkung interpretiert werden. Klassifiziert man die Hohenpeißenberg-Profile nach hohem (>60 %) und niedrigem (<30 %) Bedeckungsgrad, so fallen in die erste Kategorie ausschließlich Profile von Anfang November bis Anfang Mai, während die zweite Gruppe, von wenigen Ausnahmen abgesehen, Profile von Mitte Mai bis Ende Oktober enthält. Ein für diese beiden Gruppen separat durchgeführter Vergleich mit den zugehörigen Ozonsondenmessungen liefert die in Abbildung 8.9 dargestellten Ergebnisse. Für die Profile mit niedrigem Bedeckungsgrad ist die Streuung der GOME-Ergebnisse um die Sondenmessungen nahezu unabhängig davon, ob mit der WaA- oder der WaO-Methode ausgewertet wurde. Im Gegensatz dazu ist die Streuung im Falle hoher Bedeckungsgrade bei der WaO-Parametrisierung deutlich größer als bei der WaA-Parametrisierung. Bei niedrigem Bedeckungsgrad ist die mittlere relative Abweichung für die WaO-Methode zwar etwas größer als für die WaA-Methode, sie hat aber in beiden

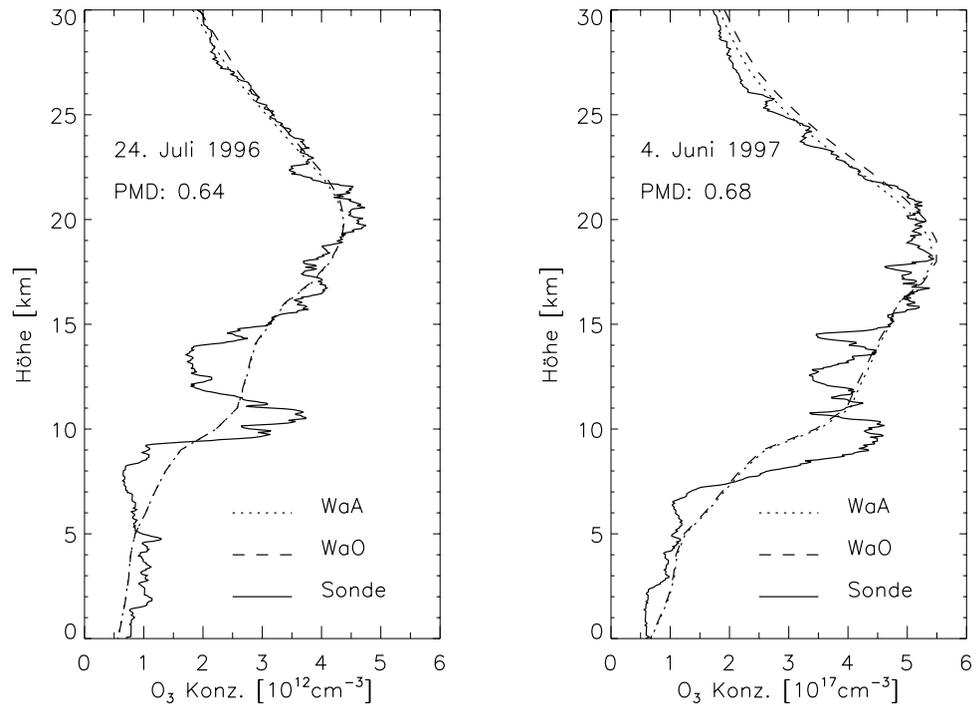


Abbildung 8.7: GOME-Profilauswertung über Spitzbergen mit WaA- bzw. WaO-Parametrisierung. Der aus den PMD-Messungen abgeleitete Bedeckungsgrad beträgt 0.64 (links) bzw. 0.68 (rechts). Zum Vergleich sind Ozonsondenmessungen der nahegelegenen Station Ny-Ålesund vom selben Tag dargestellt.

Fällen ein positives Vorzeichen. Bei hohem Bedeckungsgrad ist die mittlere relative Abweichung unterhalb von 20 km Höhe für WaA negativ und für WaO positiv. Dies erklärt, warum bei der Statistik über alle Profile die mittlere relative Abweichung der WaA-Parametrisierung deutlich kleiner ausfällt als die der WaO-Parametrisierung. Zusammenfassend kann man sagen, daß der Vergleich der WaA-Profile mit Ozonsondenmessungen eine relativ gute Übereinstimmung zeigt. Auf den ersten Blick mag es überraschend erscheinen, daß mit der einfachen Beschreibung von Wolken als erhöhter Bodenbedo so gute Ergebnisse erzielt werden. Dies läßt sich jedoch durch die verwendeten Auswerteparameter mit breitbandiger spektraler Struktur erklären, die einen Großteil der Wolkeneffekte absorbieren. Die Verwendung des rechenzeitintensiveren WaO-Verfahrens bringt keine signifikante Verbesserung gegenüber dem WaA-Verfahren. Dies liegt zum einen daran, daß für die hierfür benötigte Wolkenhöhe nur klimatologische Werte zur Verfügung stehen, die die Genauigkeitsanforderung von ± 1 km nicht erfüllen

können. Zum anderen ist bei schneebedeckten Oberflächen zu bedenken, daß der *PMD*-Algorithmus nicht zwischen Wolken und Schnee unterscheiden kann und entsprechend den Bedeckungsgrad überschätzt.

8.6 Die Scan-Simulation

Während der zwölf Sekunden dauernden Messung eines Spektrums in Kanal 1A führt *GOME* zwei vollständige Scan-Zyklen aus. Dabei variiert der Beobachtungswinkel zwischen $+30^\circ$ und -30° relativ zur Nadir-Richtung, und es wird eine Fläche von $960 \times 100 \text{ km}^2$ auf dem Erdboden abgetastet (siehe Abb. 3.1). Ein solch großes Grundpixel ist in der Regel zumindest teilweise bewölkt, was zu einem horizontal inhomogenen Szenario führt.

Bei der Standard-Profilauswertung werden die Strahlungstransportrechnungen nur für die Nadir-Beobachtungsrichtung und unter Annahme horizontal homogener Atmosphären- und Oberflächenbedingungen durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, den Scan zu approximieren, indem die Spektren und Gewichtsfunktionen für eine mehr oder weniger große Anzahl von Beobachtungswinkeln berechnet und dann arithmetisch gemittelt werden. Dabei kann für jeden Beobachtungswinkel ein anderes Atmosphärenszenario verwendet werden. Der größte Nachteil dieser Scan-Simulation ist der drastische Anstieg der benötigten Rechenzeit. Im Gegensatz zur Nadir-Beobachtungsrichtung, für die nur eine einzige Fourierkomponente in der Reihenentwicklung (4.14) benötigt wird, erhöht sich für von der Nadir-Richtung abweichende Beobachtungswinkel die Anzahl der Fourier-Komponenten auf typischerweise drei oder vier.

Exemplarisch sind in Abbildung 8.10 die Differenzen von mit und ohne Scan-Simulation ausgewerteten *GOME*-Ozonprofilen für ein unbewölktes, ein relativ homogen bewölktes und ein stark inhomogen bewölktes Grundpixel dargestellt. Bei der Scan-Simulation wurden fünf Beobachtungswinkel ($\pm 24^\circ$, $\pm 12^\circ$, 0°) verwendet, für die jeweils mit Hilfe der *PMD*-Messungen die effektive Albedo gemäß Gleichung (8.1) berechnet wurde. Die maximalen Abweichungen der mit und ohne Scan-Simulation ausgewerteten Profile liegen zwischen 3 und 4 %. Die über die Höhe gemittelten Abweichungen betragen etwa 1 %, wobei die ohne Scan-Simulation berechneten Profile die höheren Ozonkonzentrationen aufweisen. Für die Auswertung mit Scan-Simulation ist ungefähr 15mal mehr Rechenzeit erforderlich als für die Auswertung ohne Scan-Simulation. In Anbetracht der geringen Unterschiede zwischen den mit und ohne Scan-Simulation ausgewerteten Profilen ist dieser deutlich erhöhte Rechenaufwand nicht zu rechtfertigen, zumal wenn es um die Auswertung großer Datenmengen geht.

8.7 Zusammenfassung

Die *GOME*-Messungen werden im sichtbaren Spektralbereich sehr stark durch Wolken beeinflusst. Daher müssen Wolken bei der Ozonprofilauswertung im UV-sichtbaren Spektralbereich berücksichtigt werden. Die exakte Beschreibung durchbrochener Bewölkung ist mit einem eindimensionalen Strahlungstransportmodell wie *GOMETRAN* nicht möglich. Im *FURM*-Algorithmus wurden deshalb zwei Näherungsverfahren zur Simulation durchbrochener Bewölkung implementiert. Für die Beschreibung von Wolken als bidirektional reflektierende Oberflächen (*WaO*-Parametrisierung) müssen der Bedeckungsgrad, der Wolkentyp, die optische Dicke der Wolke und die Höhe ihrer Obergrenze bekannt sein. Die ersten drei Größen können für schneefreie Szenarien aus den *PMD*-Messungen bzw. aus der *ISCCP*-Klimatologie mit hinreichender Genauigkeit abgeleitet werden. Im Gegensatz dazu ist die Bestimmung der Wolkenhöhe mit der erforderlichen Genauigkeit von ± 1 km gegenwärtig noch nicht möglich. Wie der Vergleich von *GOME*-Ozonprofilen mit Ozonsondenmessungen zeigt, bringt die *WaO*-Parametrisierung keinen signifikanten Vorteil gegenüber der einfacheren Beschreibung von Wolken als Bodenoberfläche mit erhöhter Albedo (*WaA*-Parametrisierung), für die lediglich der Bedeckungsgrad bekannt sein muß.

Um zu untersuchen, ob die Vernachlässigung der horizontalen Inhomogenitäten, die häufig mit durchbrochener Bewölkung einhergehen, die Profilauswertung negativ beeinflusst, wurden Profilauswertungen mit und ohne Scan-Simulation verglichen. Dabei zeigten sich selbst bei inhomogenen Grundpixeln relativ geringe Unterschiede in den Ozonkonzentrationen. Der für die Scan-Simulation drastisch erhöhte Rechenzeitbedarf läßt sich also nicht durch eine entsprechende Verbesserung der Profilergebnisse rechtfertigen.

GOME-Ozonprofile, die mit der einfachen *WaA*-Parametrisierung ohne Scan-Simulation abgeleitet wurden, zeigen eine gute Übereinstimmung mit Ozonsondenmessungen. Eine deutliche Verbesserung der Auswerteresultate für bewölkte Pixel ließe sich nur durch eine verbesserte Simulation von Wolken in den Strahlungstransportrechnungen in Verbindung mit relativ genauen Informationen über die aktuellen Wolkenparameter erreichen.

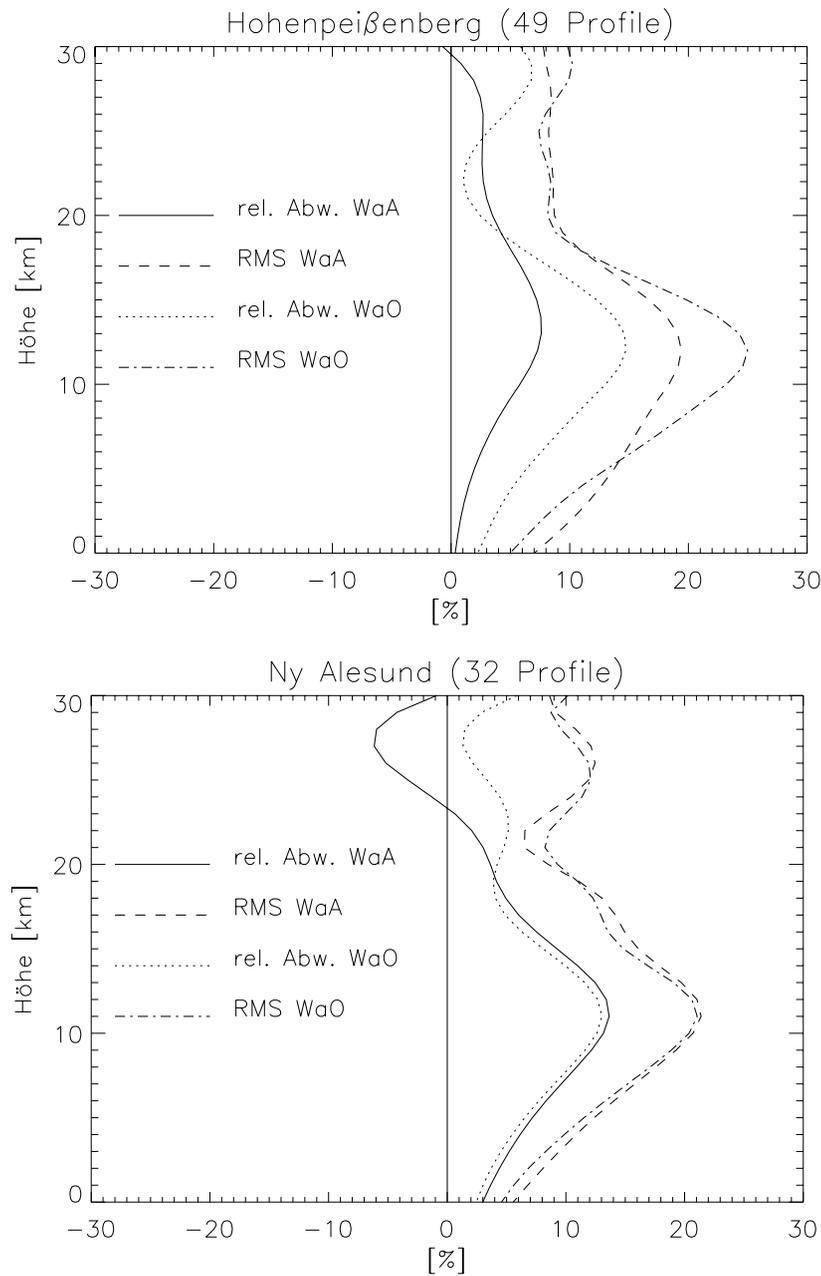


Abbildung 8.8: Mittlere relative Abweichung und mittlere quadratische Abweichung (RMS) zwischen den mit der WaA- bzw. der WaO-Parametrisierung ausgewerteten GOME-Ozonprofilen und Ozonsondenmessungen vom selben Tag. Der Vergleich für die Station Hohenpeißenberg (oben) umfaßt 49 Profile, der für die Station Ny-Ålesund (unten) 32 Profile.

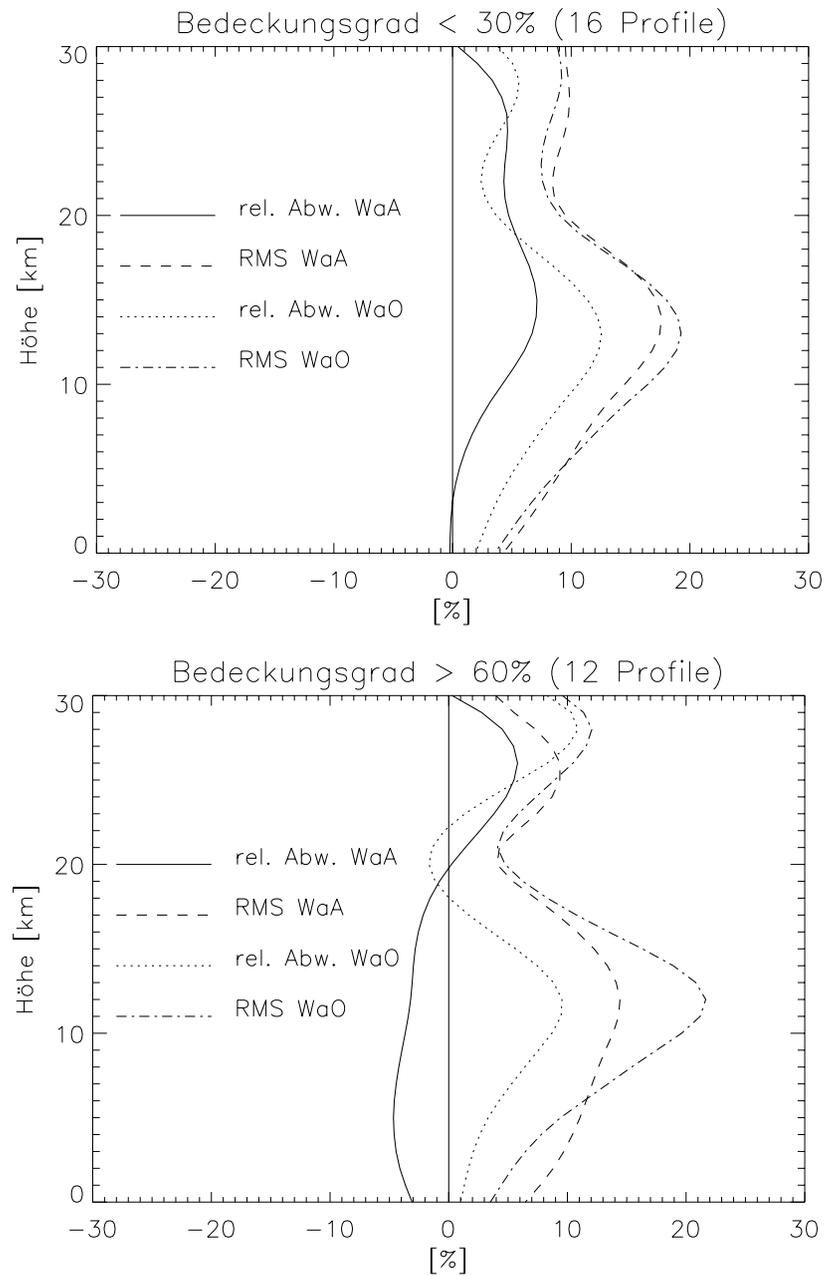


Abbildung 8.9: Mittlere relative Abweichung und mittlere quadratische Abweichung (RMS) zwischen den mit der WaA- bzw. der WaO-Parametrisierung ausgewerteten GOME-Ozonprofilen und Ozonsondenmessungen der Station Hohenpeißenberg vom selben Tag. Der Vergleich wurde für Szenarios mit niedrigem (oben) und hohem (unten) PMD-Bedeckungsgrad separat durchgeführt.

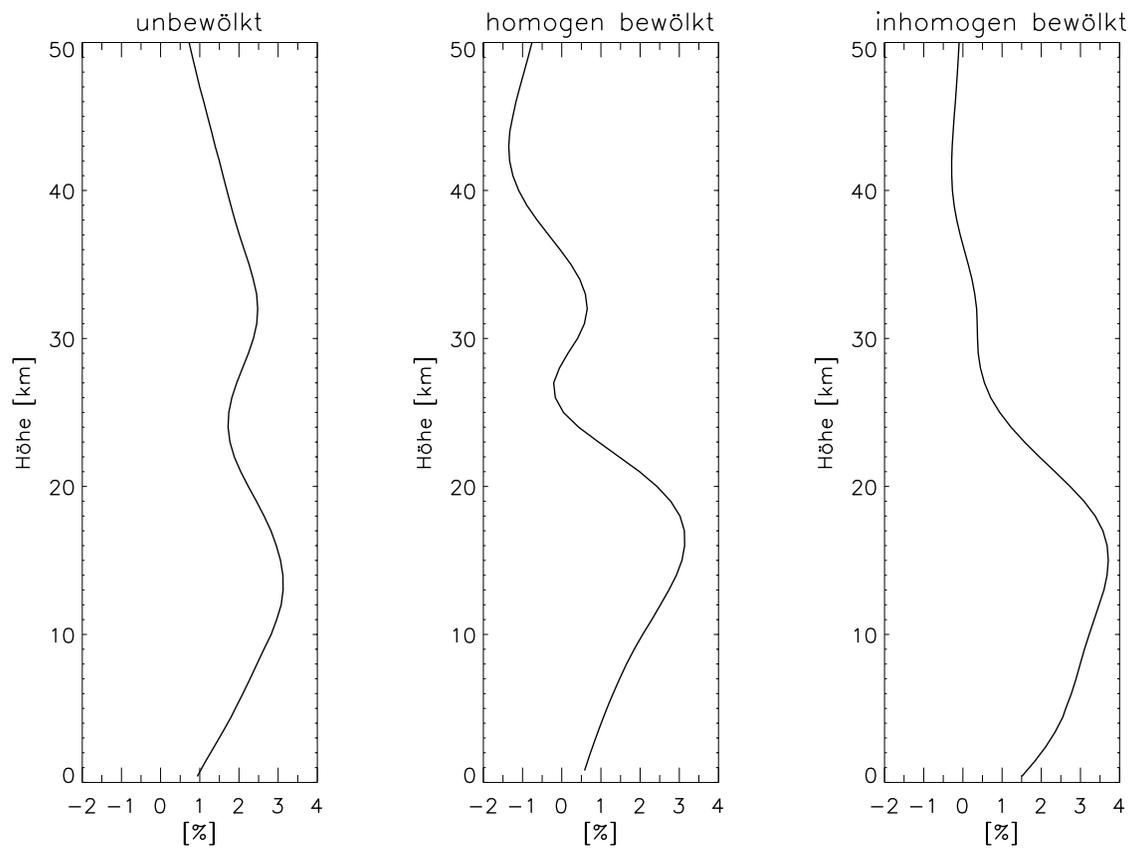


Abbildung 8.10: Relative Abweichung zwischen ohne und mit Scan-Simulation ausgewerteten GOME-Ozonprofilen über Süddeutschland. Für die Scan-Simulation wurden die Beobachtungswinkel $\pm 24^\circ$, $\pm 12^\circ$ und 0° verwendet. Positive Abweichungen bedeuten, daß die Auswertung ohne Scan-Simulation höhere Ozonkonzentrationen liefert.

Links: unbewölkt, Bedeckungsgrad ohne Scan: 0.02, Bedeckungsgrad mit Scan (von Ost nach West): 0.01, 0.00, 0.02, 0.04, 0.05.

Mitte: homogen bewölkt, Bedeckungsgrad ohne Scan: 0.52, Bedeckungsgrad mit Scan (von Ost nach West): 0.49, 0.40, 0.56, 0.59, 0.57.

Rechts: inhomogen bewölkt, Bedeckungsgrad ohne Scan: 0.58, Bedeckungsgrad mit Scan (von Ost nach West): 0.63, 0.71, 0.90, 0.55, 0.12.

Teil III

Validation der *GOME*-Ozonprofile

Überblick zu Teil III

Die interne Konsistenz des Auswertalgorithmus *FURM* wurde während der Entwicklungsphase regelmäßig mit Hilfe simulierter Spektren überprüft. Um die aus echten *GOME*-Messungen abgeleiteten Ozonprofile zu validieren, müssen diese mit unabhängigen Messungen verglichen werden. In diesem Teil werden die Ergebnisse der ersten Validation der *GOME*-Ozonprofile präsentiert (siehe auch [83, 82, 84]). Den Quellennachweis der Vergleichsmessungen findet man in Anhang A.

- Schwerpunkt von **Kapitel 9** ist die Validation von *GOME*-Ozonprofilen mit Ozonsondenmessungen mehrerer europäischer Stationen. Um jahreszeitliche Variationen untersuchen zu können, wurde ein Vergleichszeitraum von einem Jahr (Juli 96 bis Juni 97) gewählt.

In **Abschnitt 9.3** werden zunächst für jede Vergleichsmessung die Gesamt-ozonwerte, die sich mit dem *FURM*- und dem *DOAS*-Verfahren ergeben, miteinander verglichen. In den folgenden Abschnitten werden die *GOME*- und die Sondenprofile unter verschiedenen Aspekten miteinander verglichen. Anhand der Einzelprofilvergleiche in **Abschnitt 9.4** sollen die Schwierigkeiten, die sich beim Vergleich von Messungen unterschiedlicher Instrumente ergeben, herausgearbeitet werden. Um quantitative Aussagen machen zu können, müssen die vertikal hochaufgelösten Sondenmessungen an die geringere Vertikalaufösung der *GOME*-Profile angepaßt werden. Dies kann beispielsweise durch die Berechnung von Ozonteilsäulengehalten für Schichten geeigneter Dicke (**Abschnitt 9.5**) oder durch die Faltung der Sondenprofile mit den *GOME*-Glättungsfunktionen (**Abschnitt 9.6**) geschehen. In **Abschnitt 9.7** werden schließlich Monatsmittelwerte der Profile für ausgewählte Monate diskutiert.

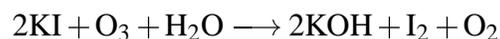
- Für die quasi-globale Validation der *GOME* Ozonprofile wurden *SAGE-II*-Messungen von September 1996 und von April 1997 ausgewählt. Die Ergebnisse dieses Vergleichs werden in **Kapitel 10** diskutiert.

Kapitel 9

Vergleich mit Ozonsondenmessungen

9.1 Meßprinzip der Ozonsonden

Sowohl bei der Brewer-Mast-Sonde als auch bei der ECC-Sonde beruht das Meßprinzip auf dem elektrochemischen Nachweis von Ozon mittels einer Jod-Jodid-Redoxreaktion. Die ECC-Sonde wurde in den sechziger Jahren von *Komhyr* entwickelt und ist heute der am weitesten verbreitete Sondentyp [90]. Der Sensor besteht aus zwei Platinelektroden, die in separate, mit Kaliumjodidlösungen unterschiedlicher Konzentration gefüllte Anoden- und Kathoden-Halbzellen eintauchen. Wird ozonhaltige Luft durch die Kathodenzelle gepumpt, so wird dort das Jodid gemäß der Reaktion



zu Jod oxidiert, das dann wiederum an der Kathode zu Jodid reduziert wird. Aufgrund der unterschiedlichen Konzentration der Kaliumjodidlösungen in der Anoden- und in der Kathodenzelle besteht zwischen den Elektroden eine elektromotorische Kraft, die zu einem zum Ozonpartialdruck proportionalen Stromfluß führt. Die von *Brewer und Milford* entwickelte Brewer-Mast-Sonde hat nur eine Reaktionszelle. Die elektromotorische Kraft wird hier durch die Verwendung einer Platin-Kathode und einer Silber-Anode erzeugt [16].

Die Ozonsonden werden stets zusammen mit einer Radiosonde geflogen, so daß neben den Ozonwerten unter anderem auch die meteorologischen Standardparameter Druck und Temperatur zur Verfügung stehen. Dies ermöglicht eine einfache Umrechnung des Ozonpartialdruckes in die Ozonteilchendichte als Funktion der Höhe. Letzteres ist die Einheit, die zur Darstellung der Ozonprofile im *FURM*-Algorithmus verwendet wird. Die maximale Höhe, bis zu der die Ozonsonden zuverlässige Ergebnisse liefern, liegt bei ungefähr 30 km.

Einen detaillierten Überblick über die möglichen Fehlerquellen bei beiden Sondentypen findet man in [7]. In der Stratosphäre bei etwa 25 km Höhe wird

Station	Sondentyp	geograph. Breite, Länge	Anzahl Koinzidenzen
Ny-Ålesund	ECC	78.93°N, 11.95°O	32
Sodankylä	ECC	67.24°N, 26.36°O	19
Lerwick	ECC	60.13°N, 1.18°W	24
Hohenpeißenberg	Brewer-Mast	47.48°N, 11.01°O	49
Payerne	Brewer-Mast	46.80°N, 6.95°O	73

Tabelle 9.1: Überblick über die für die Validation der GOME-Ozonprofile verwendeten Ozonsondenmessungen.

die Genauigkeit („accuracy“) beider Sondentypen auf $\pm 6\%$ geschätzt. Die Präzision („precision“) wird für die Brewer-Mast-Sonden mit $\pm 4\%$ angegeben, und für die ECC-Sonden mit $\pm 1.5\%$ bis $\pm 6\%$. In der Troposphäre betragen die systematischen Fehler $+3.5\%$ für die ECC-Sonden und -9.5% für die Brewer-Mast-Sonden. Die Präzision der troposphärischen Ozonsondenmessungen wird für beide Sondentypen mit $\pm 3\%$ angegeben.

9.2 Auswahl der Sondenmessungen

Ozonsonden werden bereits seit Jahrzehnten eingesetzt und gehören somit zu den Standardinstrumenten zur Messung von Ozonprofilen. Daher werden sie häufig zur Validation von neu eingeführten Ozonsensoren verwendet. Die Ozonsondenmessungen überdecken nicht nur den Höhenbereich, in dem GOME seine besten Profilergebnisse liefert (20-35 km), sondern ermöglichen auch die Validation der aus den GOME-Messungen abgeleiteten troposphärischen Ozongehalte. Europa und Nordamerika verfügen über ein relativ dichtes Netz von Stationen, die regelmäßige Ozonsondenaufstiege durchführen. In diesen Gebieten ist daher eine Validation mit guter zeitlicher und räumlicher Auflösung möglich.

Die für die Validation der GOME-Ozonprofile verwendeten Sondenmessungen sind im Überblick in Tabelle 9.1 dargestellt. Die Daten der einzelnen Messungen sind in Anhang B aufgelistet. Die Stationen für den Vergleich wurden so ausgewählt, daß ein guter meridionaler Querschnitt von Nord- und Mitteleuropa gewährleistet ist. Ferner sollten sowohl ECC- als auch Brewer-Mast-Sonden berücksichtigt werden. In den Vergleich wurden nur solche Ozonsondenmessungen einbezogen, die am selben Tag wie der GOME-Überflug stattgefunden und eine Höhe von mindestens 30 km erreicht hatten. Der Abstand zwischen der Sondenstation und dem Zentrum des GOME-Grundpixels durfte nicht größer als 500 km sein (300 km für Ny-Ålesund). Um die jahreszeitlichen Ozonvariationen verfolgen zu können, wurde als Vergleichszeitraum die Zeit von Juli 1996 bis Juni 1997 gewählt. Die beste zeitliche Überdeckung findet man in Payerne mit fünf bis neun Koinzidenzen pro Monat und in Hohenpeißenberg, wo bis zu sieben koinzidente Messungen pro Monat zur Verfügung stehen. In Ny-Ålesund sind

zwischen Mitte September und Ende März keine Vergleiche möglich, da *GOME* während der Polarnacht keine Messungen durchführen kann. In Sodankylä gibt es von November 1996 bis Februar 1997 und in Lerwick im Dezember 1996 keine Vergleichsmessungen.

Den Gesamtozongehalt kann man aus der Sondenmessung abschätzen, indem man die Ozonwerte vom Start bis zur von der Sonde erreichten Höhe integriert und dazu den geschätzten Restozongehalt oberhalb des Sondierbereichs addiert. Als Qualitätskontrolle ist es üblich, diesen aus der Ozonsondenmessung abgeleiteten Gesamtozongehalt mit dem Gesamtozongehalt, der möglichst zeitgleich mit einem nahegelegenen Spektrophotometer bestimmt wurde, zu vergleichen. Das Verhältnis der beiden Gesamtozonwerte wird als Dobson-Korrekturfaktor bezeichnet. Da die Spektrophotometermessungen sehr genau sind, während es bei den Ozonsondenmessungen eher zu Fehlern kommen kann, sind stark streuende Dobson-Korrekturfaktoren ein Indiz für Fehler bei den Ozonsondenmessungen. Die Ozonprofile der Brewer-Mast-Sonden werden standardmäßig mit dem Dobson-Korrekturfaktor skaliert. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Messungen der Station Hohenpeißenberg variieren die Korrekturfaktoren zwischen 0.954 und 1.196. Der Mittelwert liegt bei 1.065, d. h. im Mittel unterschätzen die Ozonsondenmessungen den Gesamtozongehalt. Die entsprechenden Werte für Payerne sind 0.964 (Minimum), 1.332 (Maximum) und 1.093 (Mittelwert). In Sodankylä variieren die Korrekturfaktoren zwischen 0.960 und 1.120. Der Mittelwert beträgt 1.029. Da nicht für alle Sondaufstiege Korrekturfaktoren vorliegen, werden die Messungen aus Sodankylä in dieser Arbeit stets unkorrigiert verwendet. Für die Ozonsondenmessungen aus Ny-Ålesund und Lerwick stehen keine Dobson-Korrekturfaktoren zur Verfügung.

9.3 Vergleich des *FURM*- und *DOAS*-Gesamtozons

Vor dem eigentlichen Vergleich zwischen den *GOME*- und den Sondenprofilen ist es interessant, die mit dem *FURM*-Algorithmus abgeleiteten Gesamtozonwerte mit den Ergebnissen der *DOAS*-Auswertung zu vergleichen. Der *FURM*- und der *DOAS*-Algorithmus können als unabhängige Verfahren zur Bestimmung von Ozonsäulengehalten aus *GOME*-Messungen betrachtet werden. Da bei der *DOAS*-Auswertung differentielle Absorptionsstrukturen in einem nur wenige Nanometer breiten Fit-Fenster angepaßt werden, ist dieses Verfahren im Gegensatz zur *FURM*-Auswertung relativ unempfindlich gegenüber Fehlern in der radiometrischen Kalibration der Spektren. Für Messungen mit Sonnenzenitwinkeln unterhalb von etwa 60° ist die Bestimmung des Luftmassenfaktors, der zur Umrechnung der schrägen in vertikale Säulen benötigt wird, relativ unproblematisch, so daß sich die *DOAS*-Gesamtsäulen in diesem Bereich als Referenz für den Vergleich mit *FURM*-Gesamtsäulen eignen. Besonders günstig für den Vergleich ist die Tatsache, daß sich die *FURM*- und die *DOAS*-Ozonsäulengehalte auf diesel-

ben Luftmassen beziehen, was bei Vergleichen mit anderen Meßsystemen nicht der Fall ist. Bei den *FURM*-Auswertungen wurde versucht, die Kalibrationsfehler mit Hilfe der Chebyshev-Polynome zumindest teilweise zu korrigieren (siehe auch Abschnitt 7.5.4).

Bei der globalen Validation der *DOAS*-Ozonsäulen des offiziellen Level-2-Produktes mit Hilfe des *SAOZ*-Netzwerks¹ zeigte sich, daß die Übereinstimmung der Ozonsäulengehalte vom Sonnenzenitwinkel der *GOME*-Messungen abhängt [99]. Bei Sonnenzenitwinkeln unterhalb von 60° liegt die mittlere Abweichung zwischen den *GOME*- und den *SAOZ*-Ozonwerten im Bereich $\pm 4\%$. Ähnliche Ergebnisse liefert der Vergleich der *DOAS*-Ozonsäulen mit Messungen der Brewer- und Dobson-Instrumente der *NDSC*-Stationen² in den Alpen [100]. Bei Sonnenzenitwinkeln oberhalb von etwa 60° sind die *GOME-DOAS*-Werte allerdings systematisch kleiner als die *SAOZ*-Werte. Der Vergleich der *FURM*- und der *DOAS*-Gesamtozonwerte ist mit diesen Beobachtungen konsistent. Wie aus den Abbildungen 9.1 bis 9.3 ersichtlich, sind die jahreszeitlichen Variationen des *FURM*- und des *DOAS*-Gesamtozons sehr ähnlich. Betrachtet man die relativen Abweichungen, so liegt in 70 % der Fälle die Abweichung zwischen dem *FURM*- und dem *DOAS*-Gesamtozongehalt unter 3 %. In Abbildung 9.4 erkennt man, daß in Ny-Ålesund, wo die Sonnenzenitwinkel bei fast allen *GOME*-Messungen größer als 60° waren, die *FURM*-Werte systematisch höher als die *DOAS*-Werte sind. Die maximale Abweichung liegt bei etwa 11.5 %, der Mittelwert über alle Messungen bei 6 %. In Sodankylä liegen die *FURM*-Ergebnisse im Mittel um 2.5 % über den *DOAS*-Ergebnissen, wobei die maximale Abweichung etwa 6.5 % beträgt. Für Lerwick streuen die relativen Abweichungen zwischen +9 und -3 %, wobei bei hohen Sonnenzenitwinkeln die *FURM*-Werte deutlich über den *DOAS*-Werten liegen. Die beste Übereinstimmung wird für Hohenpeißenberg und Payerne beobachtet. Die Abweichungen bewegen sich hier im Bereich $\pm 5\%$. Im Mittel über alle Messungen liegen die Abweichungen zwischen den *FURM*- und den *DOAS*-Ergebnissen bei beiden Stationen unter 0.1 %. Insgesamt ergeben sich beim Vergleich der *DOAS*-Ozonsäulen mit den *FURM*-Ozonsäulen ähnliche Abweichungen wie beim Vergleich mit den *SAOZ*-Messungen. Insbesondere liegen bei hohen Sonnenzenitwinkeln die *FURM*-Ozonsäulen systematisch über den *DOAS*-Ozonsäulen. Dies liegt möglicherweise an Problemen bei der Berechnung der Luftmassenfaktoren für große Sonnenzenitwinkel, die nur die operationelle *DOAS*-Auswertung, nicht aber die *FURM*-Auswertung betreffen.

¹*SAOZ*: Système d'Analyse par Observation Zénithale

²*NDSC*: Network for the Detection of Stratospheric Change

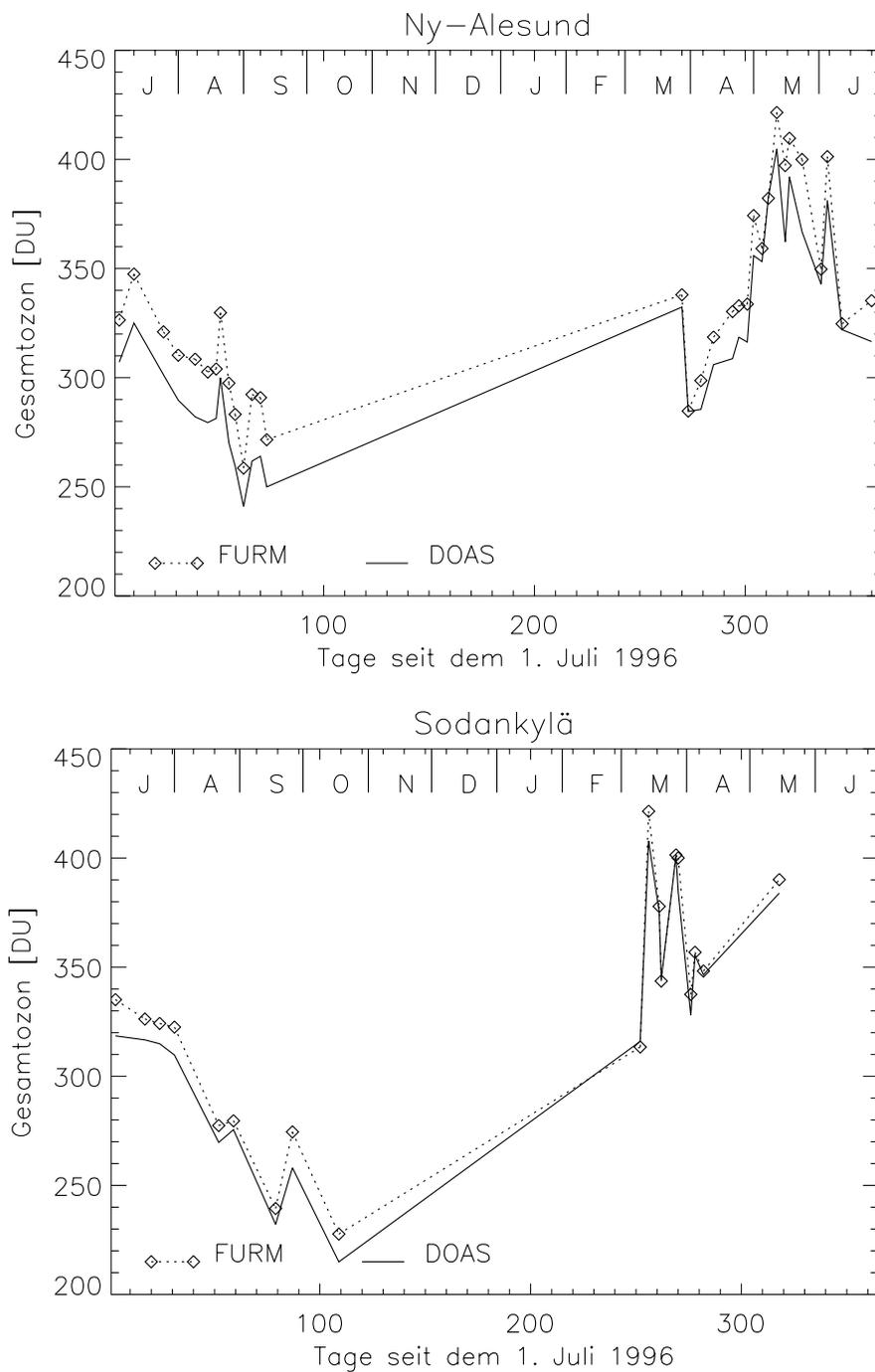


Abbildung 9.1: FURM- und DOAS-Gesamtozon für Ny-Ålesund und Sodankylä.

