

Berichte des Deutschen Wetterdienstes

184

Ozonstudien am Hohenpeißenberg

von
Winfried Vandersee, Klaus Wege, Elmar Weigl
und Hans Claude

Diese Veröffentlichung ist der Abschlußbericht eines vom Bundesminister für Forschung und Technologie geförderten Forschungsprojektes „Untersuchungen zur Ozonkonzentration in orographisch gegliedertem Gelände, zum täglichen Ozongang und zu möglichen Trends“ (Förderkennzeichen 0744 114). Projektträger war das Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH (GSF) in München. Projektleiter war Dr. K. Wege. Die Veröffentlichung des Berichts ist vom Projektträger genehmigt.

Anschriften der Verfasser:

Dipl.-Met. Winfried Vandersee
Dr. Klaus Wege
Dipl.-Met. Hans Claude
Deutscher Wetterdienst
Meteorologisches Observatorium
Hohenpeißenberg
Albin-Schwaiger-Weg 10
8126 Hohenpeißenberg

Dipl.-Met. Elmar Weigl
Deutscher Wetterdienst
Zentralamt, Abt.K
Frankfurter Straße 135
6050 (63067) Offenbach

ISSN 0072-4130

ISBN 3-88148-284-9

Mit der Annahme des Manuskripts und seiner Veröffentlichung durch den Deutschen Wetterdienst geht das Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder einschließlich des Rechts der photomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung an den Deutschen Wetterdienst über. Für den Inhalt sind die Verfasser verantwortlich.

Herausgeber und Verlag:

Deutscher Wetterdienst
Zentralamt
Frankfurter Str. 135
D-6050 (63067) Offenbach a. M.

Inhalt

	Seite
Zusammenfassung/Abstract	5
1 Einleitung	7
2 Trend in der freien Atmosphäre	8
2.1 Einführung	8
2.2 Ergebnisse der Sondierungen	11
2.3 Gesamtozon	22
3 Ozonklimatologie und -phänomenologie	26
3.1 Der Zusammenhang zwischen Gesamtozon und Ozon sowie Temperatur in der jeweiligen Höhe	26
3.2 Ozon an der Tropopause bei winterlichen Hoch- und Tiefdrucklagen	34
3.3 Ozon im Höhenbereich zwischen 35 und 50 km	37
3.4 Extrem niedrige Gesamtozonwerte über Nord- und Mitteleuropa und möglicher begrenzter Ozonabbau durch heterogene Prozesse am 1. Februar 1989	41
3.5 Serienaufstiege während einer Photosmogepisode	44
4 Bodennahes Ozon	47
4.1 Einführung	47
4.2 Trend des bodennahen Ozons	51
4.3 Die Abhängigkeit der Ozonkonzentration in Bodennähe von der Wind- richtung	57
4.4 Der Zusammenhang zwischen Strahlung und bodennahem Ozon	63
4.4.1 Jahregänge und spektrale Untersuchung der Reihen	65
4.4.2 Elimination der Jahregänge	69
4.4.3 Diskussion der Korrelationen von Monatswerten	73
4.4.4 Diskussion der Korrelationen von Tageswerten	76
4.4.5 Untersuchung spezieller Sommermonate	78
4.4.6 Schlußfolgerungen	81
4.5 Bodennahes Ozon in Abhängigkeit von Nebel- und Talnebellagen im Winter	82

4.6	Ozonkonzentration im Mai 1989	86
4.6.1	Abhängigkeit der Ozonkonzentration und des Tagesgangs vom Wind	87
4.6.2	Fanden stratosphärische Intrusionen während dieses Monats statt?	95
4.7	Vergleich zwischen Lichtenau, Hohenpeißenberg und Laber	99
5	Vergleichsaufstiege mit der „Bonner“ Chemilumineszenzsonde	106
6	Abschlußbetrachtung	108
7	Danksagung	109
8	Literatur	110

Zusammenfassung

Im vorliegenden Bericht werden die am Hohenpeißenberg durchgeführten Ozonmessungen nach verschiedenen Aspekten ausgewertet und auch mit in der Umgebung gewonnenen Daten verglichen.

Ergebnisse zum Ozontrend in der freien Atmosphäre sind im Kapitel 2 dargelegt, zum einen getrennt für Stratosphäre und Troposphäre, zum anderen für die gesamte Atmosphäre, basierend auf den Gesamttozonmessungen. Die Trends beim bodennahen Ozon werden im Kapitel 4 behandelt. In der Stratosphäre beträgt der Trend - 0.5 % pro Jahr, in der freien Troposphäre + 2 % und in Bodennähe ca. 1 % pro Jahr. Beim Gesamttozon ist im Sommer ein sehr geringer, nicht signifikanter Trend vorhanden, im Winter ist der negative Trend signifikant.

Daneben wurden auch die bisher gewonnenen Lidar-Daten einer ersten klimatologischen Auswertung unterzogen. Auf diese Ergebnisse wird ebenso in Kapitel 3 eingegangen wie auf den Zusammenhang zwischen Ozon, Gesamttozon und Temperatur in Bezug auf den Jahresgang und die quasi zweijährige Oszillation. Weiterhin wurde die Variation der Konzentration an der Tropopause im Winter in Abhängigkeit von Hoch- und Tiefdrucklagen untersucht. Ein Fall möglichen Ozonabbaus durch heterogene Prozesse wird dargestellt.

Kapitel 4 befaßt sich mit den Ergebnissen bezüglich des bodennahen Ozons. Im einzelnen sind dabei die Trenduntersuchungen mit einer Homogenitätsbetrachtung der Bodenozone, die Windrichtungsabhängigkeit der bodennahen Ozonkonzentration, der Zusammenhang zwischen Strahlung und Ozon sowie der Unterschied der Ozonkonzentration bei Wetterlagen, bei denen das Observatorium in Wolken oder oberhalb einer Inversion ist, zu nennen. Des Weiteren wird auf Untersuchungen von bestimmten Ozonepisoden eingegangen mit besonderem Augenmerk auf die Abhängigkeit der Ozonkonzentration von der Höhenlage. Im Rahmen dieses Projektes wurde ein Ozonmeßgerät in der Lichtenau (610 m über NN) am Fuße des Hohenpeißenbergs aufgestellt, so daß mit der Meßstation auf dem Laber (1684 m über NN) die Variation der Ozonkonzentration in orographisch gegliedertem Gelände gut erfaßt werden kann.

Im Rahmen dieses Projektes wurden zur Erprobung der "Bonner"-Sonde, die besonders im Höhenbereich über 35 km die Ozonkonzentration messen soll, Vergleichsaufstiege durchgeführt. Hierauf wird kurz in Kapitel 5 eingegangen. Eine ausführlichere Darstellung findet sich bei SPEUSER und SCHURATH (1991).

Summary

In this report the ozone measurements carried out at Hohenpeissenberg will be evaluated under various aspects and will be compared with data obtained in the surrounding area.

Results regarding the ozone trends in the free atmosphere are presented in chapter 2, first for the stratosphere and the troposphere separately, and then for the total atmosphere, based on total ozone measurements. The trends for ground-level ozone are covered in chapter 4. In the stratosphere the trend amounts to -0,5% per year, in the free troposphere to +2%, and at ground-level to approximately 1% per year. For total ozone there is a very small, insignificant trend in summer, while in winter there is a significant negative trend.

In addition, the Lidar data collected up to now have been subjected to an initial climatological analysis. These results are discussed in chapter 3, as well as the relationships among ozone, total ozone and temperature with regard to the season and to the quasi biennial oscillation. Furthermore, the variation of the ozone concentration near the tropopause in winter was examined with respect to tropospheric high- and low-pressure situations. A case of possible decrease of ozone by heterogenous processes is presented.

Chapter 4 deals with the results concerning ground-level ozone. This includes examination of the trends in the ground-level ozone series with regard to homogeneity, the dependence of ground-level ozone on wind direction, the relationship between radiation and ozone as well as the differences in ozone concentration during weather situations in which the observatory is in cloud or is above an inversion. Furthermore, certain ozone episodes are examined with particular regard to the dependence of the ozone concentration on altitude. Within the framework of this project, an ozone-measuring instrument was positioned at Lichtenau (610 m above sea level) at the foot of Hohenpeissenberg, so that, with the measuring station at Laber (1684 m above sea level), the variation in ozone concentration in orographically organized areas can be understood properly.

In the framework of this project comparison ascents were carried out to test the "Bonner" sonde, which is to measure ozone concentration particularly above an altitude of 35 km. This is covered in chapter 5. A more detailed presentation can be found in SPEUSER and SCHURATH (1991).

1. Einleitung

Ozon ist eines der bedeutendsten atmosphärischen Spurengase, sein Beitrag zur Masse der Atmosphäre ist jedoch äußerst gering. Würde man die gesamte Ozonmenge am Erdboden konzentrieren, erhielte man eine Schicht, deren Dicke etwa 2,5 bis 4,5 mm beträgt. Der allergrößte Teil ist über die Troposphäre und die Stratosphäre verteilt, wobei sich der Hauptanteil von etwa 90 % in der Stratosphäre befindet.

Ozon hat in den beiden Atmosphärenschichten eine völlig unterschiedliche Bedeutung. In der Stratosphäre wirkt die Ozonschicht als UV-Filter. Während der UV-C Anteil in der Atmosphäre zur Gänze absorbiert wird und der ungefährlichere UV-A Anteil fast ungehindert bis zum Erdboden dringt, wird der dazwischen liegende UV-B Anteil abgeschwächt durchgelassen. Bereits bei einer einprozentigen Reduktion der Ozonkonzentration in der Atmosphäre ist etwa mit einer zweiprozentigen Erhöhung der biologisch effektiven UV-B Strahlung zu rechnen (11. DEUTSCHER BUNDESTAG 1988). Des Weiteren wird das Temperaturprofil und die Dynamik der Stratosphäre durch das Ozon bestimmt. Durch anthropogene Einflüsse wird die Ozonverteilung geändert, die Folgen für das Klima der Erde sind noch nicht quantifizierbar. In der Troposphäre nimmt das Ozon zu und trägt damit zu einer Verstärkung des Treibhauseffektes bei. Das spezifische Treibhauspotential des Ozons beträgt, bezogen auf ein Molekül CO_2 2000, und der Anteil am Treibhauseffekt liegt derzeit bei etwa 8 %. Ein Konzentrationsanstieg ist, trotz der teilweisen Kompensation der stratosphärischen Ozonabnahme, zu verhindern (11. DEUTSCHER BUNDESTAG 1988). Darüber hinaus ist Ozon giftig und kann in Bodennähe bei höheren Konzentrationen Menschen, Tiere und Pflanzen schädigen.

Da den Ergebnissen von Modellrechnungen bestimmte Unsicherheiten innewohnen, die Kenntnisse der Reaktionskonstanten und der Konzentrationen der an den relevanten Prozessen beteiligten Substanzen ungenau sind, sind Messungen der Ozonkonzentration unabdingbar. Daher wurden am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg im Rahmen dieses Projektes die Ozonmessungen, u. a. als Grundlage einer Trendaussage, weitergeführt und ausgewertet.

2. Trend in der freien Atmosphäre

2.1. Einführung

Die ersten Arbeiten, die sich mit dem Ozonabbau in der Stratosphäre befaßten, konzentrierten sich auf die mögliche Beeinflussung der Ozonschicht durch die Emissionen von Überschallverkehrsflugzeugen, wie Wasserdampf und Stickoxide (NO_x) (CRUTZEN 1970, JOHNSTON 1971, HARRISON 1970). Mitte der 70er Jahre schrieben STOLARSKI und CICERONE (1974) dem Chlor eine wesentliche Rolle bei der Veränderung des Ozongehalts in der Stratosphäre zu. Als eine mögliche Quelle stratosphärischen Chlors wurden von MOLINA und ROWLAND (1974) und CICERONE et al. (1974) die Chlorfluorkohlenwasserstoffe (FCKWs) erkannt. Daß Brom ebenfalls den stratosphärischen Ozonhaushalt verändern kann, fand WOFSY et al. (1975). Als Quelle kommen hierbei die Halone in Frage. Neben den direkten chemischen Reaktionen mit Ozon können strahlungsrelevante Spezies (wie CO_2) eine indirekte Auswirkung auf Ozon haben, indem die Temperatur in der Stratosphäre und damit die Reaktionskonstanten geändert werden. In der Folge wurden zahlreiche Studien durchgeführt, die sich mit der atmosphärischen Chemie und Dynamik befaßten und versuchten, Änderungen der Ozonkonzentration aufgrund von anthropogenen Einflüssen vorherzusagen. WUEBBLES et al. (1983) gingen der Frage simultaner Einwirkung verschiedener Spezies wie FCKWs, NO_x , N_2O , CO_2 auf den Ozongehalt der Atmosphäre nach, sowohl mit als auch ohne Temperatur-Rückkopplung. Aufgrund ihrer Modellberechnungen fanden sie, daß es zu signifikanten Änderungen in der Ozonkonzentration als Funktion der Höhe kommen wird, wobei aber die Änderung im Gesamtozon kleiner als 1 % sein wird. So erwarten sie im Höhenbereich um 40 km bis ins Jahr 2000 eine Abnahme von 12,3% gegenüber einer Background-Modell-Atmosphäre, deren zeitliche Zuordnung im Jahr 1911 liegt, während in der Troposphäre und unteren Stratosphäre das Ozon um bis zu 20 bzw. 5 % zunehmen soll. Zu ähnlichen Ergebnissen kamen ebenfalls mit Modellberechnungen BRÜHL und CRUTZEN (1988).

Neben den Änderungen des Ozonhaushalts in der Stratosphäre wird auch denen des troposphärischen Ozons großes Interesse beigemessen. Zu Beginn der Ozonmessungen in der freien Atmosphäre glaubte man, daß das troposphärische Ozon allein durch Intrusion aus der Stratosphäre, dem natürlichen Quellgebiet des Ozons, in die Troposphäre verfrachtet wird (REGENER 1943, EHMERT 1949/50 a). Die klassische Theorie, wie sie etwa von PRUCHNIEWICZ (1973) skizziert wurde, geht

davon aus, daß das Ozon im tropischen Bereich der Stratosphäre gebildet, polwärts transportiert und durch Intrusionen in die Troposphäre eingebracht wird. Der Mechanismus dieses Ozoneintrags in unseren Breiten ist das Einmischen stratosphärischer Luft in die Troposphäre durch die Zyklonenaktivität sowie durch Tropopausenbrüche (DANIELSEN et al. 1970). Zweifel an der klassischen Theorie wurden von FISHMAN und CRUTZEN (1978) und FISHMAN et al. (1979) formuliert. Ihr Einwand war, daß in der Troposphäre Ozon kein inertes Spurengas sei und auf seinem Weg von der Stratosphäre zum Erdboden ungefähr zur Hälfte durch photochemische Prozesse zerstört wird. Diesem Abbau steht in der Troposphäre eine Ozonproduktion gegenüber. Mit Modellrechnungen, die die photochemische Ozonproduktion und -zerstörung in der Troposphäre quantifiziert, konnten FISHMAN et al. (1979) die mit gemessenen Ozondaten belegte Verteilung durch die in-situ photochemische Produktion erklären und schlossen, daß diese Prozesse in der Troposphäre eine wichtige Ozonquelle darstellen. Zum gleichen Schluß kamen ebenfalls mit Modellrechnungen LIU et al. (1980). Sie hielten die obere Troposphäre für das globale Quellgebiet troposphärischen Ozons. Der photochemischen Ozonproduktion in der unteren Troposphäre und in Bodennähe maßen sie lediglich in industrialisierten Gebieten, mit dominierenden anthropogenen NO_x -Emissionen, eine gewisse Bedeutung bei. Als eine mögliche Quelle der Vorläufersubstanzen sahen LIU et al. (1980) die Emissionen der Verkehrsflugzeuge an. - Die großräumige troposphärische Ozonbildung wird durch die Oxidation des CO und des CH_4 unter Sonneneinstrahlung bei Anwesenheit von Stickoxiden gebildet. Dabei kommt den Stickoxiden eine besondere Bedeutung zu. Liegt die NO_x -Konzentration unterhalb eines Wertes von 10 ppt, wird Ozon durch die photochemische Oxidation von CO und CH_4 abgebaut (VOLZ et al. 1989). Diese NO_x -Konzentration wird in der Nordhemisphäre größtenteils überschritten, so daß in der Troposphäre Ozon gebildet wird. Auch über erheblich kompliziertere Reaktionsketten wird Ozon in der Troposphäre durch die Oxidation von Nichtkohlenwasserstoffen wie Alkane, Alkene, Aromate sowie Terpene und Isoprene gebildet. Von besonderem Interesse sind die anthropogen, insbesondere durch den Autoverkehr, emittierten Kohlenwasserstoffe, die wesentlich zur Entstehung des photochemischen Smogs beitragen (11. DEUTSCHER BUNDESTAG 1988). DIGNON und HAMEED (1985) versuchten, die troposphärische Ozonzunahme mittels Modell-Rechnungen auf die Zunahme der Stickoxide durch vermehrte Verbrennungen fossiler Brennstoffe zurückzuführen. In zahlreichen anderen Arbeiten wurde versucht, die troposphärische Chemie so genau wie möglich zu modellieren, siehe z. B. THOMPSON et al. (1990). Sie sagen eine troposphärische Zunahme von 10 bis 15 % für

den Zeitraum von 1985 bis 2053 voraus.

Obwohl die Modelle die chemischen und dynamischen Prozesse in der Strato- und Troposphäre gut abbilden, bedürfen sie doch der Überprüfung durch Messungen. Dazu stehen mittlerweile Daten zur Verfügung, deren Gewinnung auf unterschiedlichen physikalischen Prinzipien beruht. Dies ermöglicht, artifizielle Trends, die durch einen konstruktionsbedingten Drift eines Instruments hervorgerufen werden kann, zu erkennen. Im hohen Maße sind Satelliten-Messungen davon betroffen (WMO 1988). Erste Messungen mit Satelliten wurden Mitte der 70er Jahre durchgeführt, die Langzeit-Messungen umfassen einen Zeitraum von rund 10 Jahren. Einen ähnlichen Meßzeitraum weisen auch Ozon-Lidars und Mikrowelle auf, die vor allem das Ozon der mittleren Atmosphäre bestimmen. Die längsten Reihen bezüglich stratosphärischen Ozons basieren auf Umkehr-Messungen, die bereits in den 30er Jahren durchgeführt wurden. Die ersten in-situ Messungen der vertikalen Ozonverteilung wurden sporadisch durchgeführt, da die Bestimmung des Ozongehalts recht aufwendig war. Ein erstes vertikales Ozonprofil wurde mit einem ballongetragenen Spektrographen bestimmt (REGENER und REGENER 1934). Weitere Ozonmessungen wurden an Bord von Flugzeugen vorgenommen (EHMERT 1949/50 a,b). Dabei kam das von REGENER (1938) beschriebene Verfahren zur Anwendung, bei dem Ozon aus einer Jodkaliumlösung quantitativ Jod ausscheidet, welches dann mit Natriumthiosulfat volumetrisch bestimmt wird. Aber erst nach der Entwicklung der Brewer/Mast-Sonde (BREWER und MILFORD 1960), die nach der coulometrischen Kaliumjodid-Methode kontinuierlich die Ozonkonzentration in-situ messen kann, ist es möglich, operationell die Ozonverteilung bis etwa 35 km zu bestimmen. Einige der durch Ballon-Sondierungen gewonnen Reihen sind somit über 20 Jahre lang. Unter diesen Reihen befinden sich auch die des Hohenpeißenbergs. Hier begannen die ersten Sondierungen Ende 1966. Seit dieser Zeit wird derselbe Sondentyp, die Brewer/Mast-Sonde, geflogen. Es werden immer gewissenhaft dieselben Startvorbereitungen (CLAUDE et al. 1987) durchgeführt. Die Sondenstarts erfolgen immer morgens. All dies gewährleistet ein Höchstmaß an Homogenität der Reihen, die unerlässlich für eine Trend-Analyse ist. Um die Güte der Sonden abschätzen zu können, wurden in der Vergangenheit einige experimentelle Vergleiche arrangiert. In den Jahren 1970 und 1978 wurden am Hohenpeißenberg erste Vergleichsaufstiege ausschließlich mit naßchemischen Sonden durchgeführt. An den Vergleichsmessungen BOIC und MAP/GLOBUS wurden neben den naßchemischen Sondentypen Brewer/Mast und ECC auch neuentwickelte, hochgenaue Instrumente (verschiedene UV- und IR-Photometer) geflogen. Die dort gewonnenen

Ergebnisse belegen die Zuverlässigkeit der Brewer/Mast-Sonde. Nähere Informationen dazu finden sich bei KÖHLER et al. (1988). Mit der Daten-Qualität der Sondierungen am Hohenpeißenberg sowie an anderen Stationen haben sich LOGAN (1985) und TIAO et al. (1986) intensiv auseinandergesetzt und attestieren den Hohenpeißenberger Daten einen hohen Qualitätsstandard. Allein die Erhöhung der Messfrequenz wäre in der Lage, Einfluß auf die Güte der Reihen auszuüben. Bis 1976 wurde einmal pro Woche, am Mittwoch, dann im Sommerhalbjahr montags und mittwochs, im Winterhalbjahr montags, mittwochs und freitags eine Sondierung durchgeführt. So wäre es denkbar, daß die geringe Meßfrequenz am Anfang der Reihen zu einem erhöhten Rauschen in den Daten führen kann, welches mögliche Trends überdeckt, so daß diese nicht oder erst nach längerer Zeit erkannt werden können.