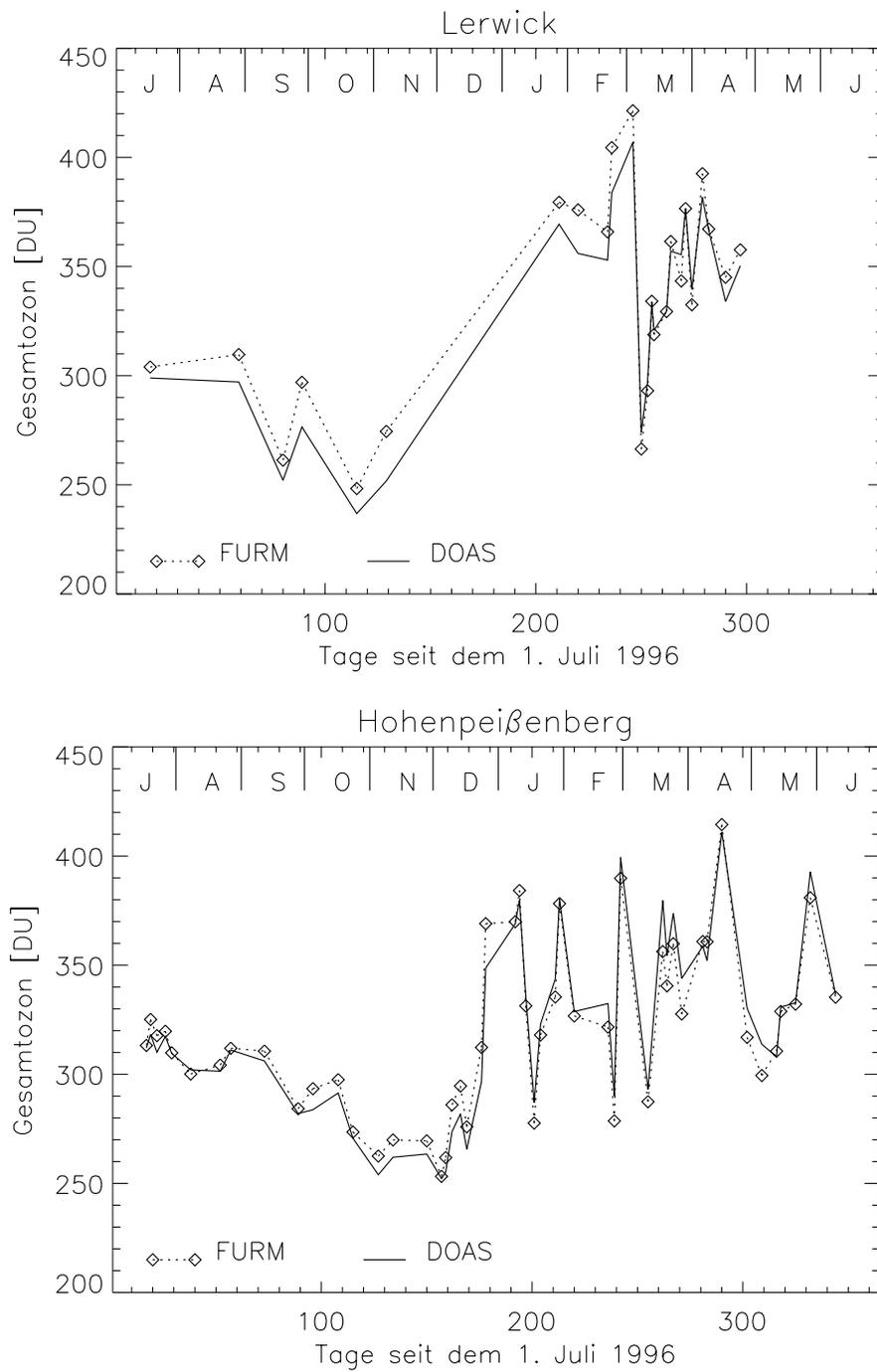


Abbildung 9.2: Wie Abb. 9.1 für Lerwick und Hohenpeißenberg.

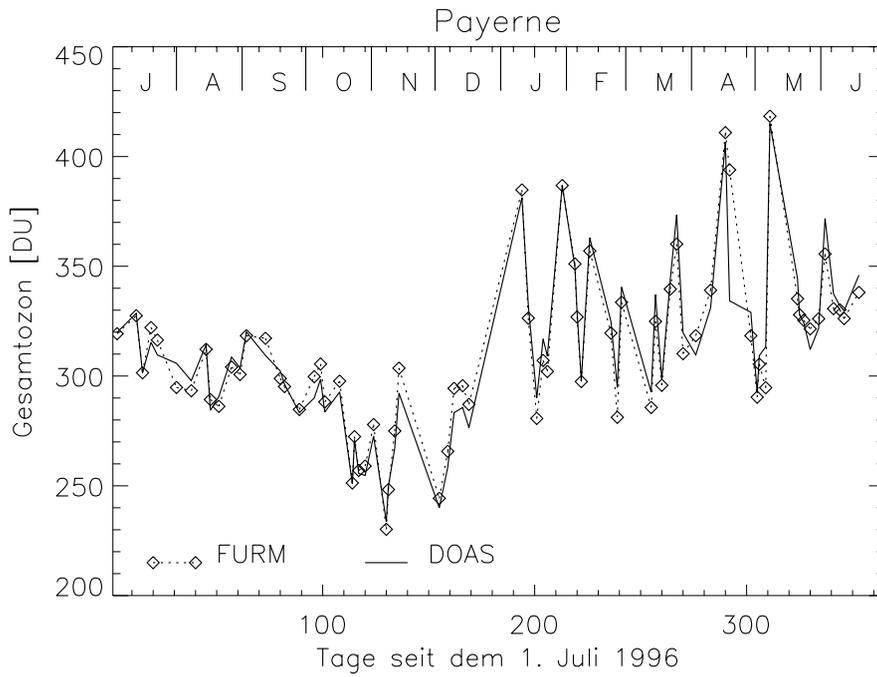


Abbildung 9.3: Wie Abb. 9.1 für Payerne.

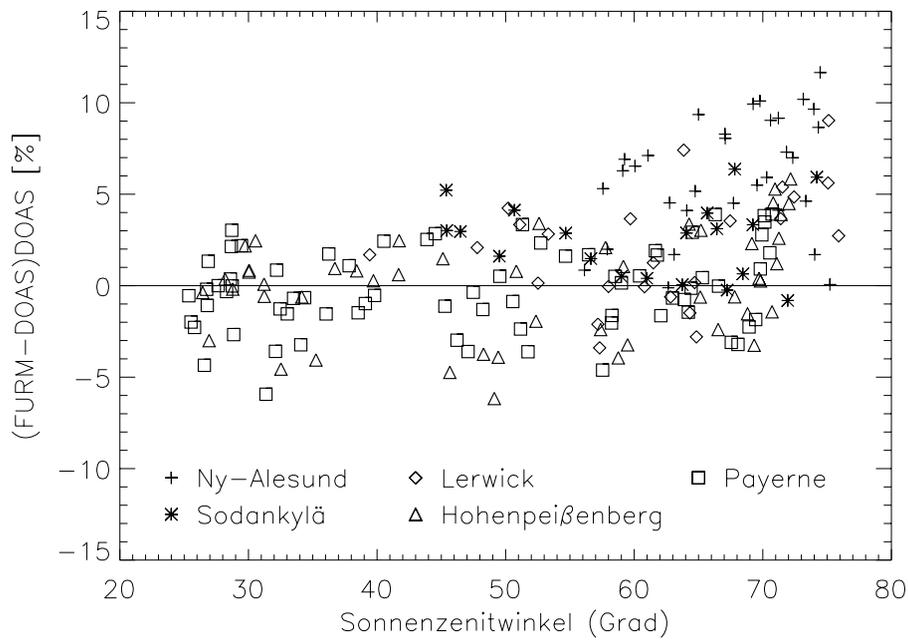


Abbildung 9.4: Relative Abweichung zwischen FURM- und DOAS-Gesamtozon als Funktion des Sonnzenitwinkels.

9.4 Einzelprofilvergleiche

9.4.1 Hohenpeißenberg

Im Vergleichszeitraum von Juli 1996 bis Juni 1997 standen in Hohenpeißenberg an zehn Tagen zusätzlich zu den Sondenmessungen auch *DIAL*-Messungen³ für die Validation der *GOME*-Profile zur Verfügung. Das Hohenpeißenberger Stratosphärenlidar, das seit 1987 im Routinebetrieb eingesetzt wird, emittiert simultane Laserpulse bei 308 nm und 353 nm. Da das Licht bei 308 nm stark von Ozon absorbiert wird, während bei 353 nm fast keine Absorption erfolgt, kann aus dem Unterschied des bei 308 und 353 nm rückgestreuten Signals die Ozonteilchendichte abgeleitet werden. Aus der Laufzeit zwischen dem Aussenden des Lichtpulses und dem Eintreffen des rückgestreuten Lichts kann die Streuhöhe bestimmt werden. Messungen des stratosphärischen Ozons können nur in klaren Nächten durchgeführt werden, da bei bedecktem Himmel der Lichtpuls nicht bis in die Stratosphäre vordringen kann und nur nachts das Untergrundlicht des Himmels so schwach ist, daß sich das relativ kleine Rückstreusignal nachweisen läßt. Um die Genauigkeit der Messungen zu erhöhen, wird über die ganze Nacht gemittelt. Für das aus einer solchen Nachtmessung abgeleitete Ozonprofil wird zwischen 15 und 30 km Höhe eine Genauigkeit von besser als 3 % angegeben. In 35 km Höhe liegt der Fehler bei 10 %, in 40 km Höhe bei 20 % und in 50 km Höhe bei 100 %. Höhen unterhalb von 10 bis 15 km sind nicht zugänglich, da hier aufgrund der geringen Ozonkonzentration die Ozonabsorption bei 308 nm zu gering ist. Für eine detaillierte Beschreibung des Instruments und der Datenauswertung wird auf [32] und [153] verwiesen.

In den Abbildungen 9.5 bis 9.7 sind die *GOME*-, Lidar- und Sondenprofile einander gegenübergestellt. Oberhalb von etwa 20 km Höhe stimmen die Ergebnisse der drei vollkommen unabhängigen Meßverfahren von wenigen Ausnahmen abgesehen innerhalb der 1σ -Fehler des *GOME*-Profils überein. In der unteren Stratosphäre macht sich die unterschiedliche Vertikalauflösung der Profile (Sonde ≈ 300 m, Lidar ≈ 1 km, *GOME* ≈ 10 km) deutlich bemerkbar. Die Sonden- und Lidarprofile weisen dort relativ feine Vertikalstrukturen auf, die *GOME* nicht auflösen kann. Die Abweichungen zwischen den Sonden- und den Lidarprofilen in der unteren Stratosphäre lassen sich häufig mit der Zeitdifferenz von mehreren Stunden zwischen den Messungen erklären. Die starke, dynamisch bedingte Ozonvariabilität in der unteren Stratosphäre kann bereits innerhalb solch kurzer Zeiträume zu deutlichen Änderungen der Ozonkonzentration führen. Beim Vergleich mit den *GOME*-Profilen kommt hinzu, daß diese die mittleren Verhältnisse eines 960×100^2 km großen Grundpixels beschreiben, während die Sonden- und die Lidarprofile lokale Verhältnisse wiedergeben. Dies kann in der Troposphäre und in der unteren Stratosphäre, wo die horizontale Ozonverteilung sehr variabel ist, ebenfalls deutlich voneinander abweichende Profilergebnisse zur Folge haben.

³*DIAL*: Differential Absorption Lidar

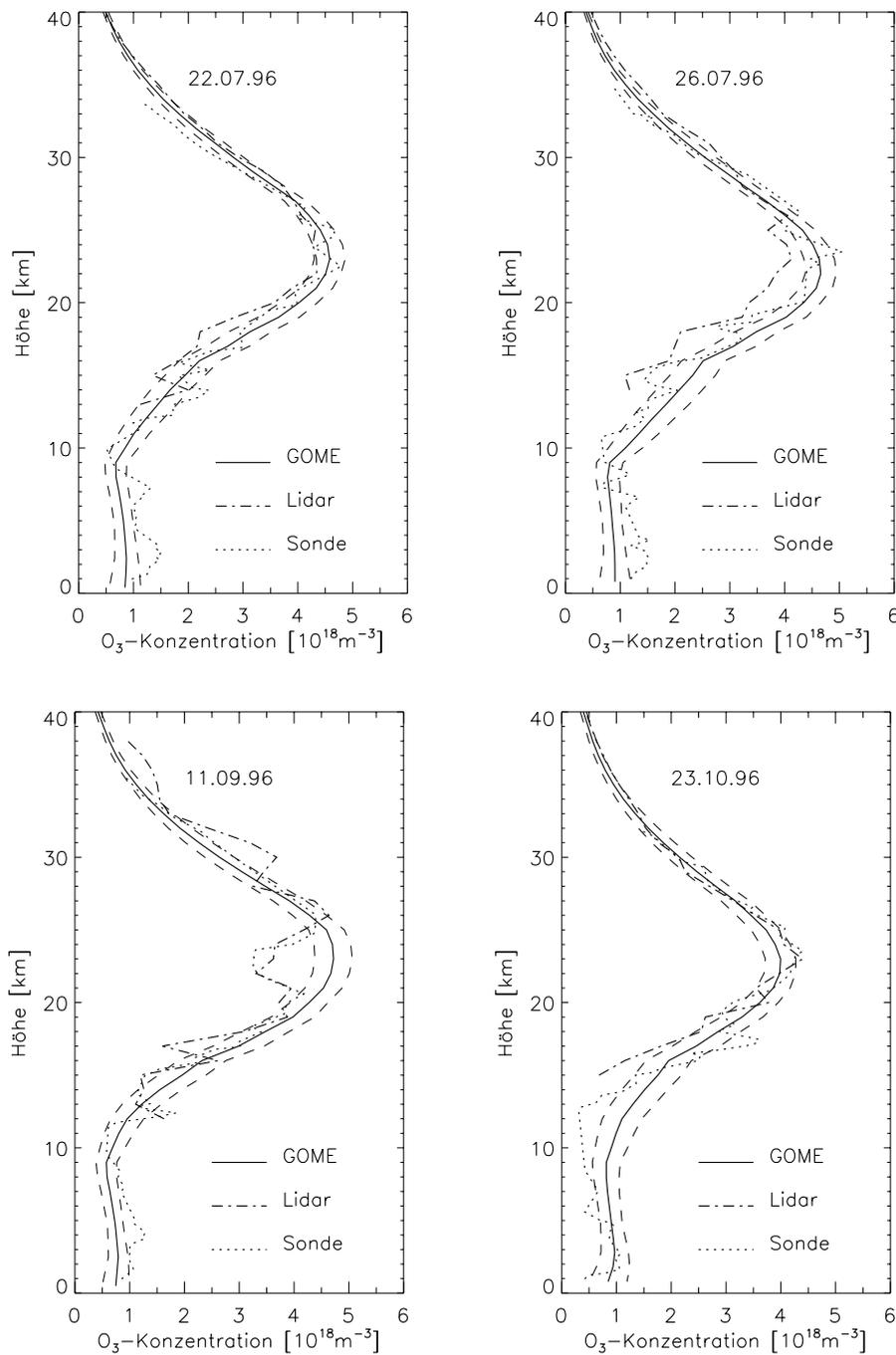


Abbildung 9.5: Einzelprofilvergleiche für Hohenpeißenberg. Die gestrichelten Linien geben den 1σ -Fehler des GOME-Ozonprofils gemäß Gl. 5.16 an, wobei die A-priori-Kovarianzmatrix aus der KNMI-Klimatologie abgeleitet wurde (siehe Abschnitt 6.3.2).

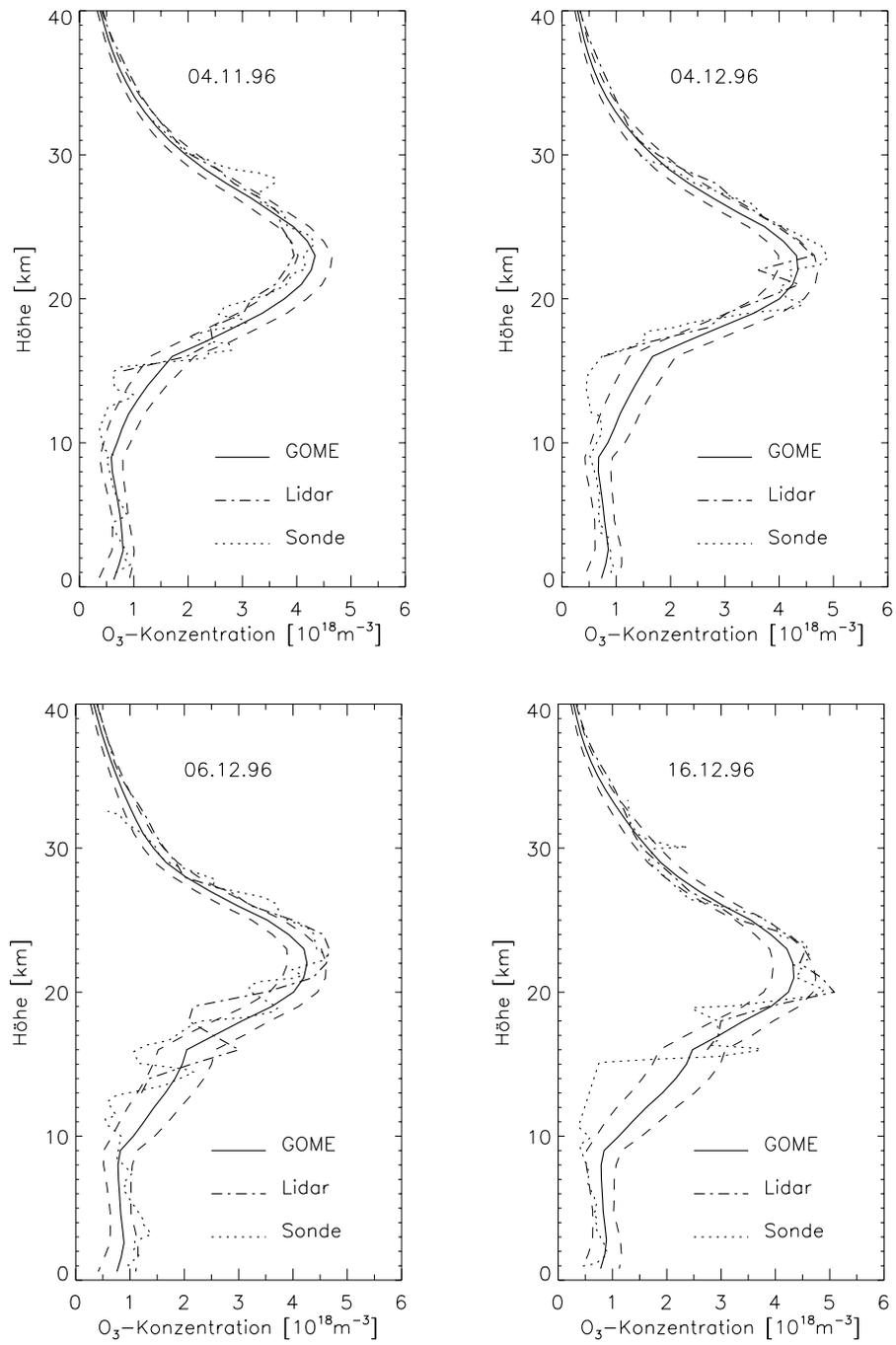


Abbildung 9.6: Wie Abb. 9.5.

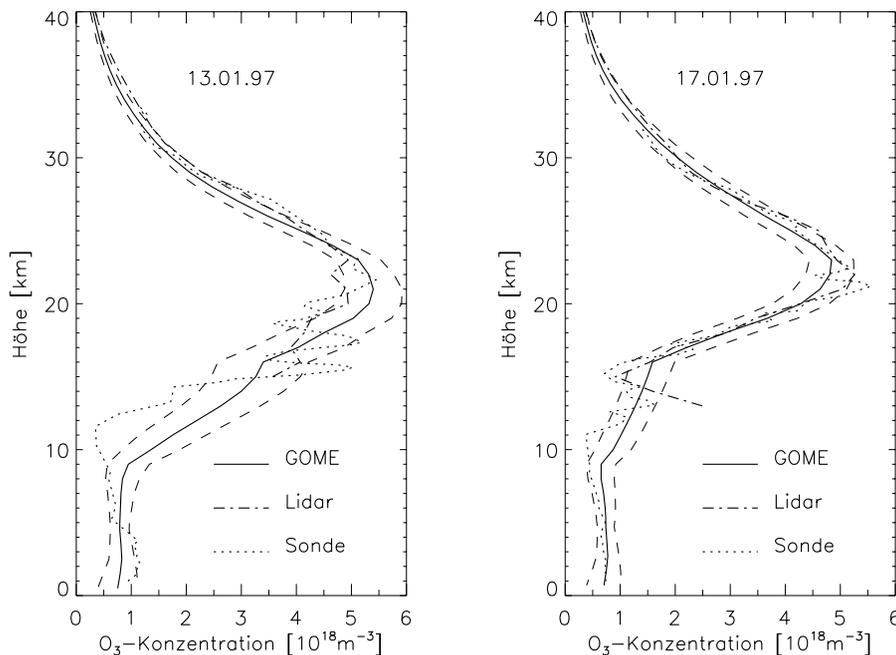


Abbildung 9.7: Wie Abb. 9.5.

9.4.2 Ny-Ålesund

In Ny-Ålesund wurden neben den Sondenmessungen auch Messungen des vom IUP entwickelten RAM⁴ für den Vergleich mit den GOME-Ozonprofilen herangezogen. Das RAM ist ein Mikrowellen-Radiometer, mit dem unter anderem die thermische Emission von Ozon bei 142 GHz gemessen wird. Eine ausführliche Instrumentenbeschreibung findet man in [101]. Aus der Form der druckverbreiterten Emissionslinie läßt sich die Vertikalverteilung des Ozon-Volumenmischungsverhältnisses (VMR) ableiten. Die Messungen sind weitgehend unabhängig von den Wetterbedingungen. Sie werden seit Ende 1994 mit kurzen Unterbrechungen nahezu kontinuierlich durchgeführt, wobei ungefähr einmal pro Stunde ein Ozonprofil geliefert wird. Für die Datenauswertung wird das Optimal-Estimation-Verfahren verwendet. Die Ozonprofile überdecken den Höhenbereich von 15 bis 55 km mit einer Vertikalauflösung von ungefähr 10 km und einer Genauigkeit von ungefähr ± 0.1 ppm.

Aufgrund der vergleichbaren Vertikalauflösung sieht es auf den ersten Blick so aus, als könne man die GOME- und die RAM-Profile sehr einfach miteinander vergleichen. Da jedoch aus den GOME-Messungen Teilchendichten und aus den RAM-Messungen Volumenmischungsverhältnisse ausgewertet werden, müssen

⁴RAM: Radiometer for Atmospheric Measurements

die Profile zunächst auf eine gemeinsame Einheit umgerechnet werden. Dies zieht aufgrund der relativ geringen Vertikalaufösung der beiden Meßsysteme Fehler nach sich, die einen quantitativen Profilvergleich erschweren. Unter der vereinfachenden Annahme, daß die *GOME*- und die *RAM*-Glättungsfunktionen Rechteckfunktionen mit der Amplitude 1 und der Halbwertsbreite H sind, kann man die *GOME*-Ozonteilchendichte $n_{\text{O}_3, \text{GOME}}$ und das *RAM*-Volumenmischungsverhältnis $\text{vmr}_{\text{O}_3, \text{RAM}}$ in der Höhe \tilde{z} in der Form

$$n_{\text{O}_3, \text{GOME}}(\tilde{z}) = \frac{1}{H} \int_{\tilde{z}-\frac{H}{2}}^{\tilde{z}+\frac{H}{2}} n_{\text{O}_3}(z) dz \quad (9.1)$$

$$\text{vmr}_{\text{O}_3, \text{RAM}}(\tilde{z}) = \frac{1}{H} \int_{\tilde{z}-\frac{H}{2}}^{\tilde{z}+\frac{H}{2}} \text{vmr}_{\text{O}_3}(z) dz = \frac{1}{H} \int_{\tilde{z}-\frac{H}{2}}^{\tilde{z}+\frac{H}{2}} \frac{n_{\text{O}_3}(z)}{n(z)} dz \quad (9.2)$$

schreiben (siehe Gl. 6.9). Dabei ist $n_{\text{O}_3}(z)$ die tatsächliche Ozonteilchendichte und $n(z)$ die tatsächliche Teilchendichte der Luft. Die einfache Umrechnung

$$n_{\text{O}_3, \text{RAM}}(\tilde{z}) = \text{vmr}_{\text{O}_3, \text{RAM}}(\tilde{z}) n(\tilde{z}) \quad (9.3)$$

liefert offensichtlich eine Teilchendichte, die in der Regel nicht mit der *GOME*-Teilchendichte identisch ist. Dies ist in Abbildung 9.8 illustriert. Dort sind die Auswertergebnisse für die Höhen $\tilde{z} = 10, 15, \dots, 50, 55$ km für zwei verschiedene Szenarien dargestellt. Als „wahres“ Ozonprofil wurde jeweils eine Sondenmessung verwendet, die oberhalb der von der Sonde erreichten Höhe mit klimatologischen Werten bis auf 60 km Höhe extrapoliert wurde. Auf der linken Seite der Abbildung sind die Ozonprofile in der Einheit Teilchendichte angegeben. Die „*GOME*“-Werte wurden gemäß Gleichung (9.1) aus dem Sondenprofil berechnet, wobei für die Halbwertsbreite der Wert $H = 10$ km verwendet wurde. Die „*RAM*“-Volumenmischungsverhältnisse wurden mit Hilfe von Gleichung (9.2) berechnet und dann gemäß Gleichung (9.3) in Teilchendichten umgerechnet. Auf der rechten Seite der Abbildung sind die Ergebnisse in der Einheit Volumenmischungsverhältnis dargestellt, d. h. die „*RAM*“-Werte wurden aus Gleichung (9.2) berechnet, während sich die „*GOME*“-Ergebnisse aus Gleichung (9.1) mit anschließender Umrechnung analog zu Gleichung (9.3) ergaben. Man erkennt, daß sich allein aufgrund der Umrechnung von einer Einheit in die andere deutliche Abweichungen zwischen den Auswertergebnissen ergeben. Unterhalb des Teilchendichtemaximums liegen die „*RAM*“-Werte um 10 bis 50 % über den „*GOME*“-Werte, während sie oberhalb des Teilchendichtemaximums 10 bis 20 % niedriger als die „*GOME*“-Werte sind. Bei Vergleichsprofilen, die eine deutlich bessere Vertikalaufösung als die *GOME*-Profile haben (z. B. Ozonsondenmessungen), treten diese Probleme nicht auf, denn man kann das hochaufgelöste Profil zunächst in das entsprechende Ozonteilchendichteprofil umrechnen und dann durch Faltung mit den *GOME*-Glättungsfunktionen der *GOME*-Vertikalaufösung anpassen. Diese Vorgehensweise wird in Abschnitt 9.6 angewendet.

Anhand der Abbildung 9.8 wird ferner deutlich, wie stark der optische Eindruck der Übereinstimmung der Profile von der gewählten Darstellung abhängt. Da das Volumenmischungsverhältnis unterhalb des Teilchendichtemaximums sehr schnell abnimmt, sehen in der *VMR*-Darstellung die großen relativen Abweichungen zwischen den “*RAM*”- und den “*GOME*”-Werten eher gering aus, während im Bereich des *VMR*-Maximums die vergleichsweise kleinen relativen Abweichungen drastisch hervortreten. Im Gegensatz dazu treten in der Teilchendichtedarstellung Abweichungen in der unteren und mittleren Stratosphäre besonders deutlich hervor, während die obere Stratosphäre optisch kaum ins Gewicht fällt.

Neben den Umrechnungsproblemen kann beim Vergleich zwischen den *RAM*- und den *GOME*-Profilen auch die Größe des *GOME*-Grundpixels zu Abweichungen führen. Vor allem während der Vortex-Periode hängen die Vergleichsergebnisse unter Umständen stark von der Position von Ny-Ålesund und des *GOME*-Pixels relativ zum polaren Vortex ab. Im Gegensatz dazu ist die Zeitdifferenz zwischen der *RAM*-Messung und dem *GOME*-Überflug in der Regel kleiner als eine Stunde und sollte daher keine großen Abweichungen in den Ozonprofilen zur Folge haben.

Angesichts dieser Fehlerquellen, die selbst bei perfekten *GOME*- und *RAM*-Messungen vorhanden sind, ist beim quantitativen Vergleich der Profile eine gewisse Vorsicht angebracht. Exemplarisch sind in Abbildung 9.9 die Profilergebnisse für zwei Tage im Frühjahr 1997 jeweils in der Teilchendichte- und in der *VMR*-Darstellung wiedergegeben. Zusätzlich ist auch das Sondenprofil vom selben Tag dargestellt. Die Abbildungen aller 15 Vergleichstage zwischen Ende März und Ende Juni 1997 sind in Anhang C zusammengefaßt. Bei der Beurteilung der Vergleiche sollte man sich auf Höhen zwischen 15 und 30 km konzentrieren, da hier alle drei Meßverfahren relativ zuverlässige Ergebnisse liefern. Insgesamt ist die Übereinstimmung der drei unabhängig bestimmten Ozonprofile in diesem Höhenbereich durchaus zufriedenstellend.

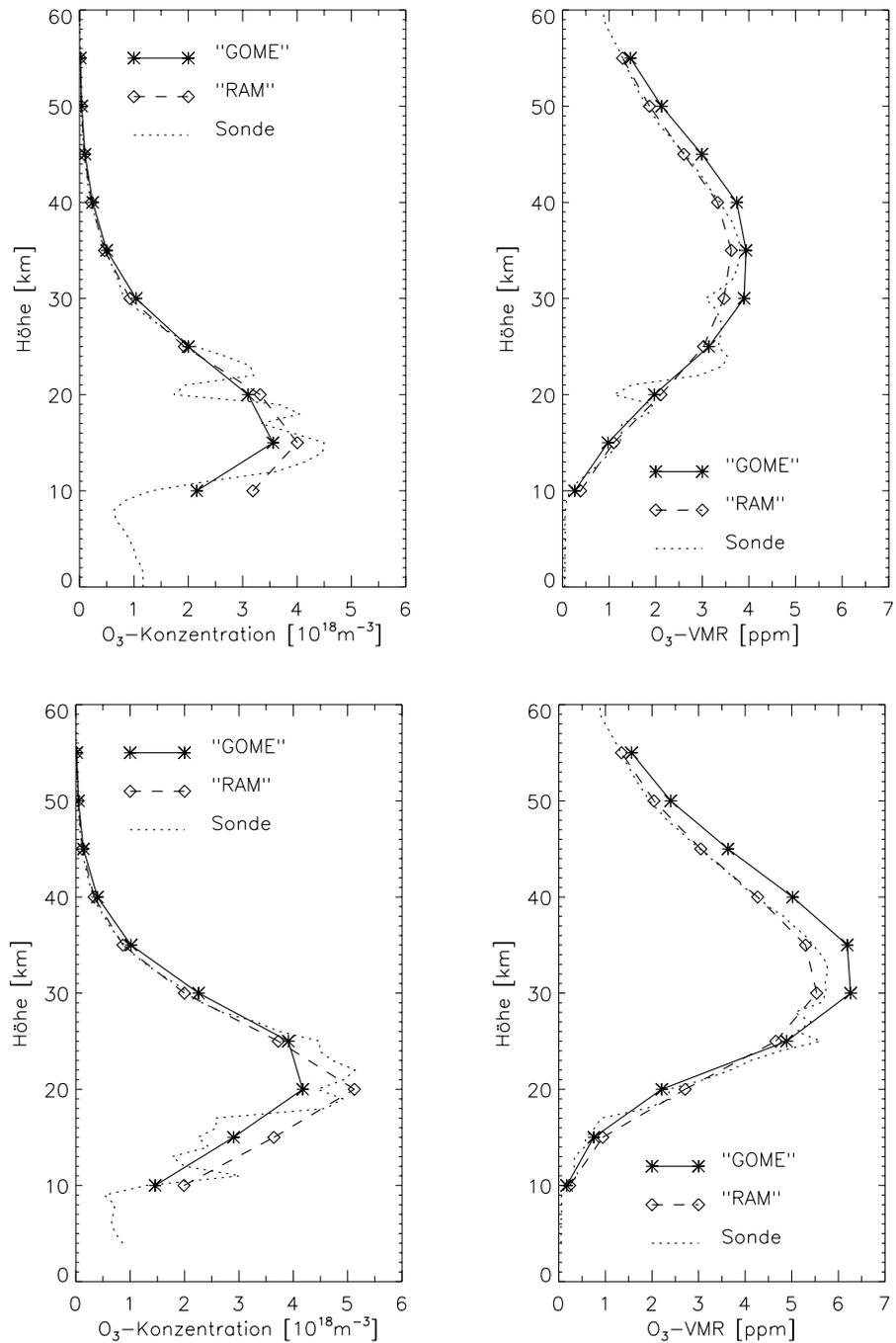


Abbildung 9.8: Veranschaulichung der Umrechnungsfehler.

Oben: Sondenprofil aus Ny-Ålesund vom 30. März 1997,

Unten: Sondenprofil aus Hohenpeißenberg vom 21. März 1997
(weitere Erläuterungen im Text).

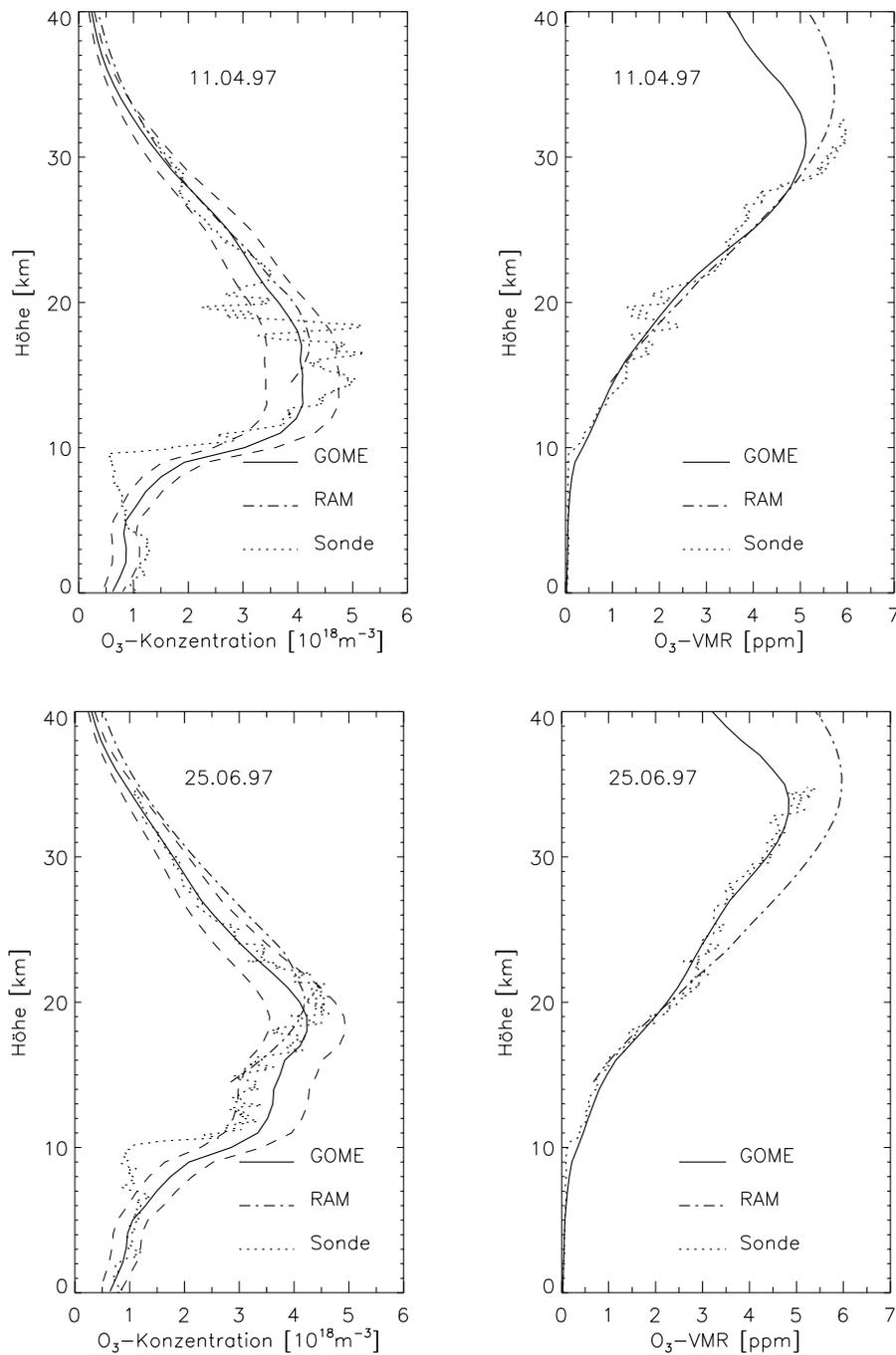


Abbildung 9.9: Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (links: Teilchendichtedarstellung, rechts: VMR-Darstellung). Die gestrichelten Linien geben den 1σ -Fehler des GOME-Ozonprofils gemäß Gl. 5.16 an, wobei bei der Berechnung der A-priori-Kovarianzmatrix eine relative Standardabweichung von 30 % angenommen wurde (siehe Abschnitt 6.3.2).

9.5 Vergleich der Teilsäulengehalte

Um einen sinnvollen quantitativen Vergleich zwischen den Sonden- und den *GOME*-Ozonprofilen durchführen zu können, muß das vertikal hochaufgelöste Sondenprofil der geringeren Vertikalauflösung des *GOME*-Profils angepaßt werden. Eine Möglichkeit, dies zu tun, besteht darin, die Ozonprofile über definierte Höhenschichten zu integrieren und anstelle der eigentlichen Profile die Ozon-Teilsäulengehalte zu vergleichen. Die Schichtdicke sollte dabei ungefähr der Vertikalauflösung der *GOME*-Profile entsprechen. Die Wahl der Schichtgrenzen ist allerdings einer gewissen Willkür unterworfen und eine einmal getroffene Wahl ist nicht für alle Atmosphärenbedingungen gleichermaßen geeignet. Vor allem, wenn die unterste Atmosphärenschicht als vom Erdboden bis zur Tropopause reichend definiert werden soll, ist man mit der Tatsache konfrontiert, daß die Höhe der Tropopause von der Jahreszeit, der geographischen Lage und der aktuellen Wettersituation abhängt. Zudem gibt es auch verschiedene Definitionen der Tropopause, die einen nicht vernachlässigbaren Einfluß darauf haben, wieviel Ozon der Troposphäre zugeordnet wird [10].

Um den Vergleich möglichst einfach und übersichtlich zu halten, wurden in dieser Arbeit drei Höhenschichten definiert, die in mittleren Breiten als repräsentativ für die Troposphäre (0 bis 10 km), die untere Stratosphäre (10 bis 20 km) und die mittlere Stratosphäre (20 bis 30 km) gelten können. Die für diese Schichten berechneten Teilsäulengehalte sowie die relativen Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenresultaten sind in den Abbildungen 9.10 bis 9.14 dargestellt. Um den Informationsgewinn durch die *GOME*-Messungen zu veranschaulichen, sind auch immer die Teilsäulengehalte angegeben, die sich aus den klimatologischen A-priori-Profilen ergeben. Man erkennt, daß vor allem in den oberen beiden Schichten die *GOME*- und die Sonden-Teilsäulen einen sehr ähnlichen jahreszeitlichen Verlauf zeigen. In der mittleren Stratosphäre variiert die relative Abweichung zwischen den *GOME*- und den Sondenresultaten typischerweise im Bereich $\pm 10\%$, während in der unteren Stratosphäre und in der Troposphäre in Einzelfällen relative Abweichungen von bis zu 50% auftreten.

Im Rahmen der statistischen Auswertung des Vergleichs wurden für jede Station folgende Größen berechnet:

1. die mittlere relative Abweichung zwischen den *GOME*- und den Sonden-Teilsäulengehalten

$$MRA = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M \frac{S_{GOME,i} - S_{Sonde,i}}{S_{Sonde,i}} \quad (9.4)$$

M : Anzahl der Messungen

2. die mittlere quadratische Abweichung

$$MQA = \sqrt{\frac{1}{M} \sum_{i=1}^M \left(\frac{S_{GOME,i} - S_{Sonde,i}}{S_{Sonde,i}} \right)^2}, \quad (9.5)$$

3. der empirische Korrelationskoeffizient

$$CORR = \frac{\sum_{i=1}^M (S_{GOME,i} - \bar{S}_{GOME})(S_{Sonde,i} - \bar{S}_{Sonde})}{\sqrt{\sum_{i=1}^M (S_{GOME,i} - \bar{S}_{GOME})^2 (S_{Sonde,i} - \bar{S}_{Sonde})^2}}, \quad (9.6)$$

mit

$$\bar{S}_{GOME} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M S_{GOME,i} \quad \text{und} \quad \bar{S}_{Sonde} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M S_{Sonde,i}.$$

Die *MRA* dient als Indikator für systematische Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen, während die *MQA* die Streuung der *GOME*- um die Sondenenergebnisse beschreibt. Der Korrelationskoeffizient ist ein Maß dafür, wie gut die von den beiden Meßsystemen erfaßten Ozonvariationen übereinstimmen. Die Ergebnisse des Vergleichs zwischen den *GOME*- und den Sondenteilsäulen einerseits und den A-priori- und den Sondenteilsäulen andererseits sind in Tabelle 9.2 zusammengefaßt.

In der troposphärischen Schicht liegt die *MQA* zwischen den *GOME*- und den Sondenteilsäulen zwischen 20 und 24 %, wobei für alle Stationen eine leichte Verbesserung gegenüber der *MQA* zwischen den A-priori- und den Sondenwerten beobachtet wird. Für Lerwick, Hohenpeißenberg und Payerne sind die Beträge der systematischen Abweichungen gering (3-5 %). In Ny-Ålesund und Sodankylä liegen die *GOME*-Werte im Jahresmittel um 11.3 bzw. 12.8 % über den Sondenwerten. Insgesamt ist die *MRA* zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen deutlich kleiner als die *MRA* zwischen den A-priori- und den Sondenwerten. Der Korrelationskoeffizient variiert für Ny-Ålesund, Lerwick, Hohenpeißenberg und Payerne zwischen 0.3 und 0.4. Diese vergleichsweise niedrige Korrelation ist in erster Linie eine Folge der relativ geringen Empfindlichkeit der *GOME*-Messungen bezüglich troposphärischer Ozonverteilungen. Dies bedeutet, daß das *GOME*-Profil in der Troposphäre sehr stark durch den klimatologischen A-priori-Wert bestimmt wird. Ferner zeigen die *GOME*-Glättungsfunktionen in Abschnitt 6.4, daß die troposphärischen Ozongehalte relativ stark von den stratosphärischen Ozonkonzentrationen beeinflusst werden. Darüber hinaus weist die troposphärische Ozonverteilung eine hohe horizontale Variabilität auf, die in den *GOME*-Messungen über eine Fläche von $960 \times 100 \text{ km}^2$ „verschmiert“ wird. Die hohe Korrelation von 0.8 für Sodankylä ist durch die dort geringe Variabilität des troposphärischen Ozons bedingt. Für Ny-Ålesund, Sodankylä und Lerwick ist die

Table 9.2: Mittlere relative Abweichung *MRA* und mittlere quadratische Abweichung *MQA* (jeweils in Prozent) und Korrelationskoeffizient. Die erste Zeile für jede Station gibt die Werte für den Vergleich zwischen den *GOME*- und den Sondenteilsäulen an, während sich die zweite Zeile auf den Vergleich zwischen den klimatologischen Teilsäulengehalten und den Sondenteilsäulen bezieht.