Auf Trends in den Hohenpeißenberger Daten wurde schon frühzeitig hingewiesen. ATTMANNSPACHER et al. (1984) schlossen, daß die troposphärische Ozonzunahme mit dem natürlichen Ozonvorkommen allein schwerlich erklärt werden kann: Der Transport stratosphärischen Ozons in die Troposphäre hängt stark vom Wettergeschehen ab und ist in unseren Breiten von Jahr zu Jahr verschieden. Eine stetige Zunahme in der Troposphäre ist damit nicht zu erklären. Die bis zu dieser Zeit gemessenen Reihen waren allerdings noch verhältnismäßig kurz, so daß die Trends noch recht unsicher waren. Besonders in der Stratosphäre ist die Variabilität sehr groß. So kam als Ursache für die Ozonabnahme in der Stratosphäre der Aerosol-Eintrag durch den Vulkanausbruch El Chichon (1982) in Betracht. ATTMANNSPACHER et al. (1984) wiesen aber auch darauf hin, daß anthropogene Einflüsse nicht auszuschließen sind. Mittlerweile sind die Reihen lang genug, um Aussagen über die langfristigen Änderungen der Ozonkonzentration machen zu können, ohne daß die Gefahr besteht, daß Trends durch meteorologische Einwirkungen vorgetäuscht werden. So sind im Rahmen dieses Projektes die Reihen einer umfangreichen Trenduntersuchung unterzogen worden. Einen Teil dieser Ergebnisse haben WEGE et al. (1989) und WEGE und VANDERSEE (1991 a, b) bereits veröffentlicht.

2.2. Ergebnisse der Sondierungen

In Abbildung 2.2.1 ist der zeitliche Verlauf der Jahresmittelwerte der Ozonkonzentration für die Jahre 1967 bis 1990 in der Troposphäre (2,4,6 und 8 km) und im Höhenbereich des Ozonmaximums (20, 22 und 24 km) mit den entspre-

chenden Regressionsgeraden dargestellt. Für den gesamten Troposphärenbereich liefert die Regressionsanalyse eine signifikante Zunahme von mehr als 2 % pro Jahr, bezogen auf den 24jährigen Mittelwert. Die absolute Änderung beträgt ca. 0,6 nbar pro Jahr. Die Überprüfung der Regression auf Linearität zeigt, daß der Anstieg durch eine Gerade hinreichend genau beschrieben wird. Die Korrelation mit der Zeit ist mit Werten von 0,93 bis 0,95 sehr hoch. Eine signifikante Abnahme des Ozons ist dagegen im Höhenbereich des Ozonmaximums festzustellen. Dabei sind die absoluten Änderungen etwa gleich groß wie in der Troposphäre; aufgrund der höheren Ozonmittelwerte beträgt die relative Abnahme jedoch nur ca. - 0,5 % pro Jahr. Im Gegensatz zur Troposphäre ist hier der Trend weniger linear. Hier kommt der starke Einfluß der dynamischen Prozesse in der Stratosphäre zum Ausdruck. Wesentliches Merkmal der Variabilität der Ozonkonzentration im Bereich des Hauptmaximums ist neben dem Jahresgang, der in der Darstellung der Jahresmittel in Abbildung 2.2.1 natürlich eliminiert ist, die Quasi-zweijährige Oszillation (QBO), auf die schon ATTMANNSPACHER und HARTMANNSTRUBER (1975) in Bezug auf die Hohenpeißenberger Ozondaten hingewiesen haben.

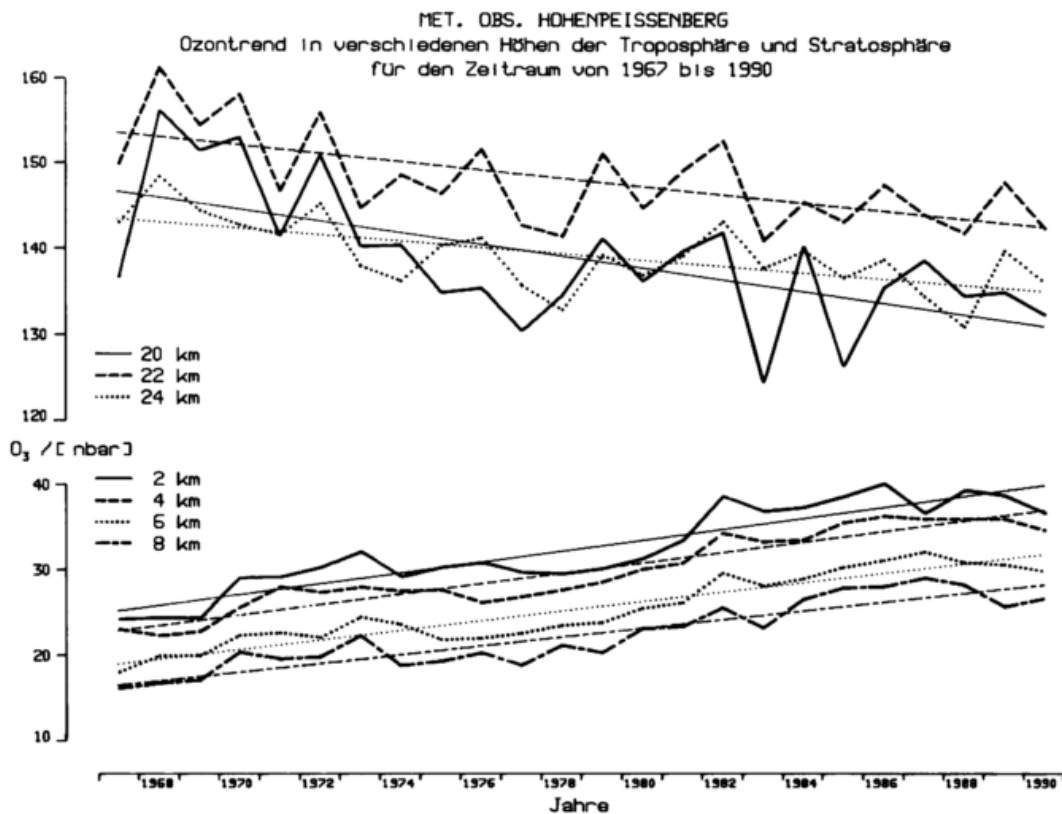


Abb.: 2.2.1 Ozontrends in verschiedenen Höhen basierend auf Jahresmittelwerten, 1967 - 1990

Auf die QBO und die Zusammenhänge zwischen Ozon, Temperatur, Gesamtozon und Wind wird in Kapitel 3.1. näher eingegangen.

Wird auf die Jahreszeitenmittel von 1967 bis 1990 die Regressionsanalyse angewendet, so erhält man folgendes Ergebnis: Die entgegengesetzten Änderungen in den Höhenbereichen von 2 bis 8 km bzw. 20 bis 24 km sind in allen Jahreszeiten signifikant vorhanden. Betrachtet man die absolute Änderung, so ist die stärkste stratosphärische Abnahme im Winter: - 0,56 bis - 1,34 nbar pro Jahr. Die stärkste troposphärische Zunahme weisen dagegen die Sommermittel mit + 0,60 bis + 0,81 nbar pro Jahr auf.

Wie die Änderungen der Ozonkonzentration im jahreszeitlichen Verlauf variieren, macht Abbildung 2.2.2 deutlich.

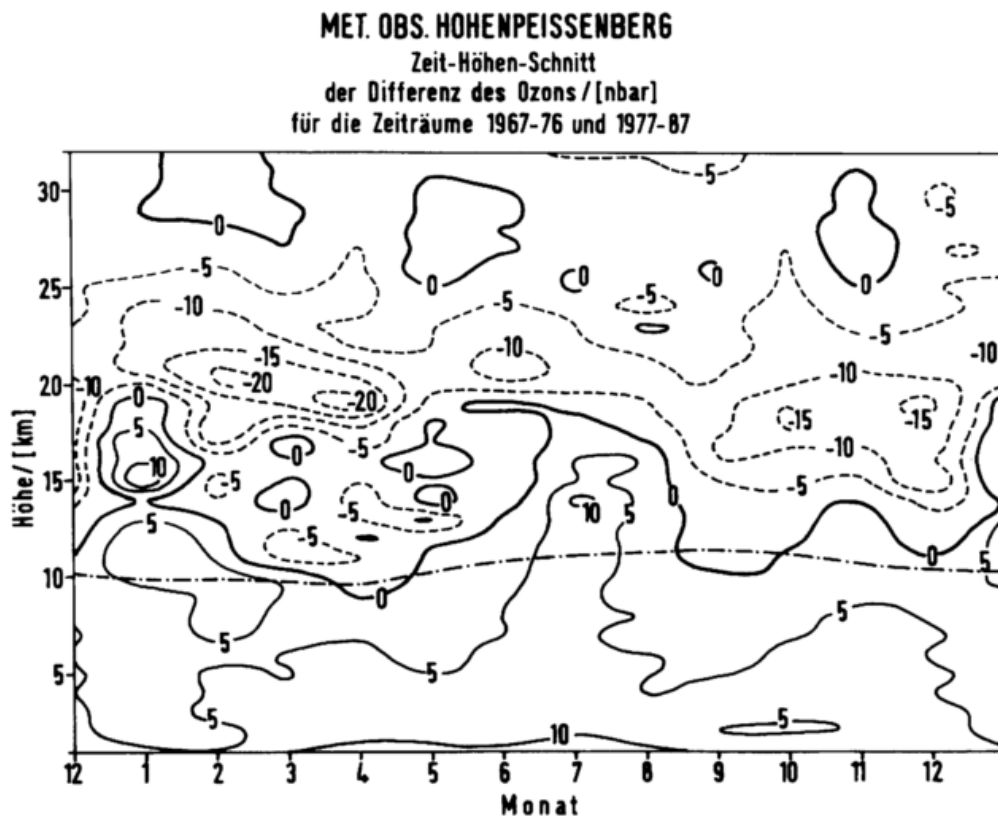


Abb.: 2.2.2 Differenz der mittleren absoluten Ozonkonzentration (nbar) zwischen den Zeiträumen 1967 - 76 und 1977 - 87 in Abhängigkeit von Höhe und Jahreszeit. Die durchgezogenen Linien bedeuten eine Zunahme, gestrichelte Linien eine Abnahme, die strichpunktierte Linie bezeichnet die mittlere Lage der Tropopause

Dargestellt ist die Differenz der mittleren Ozonkonzentration pro km-Stufe der Zeiträume 1967-76 und 1977-87. Die dünnen durchgezogenen Linien geben die Zunahme, die gestrichelten die Abnahme in nbar/km an. Strichpunktiert ist die mittlere Lage der Tropopause dargestellt. Die Differenz mittlerer Ozonkonzentrationen zweier Zeiträume kann als eine Glättung der Reihen und anschließende Regressionsberechnung mit nur zwei Wertepaaren aufgefaßt werden. Auf die Darstellung der Regression einzelner Monate wurde verzichtet, da bei Monatsmitteln die zeitliche Auflösung sehr groß ist und die geringe Meßdichte (siehe Kap. 2.1.) zu einem zu großen Rauschen führt, so daß die Trends nicht allein wegen der geringen Anzahl der Wertepaare unsicher werden.

In Abbildung 2.2.2 sieht man, daß in der Troposphäre die Ozonkonzentration über das ganze Jahr zunimmt. Dabei sind die stärksten Zunahmen, wie oben bereits erwähnt, im Sommer vorhanden, die dann bis in die untere Stratosphäre hineinreichen. Die stärksten Ozonabnahmen sind im Bereich des Hauptmaximums. Abgesehen von der jahreszeitlichen Änderung der Höhenlage des Maximums sind jahreszeitliche Unterschiede kaum vorhanden. Die größten Abnahmen finden sich in Übereinstimmung mit den oben dargelegten Ergebnissen im Winter. Im unteren Bereich der Stratosphäre stellt sich die Ozonänderung sehr uneinheitlich dar. Besonders große Fluktuationen sind im Frühjahr im Bereich der Sekundärmaxima zu beobachten. Oberhalb 26 km sind die absoluten Änderungen gering. Neben einer allgemeinen Abnahme sind auch Bereiche vorhanden, in denen eine Zunahme stattgefunden hat. Die absoluten Änderungen der Ozonkonzentration auf der Basis von Jahresmittelwerten sind für jede km-Stufe zwischen 2 und 32 km Höhe in Abbildung 2.2.3 für drei verschiedene Zeitabschnitte dargestellt. 2 σ -signifikante Trends sind mit horizontalen Balken versehen, deren Länge den Mutungs-bereich gegen Null angibt. Die Ozonzunahme in der Troposphäre hat sich während des zweiten Zeitabschnittes (1977 - 1990) im Vergleich zum ersten (1967 - 1977) verstärkt. Im Bereich des Ozonmaximums hat sich der Trend so weit abgeschwächt, daß er im zweiten Zeitabschnitt nicht mehr signifikant ist. Dafür ist oberhalb 26 km eine interessante Veränderung eingetreten. Nahm im ersten Zeitabschnitt die Ozonkonzentration zu, die Zunahme beträgt für diesen Bereich mit Mittel etwa 0,57 nbar pro Jahr, so ist im zweiten Zeitabschnitt eine Abnahme von etwa 0,34 nbar pro Jahr vorhanden.

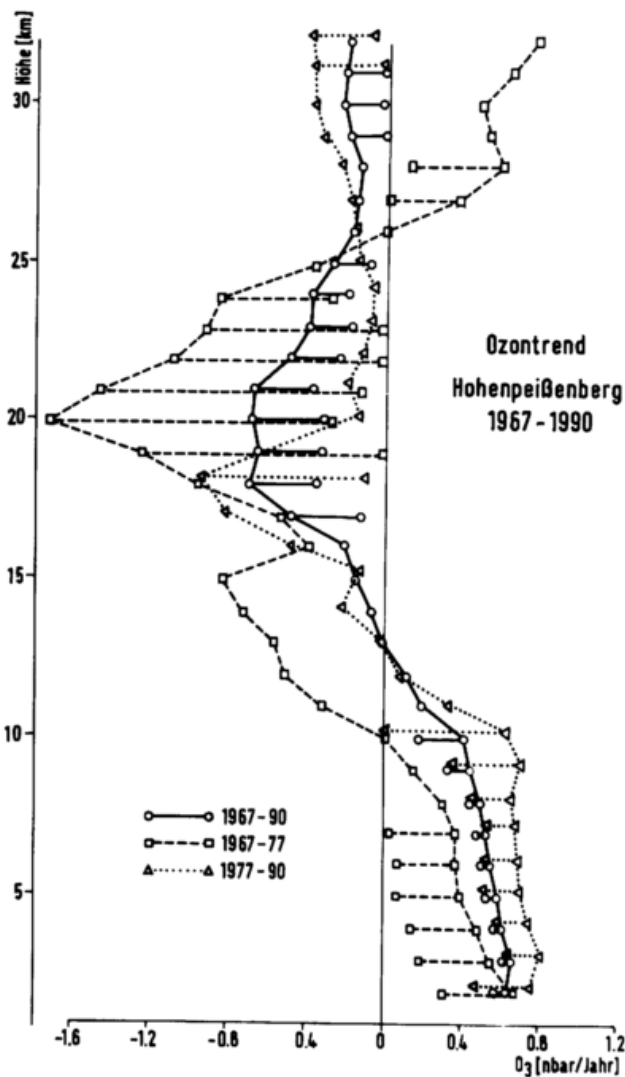


Abb.: 2.2.3

Ozontrends zwischen 2 und 32 km für die Zeiträume 1967 - 90, 1967 - 77 und 1977 - 90. 2 σ -signifikante Trends sind mit horizontalen Balken versehen, deren Länge den Mutungsbereich gegen Null angeben.

Um einen besseren Einblick in den räumlichen und zeitlichen Verlauf des Ozontrends in der Stratosphäre zu erhalten, wurde eine dynamische Trendanalyse durchgeführt, dargestellt in Abbildung 2.2.4. Diese wurde so berechnet, daß eine Zeitspanne von 10 Jahren Jahr für Jahr über die gesamte Periode (1967 - 1987) verschoben und der Trend für jedes dieser 10-Jahre-Fenster bestimmt wurde. In Abbildung 2.2.4 sind zwei unterschiedliche Höhenbereiche zu erkennen. Zum einen der Bereich von der Tropopause bei ca. 11 km bis 26 km, zum anderen der Bereich darüber.

MET. OBS. HOHENPEIßENBERG

Zeit-Höhen-Schnitt
des Ozon-Trends/[nbar/a]

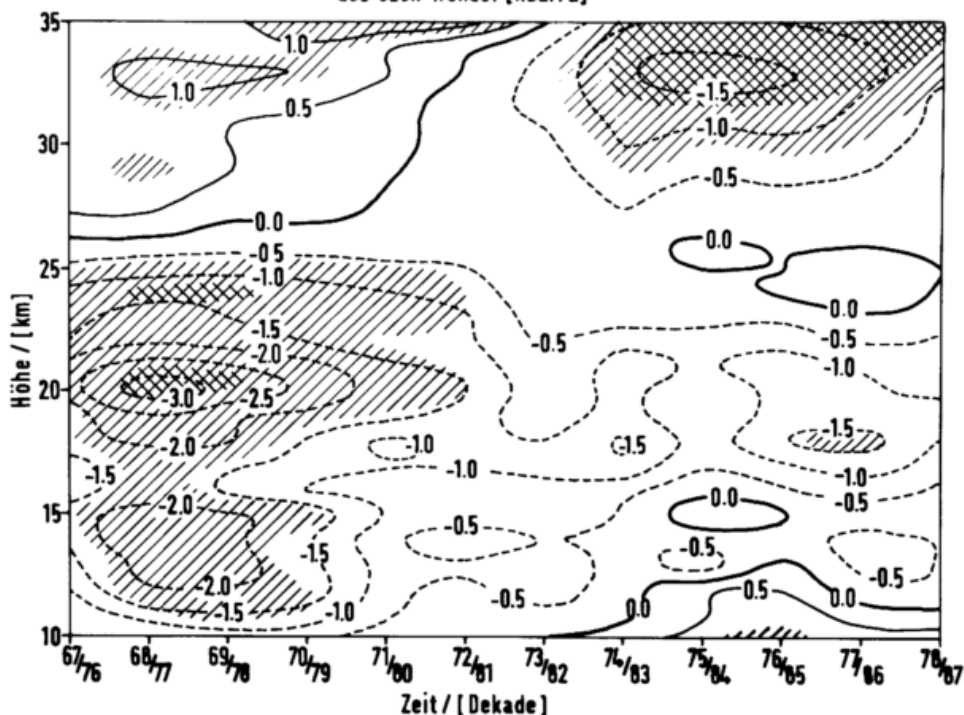


Abb.: 2.2.4 Dynamische Trendanalyse für den Höhenbereich zwischen 10 und 35 km. Die durchgezogenen Linien bedeuten eine Zunahme, gestrichelte Linien eine Abnahme. Die Änderungen sind in nbar/a, 2 σ -signifikante Änderungen sind einfach, 3 σ -signifikante kreuzweise schraffiert.

Im Grenzbereich bei 26 km hat praktisch über den Gesamtzeitraum keine Änderung stattgefunden. Dies ist der Bereich, der in Bezug auf Ozon die dynamisch geprägte untere Stratosphäre von der photochemisch geprägten mittleren Stratosphäre trennt. Während der ersten Jahre fanden die großen Abnahmen unterhalb 26 km statt. Die Bereiche liegen bei rund 20 km und zwischen 12 und 15 km, den Bereichen des Haupt- und Sekundär-Maximums. Die Abnahmen wurden in den folgenden Jahren kleiner und erreichen lediglich in der Periode von 1977 bis 1986 das 2 σ -Niveau bei etwa 18 km. Im Höhenbereich oberhalb 32 km, der in Bezug auf die Einwirkung der FCKWs auf das stratosphärische Ozon von besonderer Bedeutung ist, da hier die größten prozentualen Änderungen erwartet werden (WUEBBLES et al. 1983), zeigen die Hohenpeißenberger Daten während der ersten Dekaden signifikante Ozon-Zunahmen von 1,0 nbar pro Jahr. Seit 1972/73 nimmt

die Ozonkonzentration oberhalb 26 km ab. Die größte Abnahme mit 1,5 nbar pro Jahr befindet sich bei 33 km, und diese Abnahme ist auf dem 3 σ -Niveau signifikant. Eine ähnliche Struktur des Trends haben auch BLOOMFIELD et al. (1982) bei der Auswertung von Umkehr-Messungen für den Höhenbereich von 32 - 46 km gefunden. Sie verwandten Umkehr-Daten von Dobson-Stationen in nördlichen, gemäßigten Breiten. Der betrachtete Zeitraum erstreckte sich von 1956 bis 1979. Dabei fanden BLOOMFIELD et al. (1982), daß das Ozon in diesem Höhenbereich seit 1956 zunahm und sich diese Zunahme ab 1970 abschwächte.

In Bezug auf den Trend in der Troposphäre zeigen Abbildungen 2.2.5 und 2.2.6 ein interessantes Ergebnis der Regressionsanalyse. Dargestellt sind die Jahreszeitenmittel der Ozonkonzentration für Sommer und Winter für die Höhenbereiche 2 bis 9 km bzw. 2 bis 4 km über den Zeitraum von 1967 bis 1990 sowie die entsprechenden Regressionsgeraden. Die jeweiligen Steigungen betragen 0,68 bzw. 0,64 nbar pro Jahr und sind auf dem 3 σ -Niveau signifikant, ebenfalls die Korrelation mit der Zeit.

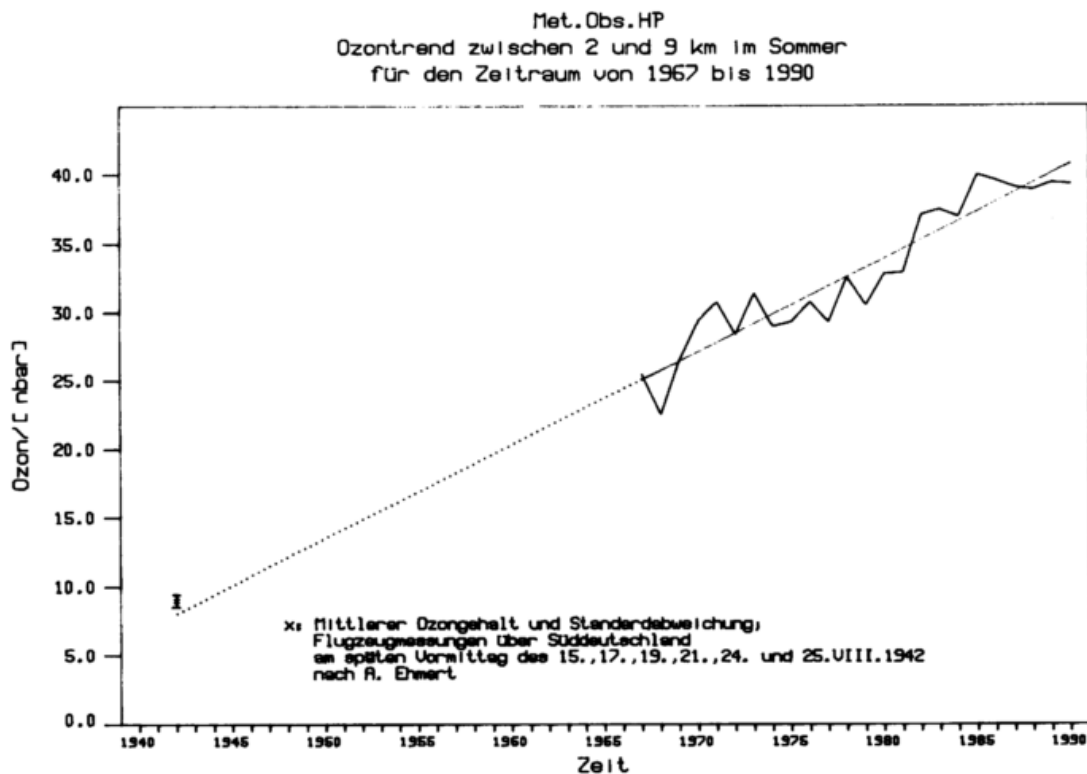


Abb.: 2.2.5 Ozontrend im Sommer für den Höhenbereich zwischen 2 und 9 km.

Die Korrelationskoeffizienten erreichen Werte von 0,94 bzw. 0,91. Der Verlauf der Winter-Werte scheint einer größeren Variabilität unterworfen zu sein als die Sommer-Werte. Beide Reihen weisen aber die gleiche Struktur auf. Obwohl die Regression lediglich Aussagen für jenen Zeitraum zuläßt, den die dazu verwendeten Werte überspannen, soll dennoch ein Blick zurückgeworfen werden: In den beiden Abbildungen sind hinzugefügt der mittlere Ozongehalt und die Standardabweichung, die aus Daten gewonnen wurden, die im August 1942 bzw. im Dezember 1940 mit Flugzeug-Sondierungen in den entsprechenden Höhenbereichen über Süddeutschland mittels der von REGENER (1938) beschriebenen Methode (siehe Kap. 2.1.) gemessen wurden (EHMERT 1949/50 a, b).

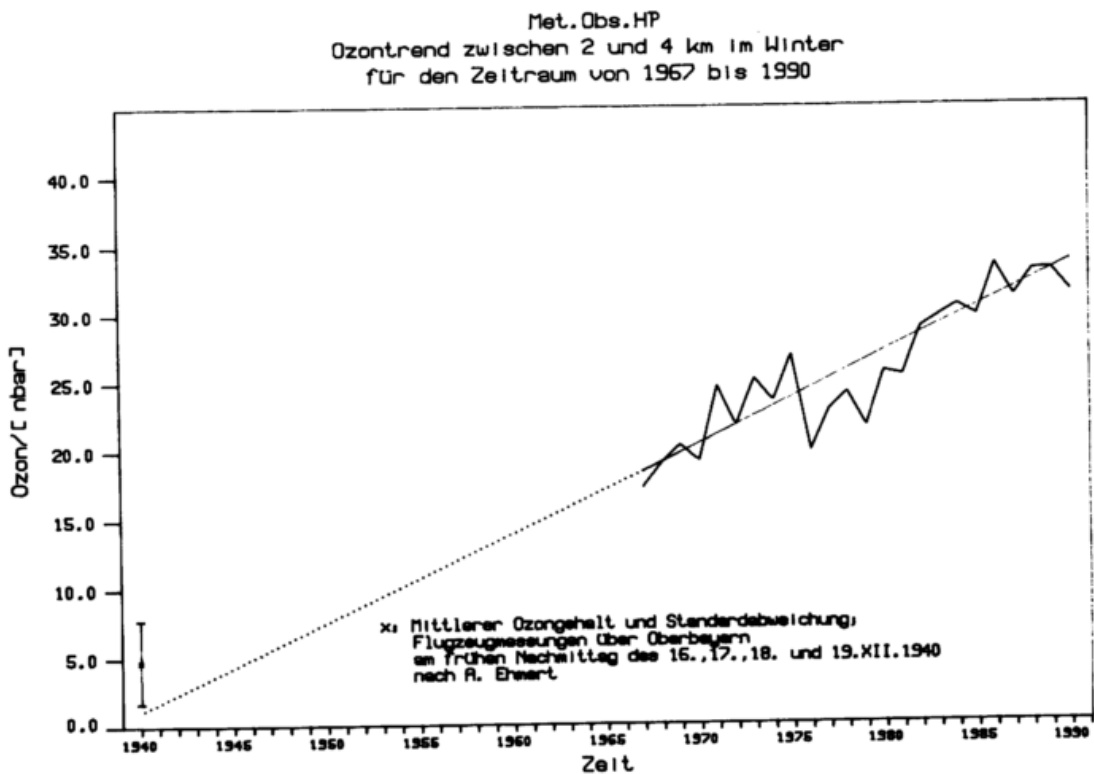


Abb.: 2.2.6 Ozontrend im Winter für den Höhenbereich zwischen 2 und 4 km.

Verlängert man die Regressionsgeraden bis 1942 bzw. 1940 (gepunktete Linien), so treffen sie beinahe auf das untere Ende des Fehlerbalkens, der den Bereich der Standardabweichung markiert. Wenn diese frühzeitigen Ozondaten aus der freien Troposphäre auch keinen Beweis liefern, daß damals die Ozonwerte gene-

rell so niedrig waren, so geben sie doch einen gewichtigen Anhaltspunkt dafür, daß bereits vor 1967 ein Ozonanstieg in der freien Troposphäre vorhanden war. Dieser Anstieg wird insgesamt schwächer gewesen sein als der nach 1967, da die Extrapolationen unterhalb der Daten von Ehmert liegen.

Nicht nur am Hohenpeißenberg ist die troposphärische Ozonzunahme zu finden, vielmehr ist sie ein Phänomen mit kontinentalem Ausmaß. LOGAN (1985) schätzt aufgrund von Sondierungen, die den Zeitraum von Ende der 60er/Anfang der 70er Jahre bis 1982 umfassen, daß die Zunahme zwischen 30° N und 75° N 1 - 2 % pro Jahr beträgt. Daß das Ozon dabei in der oberen Troposphäre (500 - 300 hPa) im allgemeinen mit einer geringeren Rate zunimmt als in der unteren Troposphäre (850 - 500 hPa), fand BOJKOV (1988). In Hinblick auf die Zunahme im überregionalen Maßstab ist der Vergleich mit den Sondierungen in Payerne von besonderem Interesse. Unglücklicherweise sind in Payerne die Aufstiegszeiten mehrmals geändert worden. Durch diese Inhomogenität der Reihen besteht die Gefahr, daß gerade im Bereich der Troposphäre Trends induziert bzw. eliminiert wurden. Auf diese Brüche in den Schweizer Sondierungen haben bereits LOGAN (1985) und BOJKOV (1988) hingewiesen. Eine Korrektur der Daten haben STAEHELIN und SCHMID (1991) versucht. Den Vergleich der Ozontrends für verschiedene Zeiträume am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg und Payerne (STAEHELIN 1988) für die Troposphäre und den untersten Bereich der Stratosphäre zeigt Abbildung 2.2.7. Während am Hohenpeißenberg die Sondierungen immer am frühen Morgen stattfanden, war die Startzeit in Payerne im Zeitraum von 1969 bis 76 um 16:00, von 1982 bis 87 um 12:00 Uhr. Die Strukturen der Ozontrends sind an beiden Stationen sehr ähnlich. An beiden Stationen hat über alle drei der betrachteten Zeiträume eine troposphärische Ozonzunahme stattgefunden. Dabei ist die Zunahme über den gesamten Zeitraum am Hohenpeißenberg stärker als in Payerne. Unterschiede bestehen vor allem zwischen dem ersten (1969 -1976) und dem zweiten Zeitraum (1982 - 87). In Payerne ist die Zunahme im zweiten Zeitraum wesentlich stärker als im ersten. Am Hohenpeißenberg fällt besonders auf, daß im zweiten Zeitraum das Ozon in der Grundschicht so gut wie überhaupt nicht zugenommen hat. Dagegen ist die Zunahme während des ersten Zeitraums in diesem Höhenbereich sehr stark. STAEHELIN und SCHMID (1991) führen diesen Unterschied zwischen Hohenpeißenberg und Payerne nicht auf die unterschiedlichen Startzeiten zurück, sondern vermuten, daß es durch Luftverschmutzung im Großraum München, die dann zum Hohenpeißenberg geführt wird, zu einer Übersättigung von NO_x kommt. Diese Hypothese kann hier nicht uneingeschränkt geteilt

werden. Gegen diese Annahme spricht, daß im Sommer bzw. Winter der Wind etwa 3 - bzw. 4 mal häufiger aus SW kommt als aus NE, der Richtung, aus der Luft vom Großraum München advehiert wird (Kap. 4.3.).

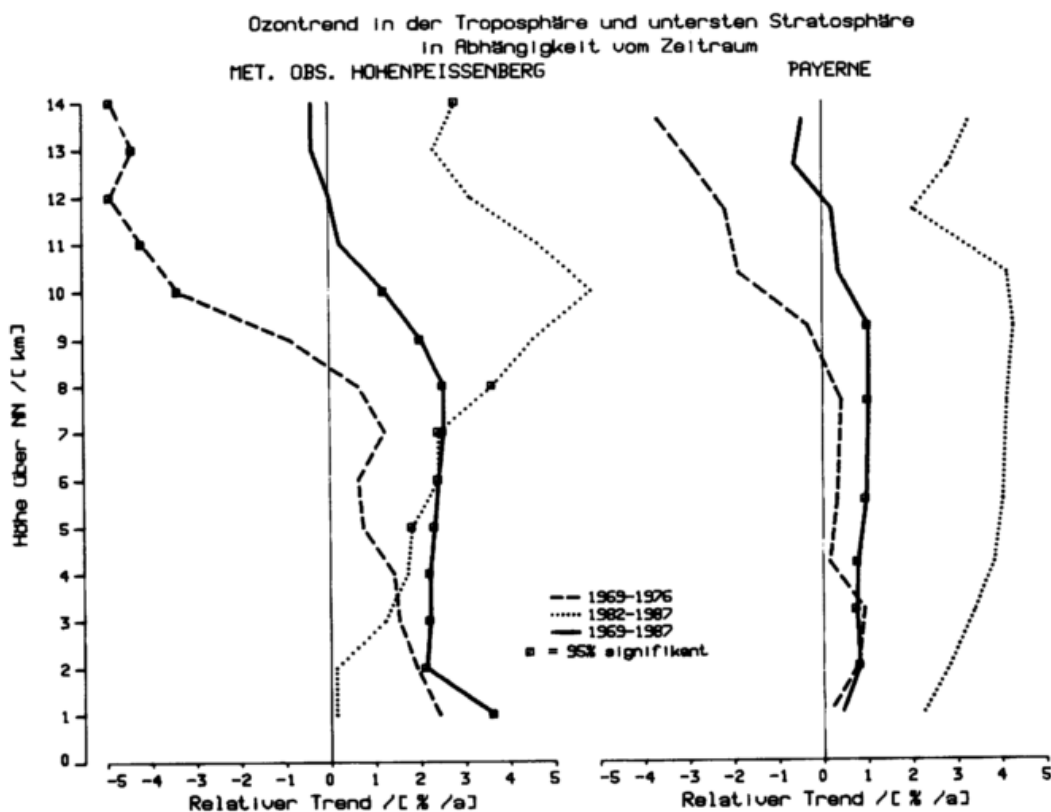


Abb.: 2.2.7 Vergleich der rel. Ozontrends zwischen Met. Obs. Hohenpeißenberg und Payerne im Höhenbereich zwischen 1 und 14 km für die Zeiträume 1969 - 76, 1982 - 87 und 1969 - 87.

Für den Trend in der unteren freien Troposphäre auf Basis von Jahresmitteln spielt daher die relativ geringe Häufigkeit der Advektion aus NE eine untergeordnete Rolle. Vielmehr scheint dieser schwache Trend in der unteren Troposphäre über dem Hohenpeißenberg durch die zufällige Wahl des betrachteten Zeitraums verursacht zu sein. Betrachtet man Abbildung 2.2.1 oder auch die Abbildungen 2.2.5 und 2.2.6, so sieht man, daß sowohl bei den Jahresmitteln wie auch bei den Jahreszeitenmittel für Sommer und Winter das Jahr 1982 übermäßig viel, das Jahr 1987 wenig Ozon aufwies. Wird über diesen Zeitraum eine Regressionsgerade bestimmt, so ist es klar, daß die Steigung für diesen Zeitraum gering ist. Die Gründe für die hohen bzw. niedrigen Ozonkonzentrationen

in der unteren Troposphäre im Jahr '82 bzw. '87 werden kleinräumiger Natur sein und sich somit auch nicht in den Payerner Daten widerspiegeln können. Was allerdings bei beiden Stationen vorhanden und damit auch großräumiger Natur ist, ist die Änderung des Trends in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. So hat das Ozon im ersten Zeitraum oberhalb 8 km abgenommen während es im zweiten wieder zugenommen hat. Da die unterste Stratosphäre nicht direkt durch die hemisphärische stratosphärische Zirkulation beeinflusst wird, sondern durch synoptische Wettersysteme, die bis in die Stratosphäre hineinreichen (DÜTSCH und STAEHELIN, 1989), und der Eintrag stratosphärischen Ozons in die Troposphäre stark von der Witterung abhängt und deshalb von Jahr zu Jahr verschieden ist (ATTMANNSPACHER et al. 1984), schließen STAEHELIN und SCHMID (1991), daß der Transport stratosphärischen Ozons in die Troposphäre im zweiten Zeitraum stärker war als im ersten und möglicherweise eine Änderung in der Witterung angezeigt wird. Wie sich stratosphärische Intrusionen darstellen, wird an einem Beispiel im Kapitel 4.6. gezeigt.

Im folgenden wird speziell auf die langfristigen Änderungen der Ozonkonzentration im Bereich der Tropopause eingegangen. Für diese Untersuchung wurde für jede einzelne Sondierung am Hohenpeißenberg die Ozonkonzentration in jeweils drei 1-km-Schichten unterhalb und oberhalb der Tropopause (T_3 , T_2 , ..., T_{+3}) bestimmt.

Die Trenduntersuchung im Tropopausenbereich ergibt, daß in den unterhalb der Tropopause gelegenen Schichten das Ozon über das ganze Jahr mit rund 0,5 nbar pro Jahr zunimmt, etwas mehr als 2 % pro Jahr, und in Übereinstimmung mit dem Trend der übrigen Troposphäre ist. Oberhalb der Tropopause nimmt im Sommer das Ozon signifikant zu. Im ersten Schichtmittel oberhalb der Tropopause beträgt die Zunahme 0,43 nbar pro Jahr bzw. knapp 1 % pro Jahr. Im Winter nimmt das Ozon um 0,35 nbar pro Jahr zu. Auf das ganze Jahr bezogen beträgt die Zunahme 0,32 nbar (= 0,8 %). Dieser Wert ist 2σ -signifikant. In den darüber liegenden Schichten geht der Trend zurück und ist in 2,5 km Abstand zur Tropopause, abgesehen vom Sommer, praktisch Null. In Abbildung 2.2.8 ist der zeitliche Verlauf der Ozonkonzentration exemplarisch für Juli in der ersten Schicht unter- und oberhalb der Tropopause dargestellt. Dazu ist die jeweilige Regressionsgerade eingezeichnet. Ob tatsächlich eine Änderung des Witterungsgeschehens für die Zunahme der Ozonkonzentration im Tropopausenbereich allein verantwortlich ist, wie STAEHELIN und SCHMID (1991) annehmen, kann aufgrund von Beobachtungen

einer einzelnen Station kaum entschieden werden.

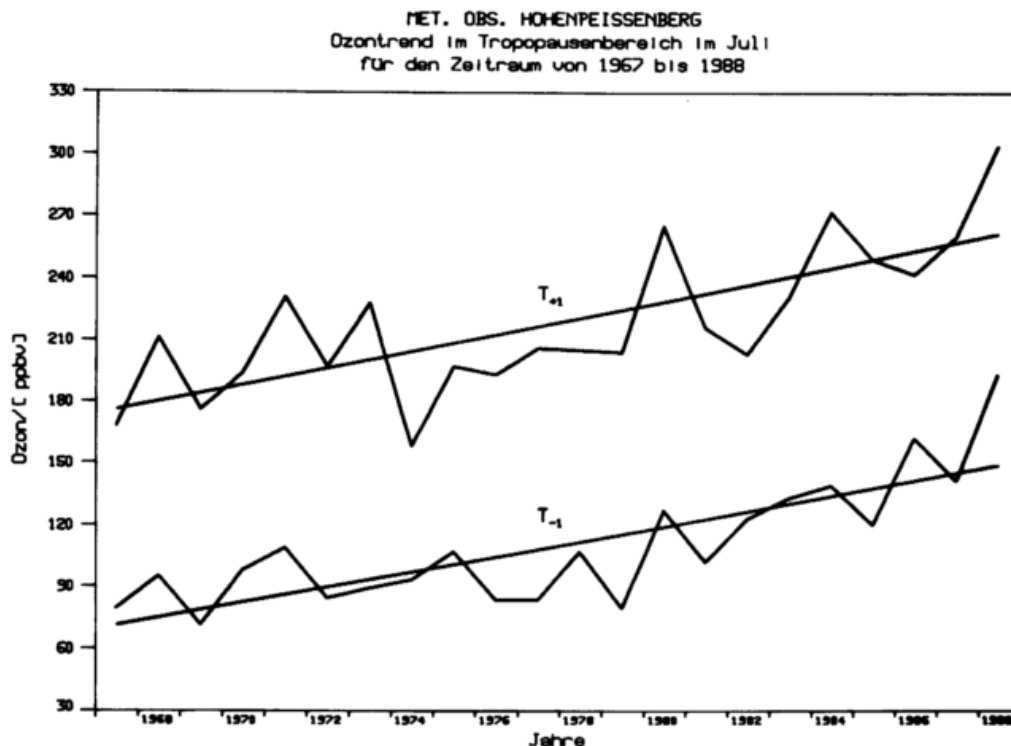


Abb.: 2.2.8 Ozontrend im Tropopausenbereich im Juli für den Zeitraum von 1967 bis 1988. T-1 bezeichnet den Verlauf der Ozonkonzentration im 1 km-Schichtmittel unterhalb der Tropopause, T+1 entsprechend oberhalb der Tropopause.

2.3. Gesamtozon

Nach Darstellung von LOGAN (1985) kann die troposphärische Ozonzunahme signifikant zum Trend im Gesamtozon beitragen und dabei 20 - 30 % der Ozonabnahme in der Stratosphäre in mittleren und hohen Breiten der Nordhemisphäre kompensieren. In einer Übersichtsrechnung ergibt sich für den Hohenpeißenberg bei einer stratosphärischen Abnahme in den Sommermonaten von etwa - 0,52 nbar pro Jahr im Bereich des Hauptmaximums von 22 - 24 km, was mit der Standardatmosphäre umgerechnet etwa 0,25 D. U. pro Jahr entspricht, daß diese Abnahme durch die troposphärische Zunahme von + 0,68 nbar pro Jahr zwischen 2 und 8

km, entsprechend + 0,43 D. U., kompensiert wird. Dagegen steht in den Wintermonaten der stratosphärischen Abnahme von - 0,92 nbar pro Jahr, bzw. - 0,46 D. U. pro Jahr nur eine troposphärische Zunahme von +0,52 nbar pro Jahr, bzw. + 0,32 D.U. pro Jahr gegenüber. Es wird allerdings darauf hingewiesen, daß die Abnahme in der Stratosphäre bei dieser Überschlagsrechnung unterschätzt wird, da auch unterhalb und vor allem oberhalb der betrachteten Schicht das Ozon abnimmt (s. Abb. 2.2.3).

Wie die Verteilung des mittleren prozentualen Anteils des Ozons am Integral-Ozon mit der Höhe sich im jahreszeitlichen Verlauf darstellt, zeigt Abbildung 2.3.1. Grundlage dieser Abbildung sind die Ozonsondierungen von 1967 bis 1987. Zwar wurde der Ozongehalt oberhalb der Platzpunkte der Ballone mittels einer Restozon-Abschätzung berücksichtigt, und die verwendeten Profile sind Dobson-korrigiert, doch zur prinzipiellen Unterscheidung wird der Begriff Gesamtozon nur im Zusammenhang mit Messungen durch Spektrophotometer benutzt.

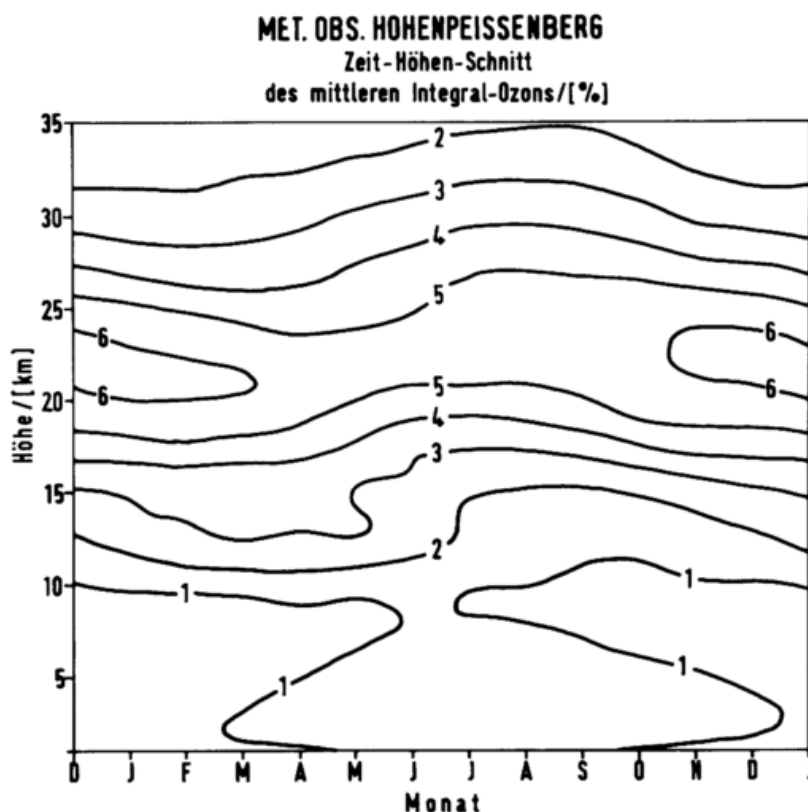


Abb.: 2.3.1 Jahreszeitlicher Verlauf der prozentualen Verteilung des Integral-Ozons mit der Höhe für den Zeitraum von 1967 bis 1987.