	Schicht 1 (0-10 km)			Schicht 2 (10-20 km)			Schicht 3 (20-30 km)		
	<i>MRA</i>	<i>MQA</i>	<i>CORR</i>	<i>MRA</i>	<i>MQA</i>	<i>CORR</i>	<i>MRA</i>	<i>MQA</i>	<i>CORR</i>
Ny-Ålesund	12.8	23.2	0.39	9.9	15.9	0.78	-4.3	7.7	0.92
	11.0	25.1	0.19	15.2	26.3	0.65	8.0	22.2	0.45
Sodankylä	11.3	19.6	0.80	7.0	12.8	0.95	0.7	8.0	0.80
	22.2	27.9	0.69	23.1	29.5	0.88	12.9	19.3	0.28
Lerwick	3.0	21.2	0.33	10.0	21.1	0.90	-7.3	10.9	0.70
	13.6	23.3	0.19	36.4	61.6	0.53	9.2	12.7	0.73
Hohenpeißenberg	4.5	24.2	0.37	8.6	16.7	0.89	0.4	6.9	0.67
	18.2	29.5	0.46	33.8	48.6	0.57	7.1	10.0	0.43
Payerne	-3.0	23.2	0.32	8.5	17.6	0.89	3.1	7.0	0.68
	12.5	23.9	0.38	38.2	52.5	0.55	9.7	11.5	0.50

Korrelation zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen deutlich größer als zwischen den A-priori- und den Sondenwerten, wohingegen für Hohenpeißenberg und Payerne eine geringfügige Verringerung der Korrelation beobachtet wird.

In der unteren Stratosphäre variiert die *MQA* zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen zwischen 13 und 21 %, und ist damit deutlich kleiner als die *MQA* zwischen den A-priori- und den Sondenwerten. Die *GOME*-Werte liegen im Mittel um 7 bis 10 % über den Sondenenergebnissen, was ebenfalls eine klare Verbesserung gegenüber den A-priori-Werten darstellt. Für Sodankylä, Lerwick, Hohenpeißenberg und Payerne nehmen die Korrelationskoeffizienten Werte zwischen 0.89 und 0.95 an, d. h. die Korrelation zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen ist sehr hoch⁵. In Ny-Ålesund ist der Korrelationskoeffizient mit 0.78 etwas kleiner. In allen Fällen ist die Korrelation zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen deutlich höher als zwischen den A-priori- und den Sondenwerten. Dies liegt vor allem an der hohen natürlichen Variabilität des Ozongehalts in der unteren Stratosphäre, die mit einem Monatsmittel nicht wiedergegeben werden kann. Daß die Verbesserung der *MRA* und der *MQA* so deutlich ausfällt, ist auch darauf zurückzuführen, daß im Frühjahr 1997 die Ozon-

⁵Wären die *GOME*- und die Sondenmessungen vollkommen unkorreliert, so läge die Wahrscheinlichkeit dafür, daß sich bei einer Stichprobe von 19 oder mehr zufällig ausgewählten Vergleichsmessungen ein Korrelationskoeffizient von 0.69 oder größer ergäbe, unter 0.1 % (siehe Tabelle C.3 in [11]).

gehalte deutlich unter dem klimatologischen Mittelwert (1980 bis 1991) lagen. Auf diesen Punkt wird in Abschnitt 9.7 noch näher eingegangen.

In der mittleren Stratosphäre ist die Korrelation ebenfalls sehr hoch (zwischen 0.67 und 0.92). Für alle Stationen außer Lerwick ist die Korrelation zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen deutlich größer als zwischen den A-priori- und den Sondenwerten. Auch bei der *MRA* und der *MQA* wird eine eindeutige Verbesserung gegenüber der Klimatologie beobachtet. Mit Ausnahme von Lerwick ist die *MQA* für alle Stationen mit 7 bis 8 % relativ niedrig, und es sind im Jahresmittel nur geringe systematische Abweichungen zu beobachten. Eine Blick auf die Abbildungen 9.13 und 9.14 zeigt allerdings, daß in Hohenpeißenberg und Payerne die *GOME*-Ergebnisse im Sommerhalbjahr deutlich über den Sondenresultaten liegen, während sie im Winterhalbjahr tendenziell niedriger als die Sondenmessungen ausfallen. Für die anderen Stationen ist dies, wenn auch weniger deutlich, ebenfalls zu beobachten.

Abschließend sei noch einmal hervorgehoben, daß für jede der drei Schichten die mittlere quadratische Abweichung und der Korrelationskoeffizient zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen für alle Stationen (von den wenigen oben erwähnten Ausnahmen abgesehen) ungefähr dieselben Werte annehmen. Besonders gut ist die Übereinstimmung bei den drei südlichsten Stationen Lerwick, Hohenpeißenberg und Payerne. Die Vergleichsergebnisse dieser Stationen können daher für mittlere nördliche Breiten verallgemeinert werden.

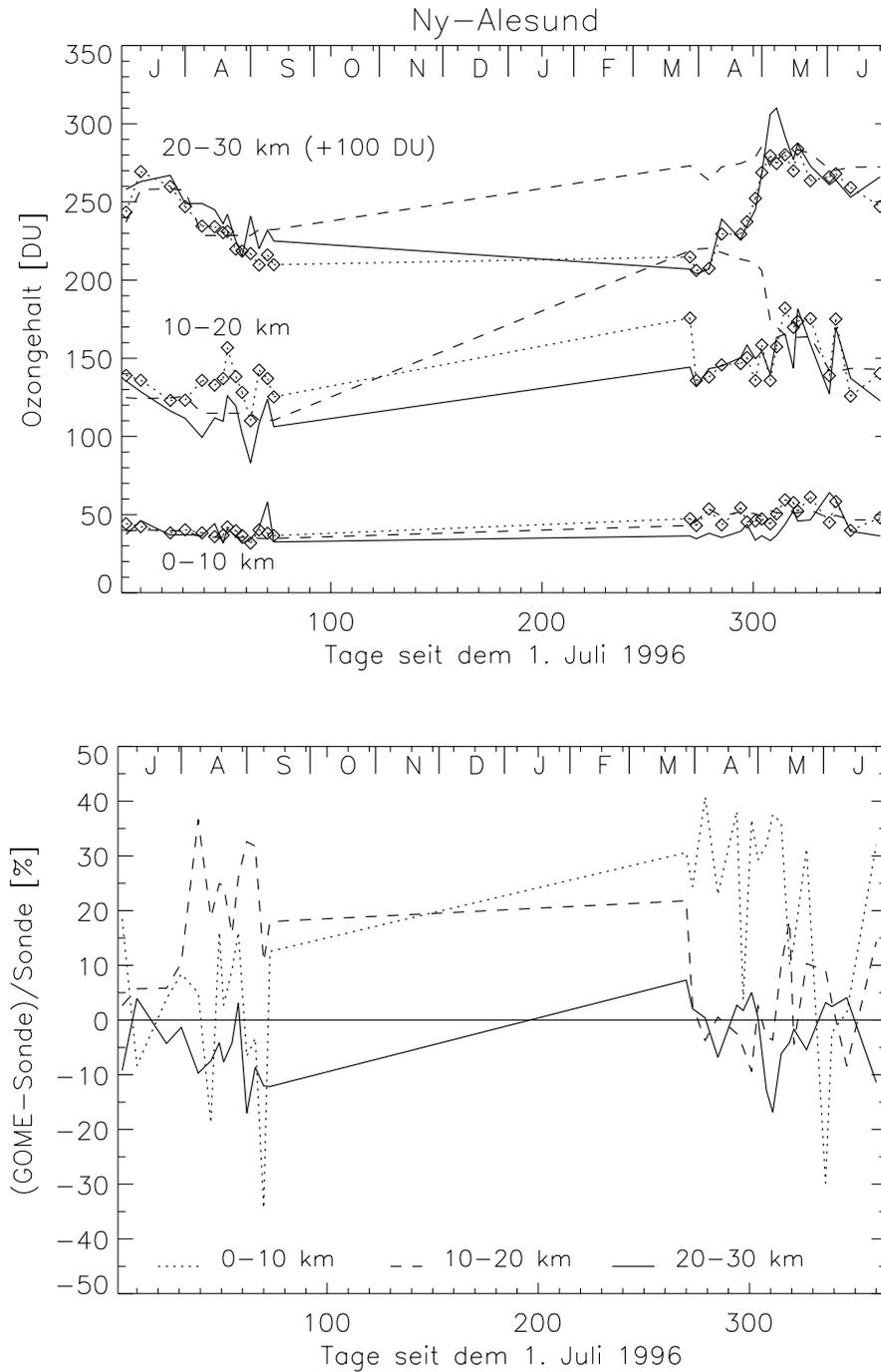


Abbildung 9.10: *Oben:* Ozonteilsäulen für Ny-Ålesund (gepunktet mit Symbolen: GOME, durchgezogen: Sonde, gestrichelt: Klimatologie). Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurden die Werte für die Schicht zwischen 20 und 30 km Höhe um 100 DU erhöht.
Unten: Relative Abweichung (GOME-Sonde)/Sonde in Prozent.

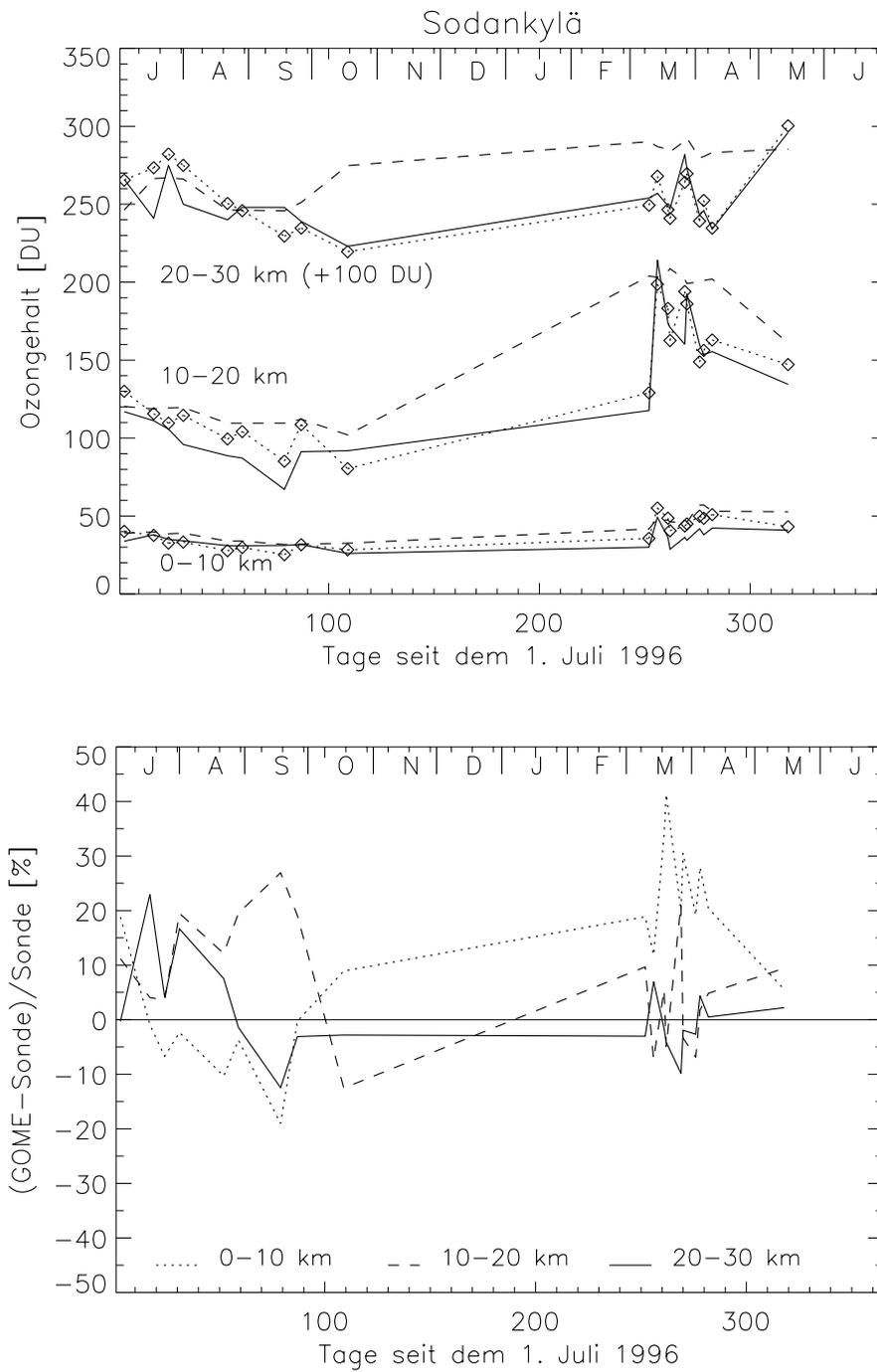


Abbildung 9.11: Wie Abb. 9.10 für Sodankylä.

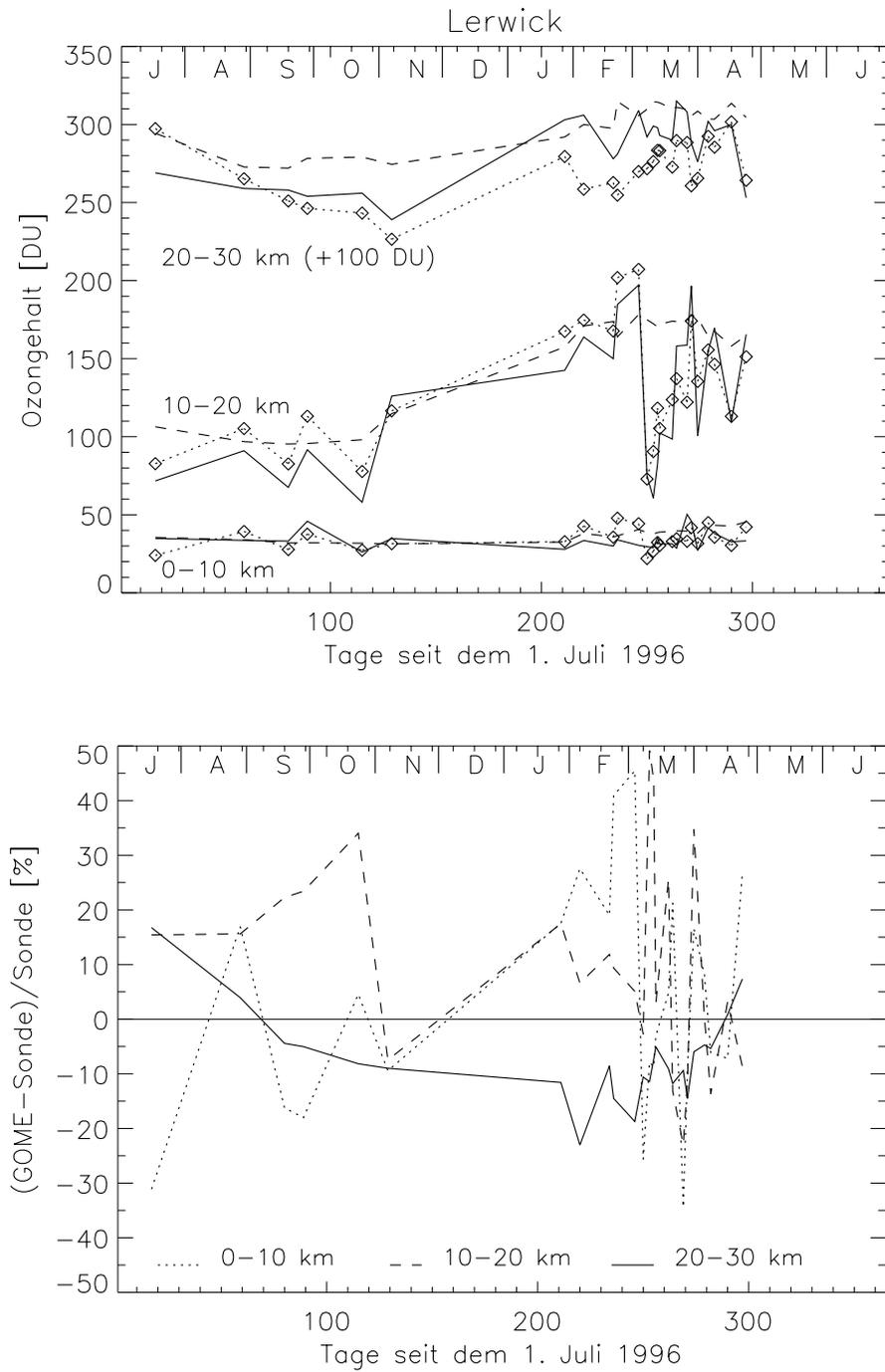


Abbildung 9.12: Wie Abb. 9.10 für Lerwick.

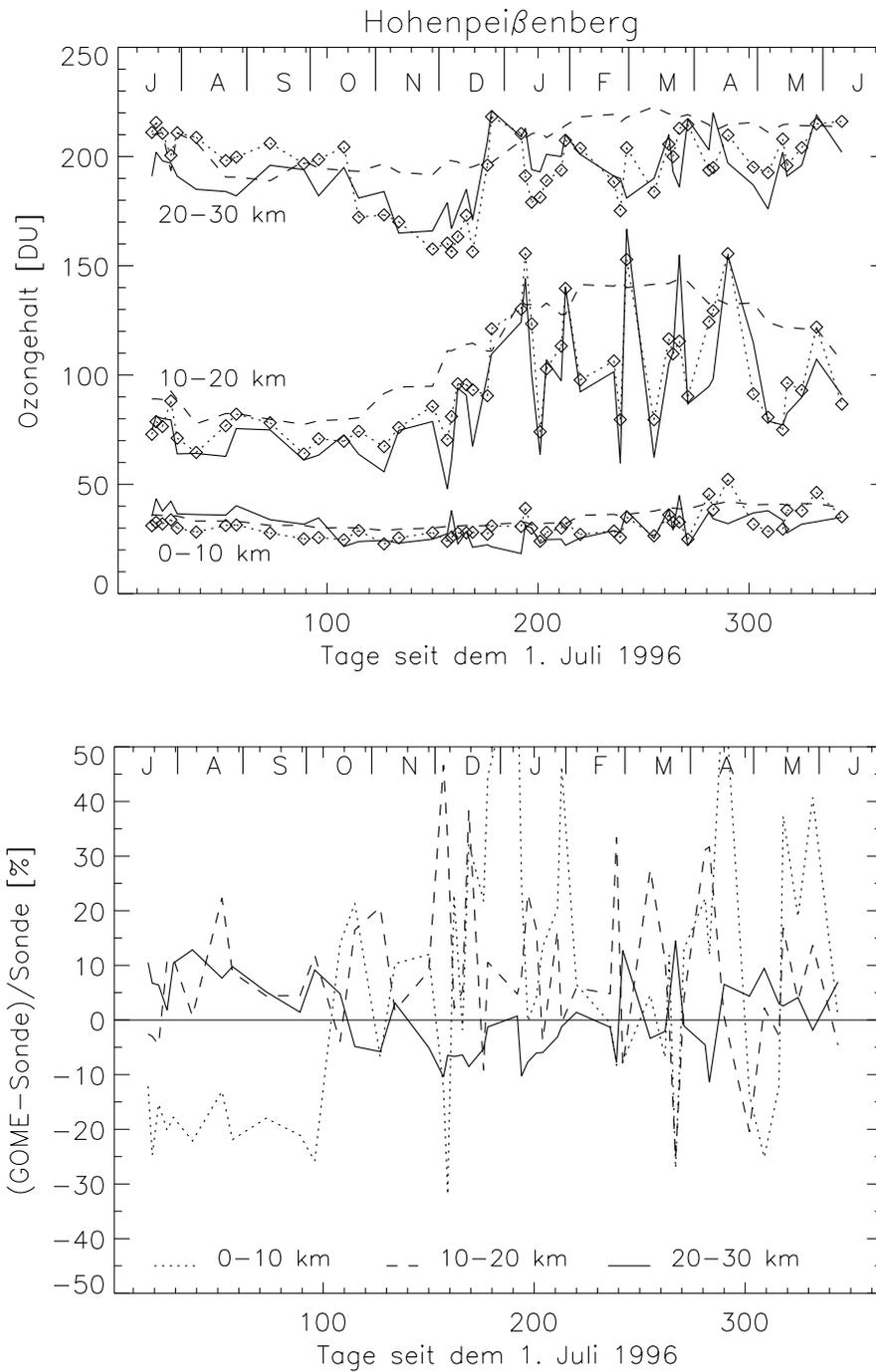


Abbildung 9.13: Wie Abb. 9.10 für Hohenpeißenberg (jedoch ohne Erhöhung der Werte für die Schicht zwischen 20 und 30 km Höhe).

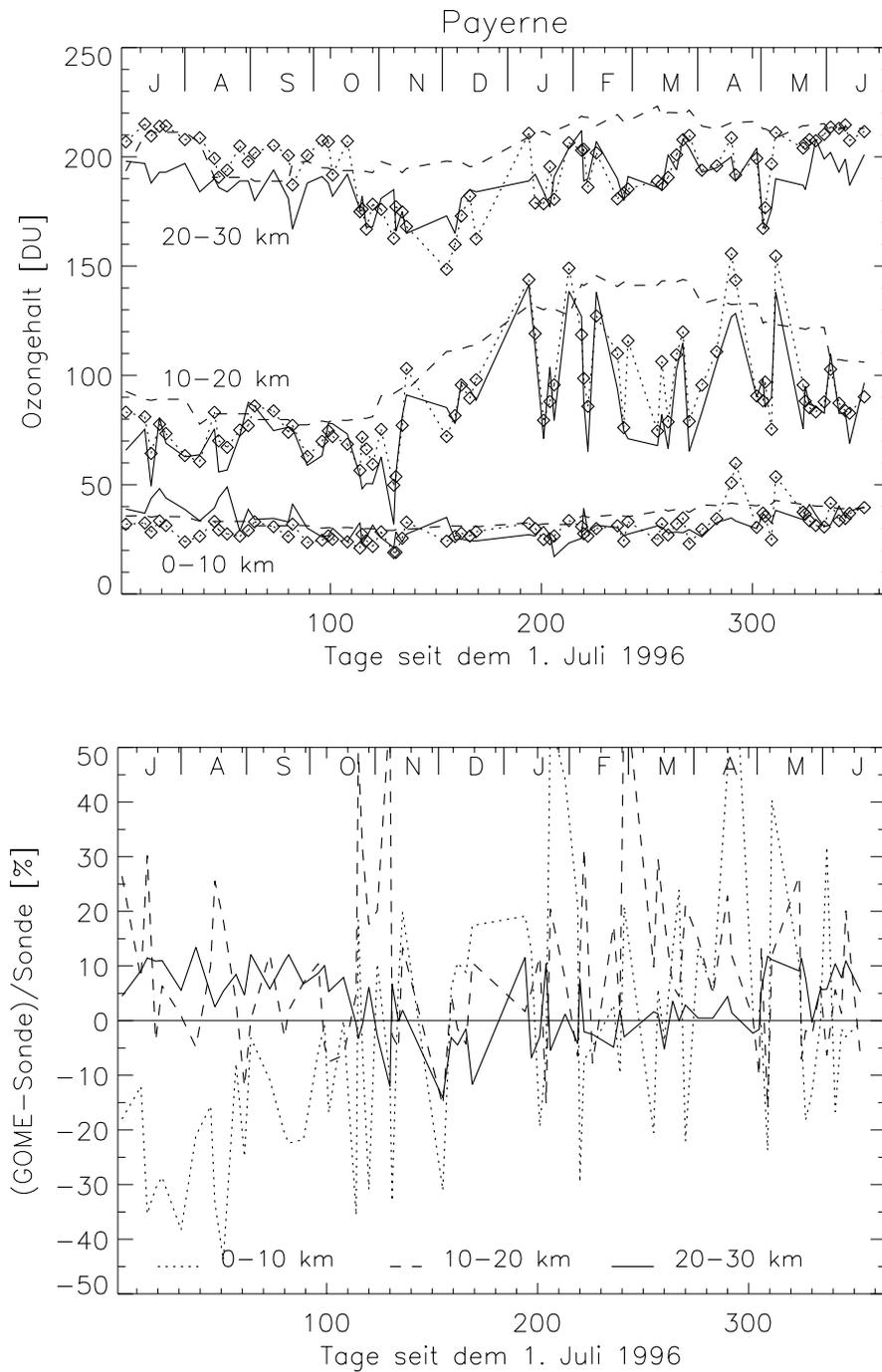


Abbildung 9.14: Wie Abb. 9.10 für Payerne (jedoch ohne Erhöhung der Werte für die Schicht zwischen 20 und 30 km Höhe).

9.6 Vergleich mit geglätteten Sondenprofilen

Eine elegante Möglichkeit, den Einfluß der unterschiedlichen Vertikalauflösungen der *GOME*- und der Sondenprofile sowie den Einfluß der A-priori-Information auf die *GOME*-Profile aus dem Vergleich zu eliminieren, ergibt sich aus Gleichung 6.9. Ersetzt man dort das wahre Ozonprofil \mathbf{x} durch das hochaufgelöste Sondenprofil \mathbf{x}_S , so erhält man

$$\mathbf{x}_c = \mathbf{x}_a + \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{x}_S - \mathbf{x}_a). \quad (9.7)$$

Das so mit den *GOME*-Glättungsfunktionen gefaltete Sondenprofil \mathbf{x}_c entspricht - abgesehen von den in Abschnitt 5.4 erwähnten Profilfehlern - gerade dem Profil, das *GOME* messen würde, wenn das Sondenprofil \mathbf{x}_S das wahre Ozonprofil wäre. Dieses Verfahren wurde von *Connor et al.* [33] vorgeschlagen und unter anderem für den Vergleich von bodengestützten Mikrowellenmessungen mit *SAGE-II*- und Lidarprofilen angewendet [156]. Es eignet sich vor allem zur Identifizierung systematischer Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenprofilen. Vor der Faltung muß das Sondenprofil mit einem klimatologischen Profil auf den für die *GOME*-Auswertung verwendeten Höhenbereich (0 bis 80 km) erweitert werden. Für den Vergleich werden die gefalteten Sondenprofile aber nur unterhalb von 30 km Höhe verwendet. Die Vorgehensweise ist in Abbildung 9.15 illustriert. In dieser Abbildung werden für das *GOME*-Profil zwei verschiedene 1σ -Fehler angegeben. Der größere Fehlerbereich entspricht der Standardabweichung, die sich aus der Lösungskovarianzmatrix 5.47 ergibt, während der kleinere Fehlerbereich dem Profilfehler aufgrund des Meßrauschens allein entspricht (siehe Gl. 5.44). Beim Vergleich der *GOME*-Profile mit gefalteten Sondenprofilen spielt der Glättungsfehler keine Rolle mehr. Im Falle perfekter Koinzidenz, fehlerfreier Sondenmessungen sowie vernachlässigbarer Kalibrations- und Vorwärtsmodellfehler sollte daher die Standardabweichung der Abweichungen zwischen den *GOME*- und den gefalteten Sondenprofilen gerade diesem Rauschfehler entsprechen.

In den Abbildungen 9.16 und 9.17 sind für Hohenpeißenberg und Payerne die *GOME*- und die gefalteten Sondenprofile einander in Form einer farbko-dierten Zeitreihe gegenübergestellt. Da für diese beiden Stationen in der Regel mindestens eine Vergleichsmessung pro Woche vorliegt, zeigt sich in der Zeitreihendarstellung die Ähnlichkeit der von den Sonden und von *GOME* registrierten jahreszeitlichen Ozonvariationen besonders deutlich. Auch die im Sommerhalbjahr im Vergleich zu den Sondenwerten systematisch höheren *GOME*-Werte im Bereich des Ozonmaximums sind klar erkennbar.

Die mittleren quadratischen Abweichungen zwischen den *GOME*- und den gefalteten und ungefalteten Sondenprofilen sowie zwischen den A-priori-Profilen und den gefalteten und ungefalteten Sondenprofilen sind in Abbildung 9.18 dargestellt. In der Stratosphäre ist die *MQA* zwischen den *GOME*- und den Sondenprofile deutlich kleiner als die *MQA* zwischen den A-priori- und den Sondenprofilen. Die Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenprofilen sind

für alle Stationen relativ ähnlich, während sich die Abweichungen zwischen den A-priori- und den Sondenprofilen von Station zu Station deutlich unterscheiden. In der Troposphäre unterscheiden sich die Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenprofilen bzw. zwischen den A-priori- und den Sondenprofilen erwartungsgemäß nur sehr wenig.

Oberhalb von etwa 20 km Höhe liegen die mittleren quadratischen Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenprofilen zwischen 8 und 15 %. Dabei macht es kaum einen Unterschied, ob man den Vergleich mit den gefalteten oder den ungefalteten Sondenprofilen betrachtet, denn in diesem Höhenbereich ist Einfluß der A-priori-Information auf die Auswertung gering und die Ozonverteilung weist einen relativ glatten Vertikalverlauf auf. Die genannten Abweichungen sind gut mit den in der Tabelle 9.2 für die Schicht zwischen 20 und 30 km Höhe angegebenen Werten vergleichbar.

In der unteren Stratosphäre und in der Tropopausenregion wird der Einfluß der feineren Vertikalauflösung der Sondenprofile durch die Faltung mit den Glättungsfunktionen stark unterdrückt. Die *MQA* zwischen den *GOME*- und den gefalteten Sondenprofilen erreicht in der unteren Stratosphäre Werte zwischen 15 und 20 %. Auch dies ist konsistent mit den Ergebnissen des Teilsäulenvergleichs.

Die unterhalb von ungefähr 10 km Höhe abnehmenden Abweichungen zwischen den *GOME*- und den gefalteten Sondenprofilen stehen auf den ersten Blick im Widerspruch zu den Ergebnissen für die unterste Schicht in Tabelle 9.2. Beim Vergleich mit den gefalteten Sondenprofilen ist allerdings zu berücksichtigen, daß sowohl das *GOME*-Profil als auch das gefaltete Sondenprofil in der Troposphäre sehr stark zum A-priori-Profil hin tendieren. Dies gilt vor allem für bewölkte Grundpixel, bei denen *GOME* die untersten Kilometer der Atmosphäre nicht „sehen“ kann und daher die Auswertung im wesentlichen durch das A-priori-Profil bestimmt wird. Entsprechend gering sind dort die Abweichungen zwischen den Profilen. Der Vergleich der *GOME*-Profile mit ungefalteten Sondenprofilen liefert in den untersten Kilometern der Atmosphäre mittlere quadratische Abweichungen von 20 bis 30 %. Dabei ist aus den oben genannten Gründen kaum eine Verbesserung gegenüber dem Vergleich zwischen den A-priori- und den Sondenprofilen zu beobachten.

Um mögliche systematische Abweichungen zwischen den *GOME*- und den Sondenprofilen zu identifizieren, wurden die mittleren relativen Abweichungen zwischen den Profilen untersucht. Da nur für die Stationen Hohenpeißenberg und Payerne das ganze Jahr über regelmäßige Vergleichsmessungen zur Verfügung stehen, beschränkt sich die Untersuchung auf diese Stationen. In Abbildung 9.19 sind die über die Monate Mai, Juni, Juli (MJJ) und die über die Monate November, Dezember, Januar (NDJ) gemittelten relativen Abweichungen dargestellt. In der Periode MJJ zeigen die relativen Abweichungen in Hohenpeißenberg und Payerne einen sehr ähnlichen Höhenverlauf. Sie liegen unterhalb von ungefähr 20 km Höhe im Bereich $\pm 3\%$, während oberhalb von 20 km die *GOME*-Ozonkonzentrationen deutlich höher als die Sondenwerte liegen. Während der Monate NDJ ist die

mittlere Übereinstimmung zwischen den *GOME*- und den Sondenmessungen in diesem Höhenbereich besser. Diese Beobachtung ist in erster Linie auf die im Sommer niedrigeren Sonnenzenitwinkel zurückzuführen. Auf diesen Punkt wird in Kapitel 10 noch näher eingegangen.

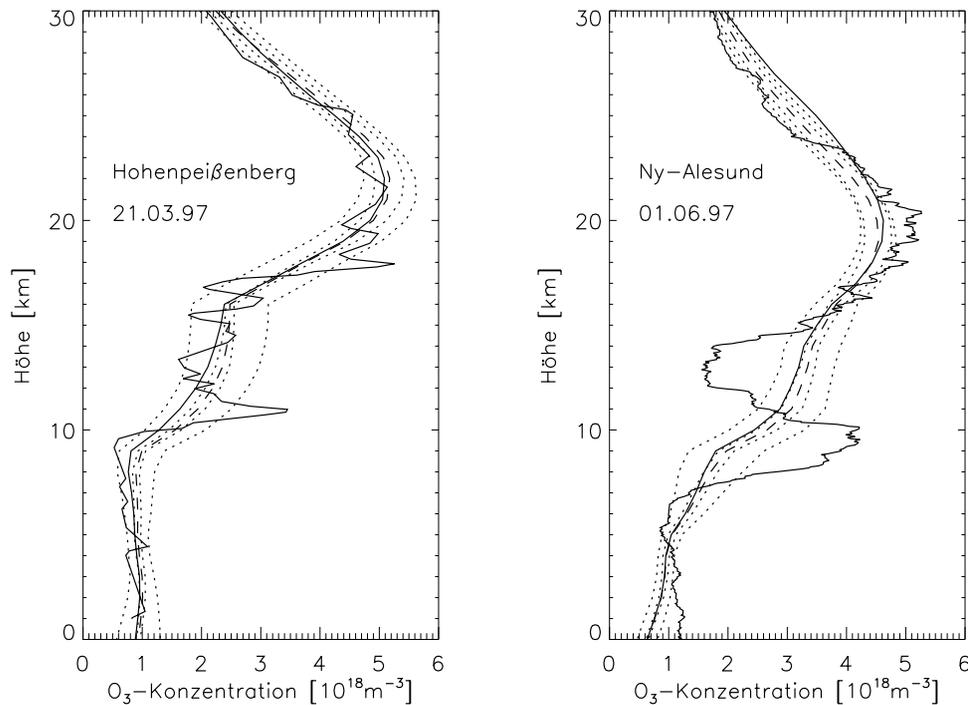


Abbildung 9.15: Einzelprofilvergleiche für Hohenpeißenberg (links) und Ny-Ålesund (rechts). Die stark strukturierte durchgezogene Linie ist jeweils die Original-Sondenmessung, die „glatte“ durchgezogene Linie ist das Sondenprofil nach der Faltung mit den *GOME*-Glättungsfunktionen. Das *GOME*-Ozonprofil ist durch eine gestrichelte Linie wiedergegeben. Die 1σ -Fehler, die sich aus dem Meßrauschen allein bzw. aus dem Meßrauschen und dem Glättungsfehler zusammen ergeben, sind durch die gepunkteten Linien angedeutet (Näheres dazu im Text).

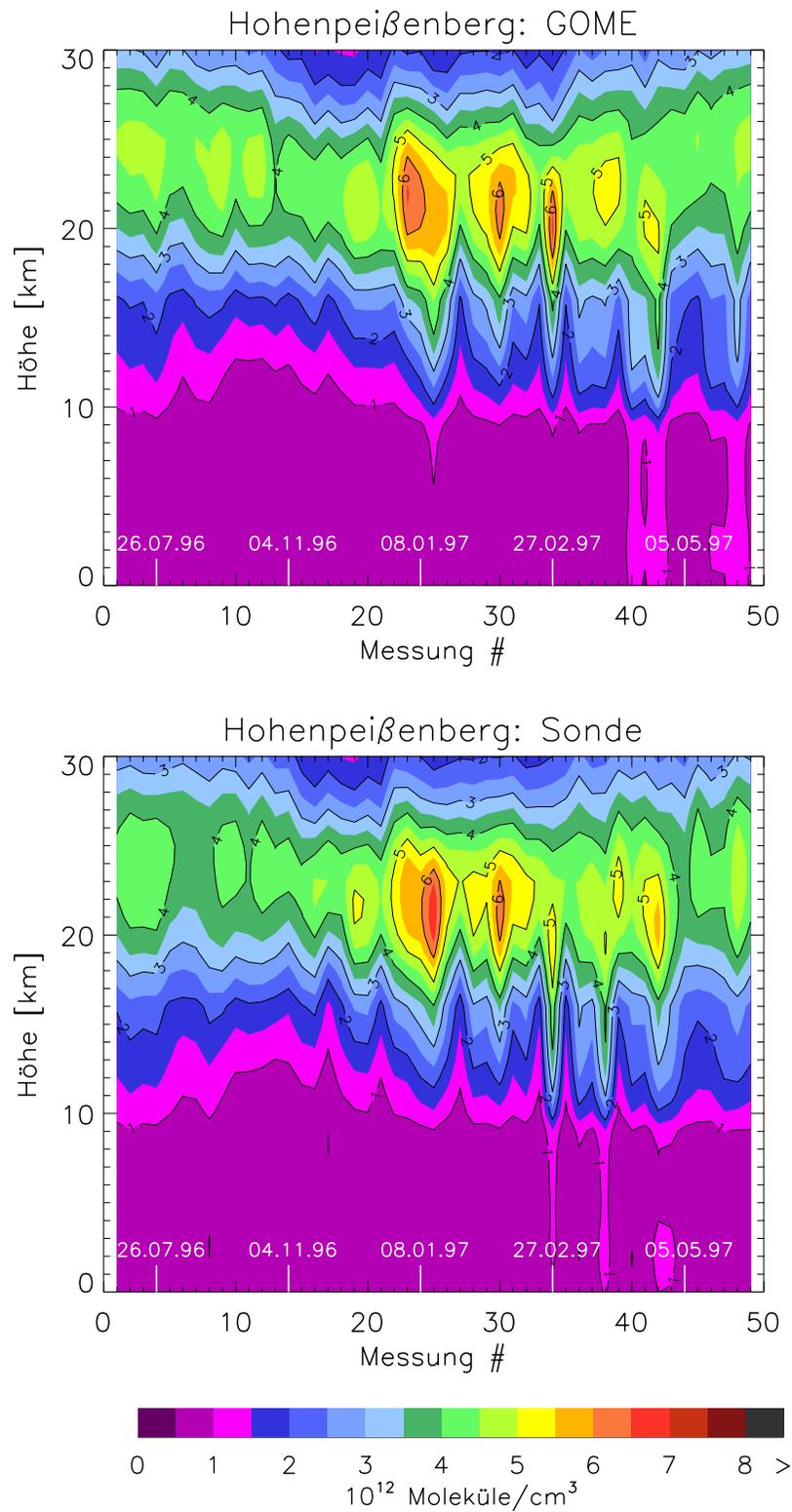


Abbildung 9.16: GOME-Ozonprofile (oben) und gefaltete Sondenprofile (unten) für Hohenpeißenberg.

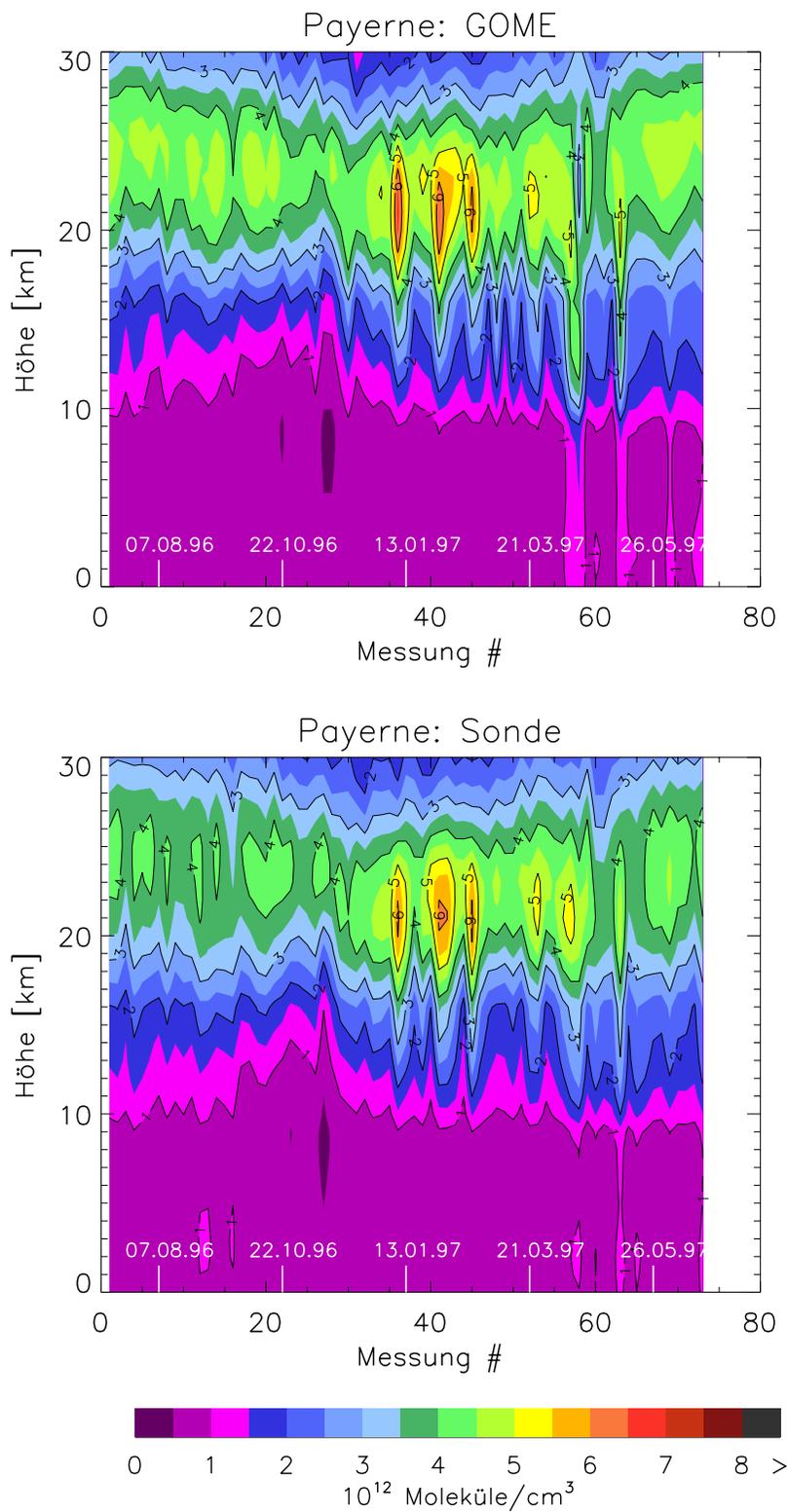


Abbildung 9.17: GOME-Ozonprofile (oben) und gefaltete Sondenprofile (unten) für Payerne.