Der niedrigste Anteil am Integralozon befindet sich in der Troposphäre, ungefähr 1 % pro km, wobei im Sommerhalbjahr etwas höhere Anteile als im Winter vorhanden sind. Die höchsten Anteile von über 6 % pro km treten in den Wintermonaten in einem relativ schmalen Höhenbereich um 20 km auf, kennzeichnend für den polaren Typ der vertikalen Ozonverteilung (KHRGIAN 1975). Die Sekundärmaxima erscheinen deutlich mit relativ hohen Anteilen, mehr als 3 %/km, im Höhenbereich 12 bis 16 km in den Monaten März bis Mai (kombinierter Typ). In den Sommermonaten und im frühen Herbst sind die Anteile im Bereich des Hauptmaximums am geringsten (tropischer Typ bzw. moderater Typ). Hier ist die Ozonkonzentration des Hauptmaximums auf einen größeren Höhenbereich verteilt. (Dies kann nicht auf die zu dieser Zeit niedrigen Gesamtozonwerten zurückgeführt werden, denn mit der Bildung des prozentualen Anteils wird eine Normierung auf den entsprechenden Jahreszeiten-/Monatsmittelwert vorgenommen.) Die Differenz der mittleren prozentualen Anteile des Ozons am Integral-Ozon zwischen 1 und 32 km Höhe für jeden Monat zwischen den Zeitabschnitten 1967 - 76 und 1977 - 87 sind in Abbildung 2.3.2 dargestellt. Die durchgezogenen Linien bezeichnen eine Zunahme, die gestrichelten Linien eine Abnahme vom ersten zum zweiten Zeitabschnitt.

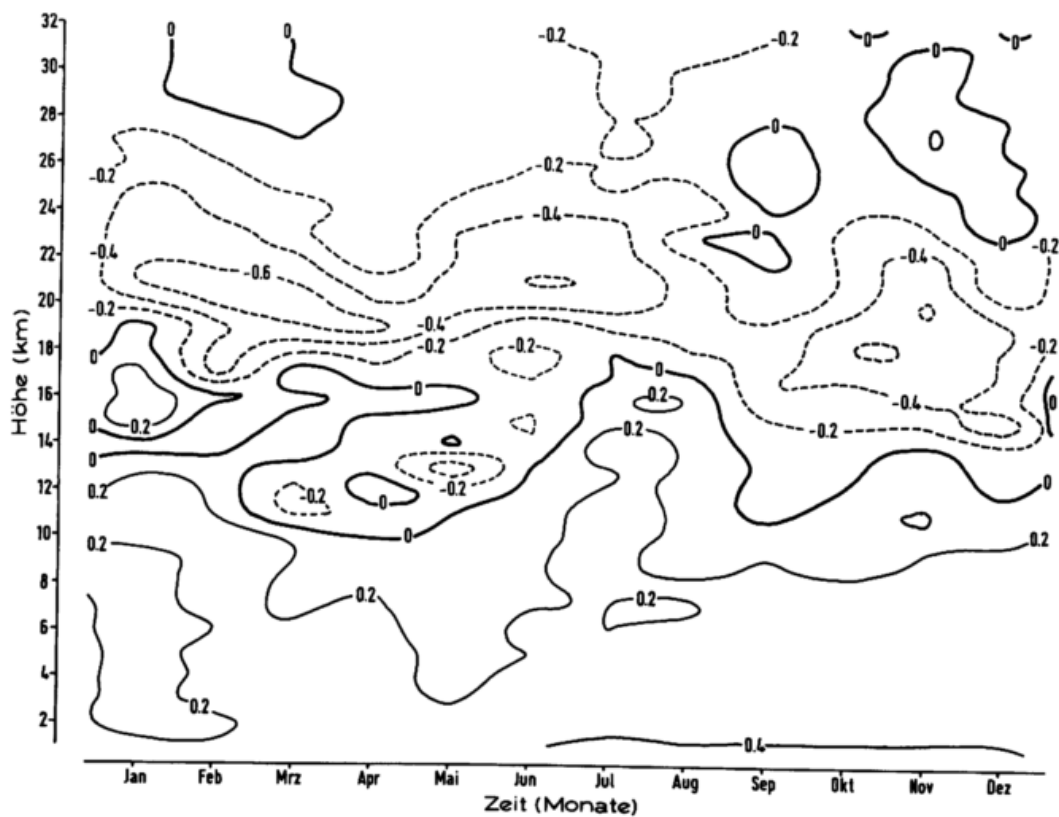


Abb.: 2.3.2 Differenz des Integral-Ozons der Zeiträume 1967 - 76 und 1977 - 1987 in Abhängigkeit von der Höhe im Jahresverlauf. Die durchgezogenen Linien bedeuten eine Zunahme, gestrichelte Linien eine Abnahme.

Deutlich kann man die troposphärische Zunahme erkennen, sie beträgt rund 0,2 % pro km. Die Abnahme im Bereich des Hauptmaximums beträgt bis zu -0,6 % pro Jahr. Ansonsten sind die Änderungen über das Jahr uneinheitlich. Besonders im Bereich oberhalb der Tropopause wechseln Zu- und Abnahme während des Jahres ab.

ST. JOHN et al. (1981) fanden für 14 Dobson-Stationen, die weltweit verteilt sind, für den Zeitraum von 1958 bis 1979 eine durchschnittliche Zunahme von 1,5 %, für weitere 23 Stationen, unter denen sich auch der Hohenpeißenberg befindet und die einen kürzeren Meßzeitraum umfassen, eine mittlere Zunahme von 1,0 %. Allerdings streuen Abnahme und Zunahme zwischen den individuellen Stationen recht stark. So findet man für den Hohenpeißenberg im Zeitraum von 1968 bis 1979 eine Abnahme von - 0,46 D. U. pro Jahr, die aber nicht signifikant ist. Für den Gesamtzeitraum von VII. 1968 bis VI. 1990 ergibt die Regressionsrechnung für das Gesamt Ozon über dem Hohenpeißenberg eine Abnahme von - 0,29 D. U. pro Jahr. Diese Abnahme ist ebenfalls nicht signifikant. Wird die Regressionsanalyse auf die Jahreszeitenmittel angewendet, so ergibt sich, daß im Winter und Frühjahr die stärksten Abnahmen mit 1,13 und 0,96 D. U. vorhanden sind. Diese Abnahmen sind auf dem 95 % bzw. 80 % Niveau signifikant. Im Sommer und Herbst sind nicht-signifikante Abnahmen von 0,21 und 0,11 D. U. vorhanden. Untersucht man die Gesamt Ozonreihe des Hohenpeißenbergs auf der Basis von Monatswerten, so findet man im Zeitraum von Dezember bis April durchgängig eine Abnahme. Die stärksten Abnahmen mit 2,89 und 2,67 D. U. pro Jahr treten im Februar und April auf. Ansonsten liegen die Abnahmen zwischen - 0,16 und - 0,57 D. U. pro Jahr. In den Monaten Mai bis November wechseln nicht-signifikante Zu- und Abnahmen einander ab. Die Werte schwanken zwischen - 0,21 und + 0,31 D. U. pro Jahr. Diese Ergebnisse, die auch nach der obigen Überschlagsrechnung zu erwarten waren, macht die Jahreszeiten-Abhängigkeit des Gesamt Ozon-Trends deutlich. Diese saisonale Variation des Trends ist auch für Europa und die USA nach neueren Arbeiten vorhanden, wenn über mehrere Dobson-Stationen gemittelt wird (WMO 1988, BOJKOV et al. 1990). Besonders in Mitteleuropa wird der Einfluß der stratosphärischen Ozonabnahme auf den Trend beim Gesamt Ozon durch die troposphärische Ozonzunahme abgeschwächt.

3. Ozonklimatologie und -phänomenologie

3.1. Der Zusammenhang zwischen Gesamt Ozon und Ozon sowie Temperatur in der jeweiligen Höhe

Auskunft über die klimatologische Verteilung sowohl des Ozons als auch der Temperatur mit der Höhe geben u. a. ATTMANNSPACHER und HARTMANNGRUBER (1975), KÖHLER et al. (1988). Während die Temperatur in allen Höhen das Maximum im Juli und das Minimum in der Troposphäre im Februar und in der Stratosphäre im Dezember aufweist, unterliegt der Jahrgang des Ozons mit der Höhe markanten Änderungen. Abbildung 3.1.1 zeigt die mittleren Jahrgänge der Ozonkonzentration in verschiedenen Höhen für den Zeitraum von 1967 bis 1990. In 32 km liegt das Maximum im Hochsommer und das Minimum im Winter.

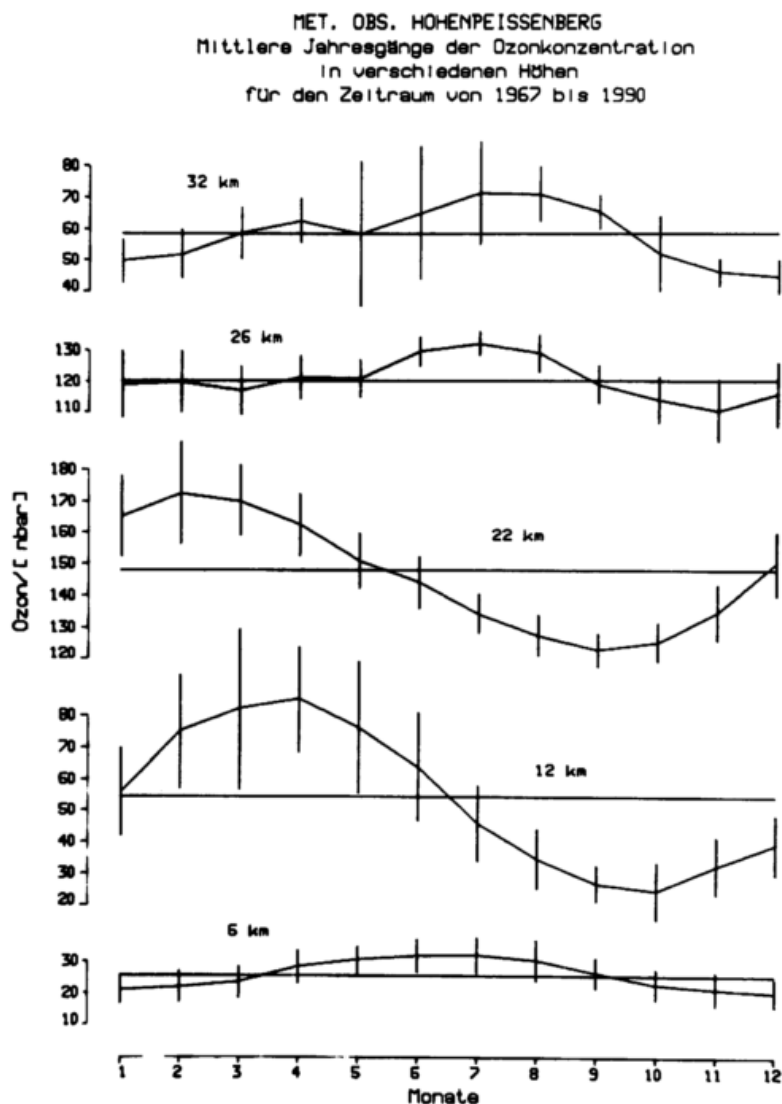


Abb.: 3.1.1
Mittlere Jahrgänge der Ozonkonzentration in verschiedenen Höhen für den Zeitraum 1967 bis 1990. Die Balken geben die Standardabweichungen derentsprechenden Monatsmittel an.

Um 26 km liegt der Übergang zwischen den durch Photochemie und durch Transport bestimmten Bereichen. Die relative Jahresamplitude ist dementsprechend gering. In 22 km liegt das Ozon-maximum im Februar, das Minimum im September. Dieser Gang hängt mit den Zirkulationsverhältnissen in der Stratosphäre zusammen. In 12 km, etwas oberhalb der Tropopause, hat sich das Maximum auf März/April verschoben, das Minimum auf den Oktober. Abbildung 3.1.2 zeigt die mittleren Jahressgänge der Ozonkonzentration im Tropopausenbereich. Deutlich ist der Phasen- und Amplitudensprung beim Übergang von der Stratosphäre zur Troposphäre zu erkennen. - In der Troposphäre befindet sich das Maximum im Sommer, das Minimum im Winter (siehe 6 km in Abb. 3.1.1).

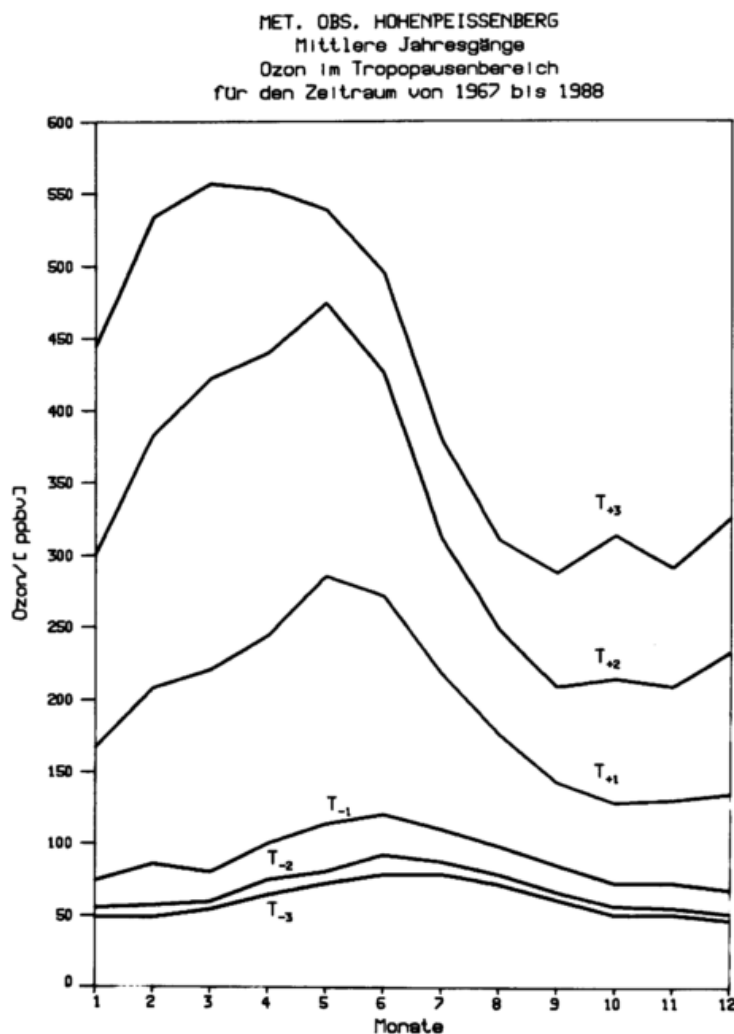


Abb.: 3.1.2
Mittlere Jahressgänge der Ozonkonzentration im Tropopausenbereich für den Zeitraum 1967 bis 1988. T_{-/+3}, T_{-/+2}, T_{-/+1} bezeichnen die 1 km-Schichtmittel, die entsprechend unterhalb (-) bzw. oberhalb (+) der Tropopause gelegen sind.

In Abbildung 3.1.3 sind die Korrelationskoeffizienten zwischen Ozon und Temperatur für die Kilometerstufen 1 bis 32 dargestellt. Grundlage bilden die Mo-

natsmittel von 1967 bis 1987. Die gestrichelte Kurve zeigt den Zusammenhang der Reihen mit Jahresgang; bei der durchgezogenen Kurve wurde der Jahresgang mit der Mittelwertmethode aus den Reihen eliminiert. In der Troposphäre ist in beiden Fällen eine positive Korrelation vorhanden, da die Phasendifferenz der Jahresgänge von Temperatur und Ozon gering ist. Die Korrelation ist Null etwas unterhalb der Tropopause, darüber nimmt sie rasch zu auf hochsignifikante Werte von 0,45 bzw. 0.65. Dieses Maximum bei 11 km wird durch Veränderungen der Tropopausenhöhe verursacht. Entweder ist bei tiefliegender Tropopause, verbunden mit relativ hohen Temperaturen, in dieser Höhe ozonreiche stratosphärische Luft vorhanden, oder bei hochliegender Tropopause (= niedrige Temperatur) befindet sich dieser Höhenbereich in der ozonarmen Troposphäre. Die negative Korrelation im Bereich des Ozonmaximums bei vorhandenem Jahresgang wird durch die große Phasendifferenz im Jahresgang zwischen Temperatur und Ozon verursacht. Die Korrelation steigt auf 0,82 bei 30 km Höhe an, da hier die Phasendifferenz im mehr photochemisch regierten Höhenbereich sehr gering ist. Wird der Jahresgang eliminiert (durchgezogene Kurve), so bleibt die Korrelation signifikant positiv, was durch Transportprozesse bedingt ist. Warmluftvorstöße sind meist mit hohen Ozonwerten gekoppelt, und umgekehrt. Hierbei sind auch entsprechende Vertikalbewegungen beteiligt. Die Korrelation geht dann mit der Höhe auf nahe Null zurück, da hier der Bereich mit vorherrschenden Transportvorgängen verlassen wird.

In Abbildung 3.1.4 sind die Korrelationskoeffizienten zwischen Ozon und Temperatur auf der Basis von Jahreszeitenmitteln für die Kilometerstufen desselben Zeitraums dargestellt, der Jahresgang ist eliminiert. Wegen der geringen Anzahl der Wertepaare haben sich die Signifikanzgrenzen zu höheren Werten hin verschoben. Zudem erscheinen die Profile etwas rauher. Dennoch erkennt man, daß im allgemeinen die Zusammenhänge der Jahreszeitenmittel dem der Monatmittel ohne Jahresgang ähnlich ist. Bemerkenswert ist die negative Korrelation oberhalb 28 km im Sommer.

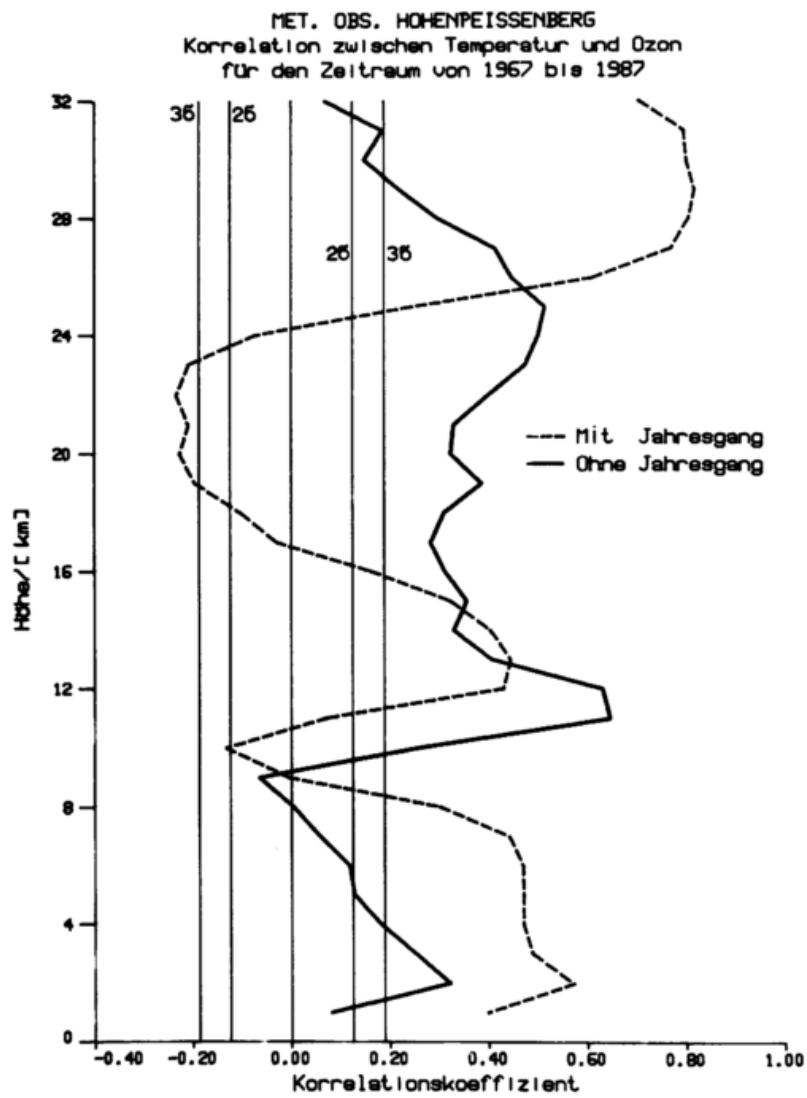


Abb.: 3.1.3 Korrelation zwischen Temperatur und Ozon für den Zeitraum 1967 bis 1987 für den Höhenbereich 1 bis 32 km auf der Basis von Monatsmitteln.
Die durchgezogene Linie bezeichnet die Korrelation ohne Jahresgang, die gestrichelte die Korrelation mit Jahresgang.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 Korrelation zwischen Temperatur und Ozon
 für den Zeitraum von 1967 bis 1987

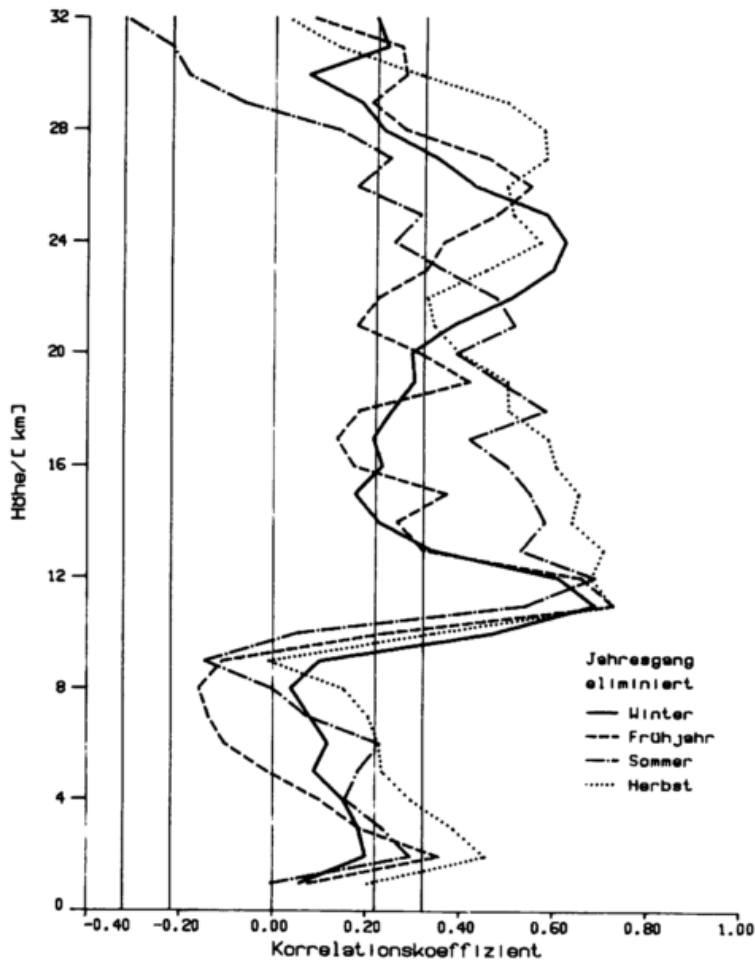


Abb.: 3.1.4
 Korrelation zwischen Temperatur und Ozon für den Zeitraum 1967 bis 1987 für den Höhenbereich 1 bis 32 km auf der Basis von Monatsmitteln für die einzelnen Jahreszeiten. Der Jahresgang ist eliminiert.

In der Abbildung 3.1.5 ist der zeitliche Verlauf der Monatsmittelwerte des Gesamt ozons für den Zeitraum vom VII. 1967 bis zum VI. 1990 dargestellt. Zunächst fällt der Jahresgang als ein wesentliches Merkmal der Gesamt ozonreihe auf. Wie der mittlere Jahresgang in Abbildung 3.1.6 zeigt, tritt das Maximum im April auf, das Minimum im Oktober. Die Jahresamplitude beträgt rund 98 D.U. Die Standardabweichung der Monatsmittel, dargestellt durch die senkrechten Balken, erreichen ihre höchsten Werte im Winter und Frühjahr. Daß der Jahresgang ein wesentliches Merkmal der Gesamt ozonreihe ist, zeigt die spektrale Varianzanalyse (BLACKMAN und TUCKEY 1958) auf der Basis der Monatsmittelwerte. Mehr als 42 % der gesamten Varianz fallen auf die 12monatige Periode.

Hoherpeissenberg

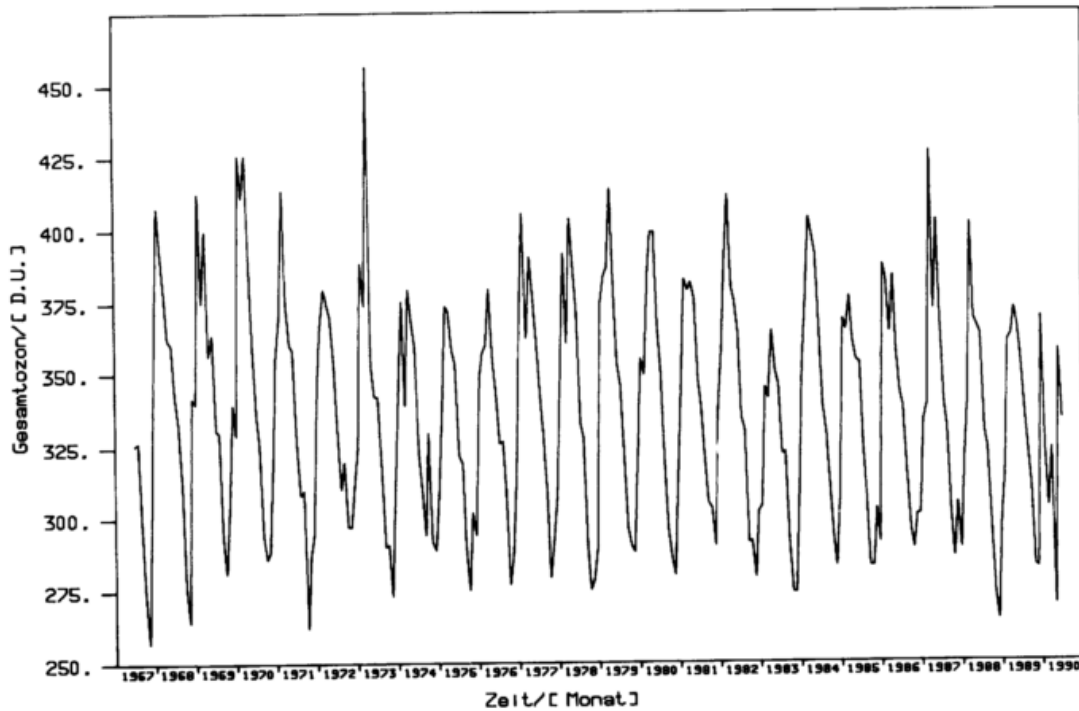


Abb.: 3.1.5 Monatsmittel des Gesamtozons für den Zeitraum VII. 1967 bis VI. 1990

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
Mittlerer Jahresgang
für den Zeitraum von VII. 1967 bis VI. 1990

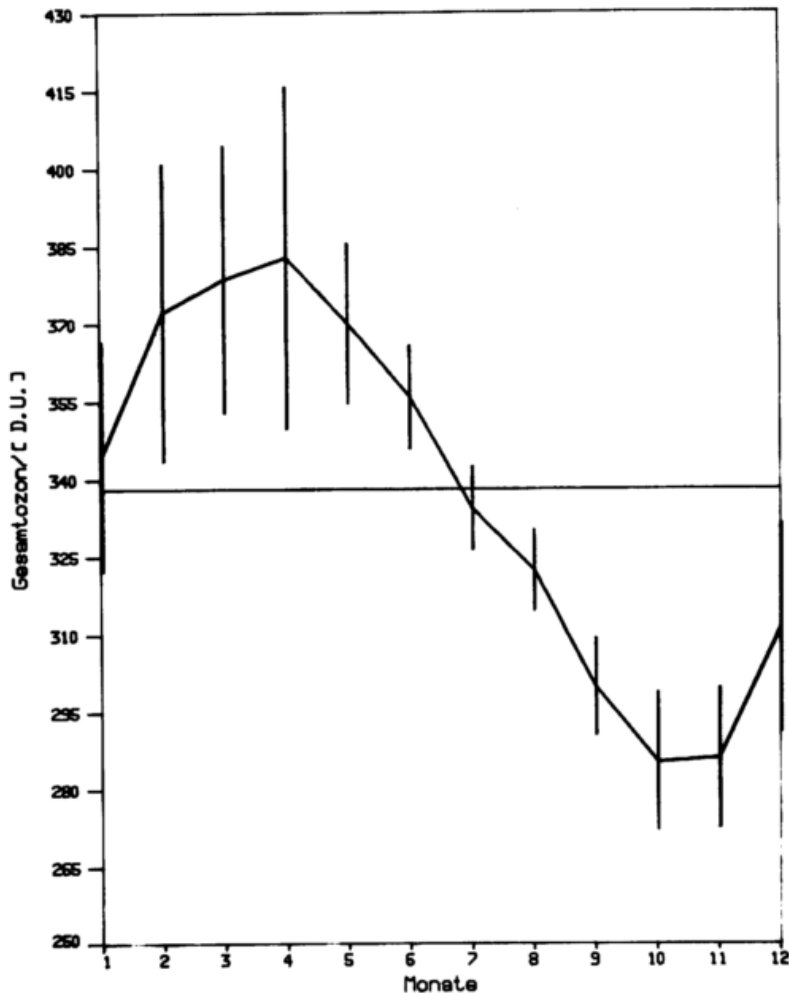


Abb.: 3.1.6
Mittlerer Jahresgang des Gesamtozons für den Zeitraum VII. 1967 bis VI. 1990 auf der Basis von Monatsmitteln.
Die Balken bezeichnen die Standardabweichungen der entsprechenden Monatsmittel.

Alle anderen Schwankungsanteile werden überdeckt und sind nicht signifikant. Wird der Jahresgang eliminiert, so treten zwei weitere Periodenbereiche über das 2σ -Niveau. Dies ist zum einen die QBO und zum anderen der Periodenbereich zwischen 128 und 76,8 Monaten. An diesem Ende des Varianzspektrums ist die spektrale Auflösung sehr gering. Diesen Anteil spektraler Varianz auf den 11jährigen Sonnenfleckenzyklus zurückzuführen, kann hier nur spekulativ sein. Die quasi zweijährige Oszillation in der äquatorialen Stratosphäre wurde von REED et al. (1961) und VERYARD und EBDON (1961) entdeckt. Nahe des Äquators oszilliert der Zonalwind zwischen östlichen und westlichen Richtungen mit einer Periode von 22 bis 34 Monaten. Die quasi zweijährige Oszillation wurde auch in mittleren und höheren Breiten sowohl in dynamischen wie auch in Tracer-Feldern (inklusive Ozon) gefunden (ANGELL und KORSHOVER 1964). Da die QBO neben dem Jahresgang ein prägendes Merkmal der Hohenpeißenberger Gesamtzonreihe ist, wurde die Reihe einer Bandpaßfilterung unterworfen, um Informationen über die Stärke und zeitliche Abfolge zu erhalten. Die Bandpaßfilterung wurde mit den von SCHÖNWIESE (1974) angegebenen Filtergewichten durchgeführt. Die Filteranzahl wurde auf 38 beschränkt, um die Reihe durch die numerische Filterung so wenig wie möglich zu verkürzen. Abbildung 3.1.7 zeigt die bandpaßgefilterte Reihe.

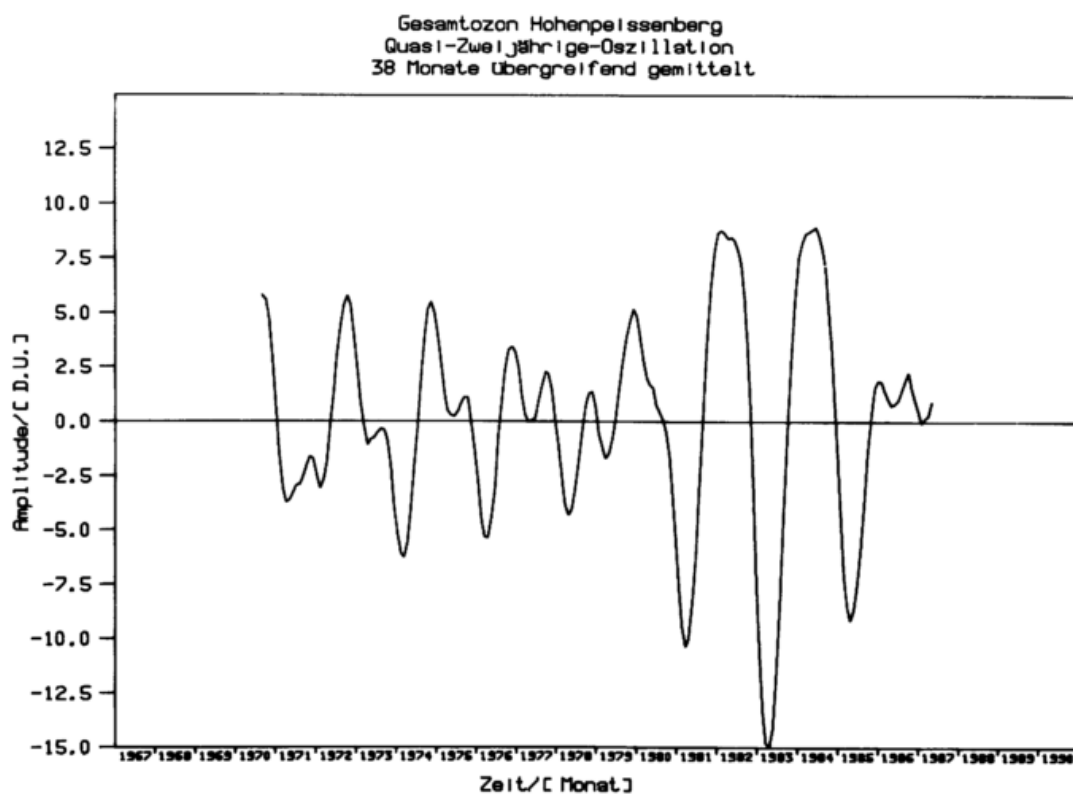


Abb.: 3.1.7 In Phase bandpassgefilterte Gesamtzonreihe.
Der Filter ist bei 27 Monaten zentriert.

Relativ deutlich ist die QBO Anfang der 80er Jahre. Die Minima fallen auf Anfang 81, 83, 85. Ende der 70er Jahre fand ein Phasensprung statt, denn davor lagen die Minima zu Beginn der Jahre mit geradzahligem Jahreszahl. Während dieser Zeit tritt die QBO weniger stark und deutlich hervor. Die Amplitude der QBO beträgt zwischen 10 D.U. in den 70er und 20 D.U. in den 80er Jahren. Da die QBO besonders mit Änderungen im Windregime verbunden ist, wurde der Zusammenhang zwischen dem Wind in der Stratosphäre zwischen 250 und 15 hPa und dem Gesamtozon über dem Hohenpeißenberg untersucht. Es zeigt sich, daß im Periodenbereich der QBO nur zwischen der Meridional Komponente des Windes und dem Gesamtozon ein Zusammenhang vorhanden ist: und zwar im Bereich zwischen 100 und 50 hPa. In diesem Bereich hat das Gesamtozon im Mittel alle 27 Monate ein Minimum/Maximum, nachdem der meridionale Wind etwa 4-5 Monate zuvor ein Minimum (= maximaler Nordwind) / Maximum (= maximaler Südwind) hatte.

In Abbildung 3.1.8 sind die Phasenverschiebungen für den Höhenbereich 10 bis 30 km zwischen Ozon und Temperatur am Kilometer sowie zwischen Gesamtozon und Temperatur am Kilometer für die Periodenbereiche 12 und 27 Monate, das heißt für Jahresgang und QBO, dargestellt. Die Phasenverschiebungen wurden mittels der Kreuzspektralanalyse berechnet (FLEER 1981). Für den Periodenbereich 12 Monate sind alle Phasenbeziehungen auf dem 3σ -Niveau signifikant. Man erkennt, daß für Temperatur und Ozon am Kilometer bis 26 km eine Änderung der Temperatur eine gleichgerichtete Änderung des Ozons mit einer zeitlichen Verschiebung von zwei bis vier Monaten folgt, wobei die Phasen von zwei Monaten auf den Bereich der Sekundärmaxima beschränkt ist. Oberhalb von 26 km sind Ozon und Temperatur fast in Phase.

Der Jahresgang der Temperatur läuft demjenigen des Gesamtozons immer nach. Dabei variiert die Phasenverschiebung von 1,5 Monaten im Bereich um 14 km bis ca. drei Monaten im Bereich des Ozonmaximums. Der Jahresgang des Ozons läuft dem des Gesamtozons im Höhenbereich zwischen 11 und 25 km bis zu 1,5 Monaten voraus; oberhalb 25 km bis zu knapp drei Monaten hinterher.

Im Periodenbereich der QBO folgen die Änderungen des Gesamtozons denen des Ozons am Kilometer im Bereich von 18 bis 30 km mit einer Verschiebung von etwa drei Monaten, unterhalb von 18 km laufen die Änderungen des Gesamtozons den Änderungen des Ozons am Kilometer mit einer nach unten von einem bis 7 Monaten zunehmenden Verschiebung voraus. Diese Phasenbeziehungen sind zum großen Teil

signifikant. Die Phasenbeziehungen zwischen Gesamtozon und Temperatur und Ozon und Temperatur am Kilometer sind im wesentlichen nur im Bereich des Hauptmaximums signifikant und haben sich bei der QBO gegenüber dem Jahresgang verändert: Bei der QBO ändert sich zuerst die Temperatur und dann das Gesamtozon bzw. das Ozon am Kilometer. Die Phasenverschiebungen betragen zwischen vier und sieben Monaten bzw. zwischen ein und drei Monaten.

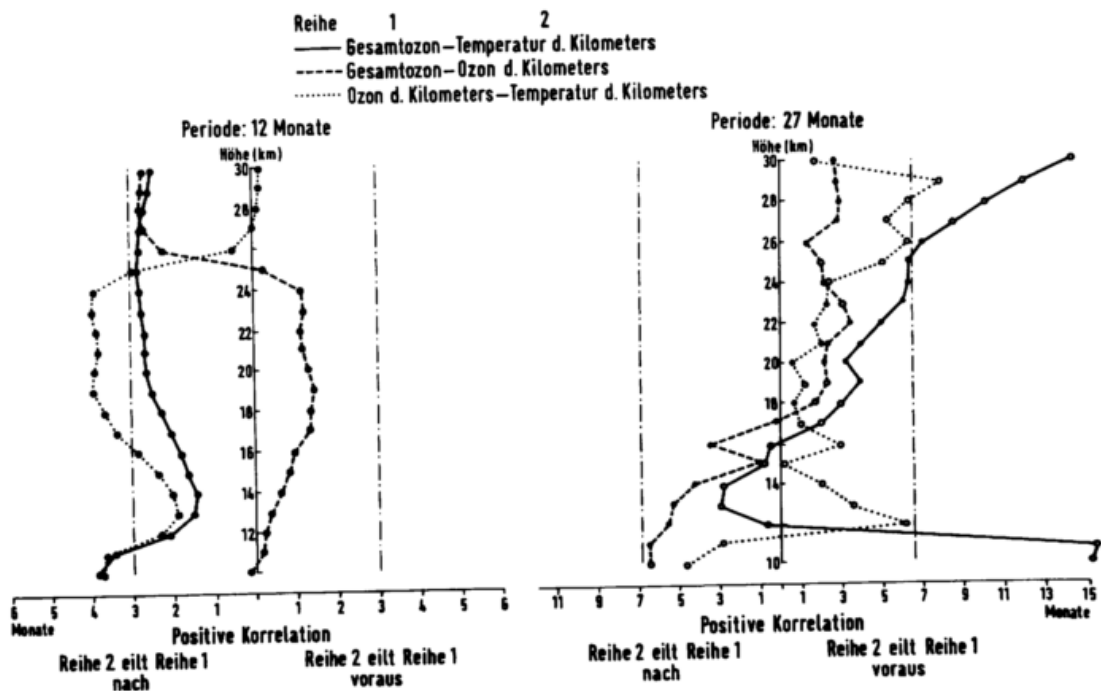


Abb.: 3.1.8 Phasenverschiebungen zwischen Gesamtozon, Ozon am Kilometer und Temperatur am Kilometer im Höhenbereich zwischen 10 und 30 km der Perioden 12 und 27 Monate für den Zeitraum 1967 bis 1987. Ausgefüllte Kreise bedeuten eine 2σ -signifikante, offene Kreise eine nicht-signifikante Phasenverschiebung um $\pi/2$ der jeweiligen Perioden an.

3.2 Ozon an der Tropopause bei winterlichen Hoch- und Tiefdrucklagen

Im Bereich von Zyklonen und Antizyklonen herrschen insbesondere bezüglich der Vertikalbewegung bestimmte Zirkulationsschemata. Dies wird in einer Skizze (Abbildung 3.2.1) vergegenwärtigt. Im Tief herrscht in der Troposphäre Aufsteigen und in der Stratosphäre Absinken, im Hoch ist es umgekehrt. Wie frühere Untersuchungen gezeigt haben, an dieser Stelle seien die Arbeiten von FAUST (1953) und ATTMANNSPACHER (1959) genannt, fällt das Niveau, in dem die

Vertikalbewegung Null ist, keineswegs mit der Tropopause zusammen. Die sogenannte Nullschicht liegt vielmehr unterhalb der Tropopause. Es wurde untersucht, ob sich diese typischen Zirkulationsverhältnisse in der Ozonkonzentration im Bereich der Tropopause widerspiegeln.

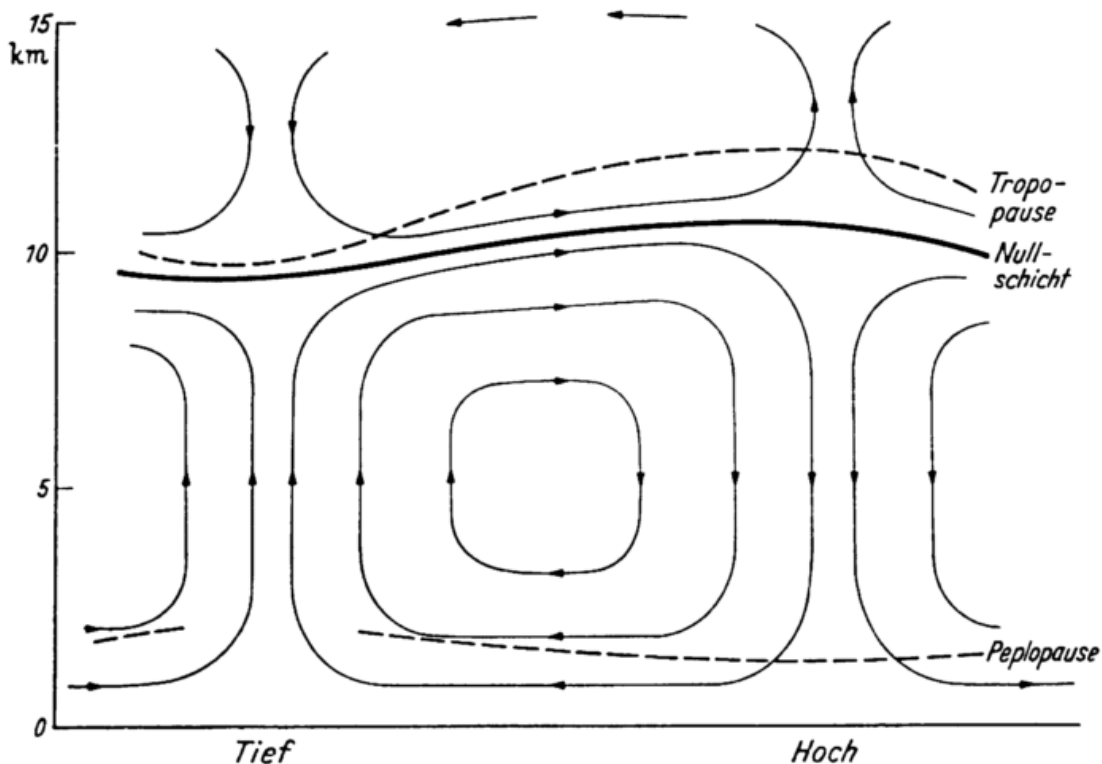


Abb.: 3.2.1 Schematische Darstellung der Zirkulation in der Troposphäre und unteren Stratosphäre und der Lage der Tropopause und Nullschicht bei Hoch- und Tiefdrucklagen nach FAUST (1953).