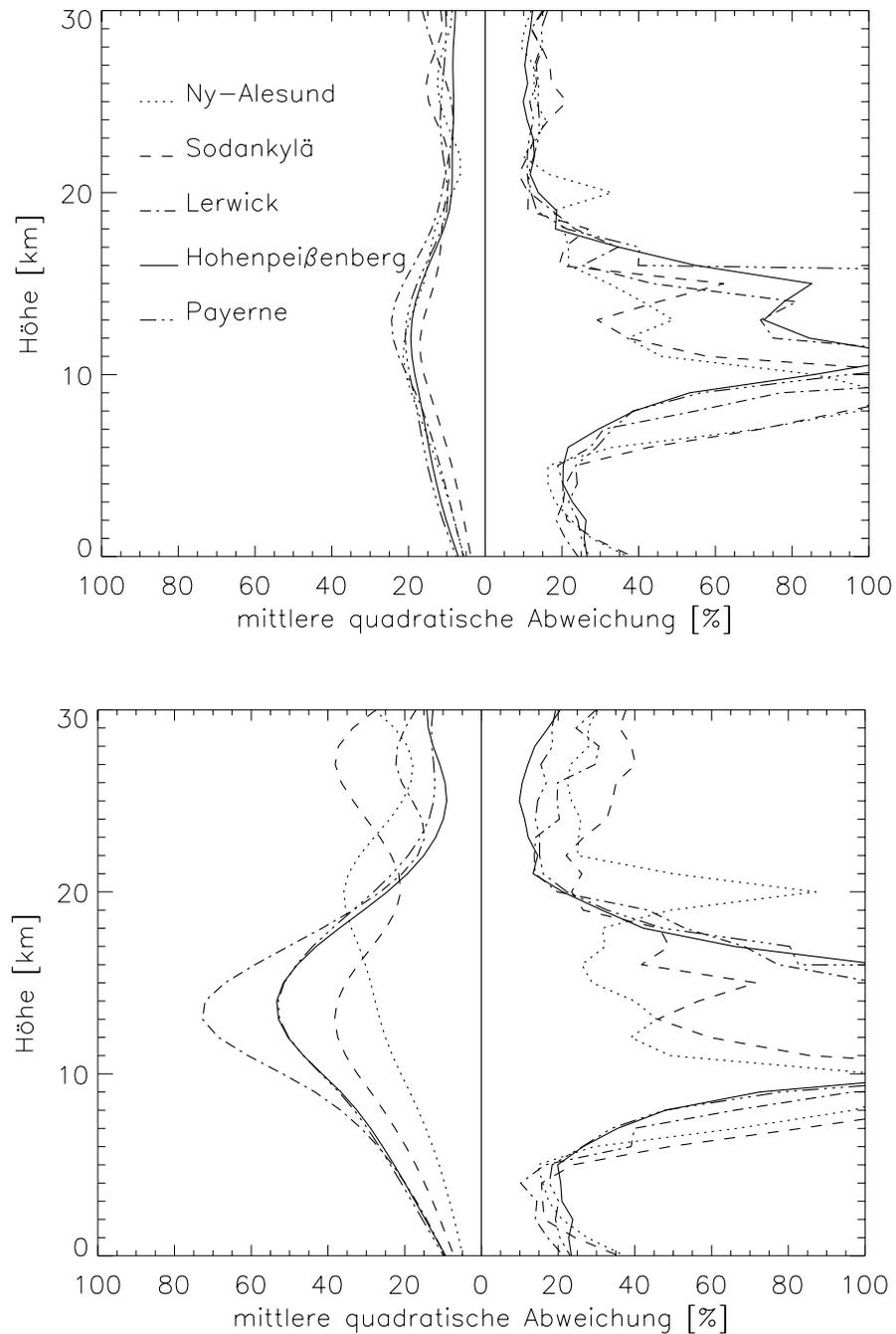


Abbildung 9.18: *Oben:* Mittlere quadratische Abweichung zwischen den GOME- und den gefalteten Sondenprofilen (linke Hälfte der Darstellung) sowie zwischen den GOME- und den ungefalteten Sondenprofilen (rechte Hälfte). *Unten:* Mittlere Abweichung zwischen den A-priori- und den gefalteten bzw. ungefalteten Sondenprofilen.

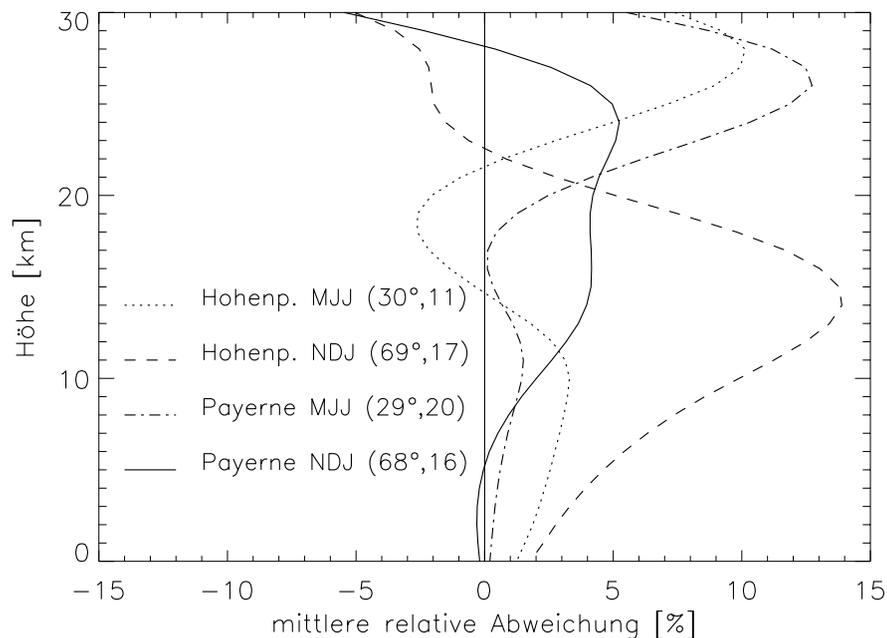


Abbildung 9.19: Über die Monate Mai, Juni, Juli (MJJ) bzw. November, Dezember, Januar (NDJ) gemittelte relative Abweichungen zwischen den GOME- und den gefalteten Sondenprofilen für die Stationen Hohenpeißenberg und Payerne. In der Legende sind jeweils der mittlere Sonnenzenitwinkel und die Anzahl der in die Mittelwertbildung eingehenden Profile angegeben.

9.7 Diskussion ausgewählter Monatsmittelwerte

Eine weitere Möglichkeit, die Vertikalstrukturen in den Sondenprofilen für den Vergleich mit den GOME-Profilen etwas zu glätten, besteht darin, Mittelwerte über mehrere Profile zu bilden. Besonders interessant sind hier Monatsmittel.

In Abbildung 9.21 sind die mittleren Profile im **März 1997** für Sodankylä, Lerwick, Hohenpeißenberg und Payerne wiedergegeben. Oberhalb von 15 km Höhe stimmen die Sonden- und die GOME-Profile auf etwa $\pm 10\%$ überein. In der Tropopausenregion macht sich die unterschiedliche Vertikalauflösung allerdings mit Abweichungen bis zu 100% bemerkbar. Auffällig ist, daß bei allen vier Stationen die mittleren Ozonkonzentrationen im März 1997 vor allem in der unteren Stratosphäre deutlich unter dem klimatologischen Mittelwert liegen, der auf den Jahren 1980 bis 1991 basiert. Die Abweichung der Gesamtzonwerte beträgt in Sodankylä 62 DU ($\approx 14\%$), in Lerwick 86 DU ($\approx 20\%$), in Hohenpeißenberg 65 DU ($\approx 16\%$) und in Payerne 80 DU ($\approx 20\%$). Einen großräumigen

Überblick über die Situation gewinnt man in Abbildung 9.20. Dort sind die mittleren *GOME-DOAS*-Gesamtozonwerte in der Nordhemisphäre im März 1997 im Vergleich zu dem aus den *Nimbus-7-TOMS*-Werten abgeleiteten langjährigen Märzmittel von 1979 bis 1993 dargestellt. Man erkennt, daß 1997 die Ozonwerte über großen Teilen des Nordatlantiks sowie West- und Mitteleuropas zwischen 300 und 350 DU liegen, während sie im langjährigen Mittel zwischen 350 und 400 DU variieren. Diese niedrigen Ozonwerte sind zum größten Teil auf die atmosphärische Dynamik im März 1997 zurückzuführen. In diesem Monat wurde ein starkes Vordringen subtropischer, ozonarmer Luft in mittlere Breiten beobachtet [49, 120]. Die damit verbundenen Anhebungen der Tropopause führen zu einem horizontalen Ausströmen ozonreicher Luft aus der unteren Stratosphäre und damit zu niedrigen Gesamtozonwerten (Einzelheiten in [78, 125]). Liegt der Gesamtozongehalt deutlich unter dem klimatologischen Mittelwert (*James* definiert Schwellwerte der Abweichung von -50 bis -90 DU [86]), so spricht man von einem Ozon-Miniloch [119]. Derartige Ereignisse überdecken Flächen in synoptischer Größenordnung (Lineardimension circa 1000-3000 km). Ihre Entwicklung ist eng mit den troposphärischen Wettersystemen verknüpft. Sie treten besonders häufig zwischen 50° N und 65° N im Spätwinter und Frühjahr auf, wobei eine starke zonale Asymmetrie zu beobachten ist [86]. Die Häufigkeit und Stärke dieser Ereignisse schwankt stark von Jahr zu Jahr. Es gibt jedoch Anzeichen dafür, daß Ozon-Minilöcher seit Ende der achtziger Jahre verstärkt auftreten [109]. Eine ausführliche Diskussion ausgewählter Miniloch-Ereignisse aus dem Frühjahr 1997 und 1998 anhand mit dem *FURM*-Algorithmus ausgewerteter *GOME*-Ozonprofile findet man in [45, 46].

In Abbildung 9.20 fällt neben dem Vordringen subtropischer Luft in mittlere Breiten ein um den Nordpol zentriertes Gebiet mit relativ niedrigen Ozonwerten auf, das im langjährigen Mittel nicht zu erkennen ist. Diese niedrigen Ozonwerte sind größtenteils durch heterogen-chemischen Ozonabbau verursacht, der letztendlich wiederum eine Folge der besonderen meteorologischen Bedingungen des Winters und Frühjahrs 1996/97 ist. Der polare Vortex bildete sich Ende Dezember aus und war dann von Februar bis Ende April sehr stark ausgeprägt und stabil um den Nordpol zentriert. Das Innere des Vortex war sehr kalt und gut gegen das Eindringen von Luftmassen aus mittleren Breiten isoliert. Von Januar bis Ende März lagen die Temperaturen in der unteren Stratosphäre unter den für die *PSC-I*-Bildung erforderlichen Werten [34]. Entsprechend wurde vor allem im Februar und März ein starker Ozonabbau beobachtet, der zu extrem niedrigen Ozonwerten im März 1997 führte [106, 118]. Da der polare Vortex bis Ende April stabil blieb und keine Luft aus mittleren Breiten eingemischt wurde, waren die Ozonwerte auch im April noch ungewöhnlich niedrig. Dies erkennt man an den in Abbildung 9.22 dargestellten mittleren Ozonprofilen vom **April 1997** in Ny-Ålesund, das sich, von wenigen Tagen im April abgesehen, ständig innerhalb des Polarwirbels befand [146]. Der *GOME*-Gesamtozongehalt liegt um 108 DU ($\approx 25\%$) unter dem klimatologischen Wert. In Abbildung 9.23 sind mit

dem *FURM*-Algorithmus abgeleitete Ozonteilsäulengehalte der Schicht zwischen 15 und 23 km Höhe für den 1. und den 21. April 1997 dargestellt. Als Grenze des polaren Vortex ist die 38-PVU-Isolinie bei einer potentiellen Temperatur von 475 K eingezeichnet. Man erkennt deutlich die relativ niedrigen Ozonsäulengehalte (<120 DU) innerhalb des Vortex.

In Abbildung 9.24 sind schließlich noch die mittleren Profile im **Juli 1996** für Sodankylä, Lerwick, Hohenpeißenberg und Payerne wiedergegeben. Die *GOME*-Ozonkonzentrationen liegen im Bereich des Ozonmaximums und oberhalb desselben höher als die Sondenmessungen, was die Ergebnisse aus Abbildung 9.19 noch einmal aus einem etwas anderen Blickwinkel bestätigt.

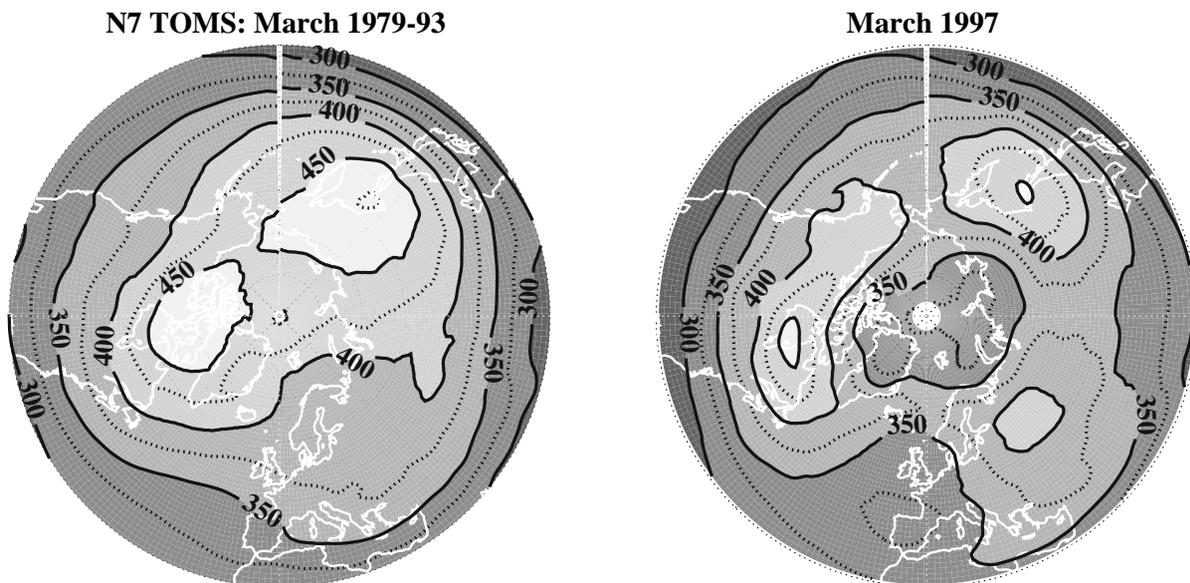


Abbildung 9.20: *Links:* Klimatologischer Mittelwert des Gesamtzons für den Monat März, abgeleitet aus Nimbus-7-TOMS-Messungen der Jahre 1979 bis 1993. *Rechts:* Mittelwert des GOME-DOAS-Gesamtzons im März 1997. Die Darstellung erstreckt sich vom Nordpol bis 30° N, die Konturlinien entsprechen Intervallen von 25 DU (Abb. aus [46]).

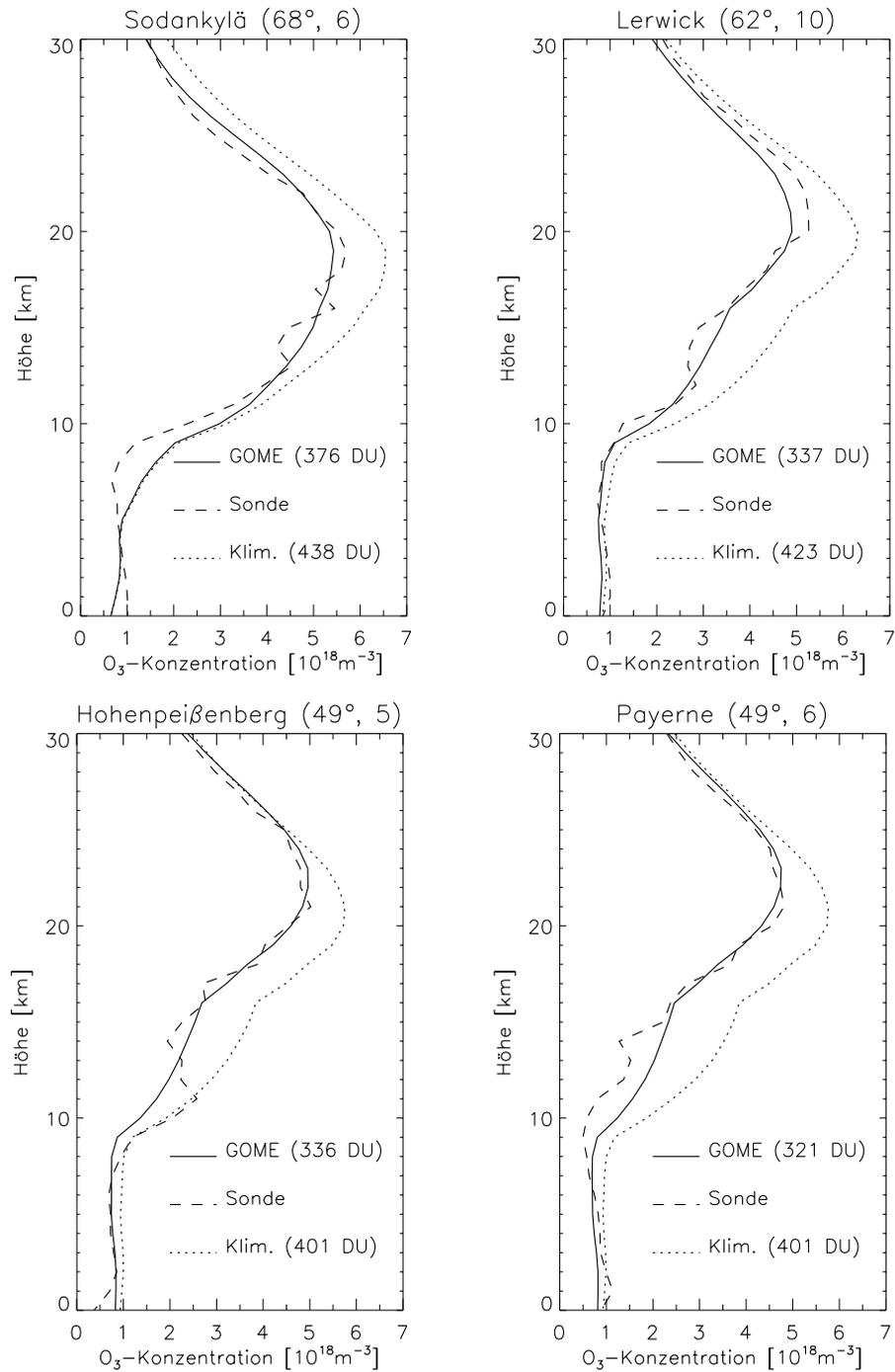


Abbildung 9.21: Monatsmittel der koinzidenten Sonden- und GOME-Profile im März 1997. Zum Vergleich ist auch das klimatologische A-priori-Profil dargestellt. In der Bildüberschrift findet man neben dem Stationsnamen den mittleren Sonnenzenitwinkel und die Anzahl der Profile, die in die Mittelwertbildung eingehen. In der Legende ist der aus dem GOME- und dem klimatologischen Profil berechnete Gesamtzongehalt angegeben.

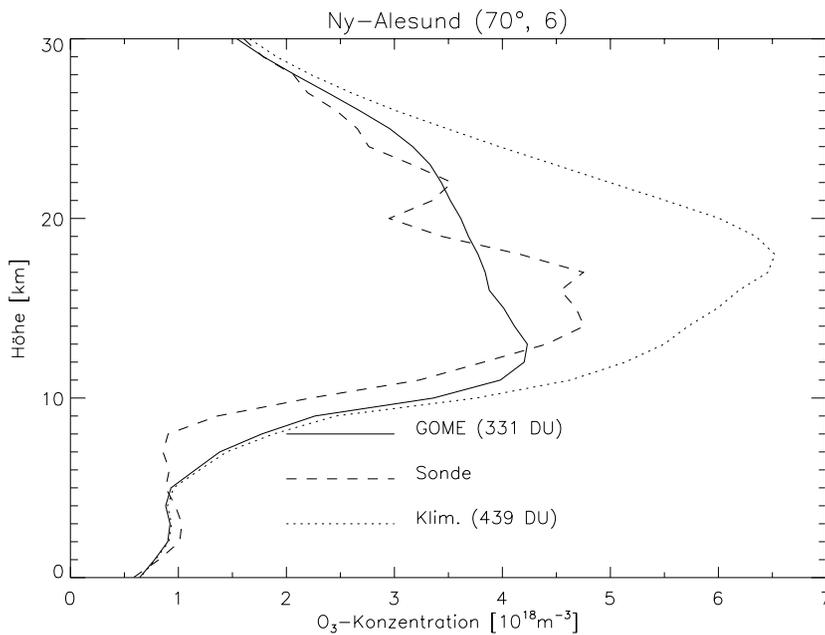


Abbildung 9.22: Wie Abb. 9.21 für Ny-Ålesund im April 1997.

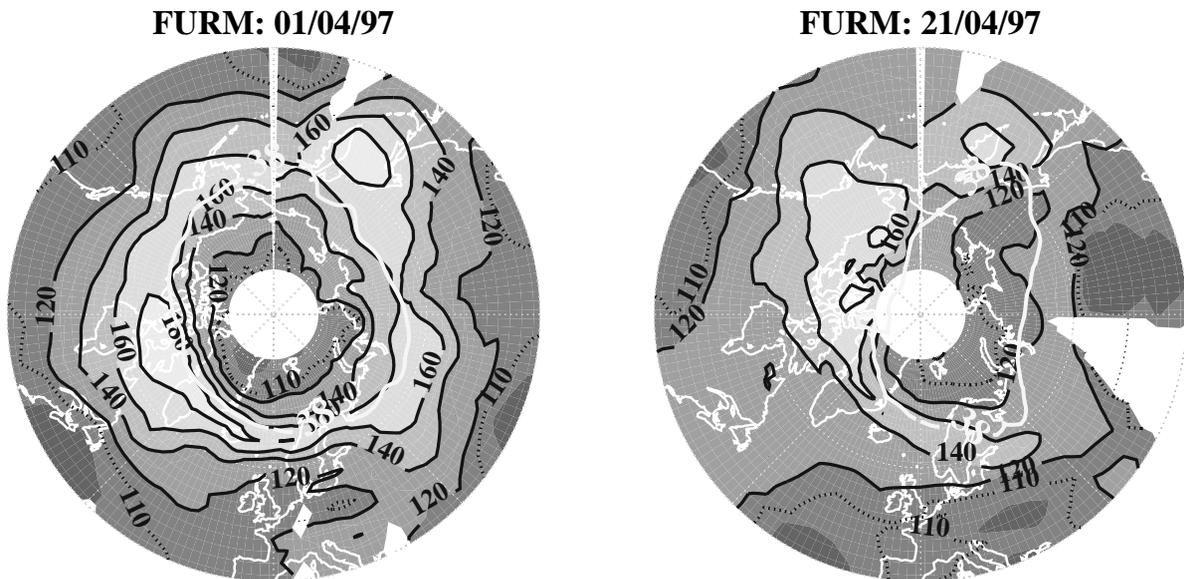


Abbildung 9.23: Ozonteilsäulengehalte der Schicht zwischen 15 und 23 km Höhe am 1. April 1997 und am 21. April 1997. Die Darstellung erstreckt sich vom Nordpol bis 40° N, die Konturlinien entsprechen Intervallen von 20 DU. Die Grenze des polaren Vortex ist durch die 38 PVU-Isolinie (die helle, fett gedruckte Linie) bei 475 K potentieller Temperatur gekennzeichnet (Abb. aus [46]).

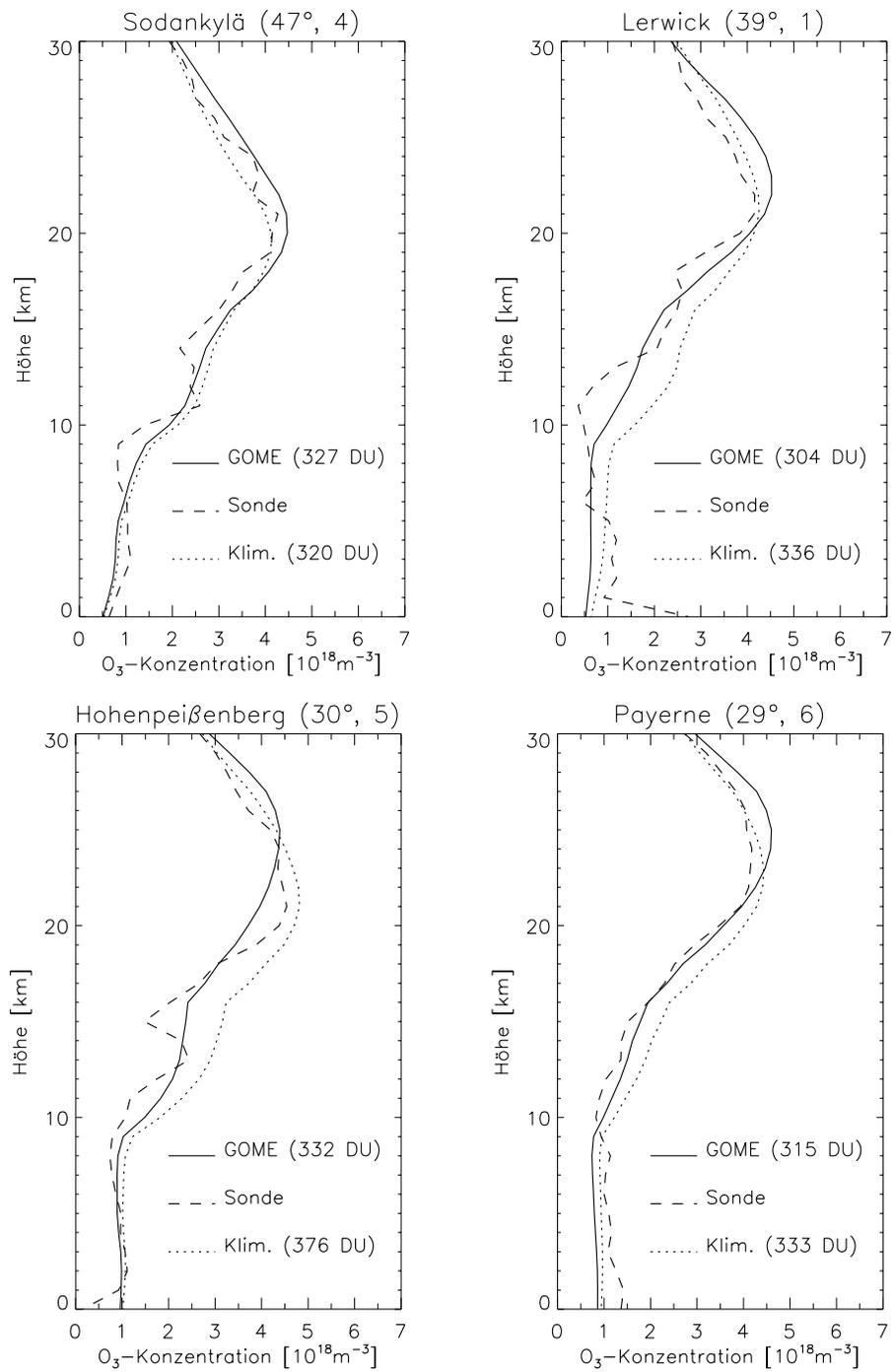


Abbildung 9.24: Wie Abb. 9.21 für Juli 1996.

9.8 Zusammenfassung

Mittels eines Vergleichs von knapp 200 *GOME*-Ozonprofilen mit Ozonsondenmessungen mehrerer europäischer Stationen wurde eine erste Validation der *GOME*-Ozonprofile in mittleren und hohen nördlichen Breiten durchgeführt. Die graphische Gegenüberstellung der Vergleichsmessungen vermittelt einen qualitativen Eindruck der Übereinstimmung zwischen den Profilen. Um quantitative Aussagen treffen zu können, müssen die unterschiedlichen Vertikalauflösungen der beiden Meßsysteme aus dem Vergleich eliminiert werden. Zu diesem Zweck wurden anstelle der ursprünglichen Ozonprofile Ozonteilsäulengehalte geeigneter Schichten verglichen. Um den aus den *GOME*-Messungen resultierenden Informationsgewinn abschätzen zu können, wurden die Ergebnisse des Vergleichs zwischen den *GOME*- und den Sondenwerten den Ergebnissen des analogen Vergleichs zwischen den klimatologischen A-priori- und den Sondenwerten gegenübergestellt. In der troposphärischen Schicht zwischen 0 und 10 km Höhe ist der Informationsgewinn erwartungsgemäß relativ gering. Die mittlere quadratische Abweichung zwischen den *GOME*- und den Sondenwerten ist nur geringfügig kleiner als die mittlere quadratische Abweichung zwischen den A-priori- und den Sondenwerten. Der Korrelationskoeffizient zwischen den *GOME*- und den Sondenenergebnissen ist mit Werten zwischen 0.3 und 0.4 ebenfalls relativ niedrig. In der Schicht zwischen 10 und 20 km Höhe wird dagegen ein sehr hoher Informationsgewinn beobachtet. Die mittlere quadratische Abweichung zwischen den *GOME*- und den Sondenwerten ist deutlich niedriger als die Abweichung zwischen den A-priori- und den Sondenwerten. Die Korrelation ist mit Werten zwischen 0.78 und 0.95 sehr hoch. In der Schicht zwischen 20 und 30 km ist die Korrelation zwischen den *GOME*- und den Sondenenergebnissen ähnlich hoch. Die mittlere quadratische Abweichung zwischen den *GOME*- und den Sondenwerten liegt unter 10 %, wobei auch hier eine klare Verbesserung gegenüber dem Vergleich mit den A-priori-Werten zu beobachten ist.

Sowohl beim Vergleich der Teilsäulengehalte als auch beim Vergleich mit geglätteten Sondenprofilen und bei der Betrachtung der Monatsmittel der Profile zeigt sich, daß die *GOME*-Profile die jahreszeitlichen Ozonvariationen in der Stratosphäre sehr gut wiedergeben. Insbesondere konnte anhand der mittleren Profile vom März und April 1997 gezeigt werden, daß auch unter Bedingungen, die deutlich vom A-priori-Szenario abweichen, zuverlässige Profilergebnisse erzielt werden.

Kapitel 10

Vergleich mit *SAGE-II*-Ozonprofilen

Der im vorigen Kapitel beschriebene Vergleich mit Ozonsondenmessungen erlaubt eine Validation der *GOME*-Profile bis in 30 km Höhe und unter für mittlere und hohe nördliche Breiten typischen Bedingungen. Um die Validation auf größere Höhen und südlichere Breiten auszudehnen, werden die *GOME*-Profile in diesem Kapitel mit *SAGE-II*-Messungen verglichen (siehe Abschnitt 2.2.3). Als Vergleichszeiträume wurden der Oktober 1996 und der April 1997 gewählt. In diesen Monaten erzielte *SAGE-II* nahezu globale Überdeckung. In den Vergleich wurden nur solche Messungen einbezogen, die am selben Tag und in einem Abstand von weniger als 300 km voneinander stattgefunden hatten. Die Orte dieser Koinzidenzen sind in Abbildung 10.1 veranschaulicht.

Um die Auswirkungen der in Kapitel 7 diskutierten Korrekturen der radiometrischen Kalibration zu untersuchen, wurden die *GOME*-Spektren auf zwei verschiedene Arten ausgewertet. Bei der als V2 bezeichneten Auswertung wurden alle in Abschnitt 7.1 aufgeführten Korrekturen, d. h. die Aneicherung der *GOME*-Irradianzen an die *SSBUV-8*-Messungen, die Korrektur der Degradation von *PMD1*, die Korrektur der η -Funktion in Kanal 1 sowie die Einbeziehung der Koeffizienten eines Chebyshev-Polynoms als zusätzliche Auswerteparameter, angewendet. Im Gegensatz dazu wurden bei der V1-Auswertung nur die Chebyshev-Koeffizienten berücksichtigt. Die *SAGE*-Profile werden wie die *GOME*-Profile als Ozonteilchendichten als Funktion der geometrischen Höhe angegeben, so daß keine Umrechnung auf eine gemeinsame Einheit erforderlich ist. Aus den koinzidenten Profilen wurden zonale Mittelwerte mit einer Breitenauflösung von 10° berechnet und miteinander verglichen. In diesem Kapitel werden die Ergebnisse für einige ausgewählte Breiten diskutiert. Den vollständigen Vergleich findet man im Anhang D.

Die Abbildungen 10.2 bis 10.5 zeigen zonal gemittelte Profile für die Breitenzonen 60°N - 70°N , 20°N - 30°N , 0° - 10°S und 50°S - 60°S von der Untergrenze des mit den *SAGE*-Messungen zugänglichen Höhenbereichs bis in 50 km Hö-

he. Da die *GOME*-Profile oberhalb von ungefähr 35 km Höhe relativ stark durch das jeweilige A-priori-Profil beeinflusst werden (siehe Abschnitt 6.4) und die Genauigkeit der *SAGE*-Profile unterhalb von 15 km Höhe deutlich abnimmt [37], beschränkt sich die Diskussion im folgenden auf den Höhenbereich zwischen 15 und 35 km.

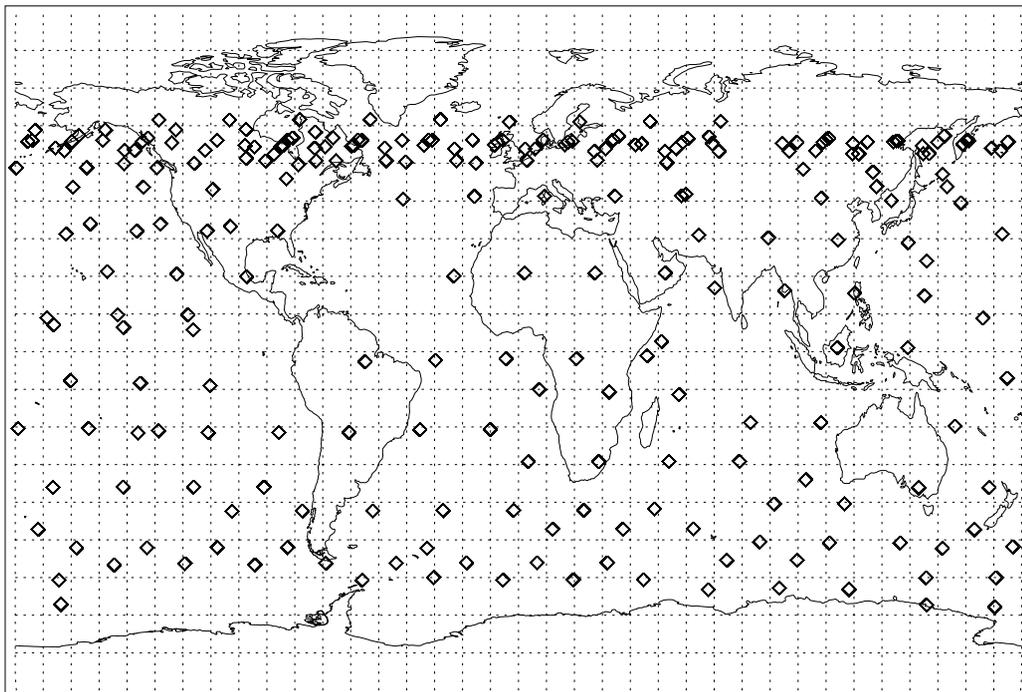
Für alle Breitenzonen wird ein qualitativ ähnlicher Verlauf der Abweichungen zwischen den *GOME*- und den *SAGE*-Profilen beobachtet: Im Bereich des Ozonmaximums und darunter sind die *GOME*-Werte in der Regel höher als die *SAGE*-Werte, während sie oberhalb des Ozonmaximums kleiner als die *SAGE*-Werte ausfallen.

Die beste Übereinstimmung wird in der Breitenzone 60°N-70°N beobachtet. Die Profile stimmen hier zwischen 15 und 35 km Höhe innerhalb von $\pm 10\%$ überein, wobei der Vergleich mit den V2-Profilen etwas besser ausfällt als der Vergleich mit den V1-Profilen. Zwischen 50°S und 60°S ist die Übereinstimmung der Profile im Oktober 1996 ebenfalls besser als $\pm 10\%$, während im April 1997 die *GOME*-Werte im Bereich des Ozonmaximums um etwa 15% über den *SAGE*-Werten liegen. Der Vergleich mit den V2-Profilen liefert in beiden Monaten etwas schlechtere Ergebnisse als der Vergleich mit den V1-Profilen. Im Gegensatz zur relativ guten Übereinstimmung der Profile in mittleren und hohen Breiten, werden bei den Vergleichen für die Breitenzonen 20°N-30°N und 0°-10°S deutlich größere Abweichungen zwischen den *GOME*- und den *SAGE*-Profilen beobachtet. Im Oktober 1996 stellt die V2-Auswertung keine signifikante Verbesserung gegenüber der V1-Auswertung dar. Im April 1997 stimmen dagegen die V2-Profile im Bereich des Ozonmaximums deutlich besser mit den *SAGE*-Profilen überein als die V1-Profile. Dies liegt vermutlich daran, daß die Korrektur der η -Funktion für den April 1997 hergeleitet wurde (siehe Abschnitt 7.5.3). Da sich die Instrumenteneigenschaften aber mit der Zeit verändern, ist nicht zu erwarten, daß diese Korrektur auch für den Oktober 1996 gültig ist. Es ist vielmehr eine regelmäßige Anpassung der Instrumentenfunktionen erforderlich.

Tendenziell ist die Übereinstimmung zwischen den *GOME*- und den *SAGE*-Messungen im Bereich des Ozonmaximums bei großen Sonnenzenitwinkeln der *GOME*-Messungen besser als bei niedrigen Sonnenzenitwinkeln. Ähnliche Beobachtungen wurden auch beim Vergleich mit den Ozonsondenmessungen im vorigen Kapitel gemacht. Ein großer Teil der Abweichungen wird auf Fehler in der radiometrischen Kalibration der *GOME*-Spektren zurückgeführt (mögliche Fehlerquellen siehe Abschnitt 7.4). Daß diese vom *SZW* abhängen, erkennt man anhand von Gleichung (7.15). Die fraktionale Polarisierung p und ihre Fehler δp hängen vom *SZW* ab. Die Fehler der Instrumentenfunktion $\delta\eta_E$ sind zwar unabhängig vom *SZW*, können sich aber je nach *SZW* unterschiedlich stark auf die Ozonprofilauswertung auswirken. Dies liegt daran, daß sich die Empfindlichkeit der ausgewerteten Ozonkonzentration in einer bestimmten Höhe bezüglich der Messung bei einer gegebenen Wellenlänge mit dem *SZW* ändert. Mathematisch ausgedrückt bedeutet dies nichts anderes als die *SZW*-Abhängigkeit der Beitrags-

funktionen, die wiederum auf die *SZW*-Abhängigkeit der Gewichtsfunktionen zurückzuführen ist (siehe Gl. (5.41)). In Abschnitt 7.5.3 wurde für Szenarien mit unpolarisierter Meßstrahlung eine erste Schätzung für $\delta\eta_E$ in Kanal 1 abgeleitet, die vor allem in niedrigen Breiten eine Verbesserung der Profilergebnisse bewirkt. In mittleren und hohen Breiten sind Fehler in der fraktionalen Polarisierung nicht mehr vernachlässigbar. Die Quantifizierung dieser Fehler und ihre Auswirkung auf die ausgewerteten Ozonprofile erfordert eine umfangreiche Untersuchung, die den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde.

Koinzidenzen zwischen GOME und SAGE II im Oktober 1996



Koinzidenzen zwischen GOME und SAGE II im April 1997

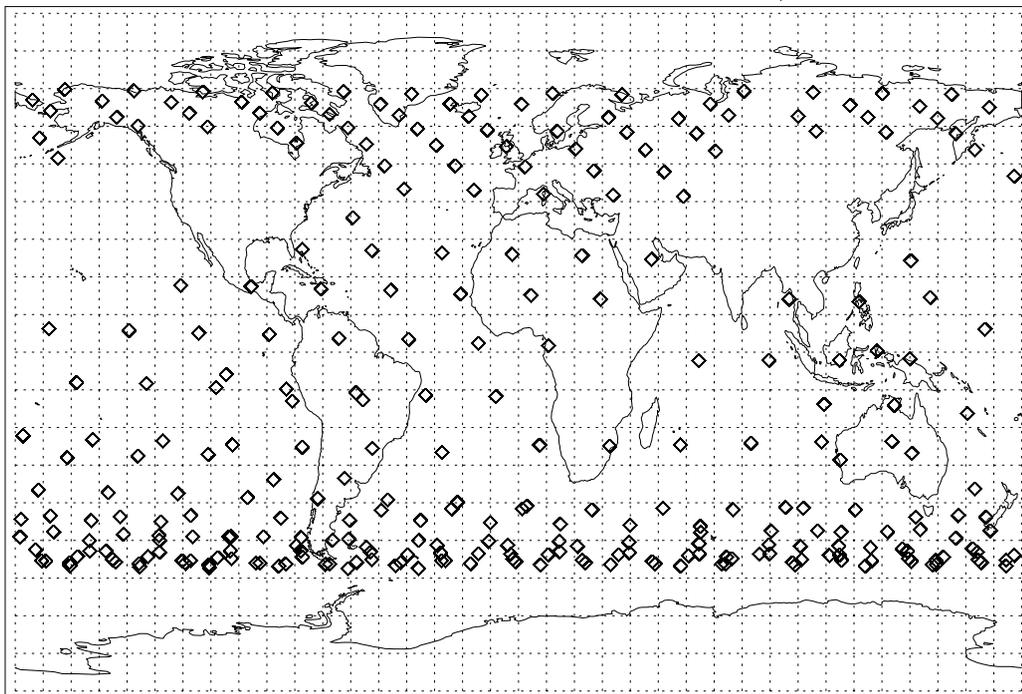


Abbildung 10.1: Koinzidenzen zwischen GOME und SAGE II im Oktober 1996 (oben) und im April 1997 (unten).