Es wurden daher für die Wintermonate Dezember bis Januar für den Zeitraum 1967 bis 1989 die Tage mit Ozonaufstiegen bestimmt, an denen Hohenpeißenberg im unmittelbaren Bereich eines Kältetiefs bzw. in der Nähe einer ausgeprägten Trogachse oder im Bereich eines Höhenhochs bzw. in der Achse eines ausgeprägten Hochkeils lag. Benutzt wurde dazu die 500-hPa-Fläche, die die mittlere Troposphäre repräsentiert. Die beiden Gruppen wurden mit Tief und Hoch bezeichnet. Für Tiefs ergaben sich 68, für Hochs 61 Fälle. Für diese Fälle wurde die Höhe der Tropopause T_0 sowie das mittlere Ozonmischungsverhältnis für sechs 1-km-Schichten bestimmt, deren Schwerpunkte 0,5, 1,5, und 2,5 km oberhalb bzw. unterhalb der Tropopause liegen, siehe auch Kapitel 2.2.. Die Schichtmittel wurden für Hochs und Tiefs getrennt berechnet und die Differenzen zu den Mittel-

werten im Winter des Gesamtzeitraums in den entsprechenden Höhen gebildet. Hierzu ist zu erwähnen, daß die Tropopause bei den betrachteten Hochs im Mittel ca. 2 km höher lagen als bei den Tiefs. Die Differenzen sind in Abbildung 3.2.2 in Abhängigkeit von der Höhe dargestellt, wobei der Bezugspunkt der Höhe die Tropopause ist. Es wurde als Einheit das Ozonmischungsverhältnis gewählt, da dieses invariant gegen Vertikalbewegungen ist und daher aus Abweichungen des Mischungsverhältnisses Rückschlüsse auf Vertikalbewegungen möglich sind. Allerdings sind die im folgenden geschilderten Ergebnisse auch bei Verwendung des Ozonpartialdrucks im Prinzip die gleichen.

Bei den Tiefs sind in der unteren Stratosphäre beträchtliche positive Abweichungen der Ozonwerte vom Normalwert vorhanden. Da oberhalb der Tropopause das Ozon mit der Höhe zunimmt, lassen die erhöhten Ozonwerte auf Absinken schließen. Dies entspricht dem Zirkulations-Schema in der Stratosphäre über einem troposphärischen Tief. Der Ozonüberschuß nimmt nach unten ab, ist unterhalb der Tropopause nur noch sehr gering und in der Schicht $T_2 - T_3$ praktisch Null. Die Abwärtsbewegung greift also über die Tropopause hinweg, und die Nullschicht liegt unterhalb der Tropopause. Eine negative Abweichung, wie man es beim Aufsteigen unterhalb der Nullschicht erwarten könnte, ist nicht vorhanden.

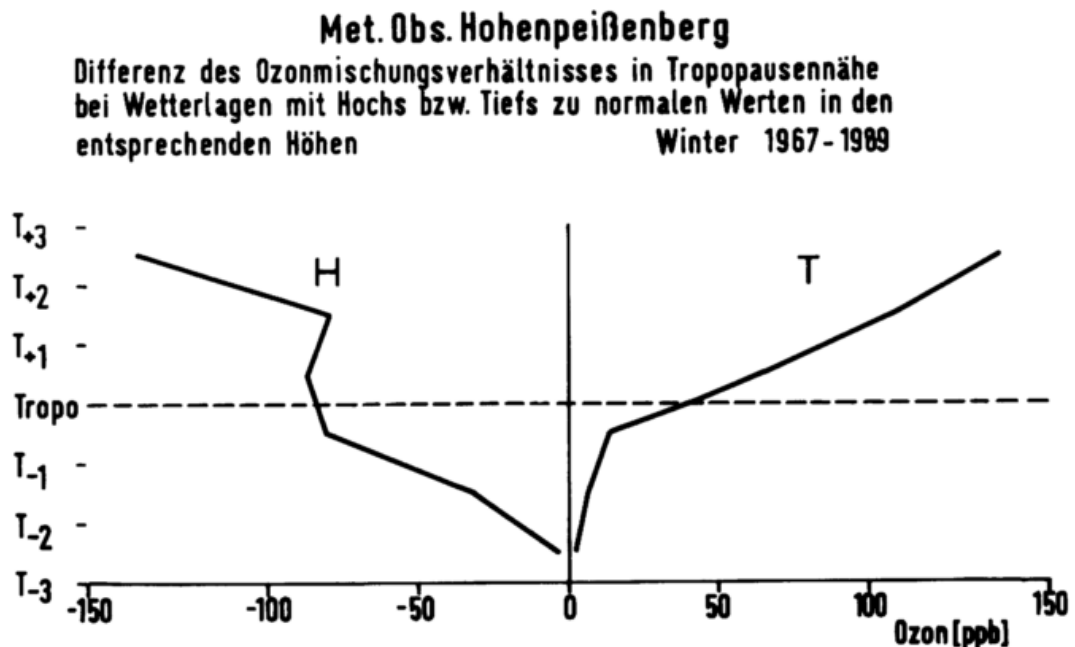


Abb.: 3.2.2 Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses in Tropopausennähe bei Hoch- und Tiefdrucklagen von den normalen Werten für die Winter 1967 - 1989

Hier ist die Troposphäre im Gegensatz zur Stratosphäre stark durchmischt.

Bei den Hochs ist in der Stratosphäre die Abweichung des Ozonmischungsverhältnisses vom Normalwert negativ, was den Hinweis auf aufwärts gerichtete Bewegung gibt. Die Abweichung nimmt nach unten gleichfalls ab, die Vertikalbewegung ist dort geringer. An der Tropopause zeigt sich eine Verwerfung, und in der Schicht $T_2 - T_3$ ist die Abweichung vom Normalwert wieder nahe Null. Die Abwärtsbewegung unterhalb der Nullschicht ist nicht nachzuweisen. Der Vergleich zwischen Hoch und Tief unterhalb der Tropopause zeigt, daß die Höhendifferenz zwischen Tropopause und Nullschicht im Hoch größer ist als im Tief (siehe Abb. 3.2.1). Die Untersuchung zeigt, daß die unterschiedlichen Zirkulationsverhältnisse in troposphärischen Hochs bzw. Tiefs sich in der unteren Stratosphäre und im Tropopausenbereich stark in der Ozonverteilung bemerkbar machen, betragen doch die Abweichungen vom Normalwert in der zweieinhalb km oberhalb der Tropopause gelegenen Schicht ($T_2 - T_3$) mehr als + bzw. - 140 ppb, (was + 50 bzw. -27 % entspricht).

3.3 Ozon im Höhenbereich zwischen 35 und 50 km

Die seit etwa 1977 mittels Brewer/Mast-Sonde gemessene Ozonabnahme oberhalb 26 km, siehe Kap. 2.2., kann als Bestätigung der Modellergebnisse betrachtet werden, die die größte Ozonabnahme in 40 km aufgrund von FCKWs vorhersagen, (WUEBBLES et al. (1983), BRÜHL und CRUTZEN (1988)). Die Brewer/Mast-Sonden können aber nicht in diesen Höhen messen. Um aber auch im Bereich der oberen Stratosphäre Ozonprofile bestimmen zu können, wurde am Hohenpeißenberg eine Lidar-Anlage installiert. Seit Oktober 1987 arbeitet diese Anlage operationell. Wegen der Kürze des operationellen Betriebs können bisher noch keine Trends erkannt werden. Doch lassen die bisherigen Messungen, außer dem Vergleich mit der Brewer/Mast-Sonde, auch erste klimatologische Untersuchungen in dem Höhenbereich zwischen 35 und 50 km zu, teilweise veröffentlicht von CLAUDE und VANDERSEE (1990). Abbildung 3.3.1 zeigt einen mittleren Jahresgang der Ozonkonzentration in den Umkehrschichten 5 bis 9. In den Umkehrschichten 8 und 9 deutet sich eine halbjährliche Welle (SAO = semiannual oscillation) an, die auch WANG et al. (1989) in den SAGE II Daten gefunden haben. Die größte Amplitude findet man in Umkehrschicht 6. In den Schichten darüber und darunter erscheinen die Jahresverläufe ähnlich, aber mit geringeren Amplituden. Dies folgt der photochemischen Theorie und wird auch mit Ballon-Sondierungen

gemessen. Der Vergleich mit den Sondierungen zeigt, daß die Übereinstimmung in Umkehrschicht 6 recht gut ist. In Umkehrschicht 5 ist sie allerdings nicht so gut, die Sonde liegt etwa 7 % höher. Diese systematische Abweichung kann auf vier Ursachen zurückgeführt werden:

1. Am Sondenprofil wird nach WMO eine relative Dobsonkorrektur durchgeführt, die mitunter zu einer überproportionalen Erhöhung im Maximum führt.
2. Die Trägheit der Sonde legt das Maximum in größere Höhen.
3. Die nicht zeitgleiche Messung.
4. Das nicht-lineare Verhalten der Photomultiplier bei hoher Belastung, siehe dazu SCHÖNENBORN und CLAUDE (1991).

Für Vergleiche in größeren Höhen muß auf Satelliten- und Umkehrdaten zurückgegriffen werden. Tabelle 3.3.1 zeigt Ergebnisse von DeLUISI et al. (1989), die SBUV- und Umkehrdaten mit einem Modell-Profil verglichen haben, das aus SAGE II Daten konstruiert wurde. Die linke Spalte gibt den Höhenbereich an, d. h., die Umkehrschicht. Daneben befinden sich die Werte des Modell-Profiles in Dobson Units. Dann folgen die prozentualen Abweichungen von SBUV, Umkehr und hinzugefügt Lidar Hohenpeißenberg und Sonde Hohenpeißenberg. In den Umkehrschichten 5 bis 8 sind die Abweichungen des Lidars zum Modell-Profil vernachlässigbar, und man erkennt, daß die Sonde zum Modell-Profil zu hohe Werte liefert. Eine sehr hohe Abweichung zwischen Lidar und Modell-Profil ist in Umkehrschicht 9 vorhanden; gerade in dem Bereich, in dem das Lidar möglichst frühzeitig und genau Trends aufdecken soll, die anthropogener Natur sind. Eine Erklärung dieser Abweichung kann die Zunahme des Ozons in der Stratosphäre während der Nacht sein. Zusätzlich zu den zufälligen Schwankungen während der Nacht scheint es einen typischen nächtlichen Verlauf zu geben. Abbildung 3.3.2 zeigt die Auswertung von "long-night"-Daten der Januare 1988, '89 und '90 mit einem Maximum der Ozonkonzentration um Mitternacht und einem Minimum am Ende der Nacht. Das Minimum erscheint deutlich im Höhenbereich zwischen 26 und 38 km. Beide Extreme weichen mit 2σ von den jeweiligen nächtlichen Mittelwerten ab. Betrachtet man die einzelnen Umkehrschichten, so erkennt man, daß die relative Standardabweichung der Schichtmittel mit der Höhe zunimmt. In Umkehrschicht 5 sind es 0,8 %, in Umkehrschicht 9 dagegen 15 %. Dies impliziert, daß der Vergleich zwischen Meßsystemen, die systematisch zu unterschiedlichen Tageszeiten messen, vor allem in großen Höhen zu großen Abweichungen führen kann, während in niedrigen Höhen die Ungleichzeitigkeit eher eine untergeordnete Bedeutung hat.

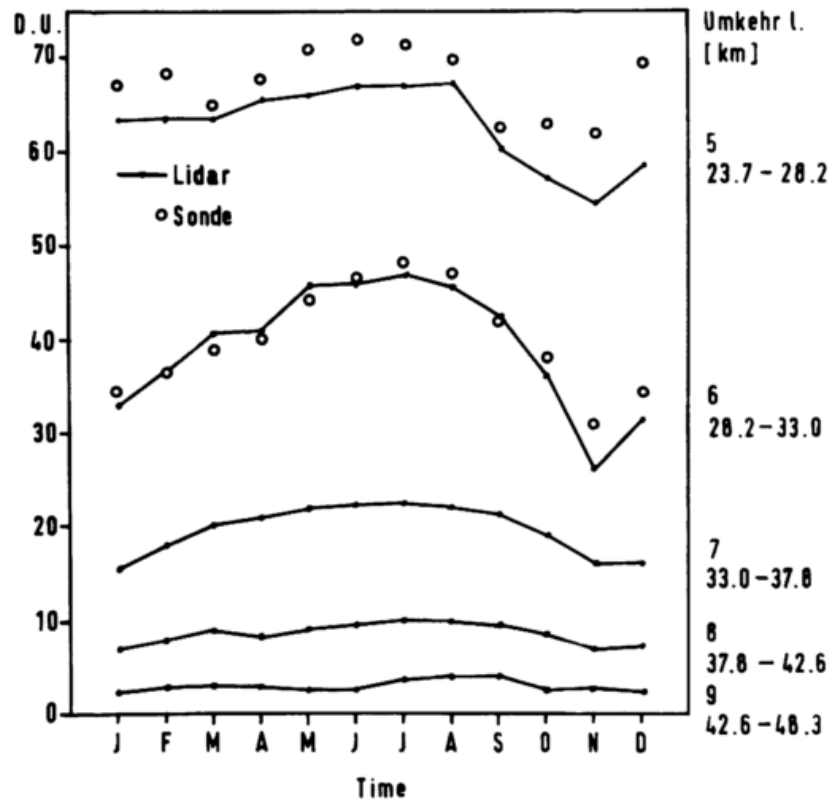


Abb.: 3.3.1 Mittlere Jahresgänge des Ozons in den Umkehrschichten 5 bis 9 gemessen mit Lidar und Brewer/Mast-Sonde im Zeitraum X. 1987 bis IV. 1990.

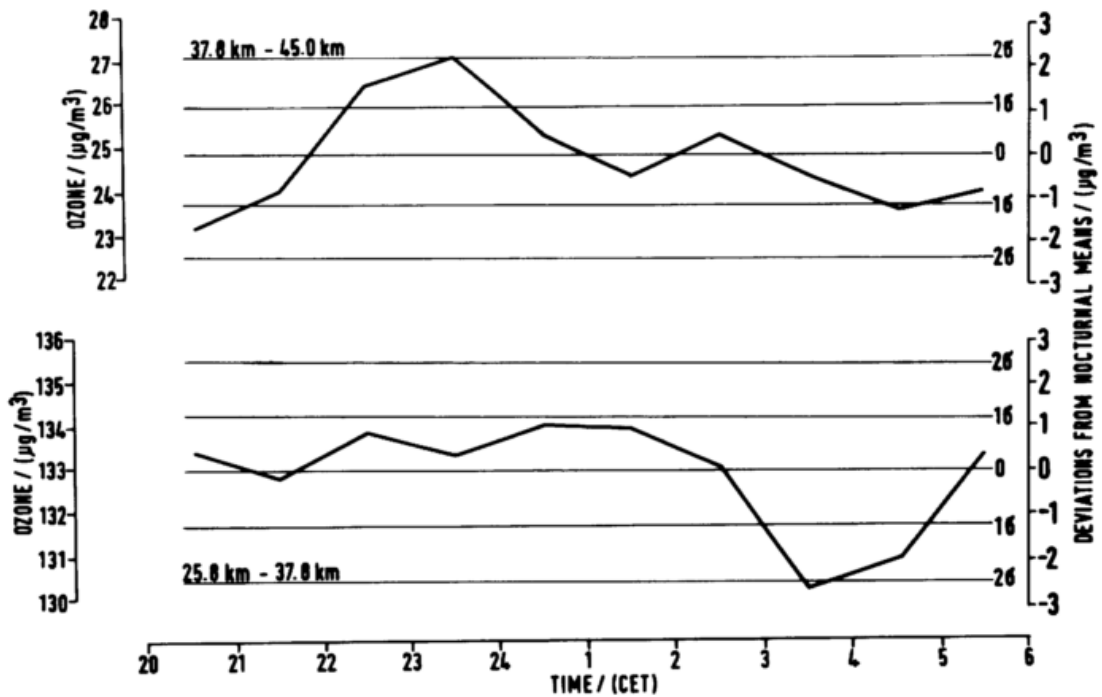


Abb.: 3.3.2 Mittlere Nachtgänge in den Höhenbereichen 25.8 bis 37.8 km und 37.8 bis 45.0 km für Januar 1988, '89 und '90.

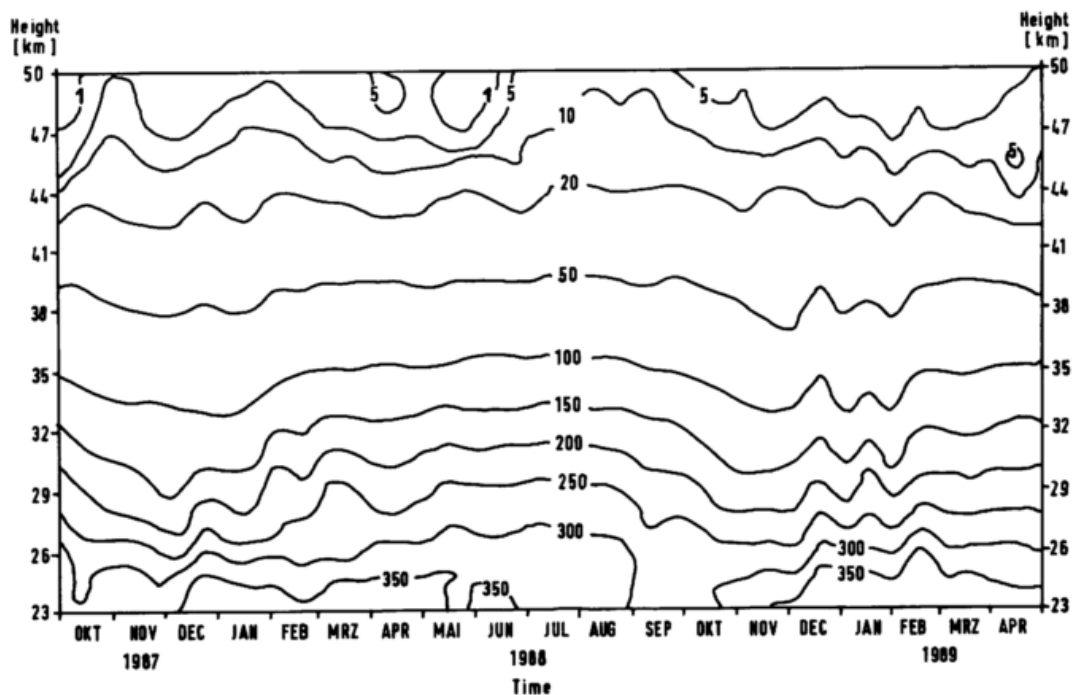


Abb.: 3.3.3 Ozonkonzentration für den Höhenbereich 23 bis 50 km für den Zeitraum X. 1987 bis IV. 1989 auf der Basis von Wochenmitteln.

Tabelle 3.3.1

Umkehr	Test	SBUV-Test	Umkehr-Test	Lidar	HP-Test	B/M HP-Test
9	2,78	0	-11		11,5	
8	8,84	-2	-5		1	
7	20,4	0	-4		-3	
6	38,7	1	12		2	4
5	63,0	5	10		0	7
4	76,8	8	-8			
3	57,4	-15	-9			
2	25,4	-7	48			
1	25,1	-9	-27			

Neben den regelmäßigen Variationen im Zeitmaßstab des Jahresgangs und der Nacht gibt es auch noch Variationen, die recht ausgeprägt sind und im Zeitmaßstab von Jahreszeiten liegen. Abbildung 3.3.3 zeigt eine Zeit-Höhen-Darstellung der Ozonkonzentration für den Höhenbereich 23 - 50 km und den Zeitraum von Oktober 1987 bis April 1989. Die Berechnung wurde auf der Basis von Wochenmitteln durchgeführt. Man erkennt, daß die Variabilität des Ozons im Winter am stärksten ist. Im Winter 1988/89 wurde der gesamte Höhenbereich beeinflusst, im Winter davor waren die starken Variationen auf die mittlere Stratosphäre beschränkt. Im Sommer ist der Verlauf relativ glatt und scheint photochemisch bestimmt zu sein. In der oberen Stratosphäre ist der Verlauf wesentlich unruhiger und weniger glatt.