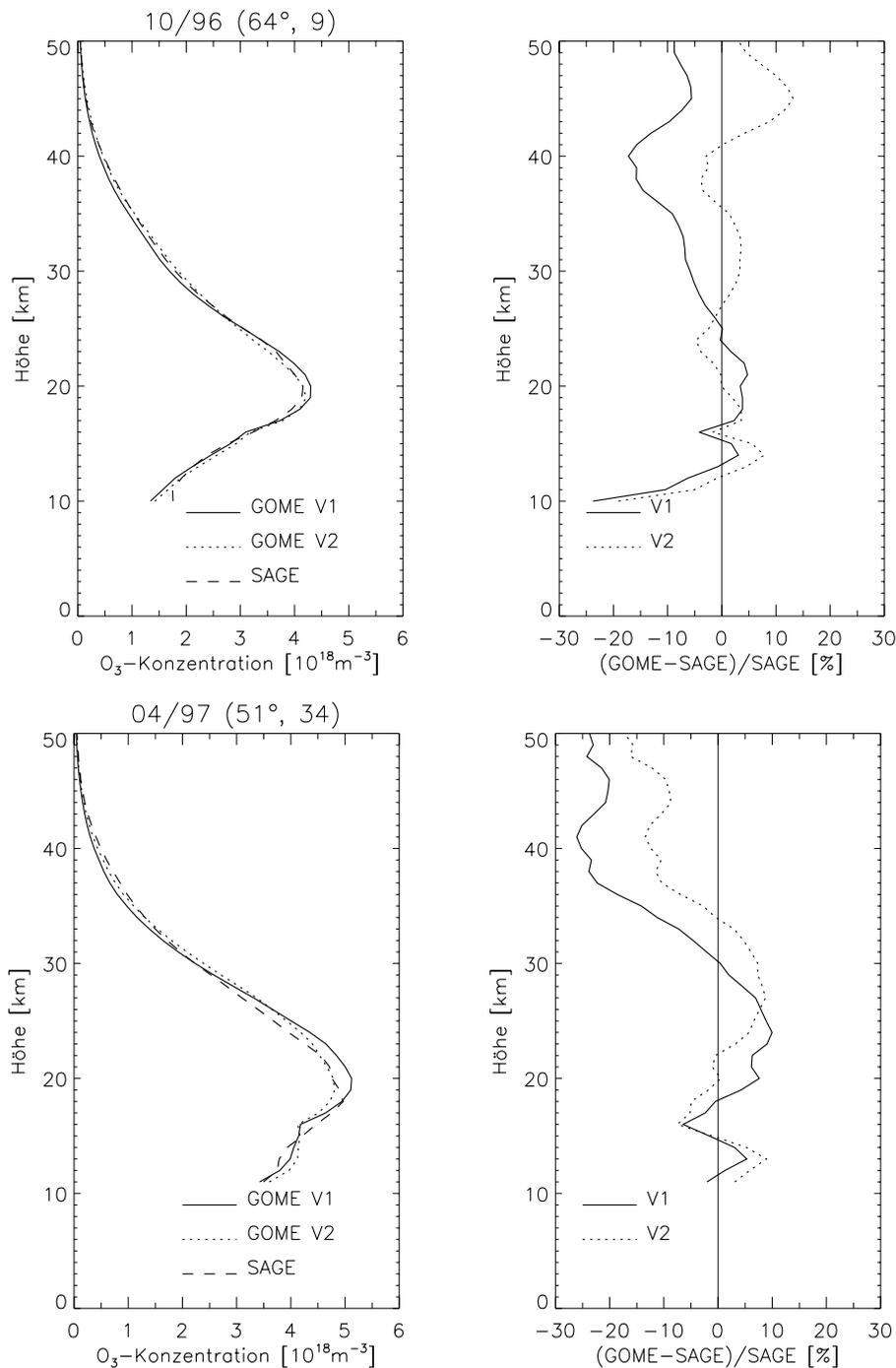


Abbildung 10.2: Links: Über den Bereich 60°N - 70°N zonal gemittelte GOME- und SAGE-II-Ozonprofile für Oktober 1996 (oben) und April 1997 (unten). Die GOME-Messungen wurden auf zwei verschiedene Arten (V1 und V2 genannt) ausgewertet (Näheres dazu im Text). In den Bildüberschriften ist jeweils der mittlere Sonnenzenitwinkel der GOME-Messungen sowie die Anzahl der Profile, die in die Mittelwertbildung eingehen, angegeben. Rechts: Relative Abweichungen zwischen den aus den GOME- und den SAGE-Profilen abgeleiteten zonalen Mittelwerten.

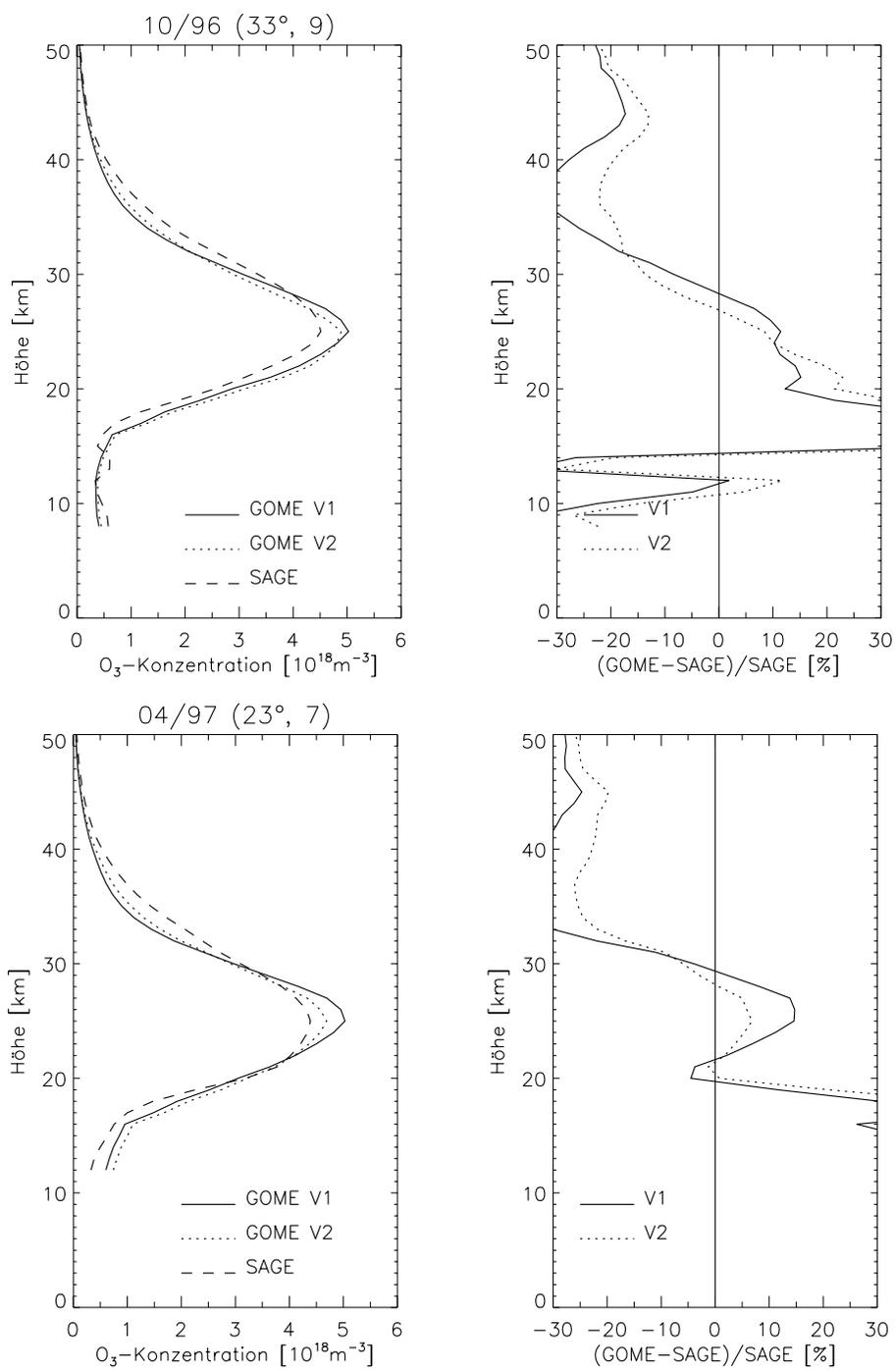


Abbildung 10.3: Wie Abb. 10.2 für 20° N-30° N.

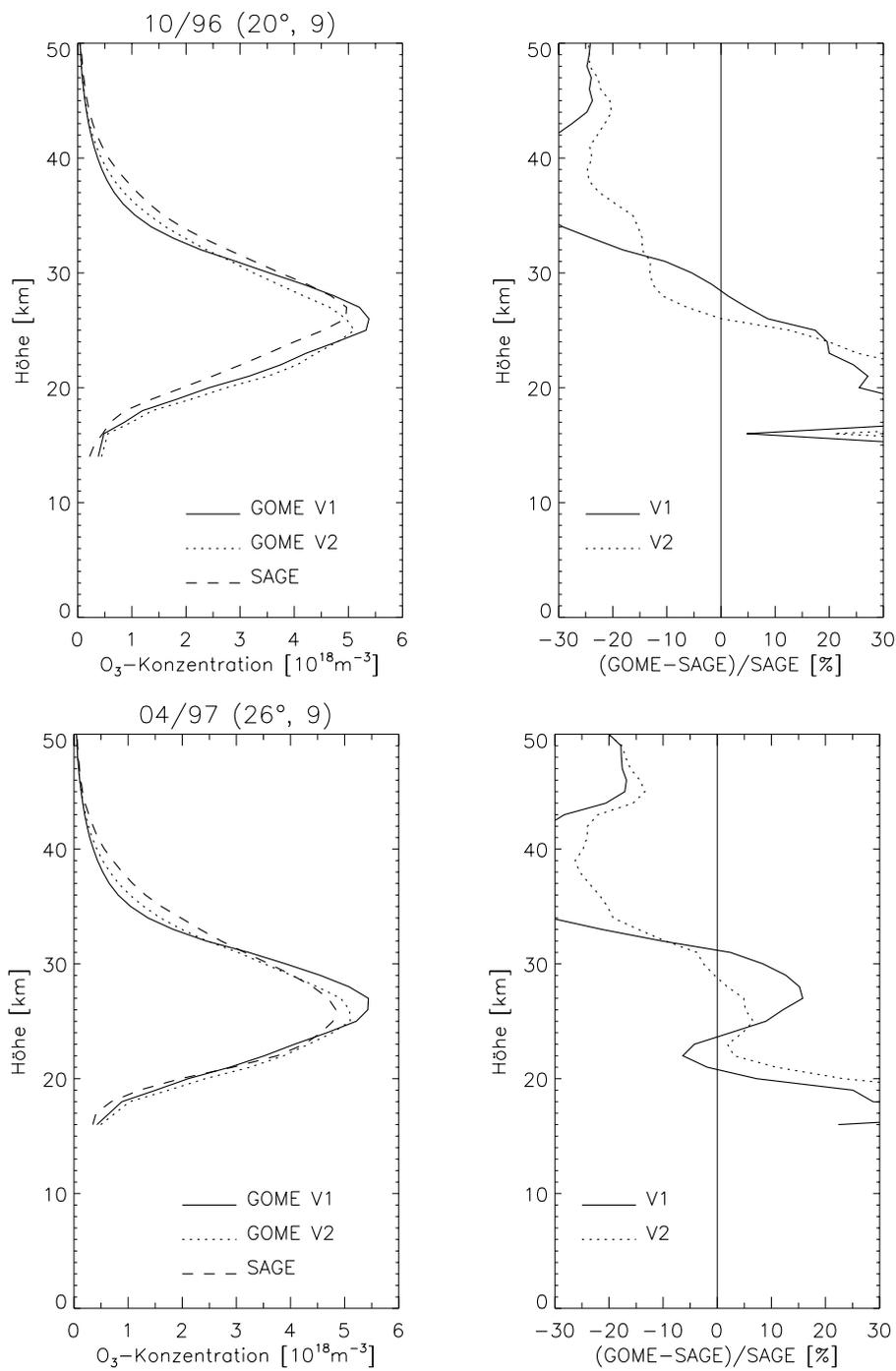


Abbildung 10.4: Wie Abb. 10.2 für 0°-10°S.

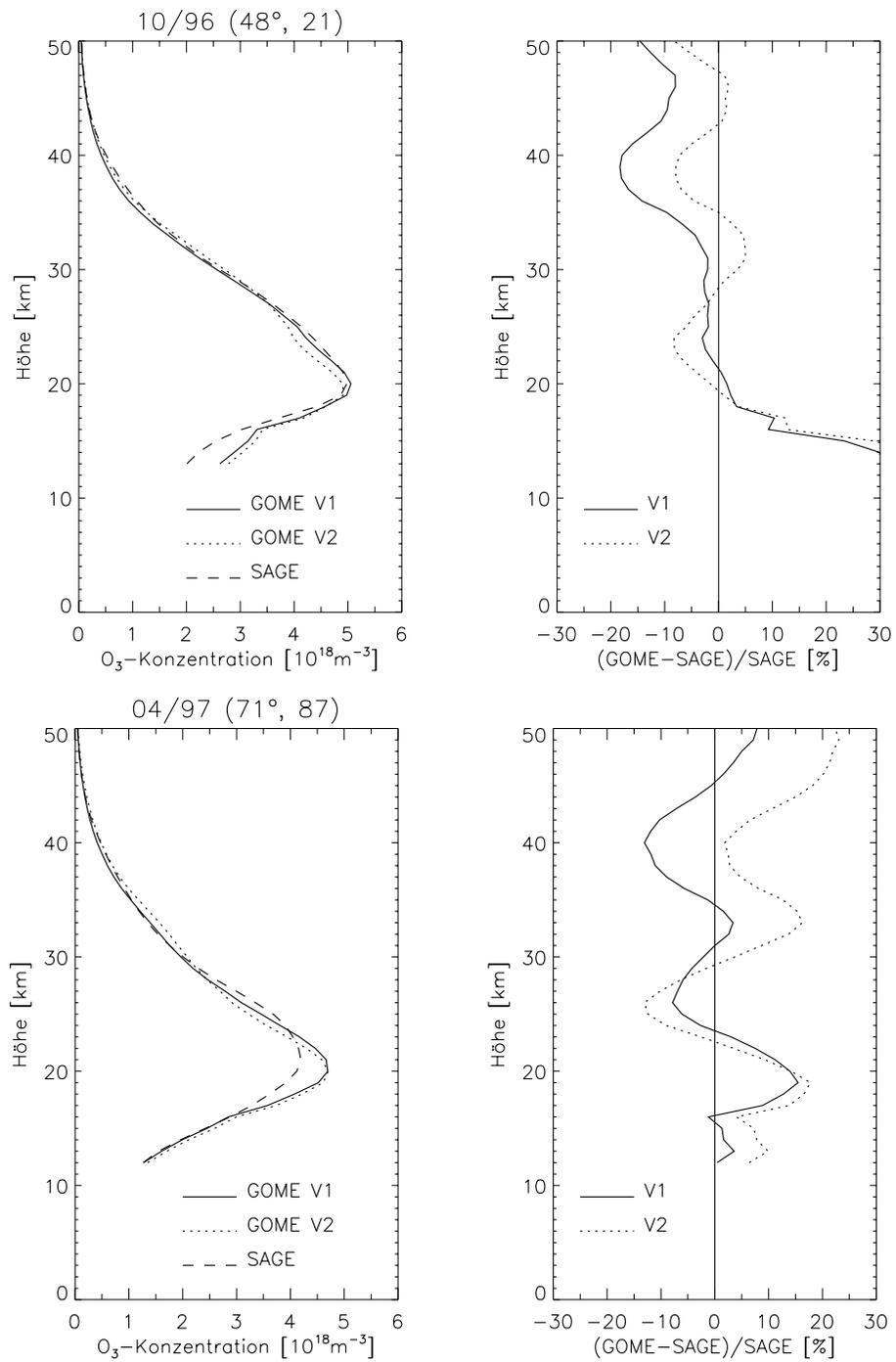


Abbildung 10.5: Wie Abb. 10.2 für 50° S-60° S.

Zusammenfassung und Ausblick

Die stratosphärische Ozonschicht ist ein sehr effizienter Filter für solare Strahlung im Spektralbereich zwischen 240 und 290 nm, die besonders schädlich für die Biosphäre ist. Darüber hinaus bestimmt die Ozonabsorption die Temperaturstruktur der Stratosphäre und beeinflusst damit die Dynamik der gesamten Atmosphäre. In der troposphärischen Chemie spielt Ozon als Vorläufersubstanz des Hydroxyl-Radikals - des „Waschmittels“ der Atmosphäre - eine wichtige Rolle. Die negative Seite des Ozons zeigt sich während der in den vergangenen Jahren vermehrt auftretenden Sommersmogepisoden. Während solcher Ereignisse erreicht die Konzentration des bodennahen Ozons so hohe Werte, daß sich seine toxische Wirkung bemerkbar macht.

Spätestens seit der Entdeckung des antarktischen Ozonlochs gibt es keine Zweifel mehr an der Bedrohung der Ozonschicht durch anthropogene Einflüsse. Um Veränderungen der atmosphärischen Ozonverteilung frühzeitig zu erkennen und ihre natürlichen und anthropogenen Ursachen zu erforschen, sind langfristige globale Messungen der Ozonvertikalverteilung mit hinreichender räumlicher und zeitlicher Auflösung erforderlich. Hierzu leistet das Satelliteninstrument *GOME* einen wichtigen Beitrag.

Aus den *GOME*-Messungen im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich können globale Ozonvertikalverteilungen abgeleitet werden. Unter idealen Bedingungen, d. h. für unbewölkte, horizontal homogene Szenarien und in Abwesenheit von Kalibrations- und Vorwärtsmodellfehlern, kann aus den *GOME*-Messungen ein im Vergleich zu den *BUV*-Messungen erhöhter Informationsgewinn erwartet werden [38]. Dies liegt an der deutlich höheren spektralen Abtastung und Auflösung der *GOME*-Messungen, wodurch spektrale Feinstrukturen erkennbar werden. Außerdem mißt *GOME* im Gegensatz zu den *BUV*-Instrumenten auch im Bereich der Chappuis-Banden von Ozon.

Entwicklung des Auswertalgorithmus *FURM*

Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung des Auswertalgorithmus *FURM* für die Ableitung globaler Ozonvertikalverteilungen aus *GOME*-Messungen. Dieser Algorithmus weist gegenüber dem Standard-*BUV*-Auswertverfahren zwei wesentliche Neuerungen auf:

- Es wird erstmals die Kozlov-Informationsmatrix-Methode für die Auswertung von Satellitendaten verwendet. Ähnlich wie beim Optimal-Estimation-Verfahren wird auch bei dieser Methode die Inversionslösung durch die Einbeziehung statistischer a-priori-Information stabilisiert. Für den Zustandsvektor wird jedoch eine besonders günstige Eigenvektordarstellung verwendet, die sowohl die statistischen Eigenschaften der gesuchten Atmosphärenparameter als auch die Eigenschaften des Meßsystems berücksichtigt.
- Oberhalb von etwa 300 nm wird die rückgestreute Strahlung zunehmend durch die Streuung an Aerosol- und Wolkenpartikeln und durch die Reflexion am Erdboden beeinflusst. Da die Aerosolverteilung und die Bodenalbedo ebenso wie das Temperatur- und das Druckprofil a priori nicht exakt bekannt sind, werden aus diesen Größen abgeleitete skalare Parameter als zusätzliche Auswerteparameter verwendet.

Da mehr als 99 % der *GOME*-Grundpixel zumindest teilweise bewölkt sind, müssen auch Wolken bei der Auswertung berücksichtigt werden. Mit einem eindimensionalen Strahlungstransportmodell wie *GOMETRAN* ist die exakte Beschreibung von Szenarien mit durchbrochener Bewölkung nicht möglich. In dieser Arbeit wurden zwei Ansätze zur näherungsweisen Beschreibung durchbrochener Bewölkung entwickelt und getestet. Bei der einfacheren Methode „*Wolken als erhöhte Albedo*“ wird die Bodenalbedo entsprechend dem Bedeckungsgrad erhöht. Dieser kann aus den *PMD*-Messungen abgeleitet werden. Bei der aufwendigeren Methode „*Wolken als bidirektional reflektierende Oberflächen*“ wird die Wolke als bidirektional reflektierende Schicht in die Modellatmosphäre eingefügt. Sowohl die Strahlung als auch die Gewichtsfunktionen werden jeweils für ein unbewölktes und ein vollständig bewölktes Szenario berechnet und dann mit dem Bedeckungsgrad gewichtet gemittelt. Bei dieser Methode wird zusätzlich zum Bedeckungsgrad noch die optische Dicke der Wolke und ihre Obergrenze benötigt. Diese Parameter werden gegenwärtig der *ISCCP*-Wolkenklimatologie entnommen. Aus Sensitivitätsstudien ergab sich allerdings, daß die Profilergebnisse relativ empfindlich auf Fehler in der Wolkenhöhe reagieren, so daß eine aktuelle Schätzung der Wolkenhöhe dem klimatologischen Wert vorzuziehen ist.

Für die Auswertungen in dieser Arbeit wurde der Spektralbereich 290-355 nm verwendet. In diesem Fall wird die Vertikalauflösung der ausgewerteten Ozonprofile zwischen 20 und 35 km Höhe auf 6-9 km geschätzt. Oberhalb und unterhalb dieses Höhenbereiches beträgt sie 10 km oder mehr.

Im Rahmen der Abschätzung der Profilverfahren wurden zwei Fehlerquellen im Detail untersucht:

- *GOMETRAN* löst nicht die vollständige vektorielle sondern die einfachere skalare Strahlungstransportgleichung. Dadurch ergeben sich Fehler in den berechneten Nadir-Strahldichten, die für Wellenlängen oberhalb von 320 nm je nach Sonnenzenitwinkel einige Prozent betragen können. Testauswertungen von Spektren, die mit dem Vektor-Strahlungstransportmodell *DAK* simuliert wurden, ergaben, daß diese Vorwärtsmodellfehler höhenabhängige Ozonprofilfehler ähnlicher Größe zur Folge haben.
- Fehler in der radiometrischen Kalibration der *GOME*-Spektren können die Qualität der ausgewerteten Ozonprofile stark beeinträchtigen. Für die Kalibrationsfehler gibt es vor allem zwei Ursachen: Zum einen haben sich die optischen Komponenten des Instruments seit der „Pre-Flight-Kalibration“ verändert (z. B. infolge der Einwirkung kurzweiliger UV-Strahlung). Eine aus diesem Grunde erforderliche dynamische Anpassung der Kalibration ist bisher jedoch noch nicht erfolgt. Zum anderen fließen in die Bestimmung der Polarisation der Meßstrahlung einige Annahmen ein, die vor allem im für die Profilauswertung besonders wichtigen Spektralbereich zwischen 300 und 325 nm zu Fehlern führen können. Um die Kalibrationsfehler zumindest teilweise aufzufangen, wurden in dieser Arbeit einerseits verschiedene Korrekturen an die Kalibrationsfunktion angebracht und andererseits geeignete Korrekturparameter als zusätzliche Auswerteparameter verwendet. Dadurch konnte eine deutliche Verbesserung der Profilergebnisse erzielt werden.

Validation der *GOME*-Ozonprofile

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die erste umfangreichen Validation der *GOME*-Ozonprofile durchgeführt. Dabei wurden zwei Schwerpunkte gesetzt:

- Um die Qualität der *GOME*-Ozonprofile in mittleren und hohen nördlichen Breiten (ca. 45°N bis 80°N) abzuschätzen, wurde ein Vergleich mit etwa 200 Ozonsondenmessungen sowie einigen Lidar- und Mikrowellenmessungen mehrerer europäischer Stationen durchgeführt. Um einen vollständigen Jahrgang verfolgen zu können, wurde für den Vergleich der Zeitraum von Juli 1996 bis Juni 1997 gewählt. Anhand verschiedener Vergleichsstrategien wurden die Interpretationsprobleme, die sich beim Vergleich vollkommen unterschiedlicher Meßsysteme ergeben, herausgearbeitet. Hier ist insbesondere die unterschiedliche Vertikalauflösung der Vergleichsmessungen zu nennen. Vergleicht man die Teilozonegehalte in Schichten, deren Dicke in etwa der Vertikalauflösung der *GOME*-Profile entspricht, so zeigt sich, daß die *GOME*-Ergebnisse sowohl in der mittleren als auch in der unteren Stratosphäre gut mit den Sondenergebnissen übereinstimmen und die jahreszeitlichen Ozonvariationen sehr gut wiedergeben. Anhand der Monatsmittelwerte vom März und April 1997 konnte gezeigt werden, daß auch

in Fällen, in denen die tatsächliche Ozonverteilung stark vom a-priori-Wert abweicht, aus den *GOME*-Messungen zuverlässige Ozonprofile abgeleitet werden können. In der Stratosphäre ist insgesamt ein deutlicher Informationsgewinn gegenüber den statistischen a-priori-Werten nachweisbar. Für die troposphärische Schicht fällt der Informationsgewinn erwartungsgemäß geringer aus.

- Um die Validation in südlichere Breiten auszudehnen, wurden Messungen des Satelliteninstruments *SAGE II* vom September 1996 und vom April 1997 herangezogen. In diesen Monaten erzielte *SAGE II* nahezu globale Überdeckung. Insgesamt wurden mehr als 500 koinzidente *GOME*-Messungen ausgewertet. Um den Vergleich überschaubar zu halten, wurden zonale Mittelwerte der Profile verglichen. Dabei zeigte sich in Breiten nördlich von 50°N bzw. südlich von 50°S eine Übereinstimmung im Bereich von $\pm 10\%$ für Höhen zwischen 15 und 35 km. In niedrigeren Breiten wurden dagegen größere systematische Abweichungen beobachtet, die hauptsächlich auf Fehler in der radiometrischen Kalibration der *GOME*-Spektren zurückgeführt werden konnten.

Ausblick

Gegenwärtig wird sowohl bei *SRON* (Space Research Organization of the Netherlands) als auch am *IUP* an Nachbesserungen der radiometrischen Kalibration der *GOME*-Messungen gearbeitet, so daß hier in Zukunft weitere Fortschritte zu erwarten sind.

Der mit Abstand zeitaufwendigste Schritt bei der Ozonprofilauswertung sind die Strahlungstransportrechnungen. In dieser Arbeit wurden für die Auswertung Messungen bei ungefähr 600 Wellenlängen verwendet, was einen sehr hohen Rechenaufwand bedeutet. Das größte Potential zur Einsparung von Rechenzeit liegt in der Reduzierung der Anzahl der für die Auswertung verwendeten Spektralpunkte. Um den damit unweigerlich verbundenen Informationsverlust möglichst gering zu halten, bedarf es einer geschickten Auswahl der Spektralpunkte. Dabei kann der Informationsgehalt H als diagnostische Größe wichtige Anhaltspunkte liefern. Eine entsprechende Optimierung des Inversionsalgorithmus *FURM* ist geplant.

Erste wissenschaftliche Anwendungen der *GOME*-Ozonprofile umfassen die Untersuchung von Miniloch-Ereignissen und die Analyse der Ozonverluste innerhalb des arktischen Polarwirbels [45, 46]. Diese Aktivitäten werden in den kommenden Jahren fortgeführt. Darüber hinaus ist die Bereitstellung von *GOME*-Ozonprofilen als Input für dreidimensionale Datenassimilationsmodelle und für die Initialisierung von Chemiemodellen vorgesehen. Eine weitere interessante Anwendung ist die Erstellung einer Klimatologie globaler Ozonvertikalverteilungen.

Teil IV
Anhang

Anhang A

Quellennachweis

- Die Ozonsonden- und die Lidarmessungen stammen vom *NADIR DATA CENTRE* des Norwegian Institute for Air Research (*NILU*). Verantwortlich für die Messungen sind

Sondenmessungen

Ny-Ålesund	:	H. Gernandt (<i>AWI</i>)
Sodankylä	:	E. Kyrö (<i>FMI</i>)
Lerwick	:	R. J. Shearman (<i>UKMO</i>)
Hohenpeißenberg	:	H. Claude (<i>DWD</i>)
Payerne	:	P. Viatte, B. Henchoz (<i>SMI</i>)

Lidarmessungen

Hohenpeißenberg	:	W. Steinbrecht, H. Claude (<i>DWD</i>)
-----------------	---	--

- Die **Mikrowellenmessungen** aus Ny-Ålesund wurden von J. Langer und K. Künzi (*IUP*, Universität Bremen) zur Verfügung gestellt.
- Die **SAGE-II-Messungen** wurden über das *NASA* Langley Distributed Active Archive Center (*DAAC*) bezogen.
Internet: <http://eosweb.larc.nasa.gov>
- Die für die Auswertung verwendeten **Temperatur- und Druckprofile** stammen aus Analysen des *NMC* (M. Schoeberl, P. Newman, R. N. Nagatani, L. Lait) und wurden über den *NASA* Goddard AutoMailer bezogen.

Anhang B

Daten der Sondenmessungen

Nr.	Ny-Ålesund	Sodankylä	Lerwick	Hohenpeißenberg	Payerne
1	03.07.96	03.07.96	17.07.96	17.07.96	03.07.96
2	10.07.96	17.07.96	28.08.96	19.07.96	12.07.96
3	24.07.96	24.07.96	18.09.96	22.07.96	15.07.96
4	31.07.96	31.07.96	27.09.96	26.07.96	19.07.96
5	08.08.96	21.08.96	23.10.96	29.07.96	22.07.96
6	14.08.96	28.08.96	06.11.96	07.08.96	31.07.96
7	18.08.96	17.09.96	27.01.97	21.08.96	07.08.96
8	20.08.96	25.09.96	05.02.97	26.08.96	14.08.96
9	24.08.96	17.10.96	19.02.97	11.09.96	16.08.96
10	27.08.96	09.03.97	21.02.97	27.09.96	20.08.96
11	31.08.96	13.03.97	03.03.97	04.10.96	26.08.96
12	04.09.96	18.03.97	07.03.97	16.10.96	30.08.96
13	08.09.96	19.03.97	10.03.97	23.10.96	02.09.96
14	11.09.96	26.03.97	12.03.97	04.11.96	11.09.96
15	27.03.97	27.03.97	13.03.97	11.11.96	18.09.96
16	30.03.97	02.04.97	19.03.97	27.11.96	20.09.96
17	05.04.97	04.04.97	21.03.97	04.12.96	27.09.96
18	11.04.97	08.04.97	26.03.97	06.12.96	04.10.96
19	20.04.97	14.05.97	28.03.97	09.12.96	07.10.96
20	23.04.97		31.03.97	13.12.96	09.10.96
21	27.04.97		05.04.97	16.12.96	16.10.96
22	30.04.97		08.04.97	23.12.96	22.10.96
23	04.05.97		16.04.97	25.12.96	23.10.96
24	07.05.97		23.04.97	08.01.97	25.10.96
25	11.05.97			10.01.97	28.10.96

Fortsetzung auf der nächsten Seite

<i>Fortsetzung</i>					
Nr.	Ny-Ålesund	Sodankylä	Lerwick	Hohenpeißenberg,	Payerne
26	15.05.97			13.01.97	01.11.96
27	17.05.97			17.01.97	07.11.96
28	23.05.97			20.01.97	08.11.96
29	01.06.97			27.01.97	11.11.96
30	04.06.97			29.01.97	13.11.96
31	11.06.97			05.02.97	02.12.96
32	25.06.97			21.02.97	06.12.96
33				24.02.97	09.12.96
34				27.02.97	13.12.96
35				12.03.97	16.12.96
36				19.03.97	10.01.97
37				21.03.97	13.01.97
38				24.03.97	17.01.97
39				28.03.97	20.01.97
40				07.04.97	22.01.97
41				09.04.97	29.01.97
42				16.04.97	04.02.97
43				28.04.97	05.02.97
44				05.05.97	07.02.97
45				12.05.97	11.02.97
46				14.05.97	21.02.97
47				21.05.97	24.02.97
48				28.05.97	26.02.97
49				09.06.97	12.03.97
50					14.03.97
51					17.03.97
52					21.03.97
53					24.03.97
54					27.03.97
55					02.04.97
56					09.04.97
57					16.04.97
58					18.04.97
59					28.04.97
60					01.05.97
<i>Fortsetzung auf der nächsten Seite</i>					

<i>Fortsetzung</i>					
Nr.	Ny-Ålesund	Sodankylä	Lerwick	Hohenpeißenberg,	Payerne
61					02.05.97
62					05.05.97
63					07.05.97
64					20.05.97
65					21.05.97
66					23.05.97
67					26.05.97
68					30.05.97
69					02.06.97
70					06.06.97
71					09.06.97
72					11.06.97
73					18.06.97

Anhang C

Einzelprofilvergleich für Ny-Ålesund

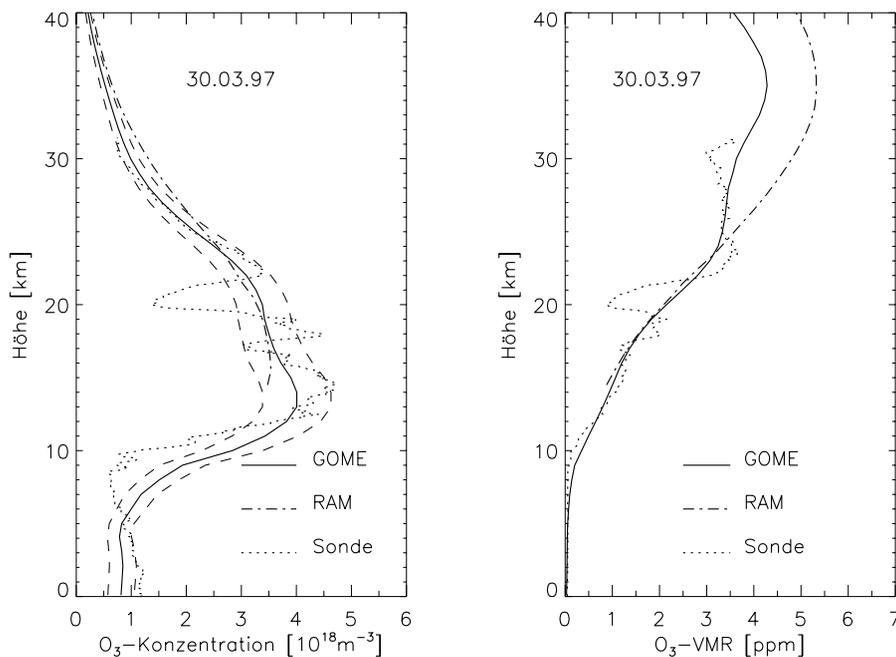


Abbildung C.1: Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (links: Teilchenzahldichte, rechts: Volumenmischungsverhältnis). Die gestrichelten Linien geben den 1σ -Fehler des GOME-Ozonprofils gemäß Gl. 5.16 an. Bei der Berechnung der a-priori-Kovarianzmatrix wurde eine relative Standardabweichung von 30% angenommen (siehe Abschnitt 6.3.2). Das Datum der Messung ist jeweils in den Plots angegeben.

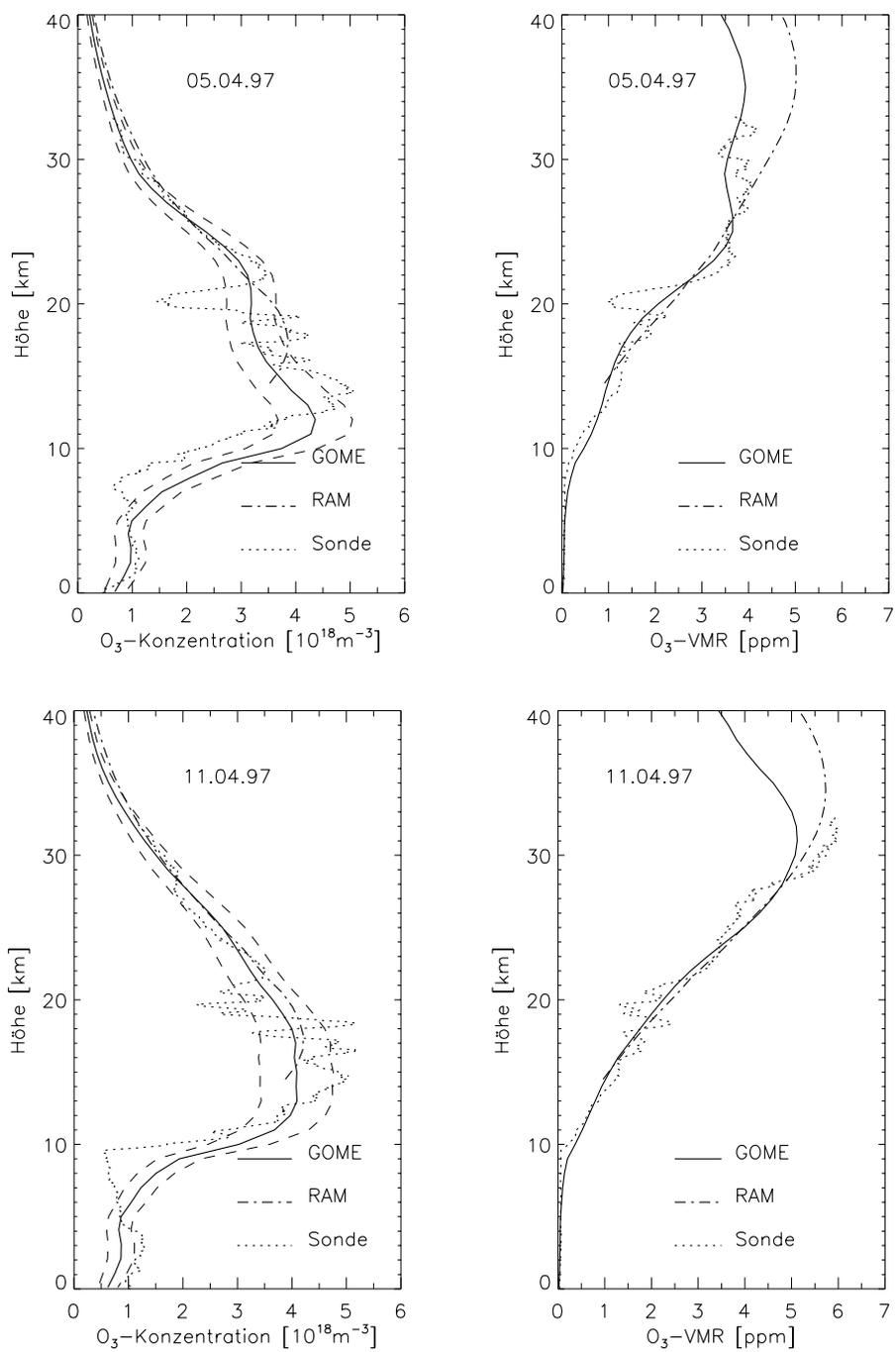


Abbildung C.2: Wie Abb. C.1.

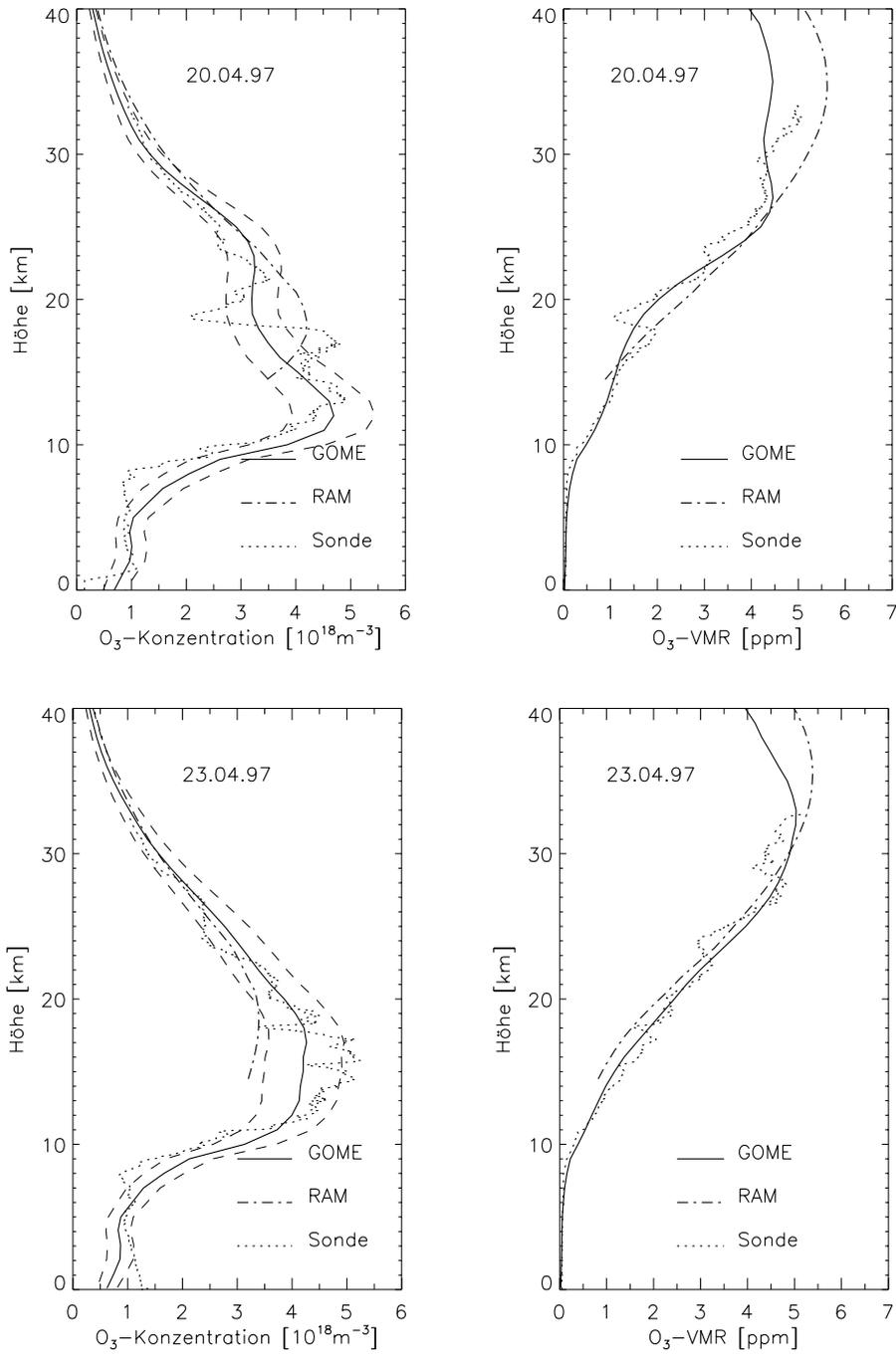


Abbildung C.3: Wie Abb. C.1.