3.4 Extrem niedrige Gesamtozonwerte über Nord- und Mitteleuropa und möglicher begrenzter Ozonabbau durch heterogene Prozesse am 01. Februar 1989

Eine spezielle Untersuchung wurde einem Ereignis in der Stratosphäre gewidmet, das ein extremer Fall eines sogenannten "Minihole" ist. Der Begriff des Minihole wird in letzter Zeit in der Literatur verwendet. Am 01. Februar 1989 trat in 27,8 hPa über Hohenpeißenberg die niedrigste Temperatur auf, die seit Beginn der Sondierungen 1967 hier gemessen wurde: - 83,5° C. Diese extrem kalte Stratosphäre war mit einem sehr niedrigen Gesamtozonwert von 266 D.U. gekoppelt. Das Ereignis wurde eingehend von WEGE (1991) untersucht. Hier soll nur eine Zusammenfassung der Ergebnisse wiedergegeben werden, bezüglich Details wird auf die erwähnte zitierte Veröffentlichung verwiesen. Zum Monatswechsel Januar-Februar 1989 lag der stratosphärische Kältepol in einer außergewöhnlich südlichen Position über Südkandinavien. Die Temperatur von - 92° C in 30 hPa in seinem Zentrum war gleichfalls ungewöhnlich. Hohenpeißenberg lag noch im Einflußbereich dieses Kältepol. Das Gesamtozon hatte nach einem vorherigen allmählichen Rückgang einen starken Einbruch an diesem Tag, anschließend war ein starker Anstieg, gekoppelt mit einer Stratosphärenenerwärmung, zu verzeichnen. Im Verlauf war eine weitgehende Parallelität zwischen der Temperatur in 30 hPa und dem Gesamtozongehalt vorhanden. In Abb. 3.4.1 sind die Vertikalprofile von Temperatur und Ozon am 01.02.1989 und die mittleren Ozonprofile für Februar '89 und Februar 1967 - 88 dargestellt. Man sieht die starken negativen Abweichungen am 01.02. in der gesamten Stratosphäre. Diese niedrigen Ozonwerte sind offensichtlich dynamisch bedingt.

Betrachtet man sich jedoch den Bereich um 20 hPa genauer, so fällt ein Rückgang des Ozons in dem Höhenbereich auf, in dem die Temperatur unter -80°C lag. Das wird besonders deutlich, wenn als Einheit für die Abzisse das Volumemischungsverhältnis gewählt wird. Dieser Ozonrückgang wird auch durch die Lidar-Messungen am Hohenpeißenberg bestätigt (Abb. 3.4.2) und könnte durch heterogene Abbauprozesse verursacht sein. Einen ähnlichen Ozonrückgang haben HOFMANN et al. (1989) bereits am 23.01.1989 über Kiruna (Nordschweden) beobachtet (Abb. 3.4.2), als der Kältepol begonnen hatte, vom Polargebiet in Richtung Skandinavien zu driften.

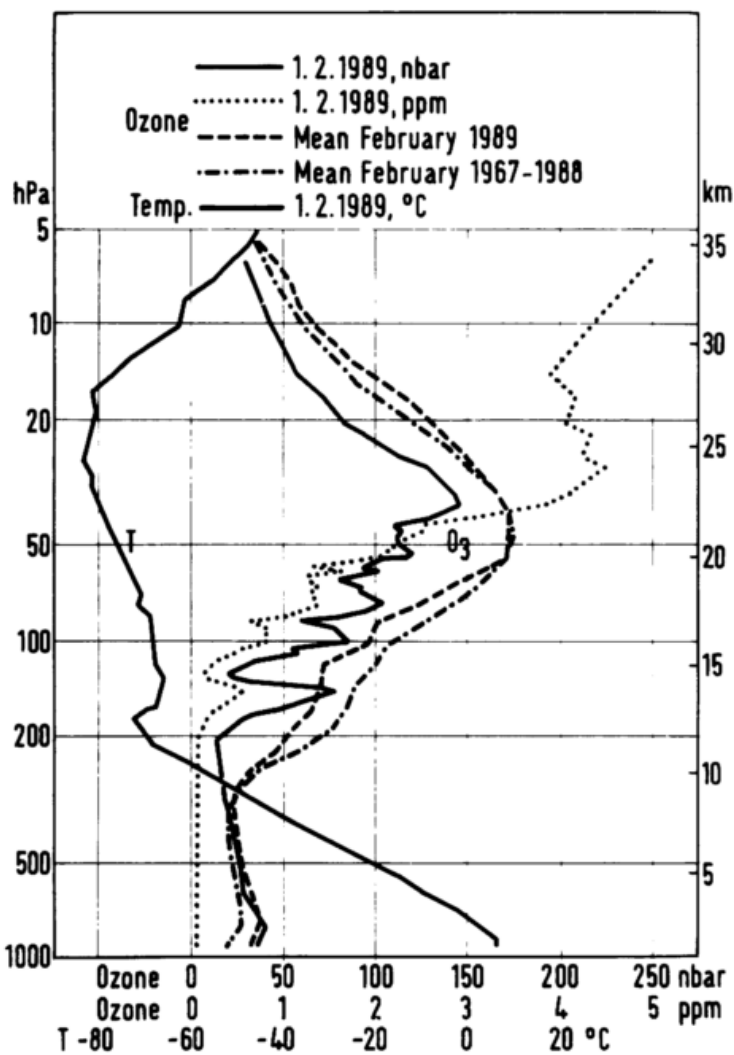


Abb.: 3.4.1
 Temperatur- und Ozonprofile für den 1. Februar 1989, mittlere Ozonprofile für Februar 1989 und Februar 1967-1988 über Hohenpeißenberg (nach WEGE 1991).

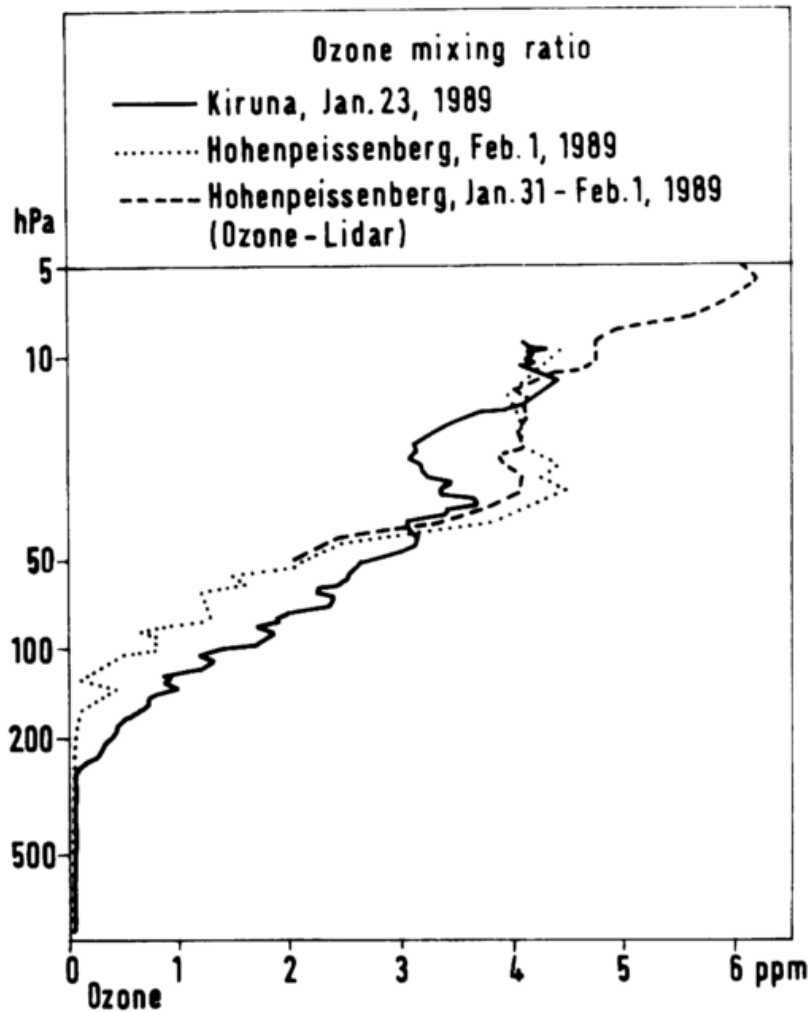


Abb.: 3.4.2 Ozonprofile für den 23. Januar 1989 über Kiruna (nach HOFMANN 1989), den 1. Februar 1989 (Brewer/Mast-Sonde) und die Nacht 31. Januar/1. Februar 1989 (Lidar) über Hohenpeißenberg.

Vom Satelliten aus (SAGE II) wurden während der Periode 31.01. - 02.02.89 PSCs (= polar stratospheric clouds) in unerwartet niedrigen Breiten über Mitteleuropa beobachtet (Pitts et al. 1990). Die Meßspur reichte bis 50° N, und am 01.02. wurde bei $50,0^{\circ}$ N, $17,2^{\circ}$ E eine signifikant höhere Extinktion in 25 km Höhe gemessen, wo die Temperatur gleichfalls unter -80° C lag. - Die dynamischen Bedingungen wurden nach diesem Zeitpunkt instabil, und es setzt eine stratosphärische Erwärmung ein, die die Temperatur in 30 hPa über Hohenpeißenberg innerhalb von 12 Tagen auf -44° C ansteigen ließ. Hierdurch wurden mögliche Abbauprozesse gestoppt, im Gegenteil begann die Ozonkonzentration (dynamisch bedingt) zuzunehmen.

In Zusammenarbeit mit dem Institut für Atmosphärenforschung Kühlungsborn und dem Meteorologischen Observatorium Potsdam wurden weitere Untersuchungen über sogenannte Miniholes unter Einbeziehung auch anderer Dobson-Stationen und der Ozonsondenstation Lindenberg durchgeführt (ENTZIAN et al. 1991). Miniholes traten in verschiedenen Jahren im Spätwinter auf, z. B. um den 08.02.1990 (insgesamt 13 Fälle). Die Vertikalprofile dieser Fälle wurden gemittelt. Es zeigt sich, daß gegenüber den Normalprofilen sowohl in Hohenpeißenberg als auch in Lindenberg das Ozon oberhalb der Tropopause bis über das Ozonmaximum hinaus erniedrigt ist. In der Troposphäre dagegen ist das Ozon etwas erhöht. Das spricht für dynamische Ursachen. Von der Temperatur in der Stratosphäre her gesehen war der 01.02.89 das markanteste Beispiel, und es gibt nur hier Anzeichen (Temperatur $< -80^\circ$, PSC_s) für möglichen Abbau durch heterogene Reaktionen.

3.5 Serienaufstiege während einer Photosmogepisode

Nähere Auskunft über die Änderungen der Ozonkonzentration in der gesamten Troposphäre während einer Hochdrucklage geben die Serienaufstiege, die im August 1990 durchgeführt wurden. Dabei wurde an drei aufeinanderfolgenden Tagen, am 8., 9. und 10. VIII. morgens und mittags Sondierungen durchgeführt. Abb. 3.5.1 zeigt die mittleren Profile für 6:00 und 12:12 UTC. Man erkennt, daß im unteren Bereich der Troposphäre die Ozonkonzentration während der ersten Tageshälfte zunimmt. Bis etwa vier Kilometer ist der Ozongradient fast völlig verschwunden, das Maximum bei zwei Kilometer ist nicht mehr vorhanden. Oberhalb von etwa sechs Kilometer allerdings wird die Ozonkonzentration im Tagesverlauf geringer. Daß dieses Verhalten kein Einzelfall ist, zeigen die Ergebnisse von SCHMIDT (1989). Er hat die Hohenpeißenberger Sondierungen in zwei Klassen geteilt. Die eine mit den Sondierungen, an deren Vortag die Globalstrahlung größer 2000 J/cm^2 war, die andere mit den Sondierungen, an deren Vortag die Globalstrahlung unter 1000 J/cm^2 betrug. In den Monaten von April bis August ist demnach bei sonnigem Wetter im unteren Bereich der Troposphäre bis etwa sieben Kilometer Höhe eine höhere Ozonkonzentration als bei bedecktem Himmel vorhanden. SCHMIDT schloss daraus, daß der Bereich der Ozonproduktion im Mittel vom Erdboden bis sieben Kilometer reicht, wobei die Effizienz mit der Höhe abnimmt. Das Maximum der Ozonproduktion lokalisiert er bei zwei Kilometer. In dem hier vorliegenden Beispiel ist, wie Abb. 3.5.1 zeigt, das Maximum bei zwei Kilometer allerdings bereits nach der ersten Tageshälfte nicht mehr vorhanden.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 mittlere Ozonprofile zu verschiedenen Uhrzeiten
 basierend auf den Sondierungen vom 8., 9. und 10. VIII. 1990

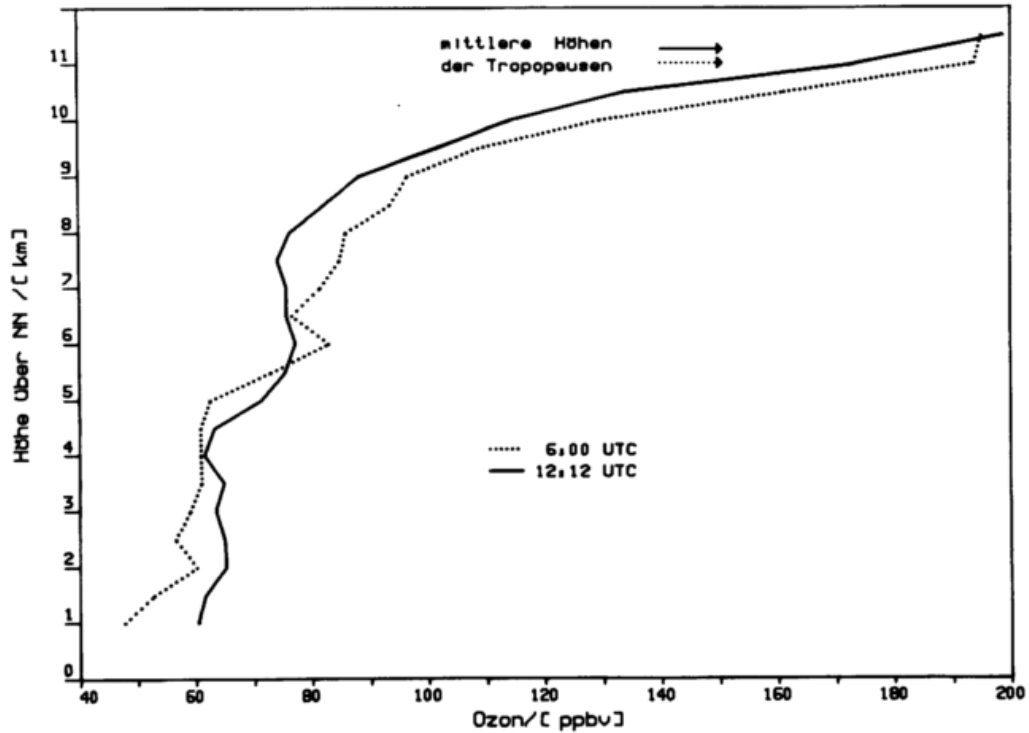


Abb.: 3.5.1 Ozonprofile für 6:00 und 12:12 UTC gemittelt über den Zeitraum vom 8. bis 10. August 1990.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 Ozonkonzentration in verschiedenen Höhen
 während einer Photosmogepisode im August 1990

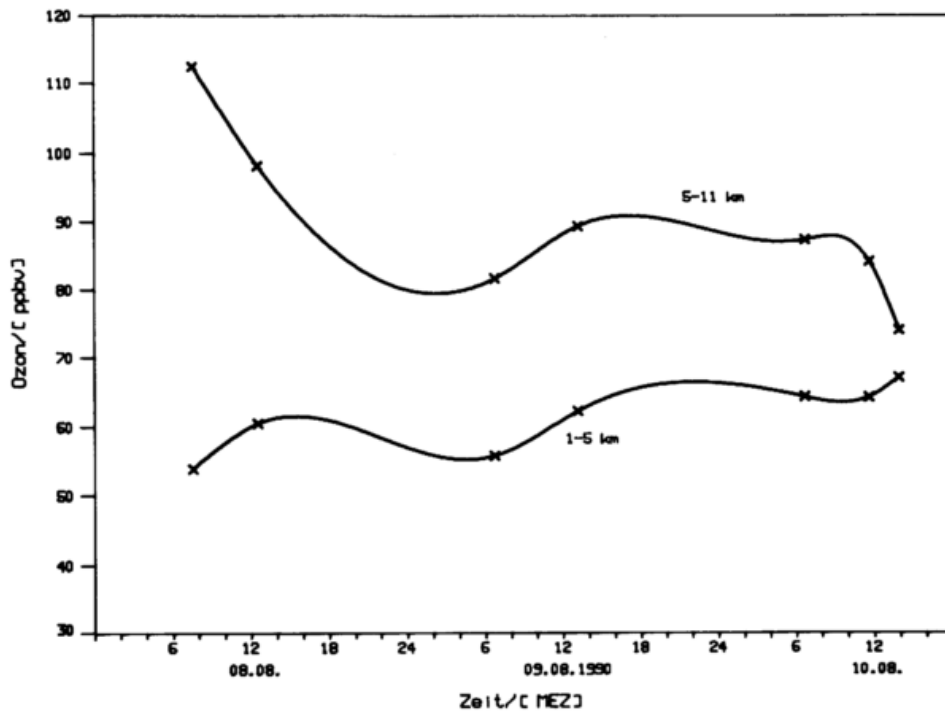


Abb.: 3.5.2 Zeitlicher Verlauf der Ozonkonzentration in den Schichtmitteln 1 bis 5 und 5 bis 11 km vom 8. bis 10. August 1990.

Abb. 3.5.2 zeigt den zeitlichen Verlauf der Ozonkonzentration in den Höhenbereichen 1 - 5 und 5 - 11 km. Man erkennt, daß während der Episode die Ozonkonzentration im unteren Bereich der Troposphäre leicht zugenommen hat. Die Interpolation deutet eine Abnahme während der Nacht an, doch sind die Ozonkonzentrationen an den Folgetagen höher. Dieses Ergebnis bestätigt die Auffassung, daß während einer Ozonepisode das Ozon im unteren Bereich der Troposphäre akkumuliert wird. Dagegen nimmt die Ozonkonzentration oberhalb fünf Kilometer ab. Zwar ist am 9. VIII. tagsüber ein Anstieg zu verzeichnen, doch am Ende der Ozonepisode ist die Ozonkonzentration im oberen Bereich der Troposphäre geringer als zu Beginn. Aus den Messungen einer einzelnen Station kann aber nicht geklärt werden, welche möglichen Ursachen dafür in Frage kommen. Die Ergebnisse von SCHMIDT, die den Zeitraum von 1976 bis 1985 umfassen, lassen allerdings vermuten, daß es sich nicht um ein zufälliges Phänomen handelt.

4. Bodennahes Ozon

4.1. Einführung

Ozon in Bodennähe wurde von C. F. Schönbein schon vor mehr als 100 Jahren nachgewiesen (SCHÖNBEIN 1845). Der Nachweis erfolgte mittels eines Reagenzpapiers, das mit Kaliumjodidlösung und Stärke getränkt war und sich bei Anwesenheit von Ozon blau färbte. Mit dieser sogenannten Schönbein-Methode wurden damals regelmäßig weltweite Messungen des bodennahen Ozons durchgeführt (LAUSCHER 1983). Einige der historischen Daten sind erhalten geblieben, und es scheint sich anzubieten, die Meßwerte von damals zu konvertieren und mit den heutigen Ozonwerten vergleichbar zu machen. Dies wurde auch von LAUSCHER (1988) und von VOLZ und KLEY (1988) mit Daten aus Wien von 1853 bzw. aus Montsouries für den Zeitraum von 1876 bis 1886 unternommen. LINVILL et al. (1980) bestimmte für den Zeitraum von 1876 bis 1880 die Ozonkonzentration für Michigan neu.

Erste quantitative Messungen mit der Methode von V. H. REGENER (1938) wurden von AUER (1939) im Raum Friedrichshafen im Herbst 1938 durchgeführt. Diese Messungen wurden 1940 von A. und H. EHMERT (1949/50) fortgeführt. Zu dieser Zeit wurde angenommen, daß Ozon in Bodennähe nur vorhanden ist, wenn durch Turbulenz Ozon aus höheren Luftschichten herabgeführt wird. In stagnierender Luft, so AUER (1939), wird das Ozon am Erdboden schnell zerstört. Die Bestimmung des Ozongehaltes würde somit ein geeignetes Hilfsmittel bilden, den Durchmischungszustand der unteren Luftschichten zu untersuchen. Erste Bodenozonmessungen am Hohenpeißenberg begannen 1948 (HARTMANNSGRUBER, 1978). Diese Messungen erfolgten sporadisch und wurden mit Reagenzpapieren durchgeführt. Im Jahre 1967 wurde zur Ozonmessung ein Ehmert-Gerät verwendet, das den Ozongehalt absolut bestimmt (EHMERT, 1951). Von 1968 bis 71 war ein Ozonmeßgerät aufgestellt, das von PRUCHNIEWICZ (1970) entwickelt war und das Ozon nach dem elektrochemischen Prinzip bestimmte. In der Folge wurde dann am Hohenpeißenberg ein Gerät entwickelt (ATTMANNSPACHER, 1971), das nach dem gleichen Prinzip arbeitet, aber eine geringere Trägheit hat. Ab 1976 bzw. 78 wurde auch das Chemilumineszens- bzw. das optische Meßverfahren eingesetzt. Diese drei verschiedenen Gerätetypen arbeiten zuverlässig und mit zufriedenstellender Genauigkeit (ATTMANNSPACHER und HARTMANNSGRUBER 1982).

Abbildung 4.1.1 zeigt den mittleren Jahresverlauf der Bodenozone am Hohenpeißenberg auf der Basis von Monatswerten für den Zeitraum von 1971 bis 1990. Das Maximum tritt im Juli mit 41.9 nbar, das Minimum mit 21,1 nbar im November auf. Die Jahresamplitude beträgt 20.8 nbar. Daß der Verlauf der Ozonkonzentration in einzelnen Jahren durchaus sehr unterschiedlich sein kann, haben bereits ATTMANNSPACHER et al. (1979) erwähnt. Hier wird der Einfluß des Wettergeschehens deutlich.