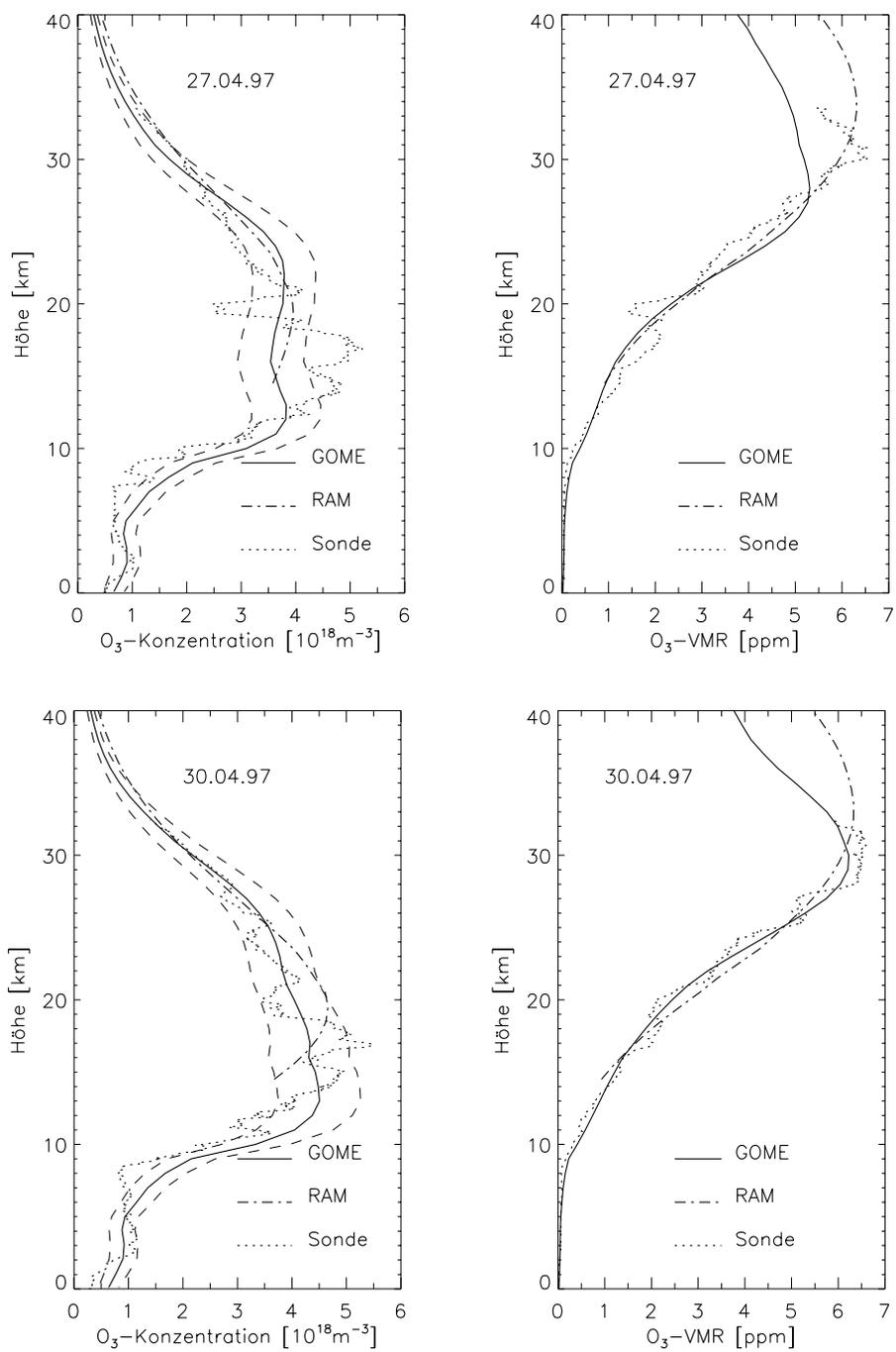


Abbildung C.4: Wie Abb. C.1.

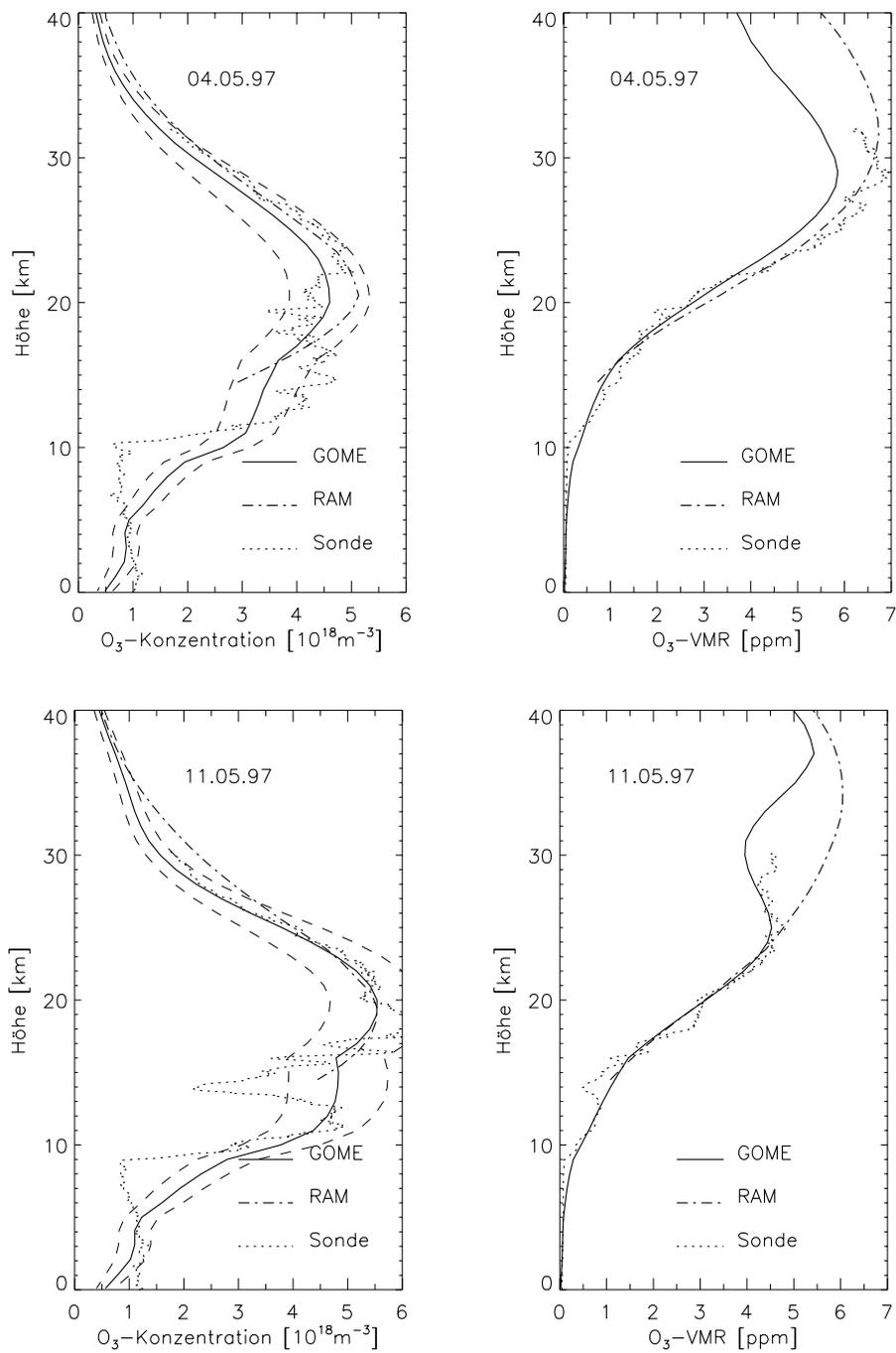


Abbildung C.5: Wie Abb. C.1.

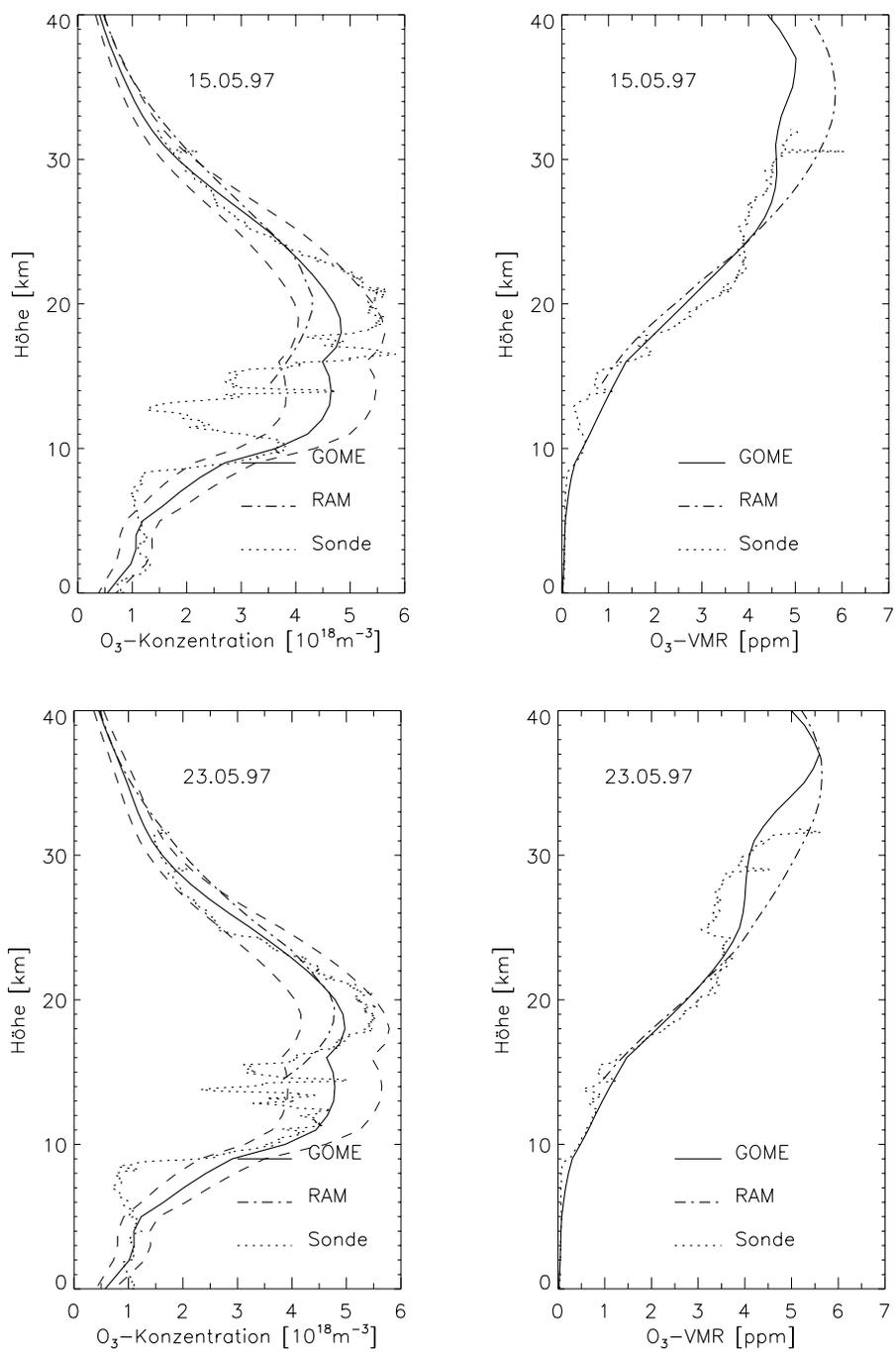


Abbildung C.6: Wie Abb. C.1.

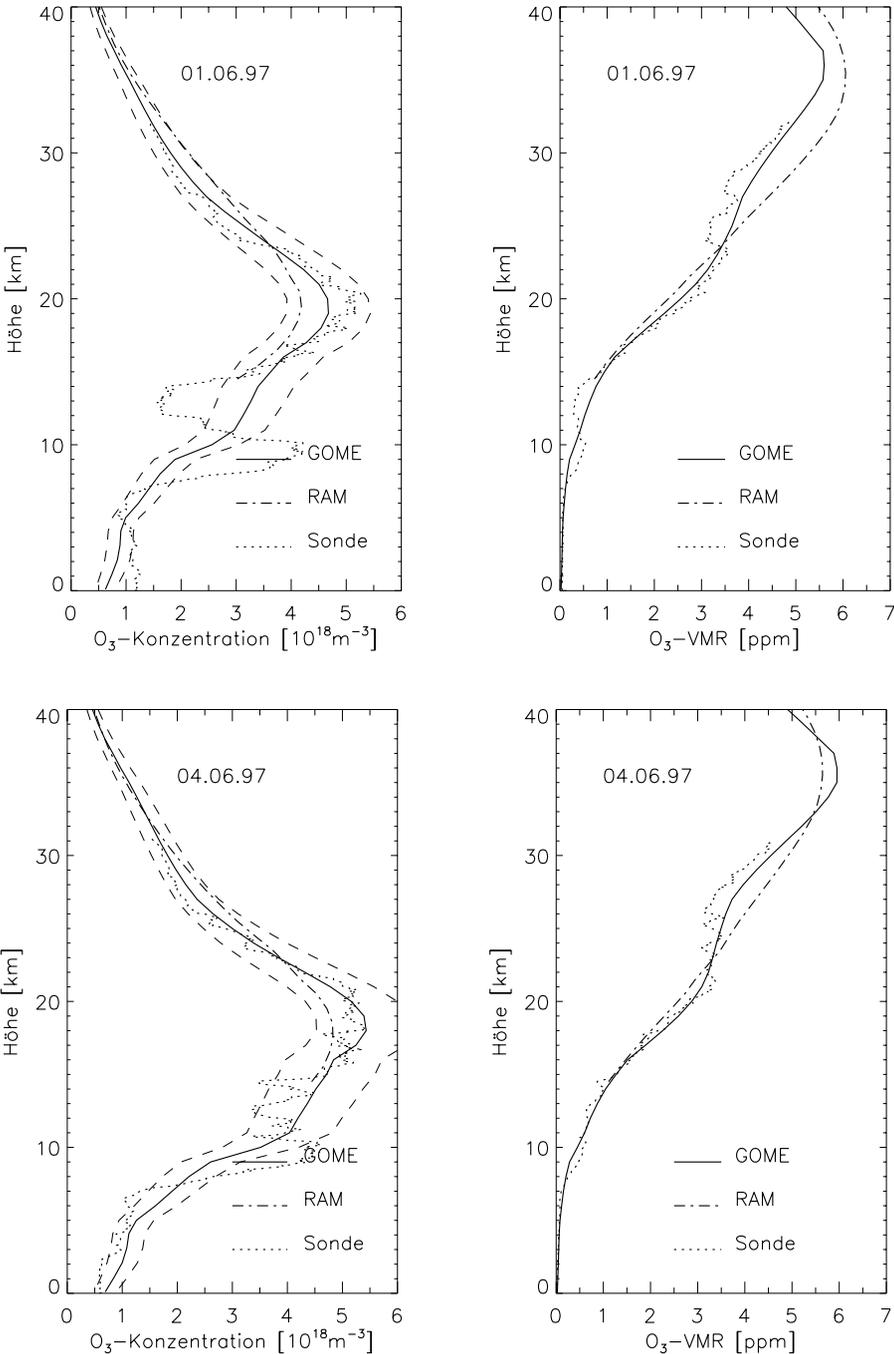


Abbildung C.7: Wie Abb. C.1.

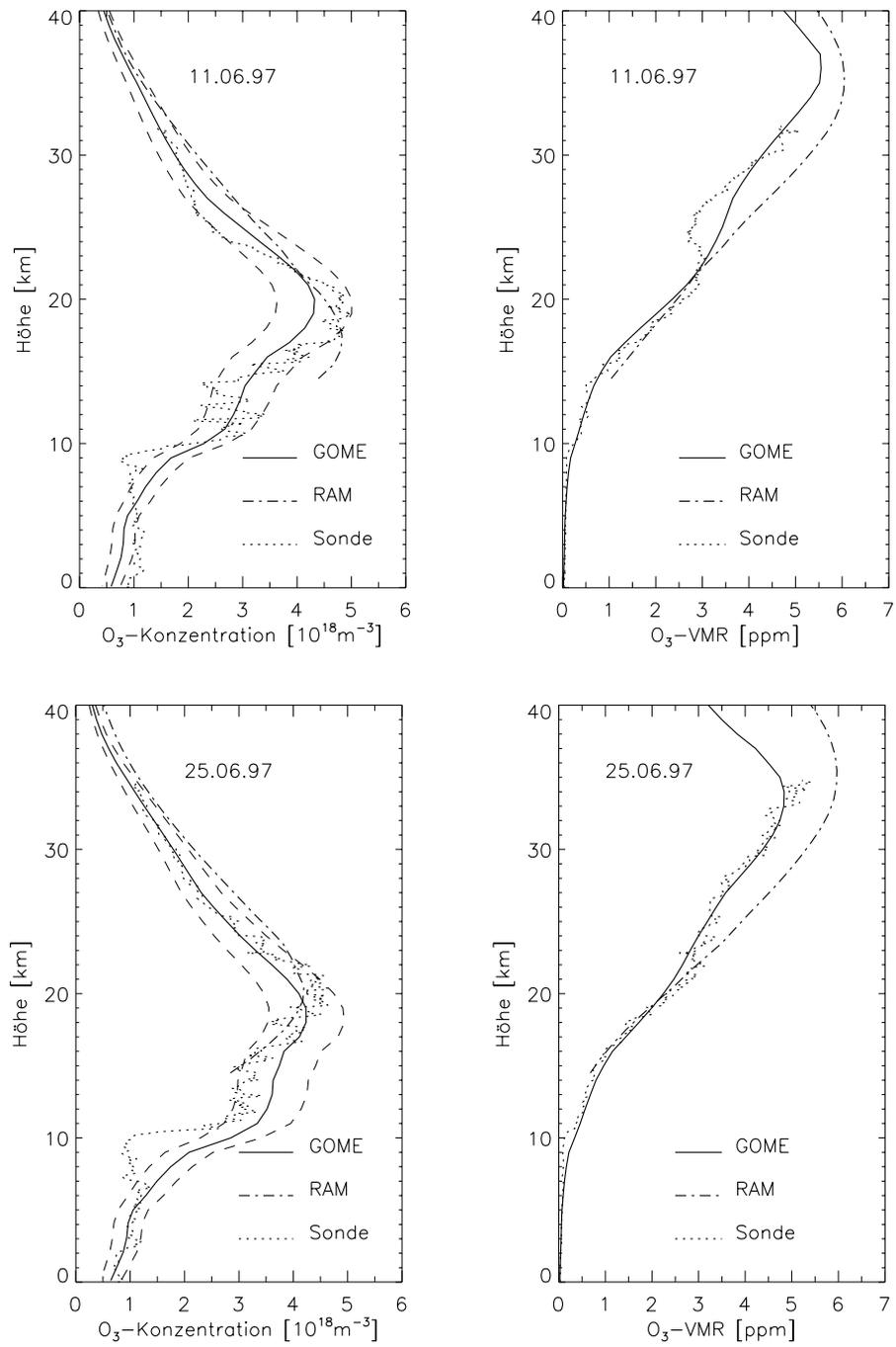


Abbildung C.8: Wie Abb. C.1.

Anhang D

Vergleich mit *SAGE II*

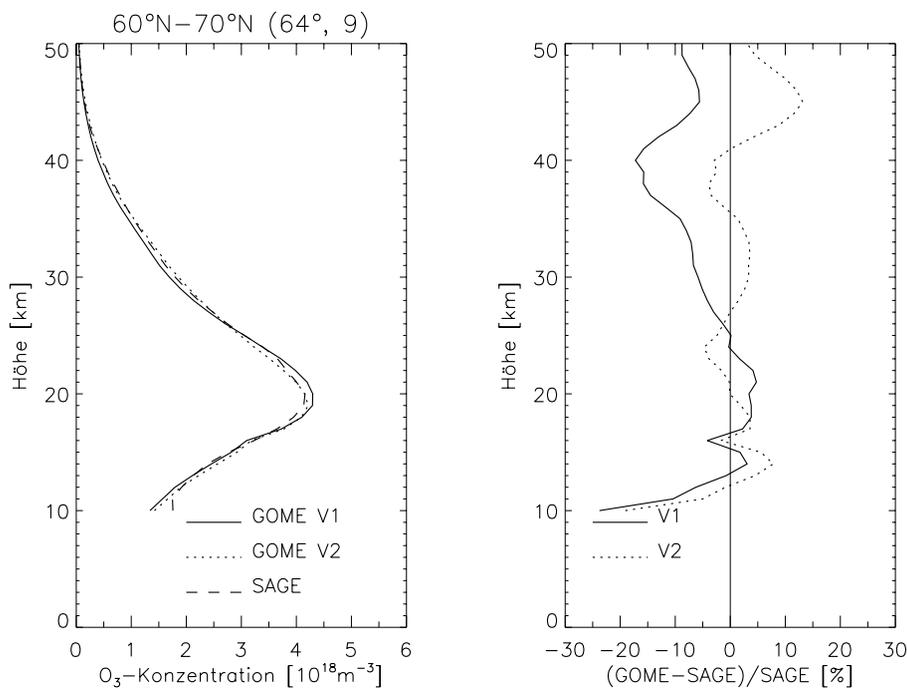


Abbildung D.1: Zonal gemittelte GOME- und SAGE-II-Ozonprofile im Oktober 1996 (links) und relative Abweichung zwischen den GOME- und den SAGE-Ergebnissen (rechts). Die GOME-Messungen wurden auf zwei verschiedene Arten, als V1 und V2 gekennzeichnet, ausgewertet (Näheres dazu in Kapitel 10). In den Bildüberschriften sind der für die Mittelung verwendete Bereich der geographischen Breite, der mittlere Sonnenzenitwinkel der GOME-Messungen sowie die Anzahl der Profile, die in die Mittelwertbildung eingehen, angegeben.

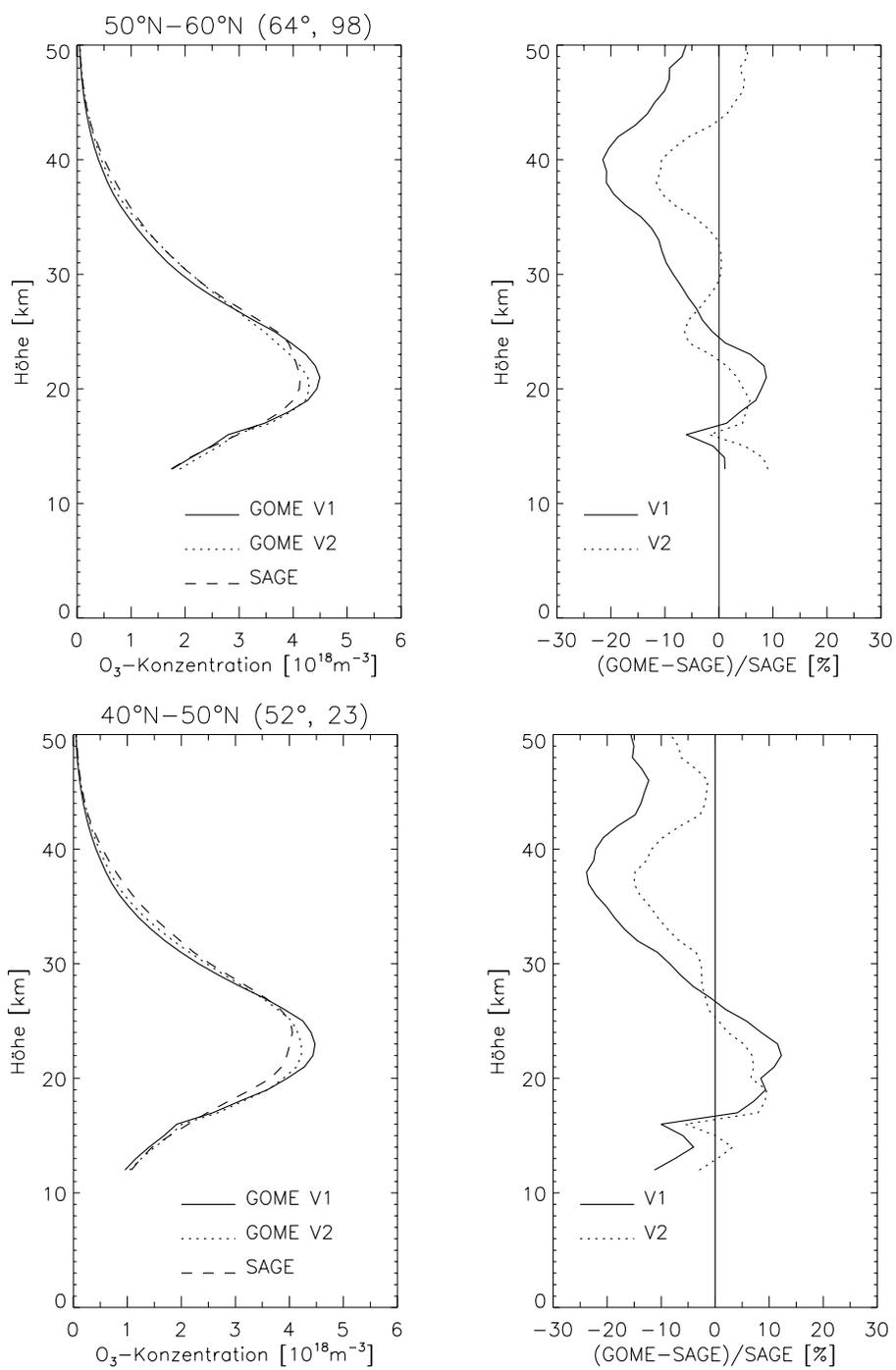


Abbildung D.2: Wie Abb. D.1.

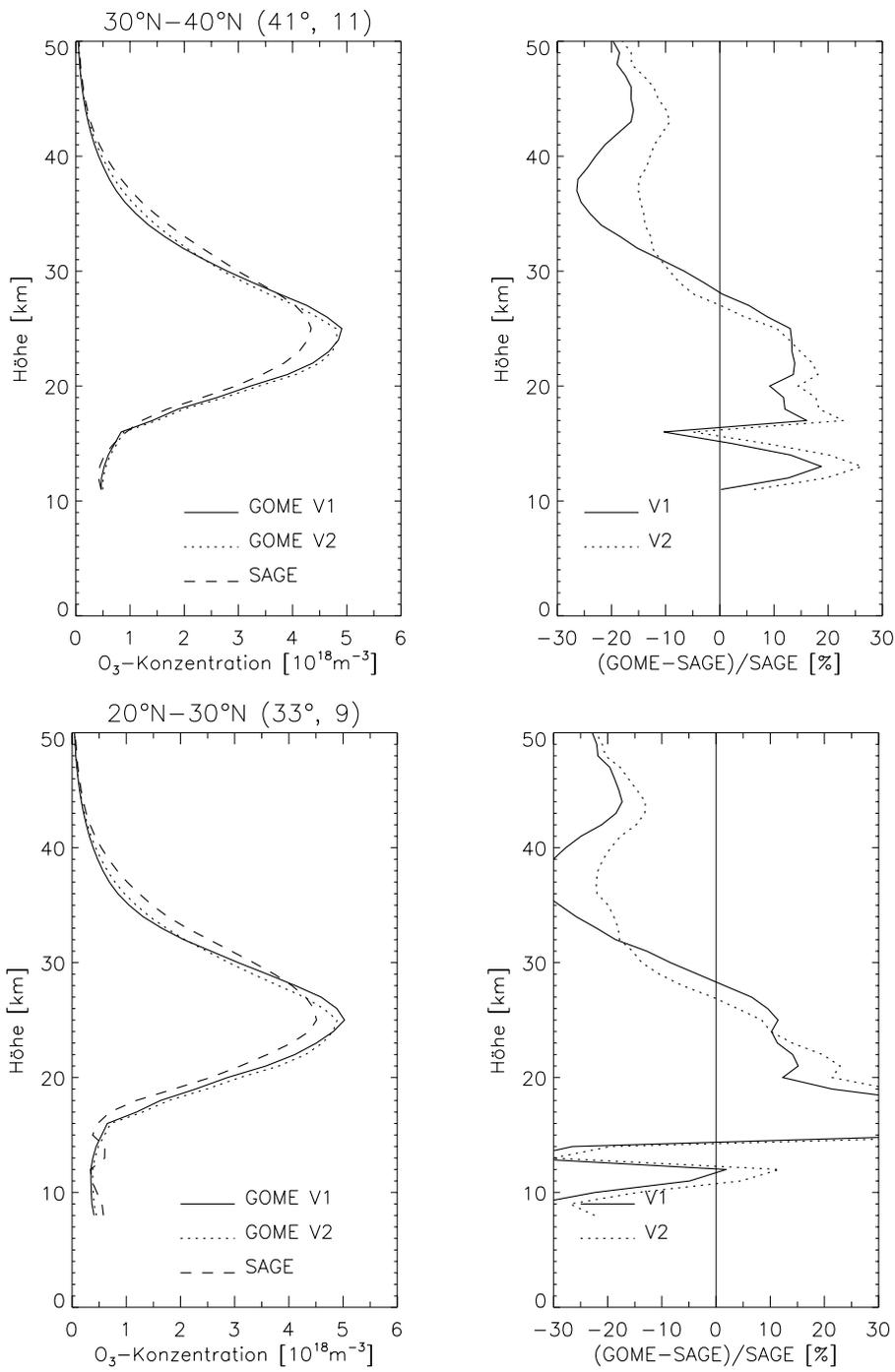


Abbildung D.3: Wie Abb. D.1.

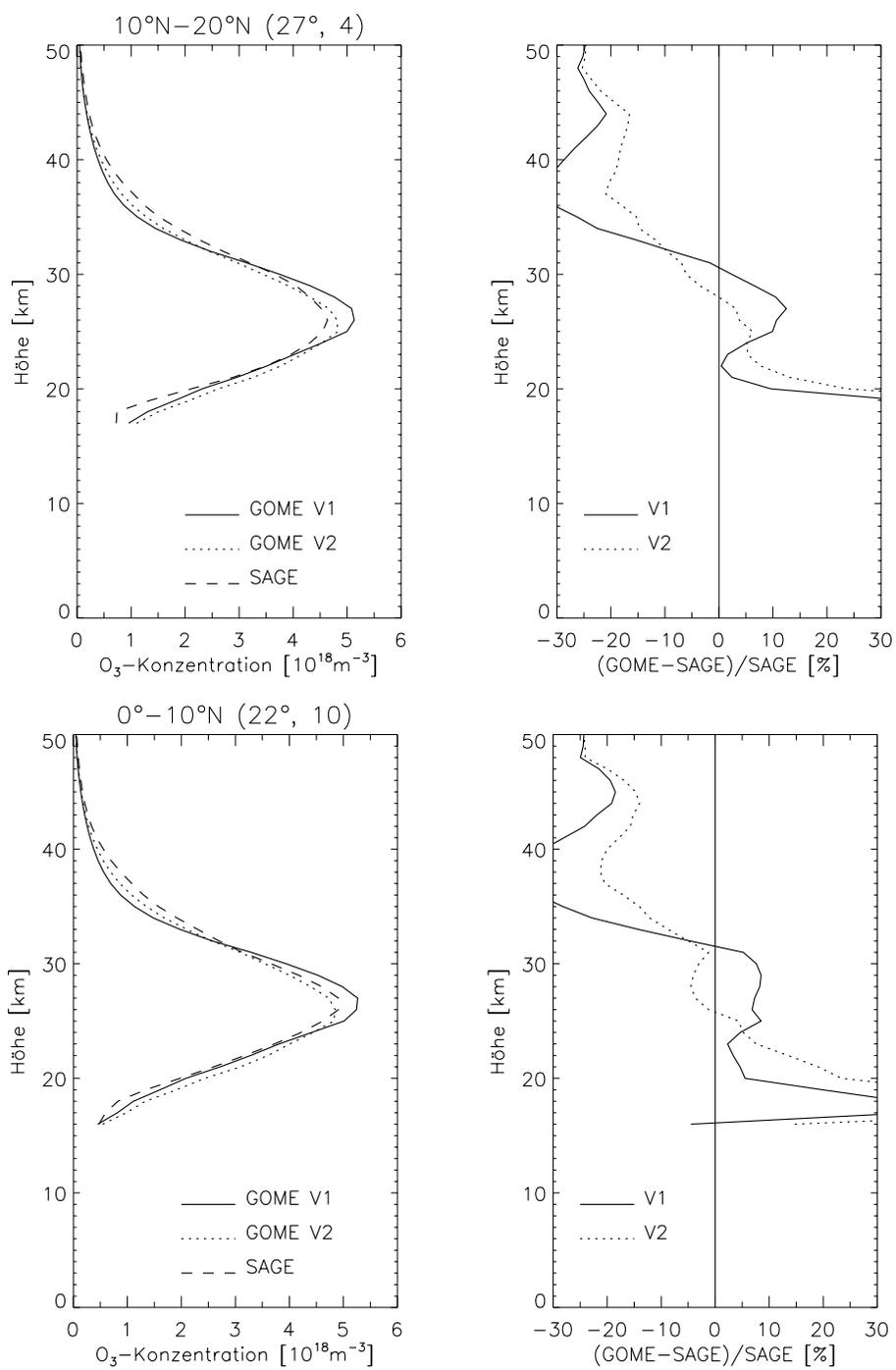


Abbildung D.4: Wie Abb. D.1.

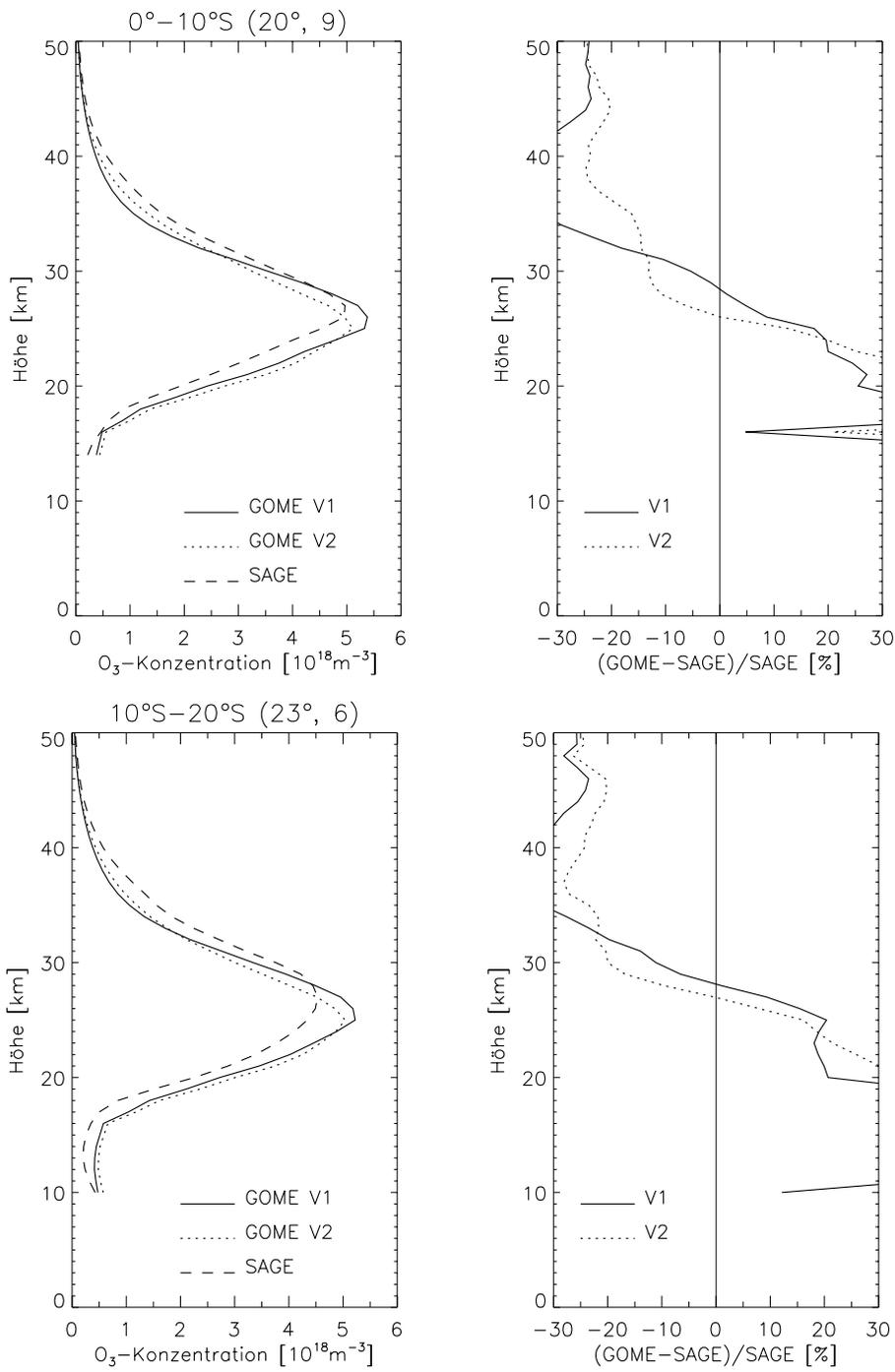


Abbildung D.5: Wie Abb. D.1.

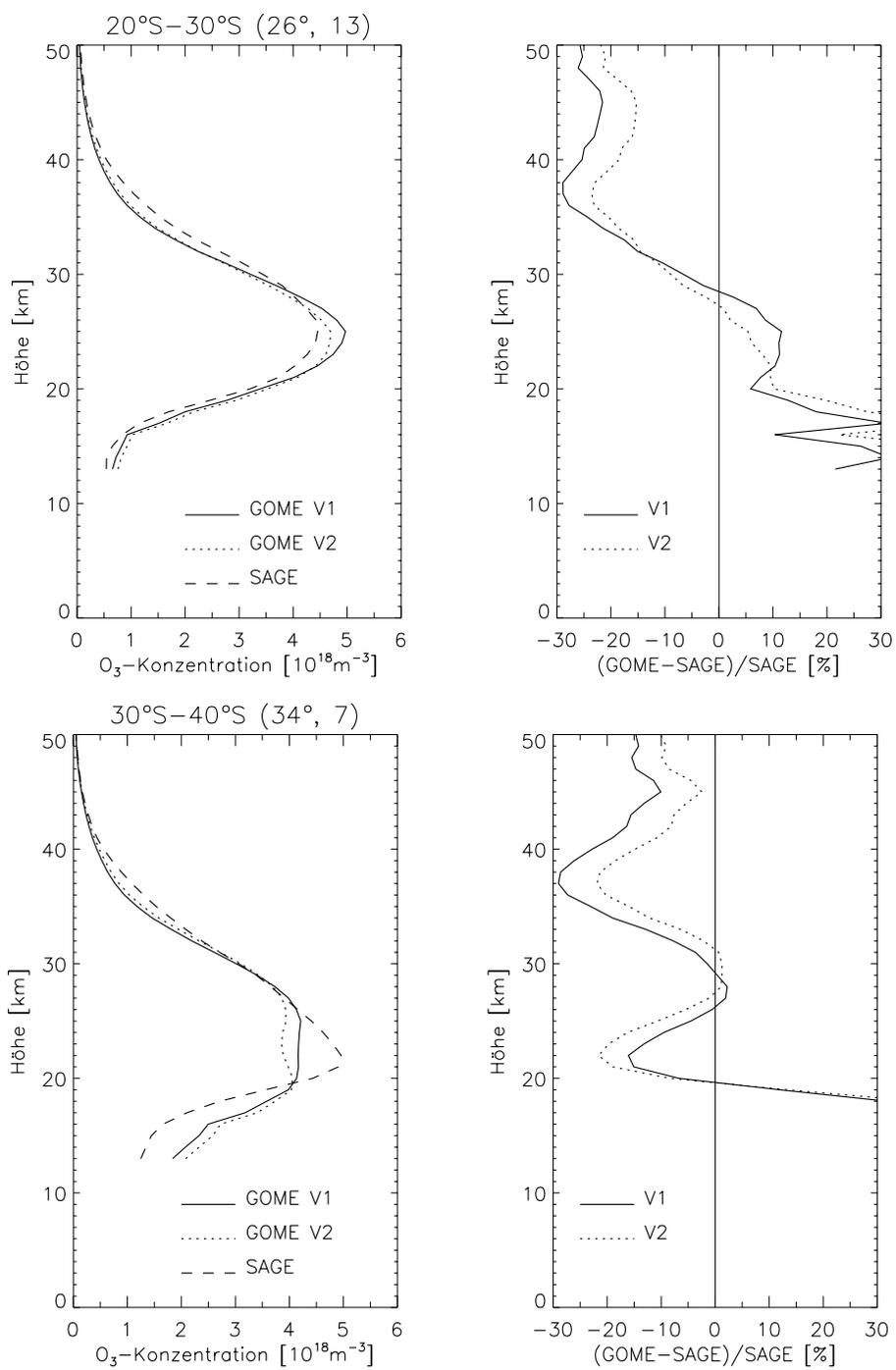


Abbildung D.6: Wie Abb. D.1.

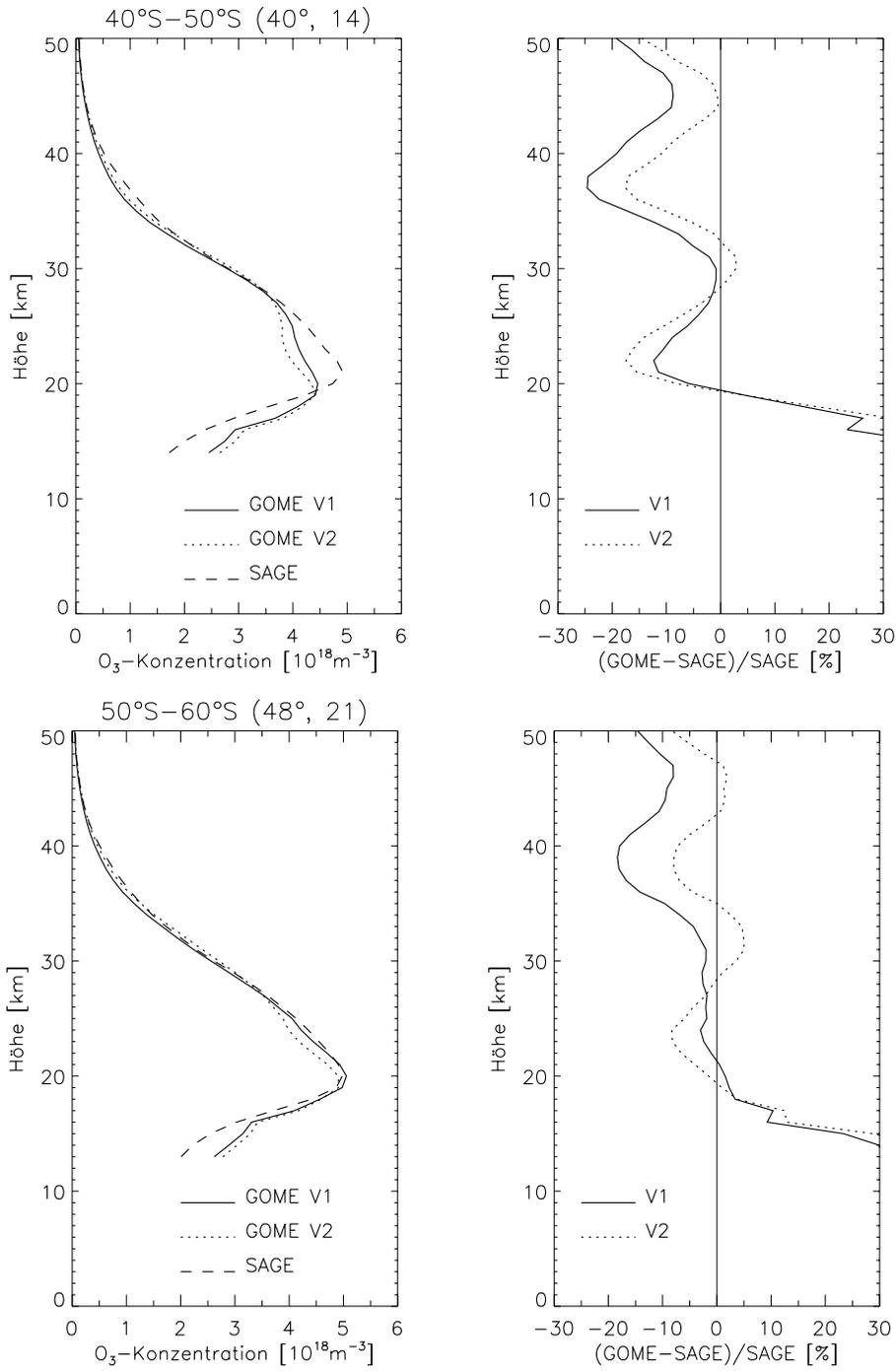


Abbildung D.7: Wie Abb. D.1.

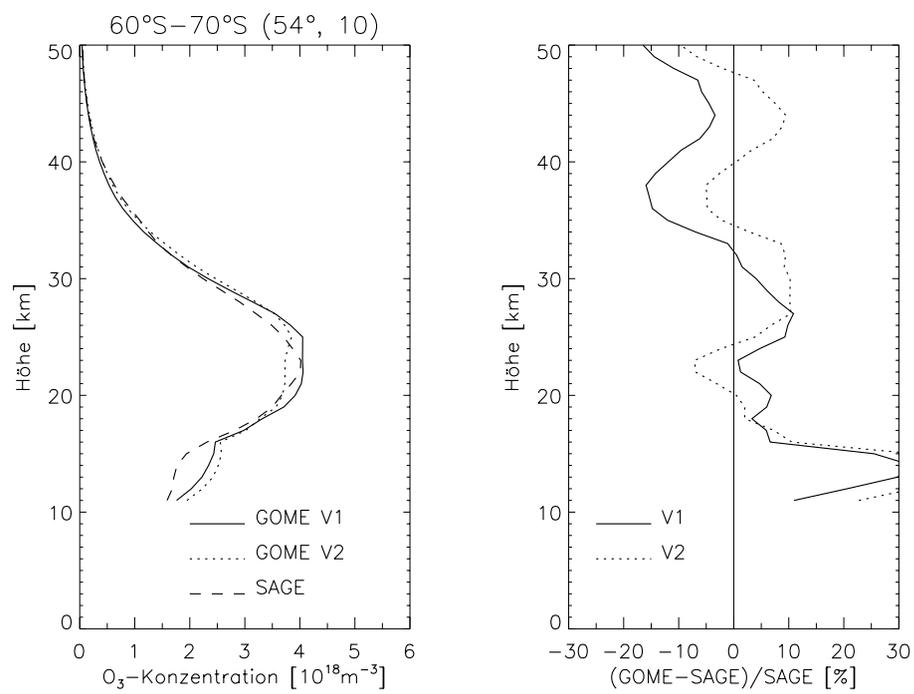


Abbildung D.8: Wie Abb. D.1.

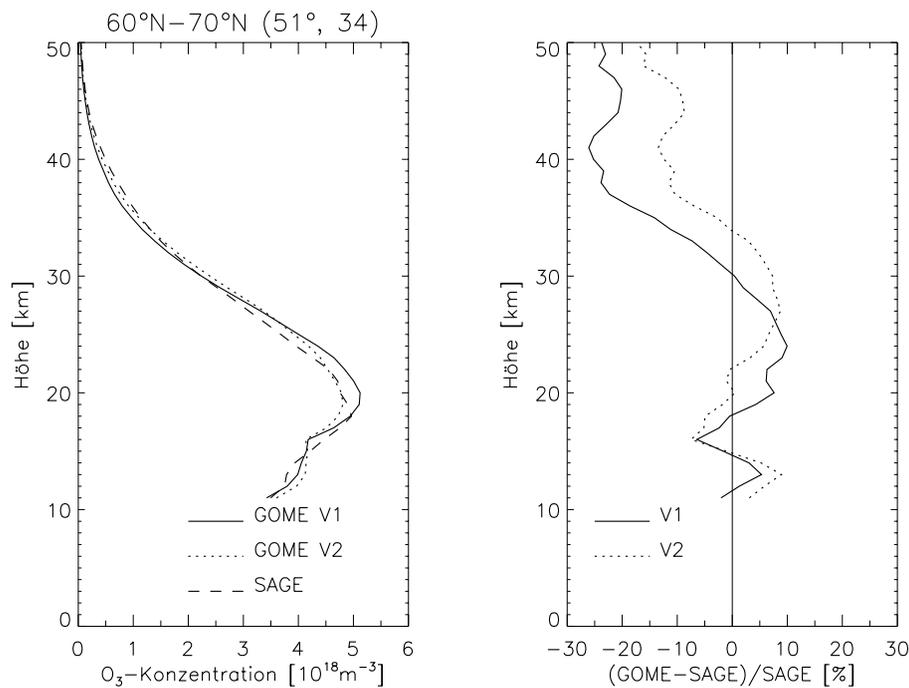


Abbildung D.9: Zonal gemittelte GOME- und SAGE-II-Ozonprofile im April 1997 (links) und relative Abweichung zwischen den GOME- und den SAGE-Ergebnissen (rechts). Die GOME-Messungen wurden auf zwei verschiedene Arten, als V1 und V2 gekennzeichnet, ausgewertet (Näheres dazu in Kapitel 10). In den Bildüberschriften sind der für die Mittelung verwendete Bereich der geographischen Breite, der mittlere Sonnenzenitwinkel der GOME-Messungen sowie die Anzahl der Profile, die in die Mittelwertbildung eingehen, angegeben.

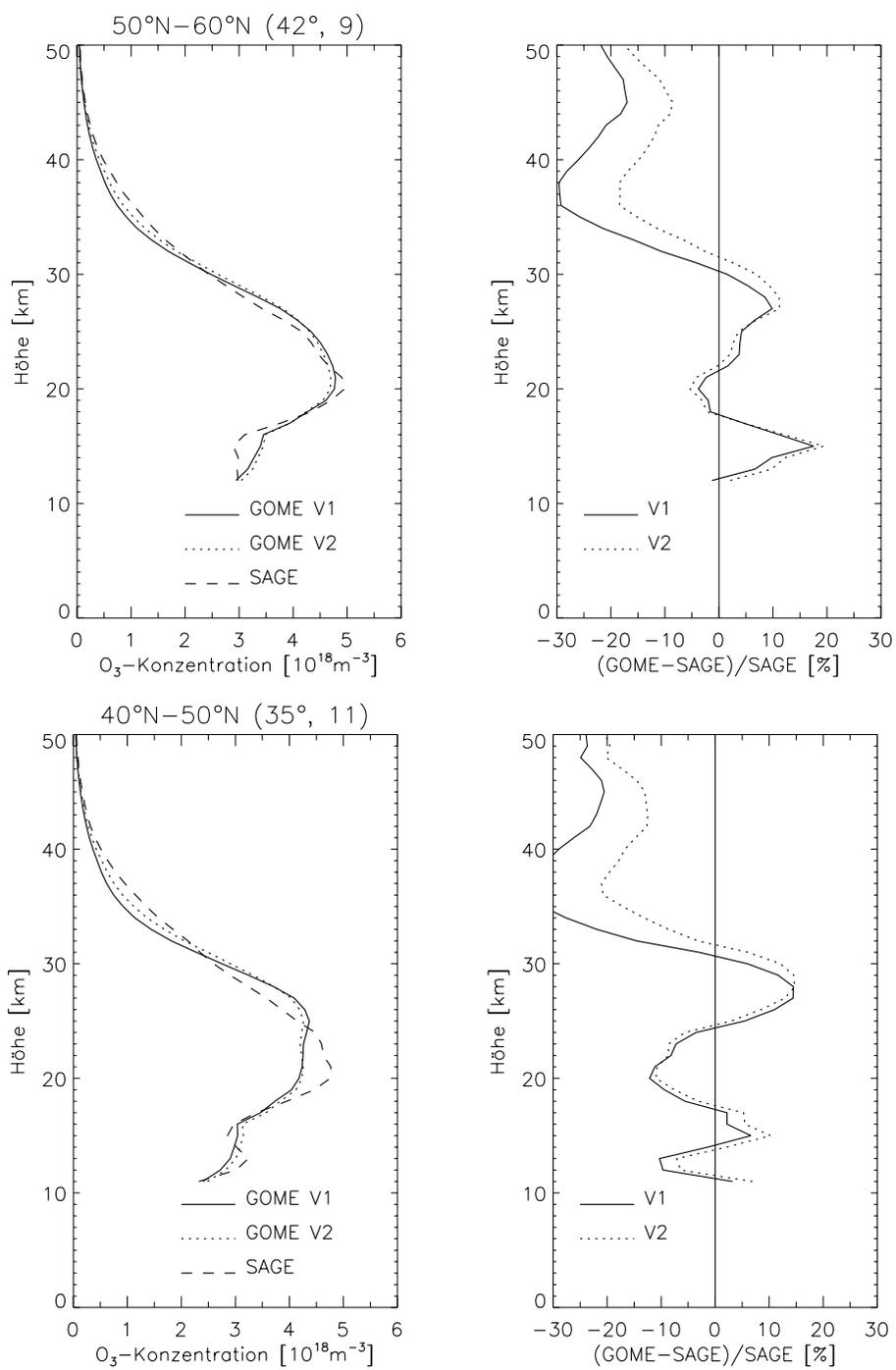


Abbildung D.10: Wie Abb. D.9.

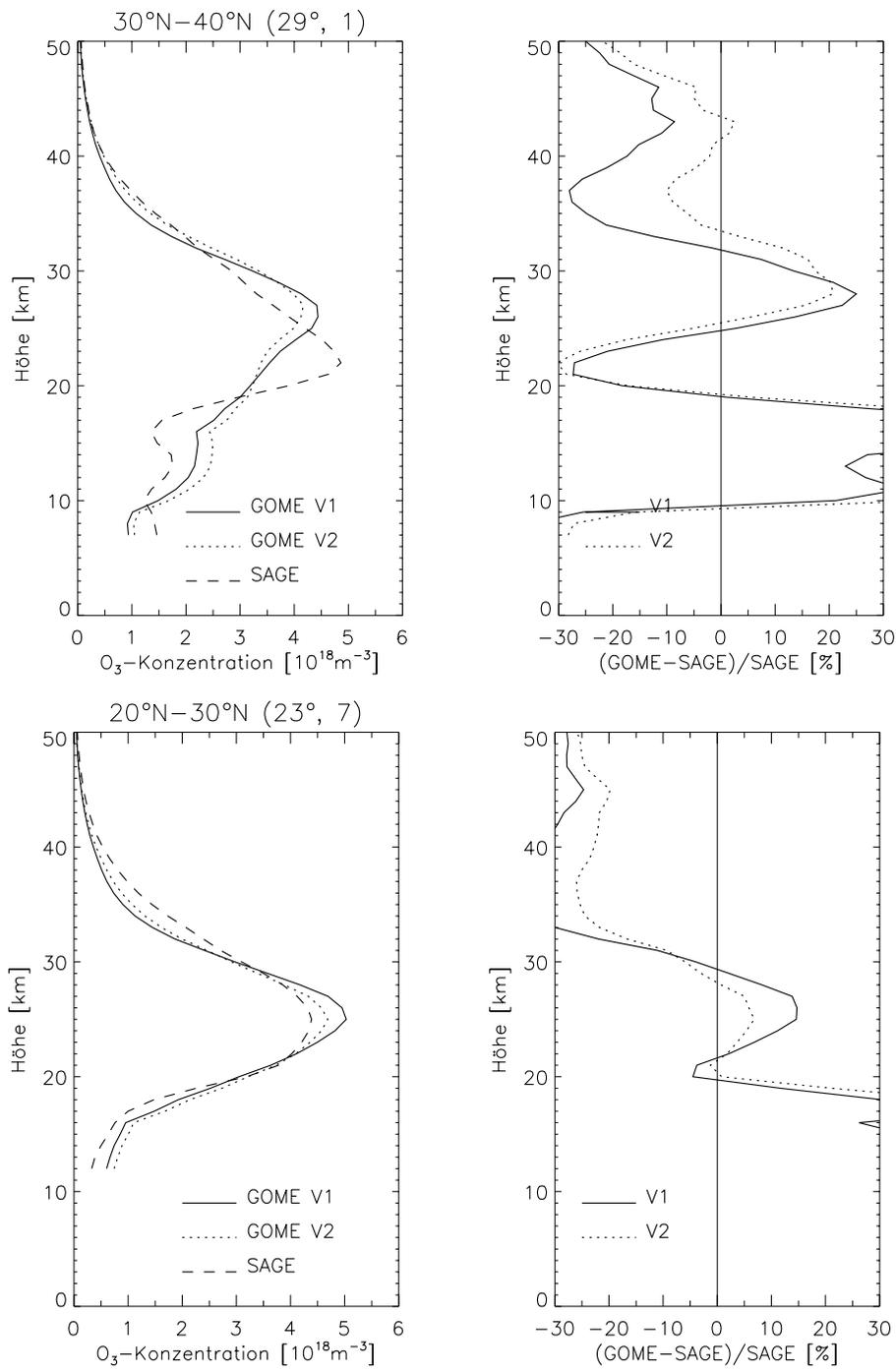


Abbildung D.11: Wie Abb. D.9.

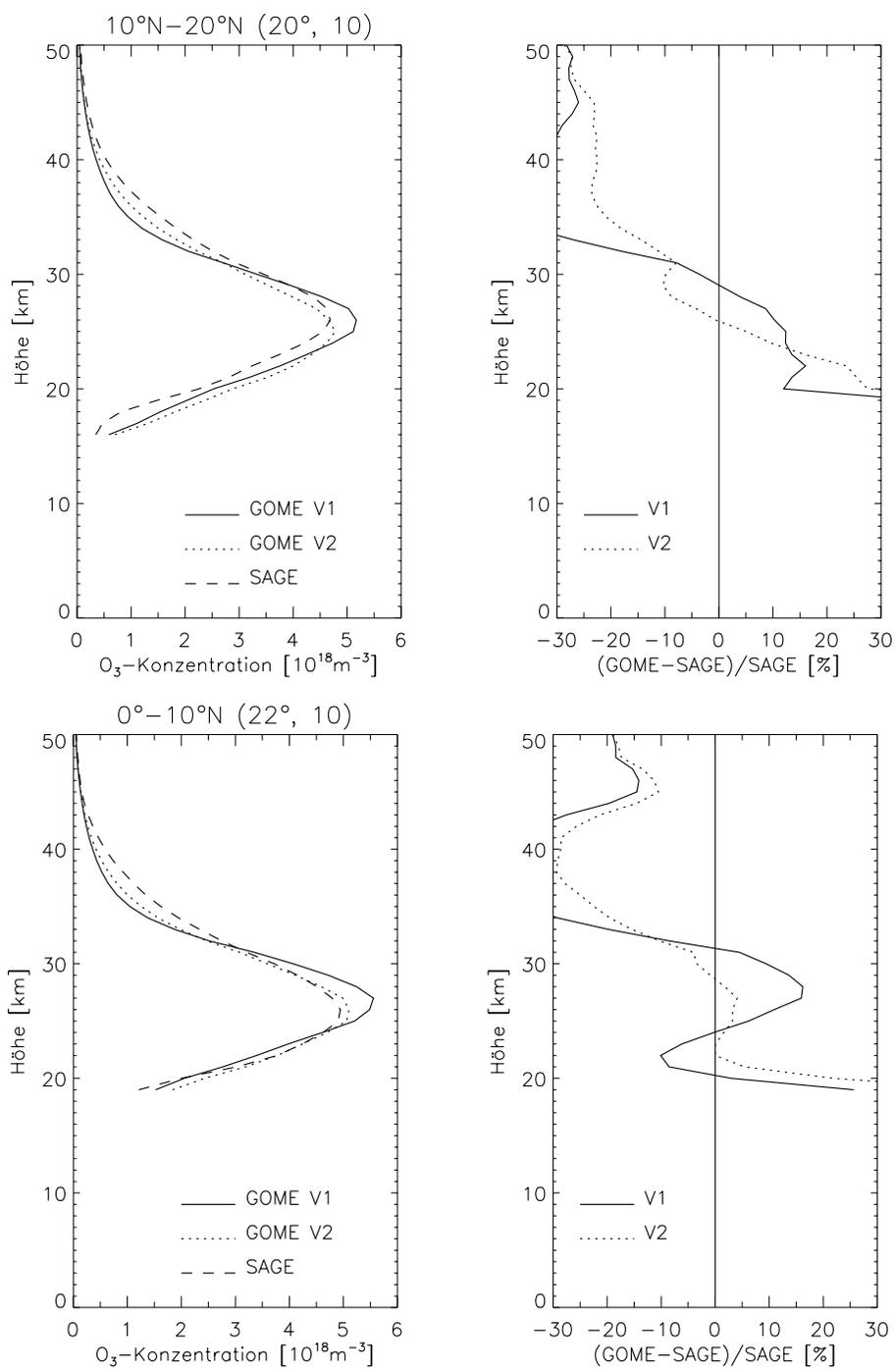


Abbildung D.12: Wie Abb. D.9.

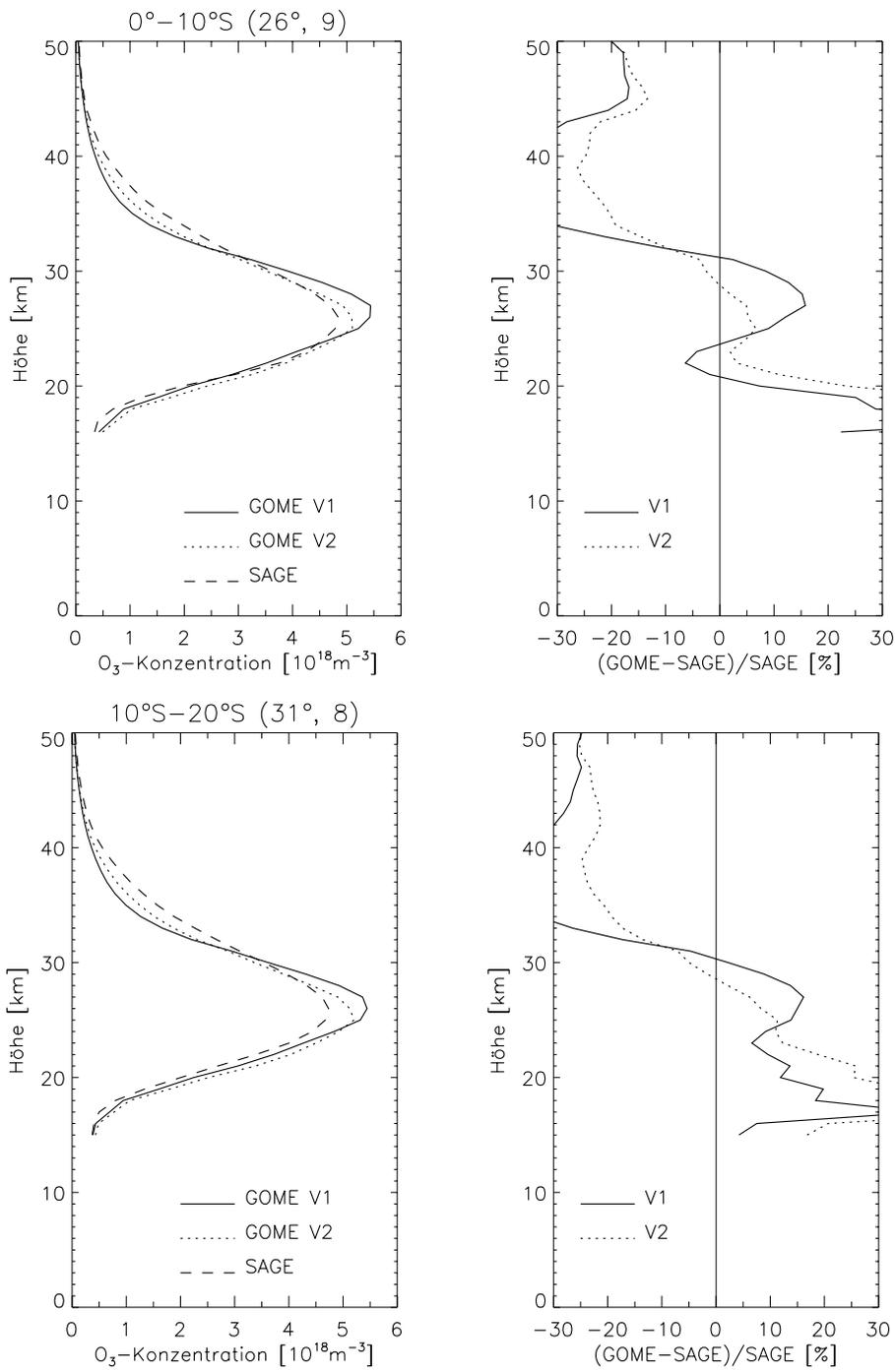


Abbildung D.13: Wie Abb. D.9.

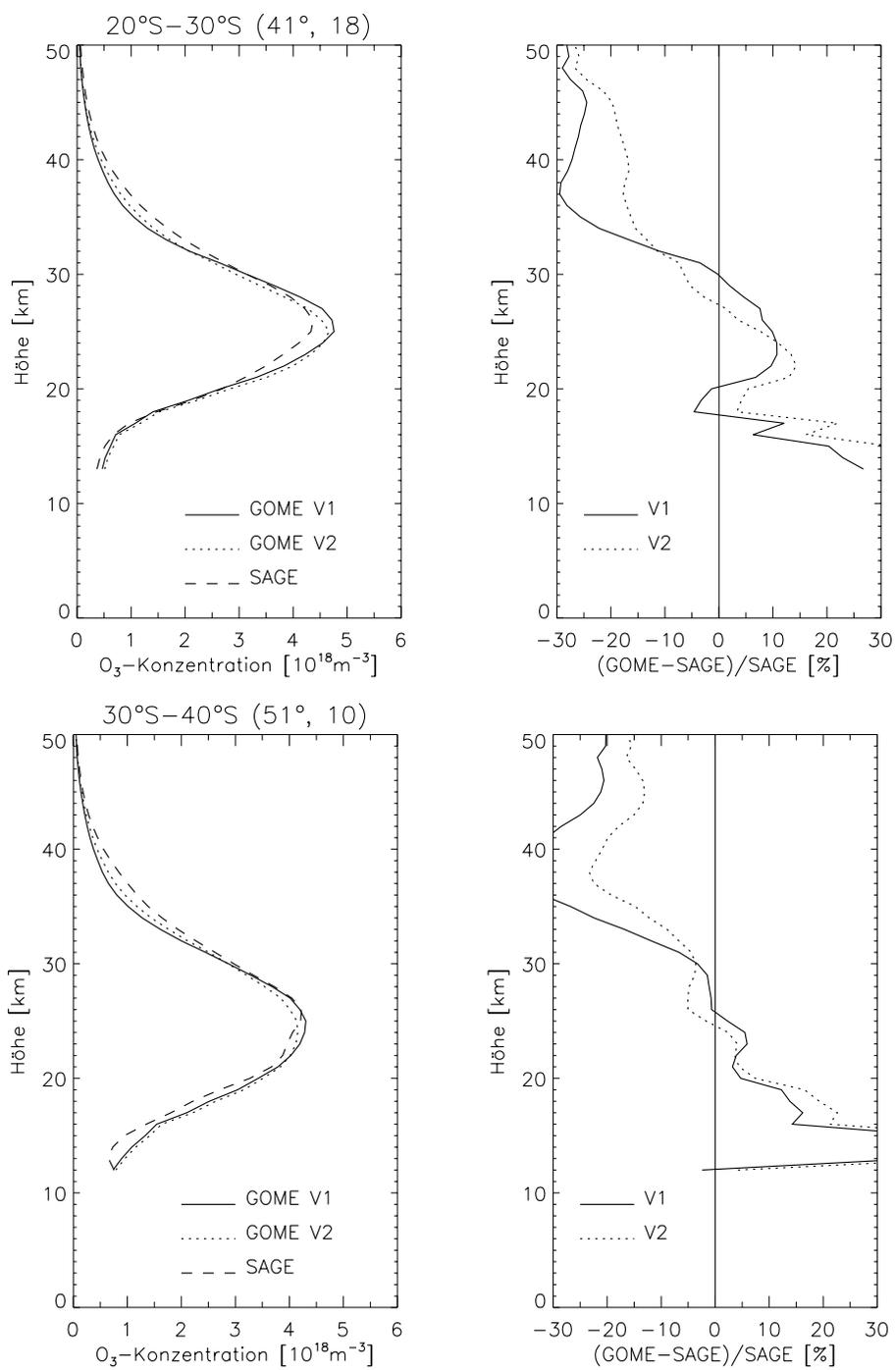


Abbildung D.14: Wie Abb. D.9.

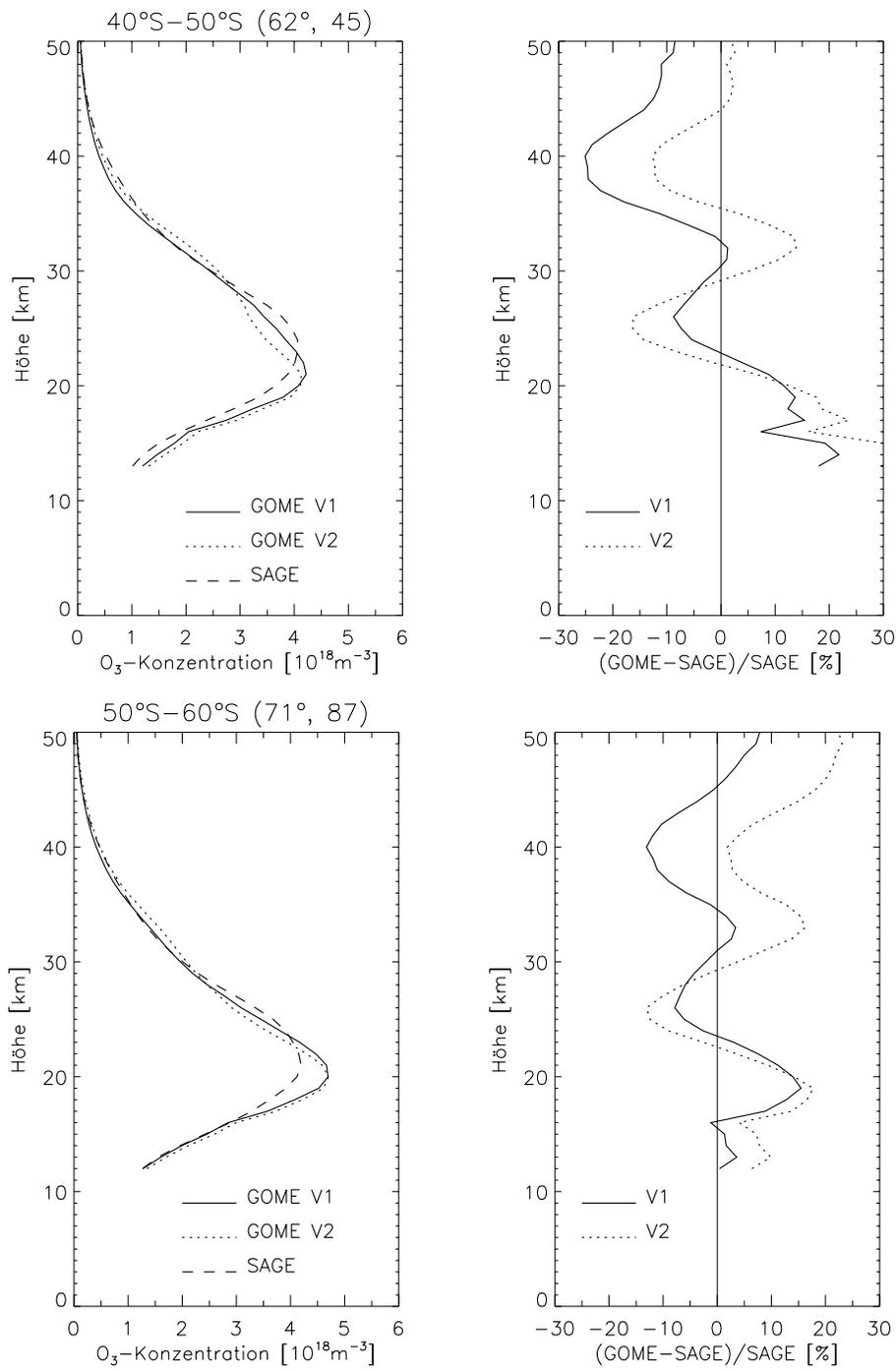


Abbildung D.15: Wie Abb. D.9.

Abkürzungsverzeichnis

Akronym	Bedeutung
<i>BUV</i>	B ackscattered U ltra- V iolet
<i>DFD</i>	D eutsches F ernerkundungs- D atenzentrum
<i>DLR</i>	D eutsches Zentrum für L uft- und R aumfahrt
<i>DOAS</i>	D ifferential O ptical A bsorption S pectroscopy
<i>ENVISAT</i>	ENV Ironmental SAT ellite
<i>ERS-1, ERS-2</i>	erster bzw. zweiter E uropean R emote-Sensing S atellite
<i>ESA</i>	E uropean S pace A gency
<i>FCKW</i>	F luor C hlor K ohlen W asserstoff
<i>FURM</i>	F ull R etrieval M ethod
<i>GDP</i>	G ome D ata P rocessor
<i>GOME</i>	G lobal O zone M onitoring E xperiment
<i>GOMETRAN</i>	G OME-Strahlungs T RANsportmodell
<i>ISCCP</i>	I nternational S atellite C loud C limatology P roject
<i>IUP</i>	I nstitut für U mwelt P hysik, Universität Bremen
<i>PMD</i>	P olarisation M onitoring D evice
<i>PSC</i>	P olar S tratospheric C loud
<i>RRS</i>	R otations- R aman- S treuung
<i>SAGE</i>	S tratospheric A erosol and G as E xperiment
<i>SBUV</i>	S olar B ackscattered U ltra- V iolet
<i>SCIAMACHY</i>	S Canning I maging A bsorption spectro M eter for A tmospheric C Hartograph Y
<i>STG</i>	S Trahlungstransport G leichung
<i>STM</i>	S Trahlungstransport M odell
<i>SZW</i>	S onnen Z enit W inkel

Abbildungsverzeichnis

2.1	Ozonabsorptionsquerschnitte	24
2.2	Temperaturabhängigkeit der Ozonabsorptionsquerschnitte	24
2.3	Satellitenbeobachtungsgeometrien	25
3.1	<i>GOME</i> -Grundpixel	29
3.2	Optischer Aufbau von <i>GOME</i>	33
4.1	Ring-Spektrum	50
6.1	Normierte <i>GOME</i> -Ozongewichtsfunktionen	72
6.2	Betragsmaxima der <i>GOME</i> -Ozongewichtsfunktionen	73
6.3	Druck-, Temperatur-, Albedo- und Aerosolgewichtsfunktionen	76
6.4	<i>GOME</i> -Fit-Residuum	78
6.5	<i>GOME</i> -Glättungsfunktionen für <i>SZW</i> 70°	84
6.6	<i>GOME</i> -Glättungsfunktionen für <i>SZW</i> 30°	85
6.7	Eigenvektoren der Kozlov-Informationsmatrix für <i>SZW</i> 70°	88
6.8	Eigenvektoren der Kozlov-Informationsmatrix für <i>SZW</i> 30°	89
6.9	Standardabweichung der Lösung für <i>SZW</i> 70°)	91
6.10	Standardabweichung der Lösung für <i>SZW</i> 30°)	92
6.11	Relative Differenz zwischen polarisierter und unpolarisierter Strahl- dichte	94
6.12	Profilergebnisse für polarisierte und unpolarisierte Strahlung	95
7.1	Korrekturfaktoren für die <i>GOME</i> -Sonnenirradianz	102
7.2	Die spektralen Residuen vor der Kalibrationskorrektur	104
7.3	Integrierte Ozongewichtsfunktion zwischen 0 und 20 km Höhe	105
7.4	Die η -Korrektur	108
7.5	Die spektralen Residuen nach der Korrektur	109
7.6	Kalibrationsfunktion und Chebyshev-Polynome	110
7.7	Profilauswertung mit und ohne Kalibrationskorrektur	112
8.1	<i>GOME</i> -Reflektivitäten für ein stark bewölktetes und ein unbewölktetes Szenario	114
8.2	Echtfarbendarstellung der <i>PMD</i> -Messungen	117
8.3	Sensitivität der Ozonprofile bezüglich des Wolkentyps	119

8.4	Sensitivität der Ozonprofile bezüglich der optischen Dicke der Wolke	120
8.5	Sensitivität der Ozonprofile bezüglich der Höhe der Wolke	121
8.6	<i>GOME</i> -Profilauswertung über Süddeutschland mit <i>WaA</i> - bzw. <i>WaO</i> -Parametrisierung	123
8.7	<i>GOME</i> -Profilauswertung über Spitzbergen mit <i>WaA</i> - bzw. <i>WaO</i> -Parametrisierung	124
8.8	Statistischer Vergleich zwischen <i>WaA</i> - und <i>WaO</i> -Parametrisierung	127
8.9	<i>WaA</i> - und <i>WaO</i> -Auswertungen für niedrigen und hohen Bedeckungsgrad	128
8.10	Profilauswertung mit und ohne Scan-Simulation	129
9.1	<i>FURM</i> - und <i>DOAS</i> -Gesamtozon für Ny-Ålesund und Sodankylä .	139
9.2	<i>FURM</i> - und <i>DOAS</i> -Gesamtozon für Lerwick und Hohenpeißenberg	140
9.3	<i>FURM</i> - und <i>DOAS</i> -Gesamtozon für Payerne	141
9.4	Relative Abweichung zwischen <i>FURM</i> - und <i>DOAS</i> -Gesamtozon	141
9.5	Einzelprofilvergleiche für Hohenpeißenberg (I)	143
9.6	Einzelprofilvergleiche für Hohenpeißenberg (II)	144
9.7	Einzelprofilvergleiche für Hohenpeißenberg (III)	145
9.8	Veranschaulichung der Umrechnungsfehler	148
9.9	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund	149
9.10	Ozonteilsäulenvergleich für Ny-Ålesund	154
9.11	Ozonteilsäulenvergleich für Sodankylä	155
9.12	Ozonteilsäulenvergleich für Lerwick	156
9.13	Ozonteilsäulenvergleich für Hohenpeißenberg	157
9.14	Ozonteilsäulenvergleich für Payerne	158
9.15	Einzelprofilvergleiche mit gefalteten Ozonsondenmessungen . . .	161
9.16	Vergleich mit gefalteten Ozonsondenmessungen für Hohenpeißenberg	162
9.17	Vergleich mit gefalteten Ozonsondenmessungen für Payerne . . .	163
9.18	Mittlere quadratische Abweichung zwischen den <i>GOME</i> -Profilen und den gefalteten Sondenprofilen	164
9.19	Mittlere relative Abweichung zwischen den <i>GOME</i> -Profilen und den gefalteten Sondenprofilen	165
9.20	Mittelwerte des <i>TOMS</i> -Gesamtozons (März 79-93) und des <i>GO-ME</i> -Gesamtozons (März 97)	167
9.21	Monatsmittel März 1997	168
9.22	Monatsmittel April 1997	169
9.23	<i>FURM</i> -Ozonteilsäulengehalte am 1. April 1997 und am 21. April 1997	169
9.24	Monatsmittel Juli 1996	170
10.1	Koinzidenzen zwischen <i>GOME</i> und <i>SAGE II</i>	176

10.2	Vergleich mit <i>SAGE II</i> (60°N-70°N)	177
10.3	Vergleich mit <i>SAGE II</i> (20°N-30°N)	178
10.4	Vergleich mit <i>SAGE II</i> (0°-10°S)	179
10.5	Vergleich mit <i>SAGE II</i> (50°S-60°S)	180
C.1	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (I)	193
C.2	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (II)	194
C.3	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (III)	195
C.4	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (IV)	196
C.5	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (V)	197
C.6	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (VI)	198
C.7	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (VII)	199
C.8	Einzelprofilvergleiche für Ny-Ålesund (VIII)	200
D.1	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (I)	201
D.2	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (II)	202
D.3	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (III)	203
D.4	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (IV)	204
D.5	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (V)	205
D.6	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (VI)	206
D.7	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (VII)	207
D.8	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im Oktober 1996 (VIII)	208
D.9	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (I)	209
D.10	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (II)	210
D.11	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (III)	211
D.12	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (IV)	212
D.13	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (V)	213
D.14	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (VI)	214
D.15	Vergleich mit <i>SAGE II</i> im April 1997 (VII)	215

Tabellenverzeichnis

3.1	<i>GOME</i> -Diodenarray-Detektoren	29
4.1	Spurengase in <i>GOMETRAN</i>	48
6.1	<i>GOME</i> -Ozonprofilfehler	93
9.1	Überblick über die Ozonsondenmessungen	136
9.2	Statistik des Ozonteilsäulenvergleichs	152

Literaturverzeichnis

- [1] ABEN, I., DOBBER, M. R., STAM, D. M., AND STAMMES, P. Error analysis of polarisation measurements by GOME. In *Proc. Final results workshop of the GOME Geophysical Validation Campaign* (ESA-ESRIN, Frascati, Italy, 24-26 January, 1996), European Space Agency, pp. 51–59.
- [2] 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., AND WILSON, W. J. The Upper Atmosphere Research Satellite Microwave Limb Sounder Instrument. *J. Geophys. Res.* 98 (1993), 10751–10762.
- [3] BARKSTROM, B. R. A finite differencing method of solving anisotropic scattering problems. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 16 (1976), 725–739.
- [4] BARNES, R. A., MCMASTER, L. R., CHU, W. P., MCCORMICK, M. P., AND GELMAN, M. E. Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II and ROCOZ-A ozone profiles at Natal, Brazil: A basis for the comparison with other satellite instruments. *J. Geophys. Res.* 96 (1991), 7515–7530.
- [5] BATES, D. R. Rayleigh scattering by air. *Planet. Space Sci.* 32 (1984), 785–790.
- [6] BATES, D. R., AND NICOLET, M. The photochemistry of water vapour. *J. Geophys. Res.* 55 (1950), 301.
- [7] BEEKMANN, M., ANCELLET, G., MÉGIE, G., SMIT, H. G. J., AND KLEY, D. Intercomparison campaign of vertical ozone profiles including electrochemical sondes of ECC and Brewer-Mast type and a ground based UV-differential absorption lidar. *J. Atmos. Chem.* 19 (1994), 259–288.
- [8] BEKKI, S. On the possible role of aircraft-generated soot in the middle latitude ozone depletion. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 10751–10758.

- [9] BENSON, S., AND AXWORTHY, A. Reconsiderations of the rate constants from thermal decomposition of ozone. *J. Chem. Physics* 42 (1965), 2614.
- [10] BETHAN, S., VAUGHAN, G., AND REID, S. J. A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere. *Quart. J. Roy. Met. Soc.* 122 (1996), 929–944.
- [11] BEVINGTON, P. R., AND ROBINSON, D. K. *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*. McGraw-Hill, New York, 1992.
- [12] BHARTIA, P. K., MCPETERS, R. D., MATEER, C. L., FLYNN, L. E., AND WELLEMAYER, C. Algorithm for the estimation of vertical ozone profiles from the backscattered ultraviolet technique. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 18793–18806.
- [13] BLINDAUER, C., ROZANOV, V. V., AND BURROWS, J. P. Actinic flux and photolysis frequency comparison computations using the model PHOTOGT. *J. Atmos. Chem.* 24 (1996), 1–21.
- [14] BOHREN, C. F., AND HUFFMAN, D. R. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons, New York, 1983.
- [15] BRASSEUR, G., AND SOLOMON, S. *Aeronomy of the middle atmosphere: chemistry and physics in the stratosphere and mesosphere*. D. Reidel, Dordrecht, 1986.
- [16] BREWER, A., AND MILFORD, J. The Oxford key ozone sonde. *Proc. Roy. Soc.* 256 (1960), 470.
- [17] BRONSTEIN, I. N., AND SEMENDJAJEW, K. A. *Taschenbuch der Mathematik*. Harri Deutsch Verlag, Thun, 1987.
- [18] BRÜHL, C., AND CRUTZEN, P. J. The MPI two-dimensional atmospheric model - trace gas profiles. persönliche Mitteilung, 1991.
- [19] BRÜHL, C., DRAYSON, S. R., RUSSELL, J. M., CRUTZEN, P. J., MCINERNEY, J. M., PURCELL, P. N., CLAUDE, H., GERNANDT, H., MCGEE, T. J., MCDERMID, I. S., AND GUNSON, M. R. Halogen Occultation Experiment ozone channel validation. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 10217–10240.
- [20] BUCHWITZ, M. *GOMETRAN++ user's guide, version 2.9*. Institut für Umweltphysik, Universität Bremen, 1997.

- [21] BURROWS, J. P., DEHN, A., DETERS, B., HIMMELMANN, S., RICHTER, A., VOIGT, S., AND ORPHAL, J. Atmospheric remote-sensing reference data from GOME: Part 1. temperature-dependent absorption cross sections of NO₂ in the 231-794 nm range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 60 (1998), 1025–1031.
- [22] BURROWS, J. P., EISINGER, M., RICHTER, A., ROZANOV, V., PERNER, D., HEGELS, E., AND CHANCE, K. V. Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) measurements of OCIO over Antarctica, 1995. In *Proc. 18th Quadrennial Ozone Symposium* (l'Aquila, Italy, 12-21 September, 1996), pp. 661–664.
- [23] BURROWS, J. P., HÖLZLE, E., GOEDE, A. P. H., VISSER, H., AND FRICKE, W. SCIAMACHY - Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Cartography. *Acta Astronautica* 35 (1995), 445–451.
- [24] BURROWS, J. P., RICHTER, A., DEHN, A., DETERS, B., HIMMELMANN, S., VOIGT, S., AND ORPHAL, J. Atmospheric remote-sensing reference data from GOME: Part 2. temperature-dependent absorption cross sections of O₃ in the 231-794 nm range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* (1998). in press.
- [25] BURROWS, J. P., SCHNEIDER, W., AND CHANCE, K. V. GOME and SCIAMACHY: Remote sensing of stratospheric and tropospheric gases. In *Proc. 1st European Workshop on Polar Stratospheric Ozone* (Schliersee, Germany, 3-5 October, 1990), pp. 99–102.
- [26] BURROWS, J. P., WEBER, M., BUCHWITZ, M., ROZANOV, V., LADSTÄTTER-WEISSENMAYER, A., RICHTER, A., DE BEEK, R., HOOGEN, R., BRAMSTEDT, K., EICHMANN, K.-U., EISINGER, M., AND PERNER, D. The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission concept and first scientific results. *J. Atmos. Sci.* 56 (1999), 151–175.
- [27] CAUDILL, T. R., FLITTNER, D. E., HERMAN, B. M., TORRES, O., AND MCPETERS, R. D. Evaluation of the pseudo-spherical approximation for backscattered ultraviolet radiances and ozone retrieval. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 3881–3890.
- [28] CHANCE, K., AND SPURR, R. J. D. Ring effect studies: Rayleigh scattering, including molecular parameters for rotational Raman scattering and the Fraunhofer spectrum. *Applied Optics* 36 (1997), 5224–5230.
- [29] CHANDRASEKHAR, S. *Radiative Transfer*. Dover Publications, New York, 1960.

- [30] CHAPMAN, S. A theory of upper atmosphere ozone. *Mem. Roy. Meteorol. Soc.* 3 (1930), 103–125.
- [31] CHU, W. P., MCCORMICK, M. P., LENOBLE, J., BROGNIEZ, C., AND PRUVOST, P. SAGE II Inversion Algorithm. *J. Geophys. Res.* 94 (1989), 8339–8351.
- [32] CLAUDE, H., GEH, B., HARTMANNSGRUBER, R., HOHMANN, T., ROTHE, K. W., SCHÖNENBORN, F., WALTER, H., AND WEGE, K. *Weiterentwicklung, Bau und Betrieb eines Lidars zur Bestimmung des atmosphärischen Ozonprofils*, vol. 179 of *Ber. d. Dt. Wetterd.* DWD, Offenbach a. M., 1989.
- [33] CONNOR, B. J., PARRISH, A., AND TSOU, J.-J. Detection of stratospheric ozone trends by ground-based microwave observations. In *Proc. SPIE* (1991), vol. 1491, pp. 218–230.
- [34] COY, L., NASH, E. R., AND NEWMAN, P. A. Meteorology of the polar vortex: Spring 1997. *Geophys. Res. Letters* 24 (1997), 2692–2696.
- [35] CRUTZEN, P. J. The influence of nitrogen oxides in the lower stratosphere. *Quart. J. Roy. Met. Soc.* 96 (1970), 320–325.
- [36] CRUTZEN, P. J., AND ANDREAE, M. O. Biomass burning in the tropics: impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science* 250 (1990), 1669–1678.
- [37] CUNNOLD, D. M., CHU, W. P., BARNES, R. A., MCCORMICK, M. P., AND VEIGA, R. E. Validation of SAGE II ozone measurements. *J. Geophys. Res.* 94 (1989), 8447–8460.
- [38] DE BEEK, R. *Bestimmung von Ozonvertikalprofilen aus Messungen des Satelliteninstrumentes GOME im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich*. Universität Bremen, 1998. Dissertation am Institut für Umweltphysik.
- [39] DE HAAN, J. F., BOSMA, P. B., AND HOVENIER, J. W. The adding method for multiple scattering calculations of polarized light. *Astron. Astrophys.* 183 (1987), 371–391.
- [40] DERRIEN, M. Influence of the size of field of view on the contamination by clouds. Tech. Rep. Contract No. 9239, Météo-France, 1992.
- [41] DEUTSCHE FORSCHUNGSANSTALT FÜR LUFT- UND RAUMFAHRT. *GO-ME Level 0 to 1 Algorithms Description* (1996). ER-TN-DLR-GO-0022.

- [42] DOBBER, M. GOME moon measurements, including instrument characterisation and moon albedo. In *Proc. 3rd ERS Symp. on Space at the Service of our Environment* (Florence, Italy, 17-21 March, 1997), European Space Agency, pp. 743–747.
- [43] DUCHOSSOIS, G., AND ZOBL, R. ERS-2: A continuation of the ERS-1 success. Reprint ESA Bulletin No. 83, 1995.
- [44] EICHMANN, K.-U. *Optimierung und Validierung des pseudo-sphärischen Strahlungstransportmodells GOMETRAN*. Universität Bremen, 1995. Diplomarbeit im Studiengang Physik.
- [45] EICHMANN, K.-U., BRAMSTEDT, K., WEBER, M., ROZANOV, V. V., HOOGEN, R., AND BURROWS, J. P. O₃ profiles from GOME satellite data - II: Observations in the Arctic spring 1997 and 1998. *Physics and Chemistry of the Earth* (1999). in press.
- [46] EICHMANN, K.-U., WEBER, M., BRAMSTEDT, K., HOOGEN, R., ROZANOV, V., AND BURROWS, J. P. Ozone profile distributions in the Arctic from GOME satellite observations during spring 1997 and 1998. In *Proc. SPIE* (1998), vol. 3495. paper no. 41.
- [47] EISINGER, M., AND BURROWS, J. P. Tropospheric sulfur dioxide observed by the ERS-2 GOME instrument. *Geophys. Res. Letters* 25 (1998), 4177–4180.
- [48] EISINGER, M., BURROWS, J. P., RICHTER, A., AND LADSTÄTTER-WEISSENMAYER, A. SO₂, OClO, BrO and other minor trace gases from the Global Ozone Monitoring Experiment (GOME). In *Proc. 3rd ERS Symp. on Space at the Service of our Environment* (Florence, Italy, 17-21 March, 1997), European Space Agency, pp. 675–680.
- [49] ENTZIAN, G., AND PETERS, D. Dynamically induced zonal asymmetric low ozone values in the North Atlantic-European region during March 1997. In *Proc. 4th European Symposium on Polar Stratospheric Ozone* (Schliersee, Germany, 22-26 September, 1997), pp. 36–39.
- [50] EUROPEAN COMMISSION. *European research in the stratosphere - The contribution of EASOE and SESAME to our current understanding of the ozone layer* (1997).
- [51] EUROPEAN SPACE AGENCY. *GOME Users Manual* (1995).
- [52] FARMAN, J. C., GARDINER, B. G., AND SHANKLIN, J. D. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction. *Nature* 315 (1985), 207–210.

- [53] FINLAYSON-PITTS, B. J., AND PITTS, J. N. *Atmospheric Chemistry*. John Wiley, Chichester, 1986.
- [54] FISCHER, J., CORDES, W., SCHMITZ-PFEIFFER, A., RENGER, W., AND MÖRL, P. Detection of cloud-top height from backscattered radiances within the oxygen A band. Part 2: Measurements. *J. Appl. Meteorol.* 30 (1991), 1260–1267.
- [55] FISCHER, J., AND GRASSL, H. Detection of cloud-top height from backscattered radiances within the oxygen A band. Part 1: Theoretical Study. *J. Appl. Meteorol.* 30 (1991), 1245–1259.
- [56] FISHMAN, J., BRACKETT, V. G., BROWELL, E. V., AND GRANT, W. B. Tropospheric ozone derived from TOMS/SBUV measurements during TRACE A. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 23865–23879.
- [57] FISHMAN, J., FAKHRUZZAMAN, K., CROS, B., AND NGANGA, D. Identification of widespread pollution in the southern hemisphere deduced from satellite analyses. *Science* 252 (1991), 1693–1696.
- [58] FORTUIN, J. P. F. An ozone climatology based on ozonesonde measurements. Sci. Rep. WR 96-07, KNMI, de Bilt, The Netherlands, 1996.
- [59] FORTUIN, J. P. F., AND KELDER, H. An ozone climatology based on ozonesonde and satellite measurements. *J. Geophys. Res.* (1998). in press.
- [60] FROIDEVAUX, L., READ, W. G., LUNGU, T. A., COFIELD, R. E., FISHBEIN, E. F., FLOWER, D. A., JARNOT, R. F., RIDENOURE, B. P., SHIPPONY, Z., WATERS, J. W., MARGITAN, J. J., MCDERMID, I. S., STACHNIK, R. A., PECKHAM, G. E., BRAATHEN, G., DESHLER, T., FISHMAN, J., HOFMANN, D. J., AND OLTMANS, S. J. Validation of UARS Microwave Limb Sounder ozone measurements. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 10017–10060.
- [61] GLEASON, J. Ozone profiles from SBUV/2 on NOAA satellites. persönliche Mitteilung, 1998.
- [62] GOODY, R. M., AND YUNG, Y. L. *Atmospheric Radiation*. Oxford University Press, New York, 1989.
- [63] GRAINGER, J. F., AND RING, J. Anomalous Fraunhofer line profiles. *Nature* 193 (1962), 762.
- [64] GRANT, W. B., BROWELL, E. V., FISHMAN, J., BRACKETT, V. G., VEIGA, R. E., NGANGA, D., MINGA, A., CROS, B., BUTLER, C. F., FENN, M. A., LONG, C. S., AND STOWE, L. L. Aerosol-associated changes

- in tropical stratospheric ozone following the eruption of Mount Pinatubo. *J. Geophys. Res.* 99 (1994), 8197–8211.
- [65] GREENBLATT, G. D., ORLANDO, J. J., BURKHOLDER, J. B., AND RAVISHANKARA, A. R. Absorption measurements of oxygen between 330 and 1140 nm. *J. Geophys. Res.* 95 (1990), 18577–18582.
- [66] GUZZI, R., CATTANI, E., CERVINO, M., LEVONI, C., TORRICELLA, F., KUROSU, T., AND BURROWS, J. P. GOME Cloud and Aerosol Data Products Algorithms Development (CADAPA). Tech. Rep. Final Report ESA Contract 11572/95/NL/CN, European Space Agency, 1998.
- [67] HANSEN, G., SVENØE, T., CHIPPERFIELD, M. P., DAHLBACK, A., AND HOPPE, U.-P. Evidence of substantial ozone depletion in winter 1995/96 over Northern Norway. *Geophys. Res. Letters* 24 (1997), 799–802.
- [68] HARRIS, N. R. P., ANCELLET, G., BISHOP, L., HOFMANN, D. J., KERR, J. B., MCPETERS, R. D., PRENDEZ, M., RANDEL, W. J., STAEHELIN, J., SUBBARAYA, B. H., VOLZ-THOMAS, A., ZAWODNY, J., AND ZEREFOS, C. S. Trends in stratospheric and free tropospheric ozone. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 1571–1590.
- [69] HEARN, C. H., AND JOENS, J. A. The near UV absorption spectrum of CS₂ and SO₂ at 300 K. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 45 (1991), 69–75.
- [70] HEATH, D. F., KRUEGER, A. J., AND PARK, H. The Solar Backscatter Ultraviolet (SBUV) and Total-Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Experiment. In *The Nimbus 7 User's Guide* (1978), NASA Goddard Space Flight Center, pp. 175–211.
- [71] HEATH, D. F., KRUEGER, A. J., ROEDER, H. R., AND HENDERSON, B. D. The Solar Backscatter Ultraviolet and Total Ozone Mapping Spectrometer (SBUV/TOMS) for Nimbus G. *Opt. Eng.* 14 (1975), 323–331.
- [72] HEATH, D. F., MATEER, C. L., AND KRUEGER, A. J. The Nimbus 4 backscattered ultraviolet (BUV) atmospheric ozone experiment - 2 years of operation. *Pure and Applied Geophysics* 1238 (1973), 106–108.
- [73] HEGELS, E., CRUTZEN, P. J., KLÜPFEL, T., PERNER, D., AND BURROWS, J. P. Global Ozone Monitoring Experiment, GOME: Global distribution of BrO. In *Proc. 3rd ERS Symp. on Space at the Service of our Environment* (Florence, Italy, 17-21 March, 1997), European Space Agency, pp. 681–685.

- [74] HILSEN RATH, E., CEBULA, R. P., DELAND, M. T., LAAMANN, K., TAYLOR, S., WELLEMAYER, C., AND BHARTIA, P. K. Calibration of the NOAA 11 solar backscatter ultraviolet (SBUV/2) ozone data set from 1989 to 1993 using in-flight calibration data and SSBUV. *J. Geophys. Res.* 100 (1995), 1351–1366.
- [75] HILSEN RATH, E., GLEASON, J., JANZ, S., GU, X., CEBULA, R. P., CHANCE, K., AND HOEKSTRA, R. GOME calibration and validation using backscatter UV techniques. In *Proc. Final results workshop of the GOME Geophysical Validation Campaign* (ESA-ESRIN, Frascati, Italy, 24-26 January, 1996), European Space Agency, pp. 85–91.
- [76] HILSEN RATH, E., WILLIAMS, D., AND FREDERICK, J. Calibration of long term data sets from operational satellites using the Space Shuttle. In *Proc. SPIE* (1988), vol. 924, pp. 215–222.
- [77] HOOD, L. L. The solar cycle variation of total ozone: Dynamical forcing in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 1355–1370.
- [78] HOOD, L. L., MCCORMACK, J. P., AND LABITZKE, K. An investigation of dynamical contributions to midlatitude ozone trends in winter. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 13079–13093.
- [79] HOOGEN, R. *Aerosol Parameterization in GOMETRAN++*. Institut für Umweltphysik, Universität Bremen, 1995. internal report.
- [80] HOOGEN, R. *Mie theory outline & IUPMIE user's guide*. Institut für Umweltphysik, Universität Bremen, 1995. internal report.
- [81] HOOGEN, R., ROZANOV, V., DE BEEK, R., BRAMSTEDT, K., EICHMANN, K.-U., WEBER, M., BUCHWITZ, M., KUROSU, T., AND BURROWS, J. P. Ozone profiles from GOME satellite data - Part I: Advances in retrieval algorithm development. In *Proc. 4th European Symposium on Polar Stratospheric Ozone* (Schliersee, Germany, 22-26 September, 1997), pp. 677–680.
- [82] HOOGEN, R., ROZANOV, V. V., BRAMSTEDT, K., EICHMANN, K.-U., WEBER, M., AND BURROWS, J. P. Validation of ozone profiles from GOME satellite data. In *Proc. SPIE* (1998), vol. 3495. paper no. 42.
- [83] HOOGEN, R., ROZANOV, V. V., BRAMSTEDT, K., EICHMANN, K.-U., WEBER, M., AND BURROWS, J. P. O₃ profiles from GOME satellite data - I: Comparison with ozonesonde measurements. *Physics and Chemistry of the Earth* (1999). in press.

- [84] HOOGEN, R., ROZANOV, V. V., AND BURROWS, J. P. Ozone profiles from GOME satellite data: Algorithm description and first validation. *J. Geophys. Res.* (1999). in press.
- [85] HUNT, B. Photochemistry of ozone in a moist atmosphere. *J. Geophys. Res.* 71 (1966), 1385.
- [86] JAMES, P. M. An interhemispheric comparison of ozone mini-hole climatologies. *Geophys. Res. Letters* 25 (1998), 301–304.
- [87] JOHNSTON, H. Reduction of stratospheric ozone by nitrogen oxide catalysts from supersonic transport exhaust. *Science* 173 (1971), 517–522.
- [88] JONES, R. L., AND MACKENZIE, A. R. Observational studies of the role of polar regions in midlatitude ozone loss. *Geophys. Res. Letters* 22 (1995), 3485–3488.
- [89] KNEIZYS, F. X., SHETTLE, E. P., ABREU, L. W., CHETWYND, J. H., ANDERSON, G. P., GALLERY, W. O., SELBY, J. E. A., AND CLOUGH, S. A. Users Guide to LOWTRAN 7. Tech. rep., Air Force Geophysics Laboratory AFGL, 1986.
- [90] KOMHYR, W. D. Electrochemical concentration cells for gas analysis. *Annales Geophysicae* 25 (1969), 203–210.
- [91] KOWOL-SANTEN, J., LIPPERT, E., MEYER, R., AND EBEL, A. Estimation of cross-tropopause air mass and ozone fluxes using different methods. In *Proc. 4th European Symposium on Polar Stratospheric Ozone* (Schliersee, Germany, 22–26 September, 1997), pp. 43–46.
- [92] KOZLOV, V. Design von Experimenten im Zusammenhang mit dem Inversionsproblem der mathematischen Physik. Kapitel 9 in *Mathematische Theorie der Planung von Experimenten*, C. M. Ermakov (Ed.), Nauka-Verlag, Moskau, 1983. in Russisch.
- [93] KRUEGER, A. J., WALTER, L. S., BHARTIA, P. K., SCHNETZLER, C. C., KROTKOV, N. A., SPROD, E., AND BLUTH, G. J. S. Volcanic sulfur dioxide measurements from the total ozone mapping spectrometer instruments. *J. Geophys. Res.* 100 (1995), 14057–14076.
- [94] KUROSU, T. *Die Modellierung des Strahlungstransports in Wolken für atmosphärische Fernerkundung im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich*. Universität Bremen, 1997. Dissertation am Institut für Umweltphysik.

- [95] KUROSU, T. PMD cloud detection algorithm for the GOME instrument. Tech. Rep. Annex to the ESA CADAPA Study Contract No. 11572/95/NL/CN, European Space Agency, 1998.
- [96] KUROSU, T., ROZANOV, V. V., AND BURROWS, J. P. Parameterization schemes for terrestrial water clouds in the radiative transfer model GOMETRAN. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 21809–21823.
- [97] LABITZKE, K., AND VAN LOON, H. Trends of temperature and geopotential height between 100 and 10 hPa on the northern hemisphere. *J. Meteorol. Soc. Jap.* 72 (1994), 643–647.
- [98] LACIS, A. A., CHOWDHARY, J., MISHCHENKO, M. I., AND CAIRNS, B. Modeling errors in diffuse-sky radiation: Vector vs. scalar treatment. *Geophys. Res. Letters* 25 (1998), 135–138.
- [99] LAMBERT, J.-C., VAN ROOZENDAEL, M., MÜLLER, J.-F., SIMON, P. C., DE MAZIÈRE, M., POMMERAU, J.-P., GOUTAIL, F., SARKISSIAN, A., DENIS, L., DOROKHOV, V., ERIKSEN, P., KYRO, E., LEVEAU, J., ROSCOE, H. K., ARLANDER, W., TELLEFSEN, C. W., AND VAUGHAN, G. Pole-to-pole validation of the ERS-2 GOME level 2 products with the SAOZ ground-based network. In *Proc. 3rd ERS Symp. on Space at the Service of our Environment* (Florence, Italy, 17-21 March, 1997), European Space Agency, pp. 629–636.
- [100] LAMBERT, J.-C., VAN ROOZENDAEL, M., PEETERS, P., SIMON, P. C., BRAATHEN, G., CLAUDE, H., DE LA NOË, J., GOUTAIL, F., POMMERAU, J.-P., MERIENNE, M.-F., BARBE, A., STAEHELIN, J., AND VAUGHAN, G. Validation of ERS-2 GOME ozone products with the ND-SC/alpine stations. In *Proc. 3rd ERS Symp. on Space at the Service of our Environment* (Florence, Italy, 17-21 March, 1997), European Space Agency, pp. 729–732.
- [101] LANGER, J., KLEIN, U., RAFFALSKI, U., SCHWAAB, G. W., SINNHUBER, B.-M., AND KÜNZI, K. F. A versatile millimeter-wave radiometer for spectroscopic measurements of atmospheric trace gases. In *Proc. 18th Quadrennial Ozone Symposium* (l'Aquila, Italy, 1996), pp. 931–934.
- [102] LENOBLE, J. *Radiative Transfer in Scattering and Absorbing Atmospheres*. A. Deepak Publishing, Hampton, Virginia, 1985.
- [103] LIOU, K.-N. *An Introduction to Atmospheric Radiation*. Academic Press, San Diego, 1980.
- [104] LIPPMANN, M. Health effects of tropospheric ozone. *Environmental Science and Technology* 25 (1991), 1954–1961.

- [105] LOEB, N. G., AND DAVIES, R. Observational evidence of plane parallel model biases: Apparent dependence of cloud optical depth on solar zenith angle. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 1621–1634.
- [106] MANNEY, G. L., FROIDEVAUX, L., SANTEE, M. L., ZUREK, R. W., AND WATERS, J. W. MLS observations of Arctic ozone loss in 1996-97. *Geophys. Res. Letters* 24 (1997), 2697–2700.
- [107] MATEER, C. L. A review of some aspects of inferring the ozone profile by inversion of ultraviolet radiance measurements. In *The Mathematics of Profile Inversion, NASA TMX-62*, L. Colin, Ed. NASA Ames Res. Cent., Moffett Field, Calif., 1971, p. 2.
- [108] MCCORMACK, J. P., AND HOOD, L. L. Apparent solar cycle variations of upper stratospheric ozone and temperature: Latitude and seasonal dependences. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 20933–20944.
- [109] MCCORMACK, J. P., AND HOOD, L. L. The frequency and size of ozone mini-hole events at northern midlatitudes in February. *Geophys. Res. Letters* 24 (1997), 2647–2650.
- [110] MCELROY, M. B., SALAWITCH, R. J., WOFSY, S. C., AND LOGAN, J. A. Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine. *Nature* 321 (1986), 759–762.
- [111] MCPETERS, R. D. Climatology of nitric oxide in the upper stratosphere, mesosphere and thermosphere: 1979 through 1986. *J. Geophys. Res.* 94 (1989), 3461–3472.
- [112] MENKE, W. *Geophysical Data Analysis: Discrete Inverse Theory*. Academic Press, San Diego, 1989.
- [113] MISHCHENKO, M. I., LACIS, A. A., AND TRAVIS, L. D. Errors induced by the neglect of polarization in radiance calculations for Rayleigh-scattering atmospheres. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 51 (1994), 491–510.
- [114] MOLINA, L., AND MOLINA, M. Production of Cl_2O_2 from self-reaction of the ClO radical. *J. Phys. Chem.* 91 (1987), 433–436.
- [115] MOLINA, M. J., AND ROWLAND, F. Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom-catalysed destruction of ozone. *Nature* 249 (1974), 810–812.
- [116] MÜLLER, R., CRUTZEN, P. J., GROOSS, J.-U., BRÜHL, C., RUSSELL, J. M., GERNANDT, H., MCKENNA, D. S., AND TUCK, A. F. Record

- chemical ozone loss in the Arctic during the winter of 1995-1996. *Nature* 389 (1997), 709–712.
- [117] NASA/JPL. *Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling. Evaluation number 10*, 1992.
- [118] NEWMAN, P. A., GLEASON, J. F., MCPETERS, R. D., AND STOLARSKI, R. S. Anomalously low ozone over the Arctic. *Geophys. Res. Letters* 24 (1997), 2689–2692.
- [119] NEWMAN, P. A., LAIT, L. R., AND SCHOEBERL, M. R. The morphology and meteorology of southern hemisphere spring total ozone mini-holes. *Geophys. Res. Letters* 15 (1988), 923–926.
- [120] O'CONNOR, F. M., AND VAUGHAN, G. Irreversible transport of subtropical tropospheric air into the northern mid-latitude lower stratosphere during March 1997. In *Proc. 4th European Symposium on Polar Stratospheric Ozone* (Schliersee, Germany, 22-26 September, 1997), pp. 54–57.
- [121] OLTMANS, S. J., LEFOHN, A. S., SCHEEL, H. E., HARRIS, J. M., II, H. L., GALBALLY, I. E., BRUNKE, E.-G., MEYER, C. P., LATHROP, J. A., JOHNSON, B. J., SHADWICK, D. S., CUEVAS, E., SCHMIDLIN, F. J., TARASICK, D. W., CLAUDE, H., KERR, J. B., OCHINO, O., AND MOHNEN, V. Trends of ozone in the troposphere. *Geophys. Res. Letters* 25 (1998), 139–142.
- [122] PEETERS, P., SIMON, P. C., ROTTMANN, G., AND WOODS, T. N. UARS SOLSTICE data as a calibration and validation of GOME. In *Proc. Final results workshop of the GOME Geophysical Validation Campaign* (ESA-ESRIN, Frascati, Italy, 24-26 January, 1996), European Space Agency, pp. 75–83.
- [123] PERNER, D., KLÜPFEL, T., HEGELS, E., CRUTZEN, P. J., AND BURROWS, J. P. First results on tropospheric observations by the Global Ozone Monitoring Experiment, GOME, on ERS-2. In *Proc. 3rd ERS Symp. on Space at the Service of our Environment* (Florence, Italy, 17-21 March, 1997), European Space Agency, pp. 647–652.
- [124] PERNER, D., AND PLATT, U. Detection of nitrous acid in the atmosphere by differential optical absorption. *Geophys. Res. Letters* 6 (1979), 917–920.
- [125] PETZOLD, K., NAUJOKAT, B., AND NEUGEBOHREN, K. Correlation between stratospheric temperature, total ozone, and tropospheric weather systems. *Geophys. Res. Letters* 21 (1994), 1203–1206.

- [126] PLATT, U., AND PERNER, D. Direct measurement of atmospheric HCHO, HONO, O₃, NO₂ and SO₂ by differential optical absorption in the near UV. *J. Geophys. Res.* 85 (1980), 7453.
- [127] PRESS, W., TEUKOLSKY, S., VETTERLING, W., AND FLANNERY, B. *Numerical Recipes in Fortran*. Cambridge University Press, London, 1992.
- [128] PUNDT, I., POMMEREAU, J. P., PHILLIPS, C., AND LATELTIN, E. Upper limit of iodine oxide in the lower stratosphere. *J. Atmos. Chem.* (1997). in press.
- [129] REBER, C. A. The Upper Atmosphere Research Satellite (UARS). *Geophys. Res. Letters* 20 (1993), 1215–1218.
- [130] RODGERS, C. D. Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation. *Rev. Geophys. Space Phys.* 14 (1976), 609–624.
- [131] RODGERS, C. D. Characterization and error analysis of profiles retrieved from remote sounding measurements. *J. Geophys. Res.* 95 (1990), 5587–5595.
- [132] RODGERS, C. D. Information content and optimisation of high spectral resolution measurements. In *Proc. SPIE* (1996), vol. 2830, pp. 136–147.
- [133] RODGERS, C. D. Inverse methods for atmospheric sounding: Theory and practise. unveröffentlichtes Manuskript, 1997.
- [134] ROSSOW, W. B., AND GARDER, L. C. Cloud detection using satellite measurements of infrared and visible radiances for ISCCP. *J. Climate* 6 (1993), 2341–2369.
- [135] ROSSOW, W. B., AND GARDER, L. C. Validation of ISCCP cloud detection. *J. Climate* 6 (1993), 2370–2393.
- [136] ROSSOW, W. B., AND SCHIFFER, R. A. ISCCP cloud data products. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* 72 (1991), 2–20.
- [137] ROSSOW, W. B., AND ZHANG, Y.-C. Calculation of surface and top of atmosphere radiative fluxes from physical quantities based on ISCCP data sets: 2. Validation and first results. *J. Geophys. Res.* 100 (1995), 1167–1197.
- [138] ROZANOV, V. V., DIEBEL, D., SPURR, R. J. D., AND BURROWS, J. P. GOMETRAN: A radiative transfer model for the satellite project GOME, the plane-parallel version. *J. Geophys. Res.* 102 (1997), 16683–16695.

- [139] ROZANOV, V. V., KUROSU, T., AND BURROWS, J. P. Retrieval of Atmospheric Constituents in the UV-Visible: A New Quasi-Analytical Approach for the Calculation of Weighting Functions. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 60 (1998), 277–299.
- [140] RUSSELL, J. M., GORDLEY, L. L., PARK, J. H., DRAYSON, S. R., HESKETH, W. D., CICERONE, R. J., TUCK, A. F., FREDERICK, J. E., HARRIES, J. E., AND CRUTZEN, J. P. The Halogen Occultation Experiment. *J. Geophys. Res.* 98 (1993), 10777–10797.
- [141] SALBY, M. L., AND CALLAGHAN, P. F. Fluctuations of total ozone and their relationship to stratospheric air motions. *J. Geophys. Res.* 98 (1993), 2715–2727.
- [142] SHANNON, C. E., AND WEAVER, W. *The Mathematical Theory of Communication*. University of Illinois Press, 1949.
- [143] SHEFOV, N. N. Spectroscopic, photoelectric, and radar investigations of aurorae and the nightglow. *Izd. Akad. Nauk I* (1959). in Russisch.
- [144] SHIOTANI, M. Annual, Quasi-Biennial, and El Niño-Southern Oscillation (ENSO) time-scale variations in equatorial total ozone. *J. Geophys. Res.* 97 (1992), 7625–7633.
- [145] SINGER, S. F., AND WENTWORTH, R. C. A method for the determination of the vertical ozone distribution from a satellite. *J. Geophys. Res.* 62 (1957), 299–308.
- [146] SINNHUBER, B.-M., LANGER, J., KLEIN, U., RAFFALSKI, U., AND KÜNZI, K. Ground based millimeter-wave observations of Arctic ozone depletion during winter and spring of 1996/97. *Geophys. Res. Letters* 25 (1998), 3227–3330.
- [147] SOLOMON, S., GARCIA, R. R., AND RAVISHANKARA, A. R. On the role of iodine in ozone depletion. *J. Geophys. Res.* 99 (1994), 20491–20499.
- [148] SOLOMON, S., PORTMAN, R. W., GARCIA, R. R., THOMASON, L. W., POOLE, L. R., AND MCCORMICK, M. P. The role of aerosol trends and variability in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes. *J. Geophys. Res.* 101 (1996), 6713–6727.
- [149] STAMMES, P. Errors in UV reflectivity and albedo calculations due to neglecting polarization. In *Proc. SPIE* (1994), vol. 2311, pp. 227–235.
- [150] STAMMES, P., DE HAAN, J. F., AND HOVENIER, J. W. The polarized internal radiation field of a planetary atmosphere. *Astron. Astrophys.* 225 (1989), 239–259.

- [151] STAMMES, P., STAM, D. M., KOELEMMEIJER, R. B. A., AND ABEN, I. Validation of GOME polarisation and radiance measurements. In *Proc. Final results workshop of the GOME Geophysical Validation Campaign* (ESA-ESRIN, Frascati, Italy, 24-26 January, 1996), European Space Agency, pp. 41–50.
- [152] STEINBRECHT, W., CLAUDE, H., KÖHLER, U., AND HOINKA, K. P. Correlations between tropopause height and total ozone: Implications for long-term changes. *J. Geophys. Res.* (1998). in press.
- [153] STEINBRECHT, W., WINKLER, P., AND CLAUDE, H. *Ozon- und Temperaturmessungen mittels Lidar am Hohenpeißenberg*, vol. 200 of *Ber. d. Dt. Wetterd.* DWD, Offenbach a. M., 1997.
- [154] STOLARSKI, R., AND CICERONE, R. Stratospheric chlorine: a possible sink for ozone. *Can. J. Chem.* 52 (1974), 1610.
- [155] STOLARSKI, R., KRUEGER, A., SCHOEBERL, M., MCPETERS, R., NEWMAN, P., AND ALPERT, J. Nimbus-7 satellite measurements of the springtime antarctic ozone decrease. *Nature* 322 (1986), 808–811.
- [156] TSOU, J.-J., CONNOR, B. J., PARRISH, A., MCDERMID, I. S., AND CHU, W. P. Ground-based microwave monitoring of middle atmosphere ozone: Comparison to lidar and Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II satellite observations. *J. Geophys. Res.* 100 (1995), 3005–3016.
- [157] TUNG, K. K., AND YANG, H. Dynamic variability of column ozone. *J. Geophys. Res.* 93 (1988), 11123–11128.
- [158] TWOMEY, S. *Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements*. Elsevier Scientific Publishing Comp., Amsterdam, 1977.
- [159] VAN DE HULST, H. C. *Light Scattering by Small Particles*. Dover Publications, New York, 1981.
- [160] VEIGA, R. E., CUNNOLD, D. M., CHU, W. P., AND MCCORMICK, M. P. Stratospheric aerosol and gas experiments I and II comparisons with ozonesondes. *J. Geophys. Res.* 100 (1995), 9073–9090.
- [161] VOUNTAS, M., ROZANOV, V. V., AND BURROWS, J. P. Ring effect: Impact of rotational Raman scattering on radiative transfer in earth's atmosphere. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 60 (1998), 943–961.
- [162] WAHNER, A., RAVISHANKARA, A. R., SANDER, S. P., AND FRIEDL, R. R. Absorption cross sections of BrO between 312 and 385 nm at 298 K and 223 K. *Chem. Phys. Lett.* 152 (1988), 507–512.

- [163] WAHNER, A., TYNDALL, G. S., AND RAVISHANKARA, A. R. Absorption cross sections for OClO as a function of temperature in the wavelength range 240-480 nm. *J. Phys. Chem.* 91 (1987), 2734–2738.
- [164] WARREN, S., HAHN, C., LONDON, J., CHERVIN, R., AND JENNE, R. Global distribution of total cloud cover and cloud type amounts over land. Tech. Rep. NCAR/TN-273 + STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, 1986.
- [165] WARREN, S., HAHN, C., LONDON, J., CHERVIN, R., AND JENNE, R. Global distribution of total cloud cover and cloud type amounts over the ocean. Tech. Rep. NCAR/TN-317 + STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, 1988.
- [166] WAUGH, D. W., PLUMB, R. A., ATKINSON, R. J., SCHOEBERL, M. R., LAIT, L. R., NEWMAN, P. A., LOEWENSTEIN, M., TOOHEY, D. W., AVALLONE, L. M., WEBSTER, C. R., AND MAY, R. D. Transport out of the lower stratospheric Arctic vortex by Rossby wave breaking. *J. Geophys. Res.* 99 (1994), 1071–1088.
- [167] WAYNE, R. P. *Chemistry of Atmospheres*, second ed. Clarendon Press, Oxford, 1991.
- [168] WEBER, M., BURROWS, J. P., AND CEBULA, R. P. GOME solar UV/VIS irradiance measurements between 1995 and 1997 - First results on proxy solar activity studies. *Solar Physics* 177 (1998), 63–77.
- [169] WEN, G., FREDERICK, J. E., AND HILSENATH, E. Pinatubo aerosols and the behaviour of ozone inferred from backscatter ultraviolet measurements on the space shuttle. *J. Geophys. Res.* 100 (1995), 18855–18862.
- [170] WISCOMBE, W. J. Mie scattering calculations: Advances in technique and fast, vector-speed computer codes. Tech. Rep. TN-140+STR, National Center for Atmospheric Research NCAR, Boulder, Colorado, 1979.
- [171] WOFSY, S., MCELROY, M., AND YUNG, Y. The chemistry of atmospheric bromine. *Geophys. Res. Letters* 2 (1975), 215–218.
- [172] WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION. *Report on the experts meeting on aerosols and their climatic effects*. WMO, 1983. Report No. 55.
- [173] WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION. *Scientific assessment of ozone depletion: 1994*. WMO, 1995. Global Ozone Research and Monitoring Project - Report No. 37.

-
- [174] YAMAMOTO, G., AND WARK, D. Q. Discussion of the letter by R. A. Hanel, „Determination of cloud altitude from a satellite“. *J. Geophys. Res.* 66 (1961), 3596.
- [175] YOUNG, A. T. On the Rayleigh-scattering optical depth of the atmosphere. *J. Appl. Meteorol.* 20 (1981), 328–330.
- [176] ZEGE, E. P., AND CHAIKOVSKAYA, L. I. New approach to the polarized radiative transfer problem. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 55 (1996), 19–31.

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, die diese Arbeit ermöglicht und ihre Durchführung erleichtert haben.

- *Prof. Dr. John P. Burrows* danke ich für die Überlassung des interessanten Themas. Die Vielfalt der innerhalb der Arbeitsgruppe bearbeiteten Themengebiete ermöglichte mir die Erweiterung des Horizonts über den eigenen Arbeitsschwerpunkt hinaus und trug so zu einer anregenden Arbeitsatmosphäre bei. Auch die zahlreichen Gelegenheiten, auf Konferenzen die eigene Arbeit zu präsentieren und sich mit anderen Wissenschaftlern auszutauschen, waren sehr motivierend.
- Wichtigster Ansprechpartner in allen Fragen des Strahlungstransports und der Inversionstheorie war *Dr. Vladimir Rozanov*, der auf diesen Gebieten über einen Erfahrungsschatz verfügt, von dem man als junger Wissenschaftler nur profitieren kann.
- Mit *Rüdiger de Beek* hatte ich einen sehr angenehmen Bürokollegen, mit dem ich viele interessante Diskussionen über fachliche, aber auch andere weltbewegende Themen führen konnte.
- *Klaus Bramstedt* und *Hans Altmeyer* leisteten wichtige Unterstützung bei der Vorbereitung der *GOME*-Spektren für die Auswertung.
- *Michael Buchwitz*, *Michael Eisinger* und *Dr. Vladimir Rozanov* haben diese Arbeit sorgfältig Korrektur gelesen und viele hilfreiche Kommentare beigesteuert.
- *Ulrike Esser-Frerick* half bei der Ausmerzungen der Rechtschreibfehler.
- Meinen Eltern danke ich für die moralische und materielle Unterstützung während des Studiums und der Promotionszeit.
- Nicht unerwähnt bleiben soll *Alexander*, der seit dem ersten Studiensemester alle Höhen und Tiefen des Studenten- und Doktorandendaseins mir erlebt hat und zum wichtigsten Menschen in meinem Leben geworden ist.

Bremen, im September 1998

Liste der Veröffentlichungen

Fachzeitschriften:

- J. P. Burrows, M. Weber, M. Buchwitz, V. V. Rozanov, A. Ladstätter-Weißmayer, A. Richter, R. de Beek, R. Hoogen, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, and M. Eisinger, The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission Concept and First Scientific Results, *J. Atmos. Sci.*, **56**, pp. 151-175, 1999.
- K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, M. Weber, V. V. Rozanov, R. Hoogen, and J. P. Burrows, O₃ profiles from GOME satellite data - II: Observations in the Arctic spring 1997 and 1998, *Physics and Chemistry of the Earth*, 1999, in press.
- R. Hoogen, V. Rozanov, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, R. de Beek, M. Buchwitz, and J. Burrows, Height-resolved ozone information from GOME data, ESA Earth Observation Quarterly No. 58 (GOME Special), pp. 9-10, 1998, <http://esapub.esrin.esa.it/eoq/eoq58.htm>.
- R. Hoogen, V. V. Rozanov, and J. P. Burrows, Ozone profiles from GOME satellite data: Algorithm description and first validation, *J. Geophys. Res.*, 1999, in press.
- R. Hoogen, V. V. Rozanov, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, and J. P. Burrows, O₃ profiles from GOME satellite data - I: Comparison with ozonesonde measurements, *Physics and Chemistry of the Earth*, 1999, in press.

Konferenzbeiträge:

- K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, V. Rozanov, R. Hoogen, R. de Beek, M. Buchwitz, T. Kurosu, and J. P. Burrows, Ozone profiles from GOME satellite data - Part II: First results from the arctic winter campaign, Proc. 4th European Symposium on Polar stratospheric ozone, Schliersee, Germany, 22-26 September 1997, European Commission Air Pollution Research Report No. 66, pp. 189-192.

- J. P. Burrows, M. Weber, K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, A. Richter, R. Hoogen, A. Ladstätter-Weißmayer, and M. Buchwitz, GOME/ERS-2 total O₃ and NO₂ measurements during Arctic spring 1996 and 1997, Proc. 4th European Symposium on Stratospheric Ozone Research, Schliersee, Germany, 22-26 September 1997, European Commission Air Pollution Research Report No. 66, pp. 419-422.
- R. de Beek, R. Hoogen, V. V. Rozanov, and J. P. Burrows, Ozone Profile Retrieval from GOME Satellite Data I: Algorithm Description, Proc. 3rd ERS Symposium, Florence, Italy, 1997, ESA-SP-414, pp. 749-754.
- K.-U. Eichmann, K. Bramstedt, R. de Beek, R. Hoogen, M. Weber, V. Rozanov, and J. P. Burrows, Ozone Profile Retrieval from GOME Satellite Data II: Validation and Applications, Proc. 3rd ERS Symposium, Florence, Italy, 14-21 March 1997, ESA-SP-414, pp. 755-758.
- K.-U. Eichmann, M. Weber, K. Bramstedt, R. Hoogen, V. V. Rozanov, and J. P. Burrows, Ozone profile distributions in the Arctic from GOME satellite observations during spring 1997 and 1998, *Proc. SPIE*, **3495**, paper no. 41, 1998.
- R. Hoogen, V. Rozanov, R. de Beek, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, M. Buchwitz, T. Kurosu, and J. P. Burrows, Ozone profiles from GOME satellite data - Part I: Advances in retrieval algorithm development, Proc. 4th European Symposium on Polar stratospheric ozone, Schliersee, Germany, 22-26 September 1997, European Commission Air Pollution Research Report No. 66, pp. 677-680.
- R. Hoogen, V. V. Rozanov, K. Bramstedt, K.-U. Eichmann, M. Weber, and J. P. Burrows, Validation of ozone profiles from GOME satellite data, *Proc. SPIE*, **3495**, paper no. 42, 1998.
- A. Ladstätter-Weißmayer, R. De Beek, M. Buchwitz, J. P. Burrows, M. Eisinger, R. Hoogen, A. Richter, V. V. Rozanov, and F. Wittrock: GOME: Update (Global Ozone Monitoring Experiment), Proc. 3rd European Workshop on Polar Stratospheric Ozone, Schliersee, Germany, 18-22 September 1995, European Commission Air Pollution Research Report No. 56, pp. 827-832.

Lebenslauf

Persönliche Daten:

Name Ricarda Hoogen
geboren am 16.11.1968 in München

Schulbildung:

1979 - 1988 Gymnasium Unterhaching

Abschluß: Abitur

Studium:

11/88 - 06/94 Studium der Physik mit Nebenfach Meteorologie
an der Ludwig-Maximilians-Universität, München

Abschluß: Diplom

Thema der Diplomarbeit:
„Fernerkundung des atmosphärischen Aerosols
mit einem bodengestützten Rückstreulidar“

Berufliche Tätigkeiten:

07/94-12/94 wissenschaftliche Mitarbeiterin (Gruppe Prof. Quenzel)
am Meteorologischen Institut der Universität München

Arbeitsgebiet: Simulation der bodennahen UV-Strahlung

01/95-12/95 Promotionsstipendium der Universität Bremen

seit 01/96 wissenschaftliche Mitarbeiterin (Gruppe Prof. Burrows)
am Institut für Umweltphysik der Universität Bremen

Aufgabenbereiche:

Lehrtätigkeit im Bereich Atmosphärenphysik und -chemie

Entwicklung von Auswertalgorithmen im Rahmen des
Satellitenprojekts GOME

Im Rahmen dieser Tätigkeit entstand die vorliegende Dissertation.