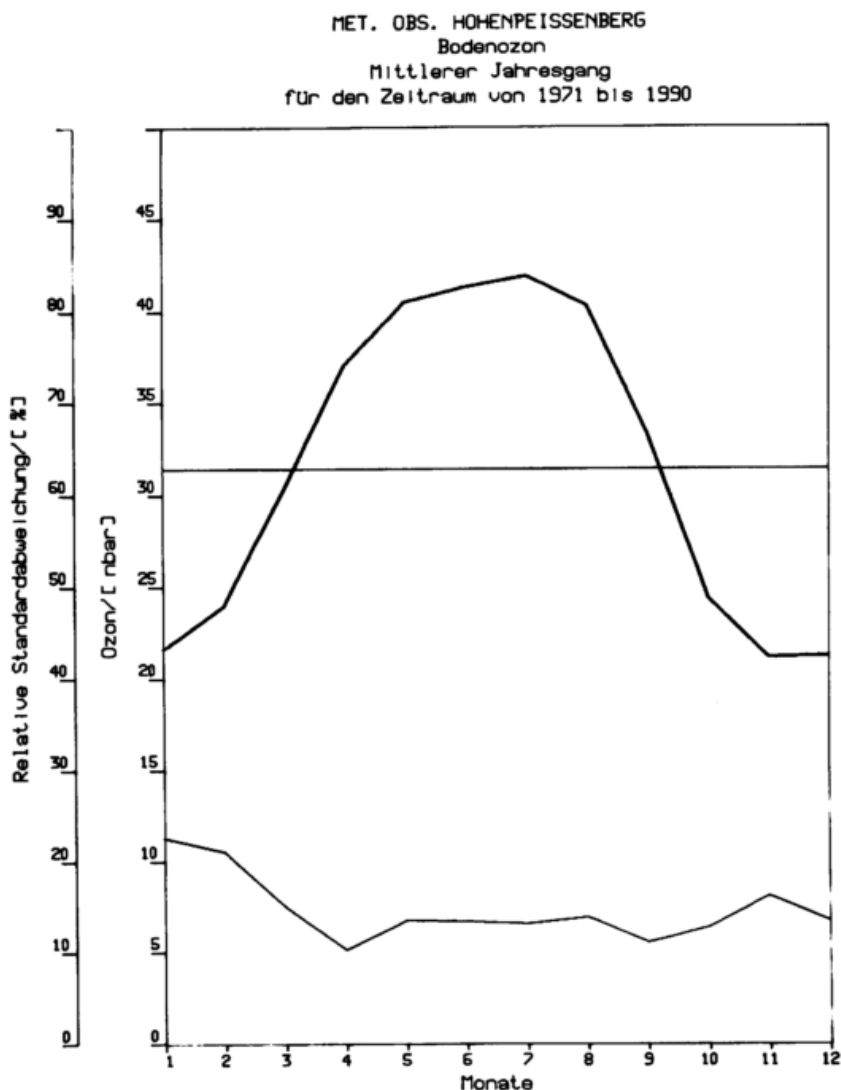


Abb.: 4.1.1 Mittlerer Jahresgang des Bodenzons und der relativen Standardabweichung der entsprechenden Monatsmittel für den Zeitraum von 1971 bis 1990.

Einmal tritt der monatliche Höchstwert bereits im April auf, ein anderes Mal erst im August; mehrere Jahre weisen sekundäre Maxima im Frühjahr auf. Die

Tiefstwerte einzelner Jahre schwanken zwischen November und Februar. Neben dem mittleren Jahresgang zeigt Abbildung 4.1.1 auch die relativen Standardabweichungen der entsprechenden Monatsmittel. Die relativen Standardabweichungen sind im Winter am größten, etwa 20 %. Ansonsten liegen die Abweichungen bei 15 %. Die relativ hohe Jahresamplitude und die insgesamt geringen relativen Standardabweichungen der Monatswerte zeigen, wie stark der Jahresgang ausgeprägt ist. Dies kommt auch durch den zyklischen Verlauf der Autokorrelationsfunktion, dargestellt in Abbildung 4.1.2, zum Ausdruck. So sind hohe positive Korrelationen bei Verschiebungen von $\tau = k \cdot 12$ Monate, Werte um Null bei $\tau = k \cdot 6 + 3$ Monate und hohe negative Korrelationen bei $\tau = k \cdot 12 + 6$ Monate mit $k = 0, 1, 2, \dots$ vorhanden. Mit der spektralen Varianzanalyse (BLACKMAN und TUCKEY, 1958) wurde die Bodenozonreihe hinsichtlich herausragender Schwankungen untersucht.

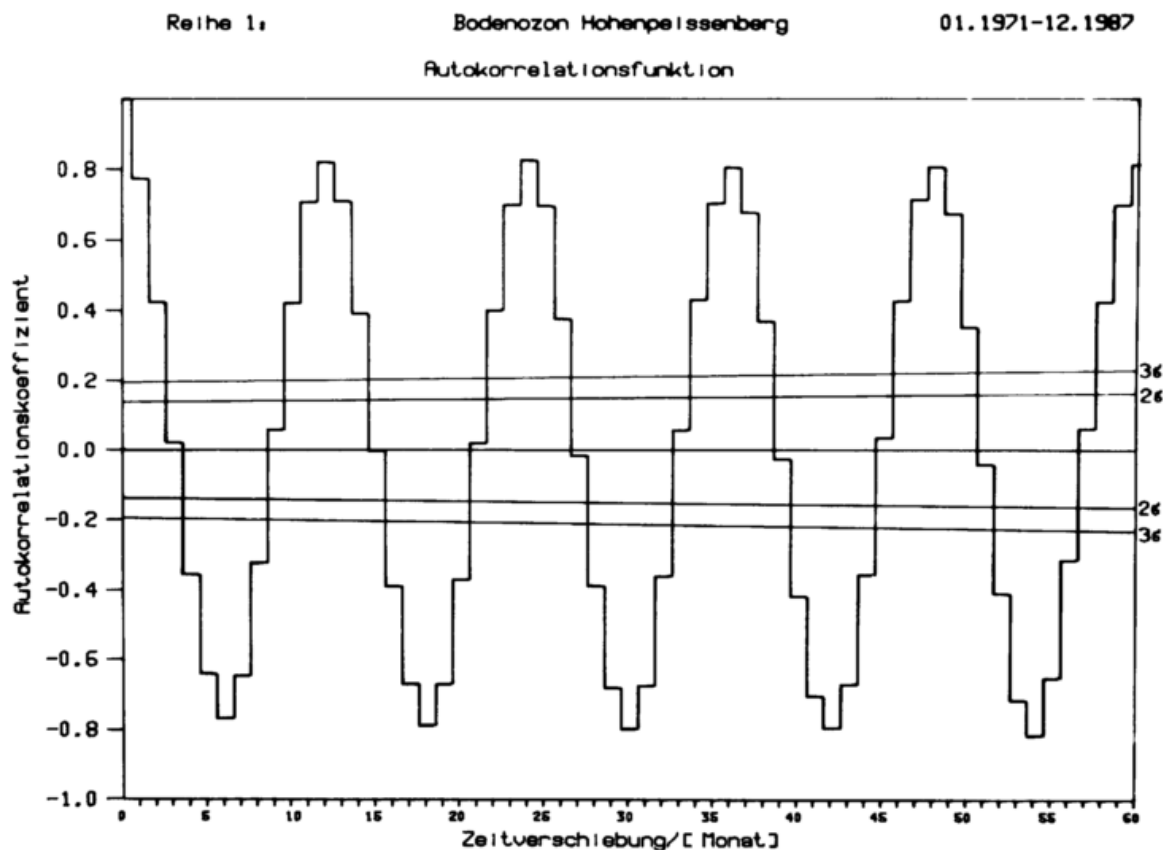


Abb.: 4.1.2 Autokorrelationsfunktion der Monatsmittel der Bodenozonreihe für den Zeitraum 1971 bis 1987, mit Jahresgang.

Varianzspektrumfunktion

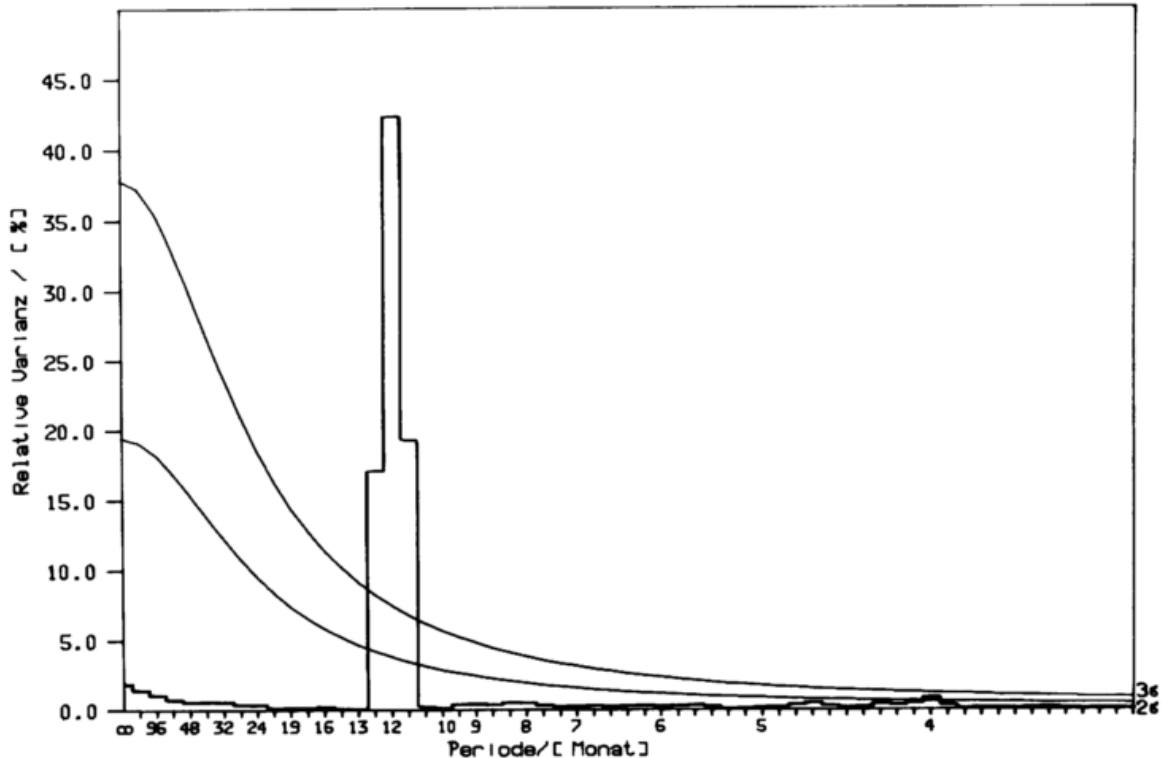


Abb. 4.1.3 Varianzspektrumfunktion der Monatsmittel der Bodenozonereihe, mit Jahresgang.
Um die Übersichtlichkeit der Achsenbeschriftung zu erhalten, wurden die Perioden auf der Abszisse ganzzahlig dargestellt. Die Berechnungen wurden mit den exakten Werten durchgeführt.

Die Abbildung 4.1.3 gibt das Ergebnis wieder. Der Jahresgang überragt mit einem Varianzanteil von über 42 % an der gesamten Varianz alle anderen Perioden bei weitem. - Untersuchungen von LOGAN (1985) zeigen, daß in mittleren Breiten zwei Typen von jahreszeitlichen Verläufen vorhanden sind: Der erste mit einem breiten Maximum im Sommer in den bevölkerten und industrialisierten Regionen Europas und der USA, der andere Typ dagegen in dünn besiedelten Gebieten abseits industrieller Aktivitäten mit den höchsten Ozonkonzentrationen im Frühjahr, dem Minimum im Herbst. Im Zusammenhang mit historischen Daten, die ebenfalls ein Maximum der Ozonkonzentration im Frühjahr aufweisen (LINVILL et al. 1980, VOLZ und KLEY 1988), liegt der Schluß nahe, daß sich nicht nur die saisonale Verteilung des bodennahen Ozons in Europa und den USA während des letzten Jahrhunderts geändert hat, sondern daß die Ozonkonzentration in Bodennähe zugenommen hat.

4.2. Trend des bodennahen Ozons

Wird der Jahresgang aus der Bodenozonreihe eliminiert, so wird bei der spektralen Varianzanalyse das Residuum und der Periodenbereich um 16 Jahre mit 10,0 % bzw. 7,7 % relativer Varianz jeweils auf dem 2σ -Niveau signifikant. Das Residuum, der nicht auflösbare langwellige Anteil der Zeitreihe (s. Abbildung 4.2.1), beschreibt den sogenannten Trend der Reihe. Wie weit die Zeitreihen spektral aufgelöst werden können und das Residuum damit noch kürzere Wellenlängen als den eigentlichen Trend der Reihen beinhaltet, hängt von der maximalen Verschiebung ab, die bei diesem Verfahren der spektralen Varianzanalyse gewählt wird. In diesem Fall sind im Residuum alle Perioden mit Wellenlängen größer 192 Monate, d. h. 16 Jahre, enthalten. Der sogenannte Trend der spektralen Varianzanalyse ist auf dem 2σ -Niveau signifikant.

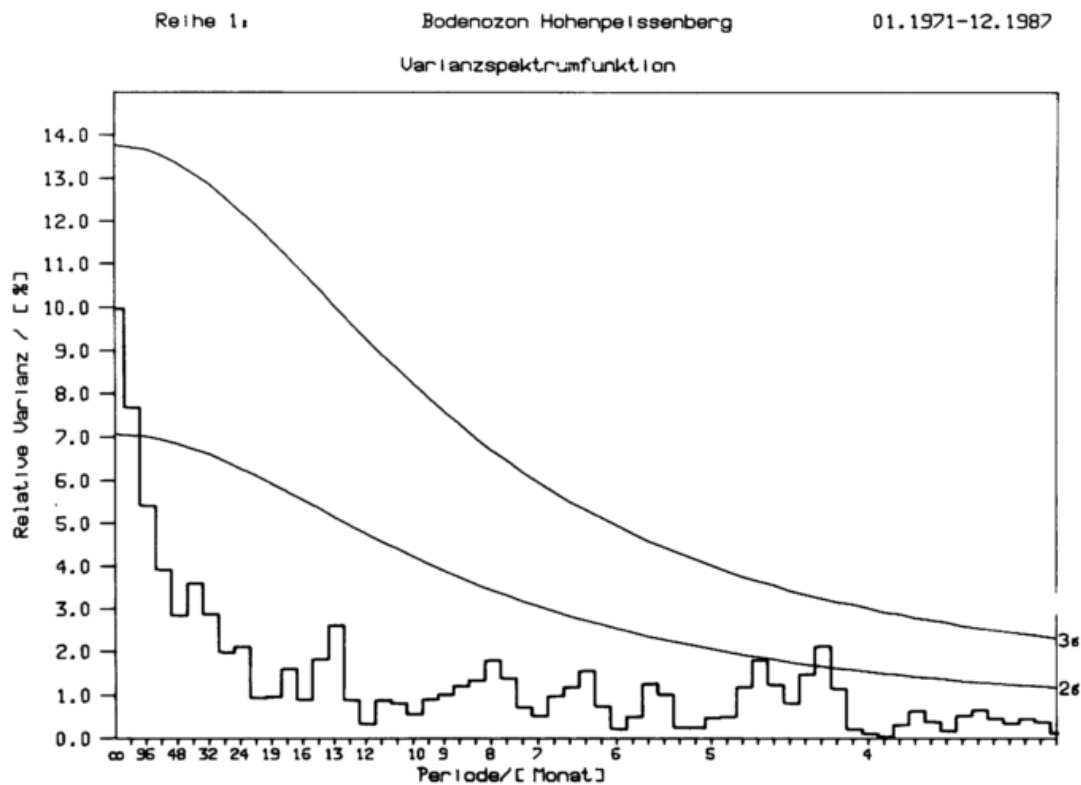


Abb.: 4.2.1 Wie Abbildung 4.1.3, ohne Jahresgang

Durch die Regressionsanalyse wird dieser Trend bestätigt. Auf der Basis von Monatsmitteln von 1971 bis 1990 beträgt die Zunahme 0,40 nbar pro Jahr (3σ -signifikant) entsprechend 1,3 % pro Jahr. Ebenfalls einen Anstieg der Ozonkon-

zentration an ländlichen Stationen der DDR fanden FEISTER und WARMBT (1987). Für die Reihen von 1972 bis 1984 liegt der Anstieg im Mittel zwischen 1 und 3 % pro Jahr. Die Ozonkonzentration wurde bis 1981 nach der Methode von CAUER (1935) 4 x täglich um 0, 6, 12 und 18 UTC bestimmt, dabei dauerte eine Messung 60 Minuten (FEISTER und WARMBT 1987). Ab 1982 ist ein automatisches Gerät im Einsatz, das kontinuierlich mißt und ebenfalls mit der naßchemischen Methode arbeitet. Interessanterweise zeigt für den Zeitraum von 1972 bis 1984 die Reihe von Arkona einen negativen Trend von - 0,74 % pro Jahr. Betrachtet man allerdings den gesamten Zeitraum von 1956 bis 1984, so findet man eine Zunahme von 1,44 % pro Jahr, bzw. von 1956 bis 1988 0,98 % pro Jahr (LOW et al. 1990) mit der stärksten Zunahme im Frühjahr. Mit den Trends von Hohenpeißenberg und Arkona für die unterschiedlichsten Zeiträume haben sich LOW et al. (1990) ausgiebig auseinandergesetzt. Für den Anstieg der Ozonkonzentration halten sie die Zunahme photochemischer Produktion als ein Ergebnis anthropogener Emissionen für plausibel. Daneben führen sie aber auch eine Änderung der atmosphärischen Zirkulation und die Rolle stratosphärischer Intrusionen an. Der Vergleich beider Stationen zeigt, daß vermutlich Unterschiede des Wettergeschehens eine große Rolle spielen. Auch deuten die Jahregänge der Ozonkonzentration der beiden Stationen auf völlig unterschiedliche Ozon-Regime hin. Während am Hohenpeißenberg das Maximum im Sommer eintritt (siehe Abbildung 4.1.1), tritt es in Arkona im Frühjahr auf. Dies ist konsistent mit Messungen von Preila, ebenfalls an der Ostsee gelegen. Auch hier findet sich ein Frühjahrs-Maximum (GIRGZDIENE, 1991). Für den Vergleichszeitraum 1980 bis 1988 weisen Arkona und Preila beide einen negativen Trend auf: - 2,37 bzw. - 1,67 % pro Jahr. Bedenkt man, daß Arkona auf 54,7 ° N und Preila auf 55,3 ° N liegt und daß in dieser geographischen Breite photochemische Ozonproduktion einen geringeren Anteil an der Ozonkonzentration in Bodennähe hat, wie auch Messungen in ländlichen und urbanen Regionen Kanadas zeigen (ANGLE und SANDHU, 1989), so erkennt man, daß der Vergleich zweier Stationen wie Hohenpeißenberg und Arkona allein aufgrund ihrer verschiedenen klimatischen und geographischen Gegebenheiten zu Unterschieden führen muß.

Dagegen zeigen Vergleiche mit den Messungen auf der Zugspitze (3000 m) gute Übereinstimmung. SCHNEIDER (1992) fand an der Zugspitze für den Zeitraum von 1978 bis 1990 eine Ozonzunahme von etwa 2 % pro Jahr. Diese Zunahme ist wesentlich höher als die von Hohenpeißenberg, stimmt aber mit dem Ergebnis der Sondierungen im Höhenbereich von 2 bis 8 km mit reichlich 2 % pro Jahr über-

ein. JANACH (1989) fand, daß die Ozonkonzentration an der Zugspitze in allen Jahreszeiten zunimmt. Untersucht man für die Bodenozone am Hohenpeißenberg die einzelnen Jahreszeiten, so findet man im Gegensatz zur freien Troposphäre (siehe Kap. 2.1.) die größte Zunahme im Winter mit 0,50 nbar pro Jahr. Frühjahr, Sommer und Herbst folgen mit jeweils 0,43, 0,47 und 0,21 nbar pro Jahr. Auch Modellrechnungen von LIU et al. (1987) zeigen eine Zunahme des bodennahen Ozons besonders im Winter. - Der Anstieg im Frühjahr, Sommer und Herbst ist lediglich auf dem 2 σ -Niveau signifikant. Bei einzelnen Monaten sind nur die Zunahmen im Januar, Februar und im März auf dem 3 σ -Niveau signifikant. Sie betragen entsprechend 0,58, 0,62 und 0,54 nbar pro Jahr.

Abbildung 4.2.2 zeigt die dynamische Trendanalyse des Bodenozens in Abhängigkeit vom Jahresverlauf. Durchgezogene Linien bedeuten eine Zunahme, gestrichelte eine Abnahme der Ozonkonzentration. Die schraffierten Flächen geben die Zeiträume an, in denen der Trend auf dem 2 σ -Niveau signifikant ist. Auffällig ist, daß während der Dekaden 73/82 bis 76/85 in den Sommermonate der Trend negativ ist mit einer Abnahme von - 0,6 nbar/Jahr im Zeitraum 75/84. Nachfolgend nimmt die Ozonkonzentration im Sommer zu, ab 78/87 mit mehr als 0,9 nbar/Jahr. Dieser Wechsel von Zu- und Abnahme erklärt, warum der Trend von 0,47 nbar pro Jahr im Sommer über den Gesamtzeitraum nicht überschritten wird. Im Herbst und frühen Winter nahm die Ozonkonzentration in den ersten Dekaden mit etwa 0,3 nbar/Jahr zu. Ab 75/84 ist in den Monaten Oktober und November allerdings eine Abnahme vorhanden, die zeitweise - 0,3 nbar/Jahr übersteigt. Dies erklärt den äußerst geringen Trend für den Herbst von nur 0,21 nbar/Jahr über den Gesamtzeitraum. Eine recht gleichmäßige Zunahme der Ozonkonzentration über alle Dekaden ist im Hochwinter und frühen Frühjahr zu erkennen, dabei mehr als 0,9 nbar/Jahr im Februar für die Dekade 73/82 und mehr als 0,6 nbar/Jahr für 77/86 (jeweils auf dem 2 σ -Niveau signifikant). Diese gleichmäßige Zunahme kommt auch in den hohen und signifikanten Zunahmen der einzelnen Monate Januar, Februar und März mit jeweils rund 0,58 nbar/Jahr bzw. der Winter mit 0,50 nbar/Jahr über den Gesamtzeitraum zum Ausdruck.

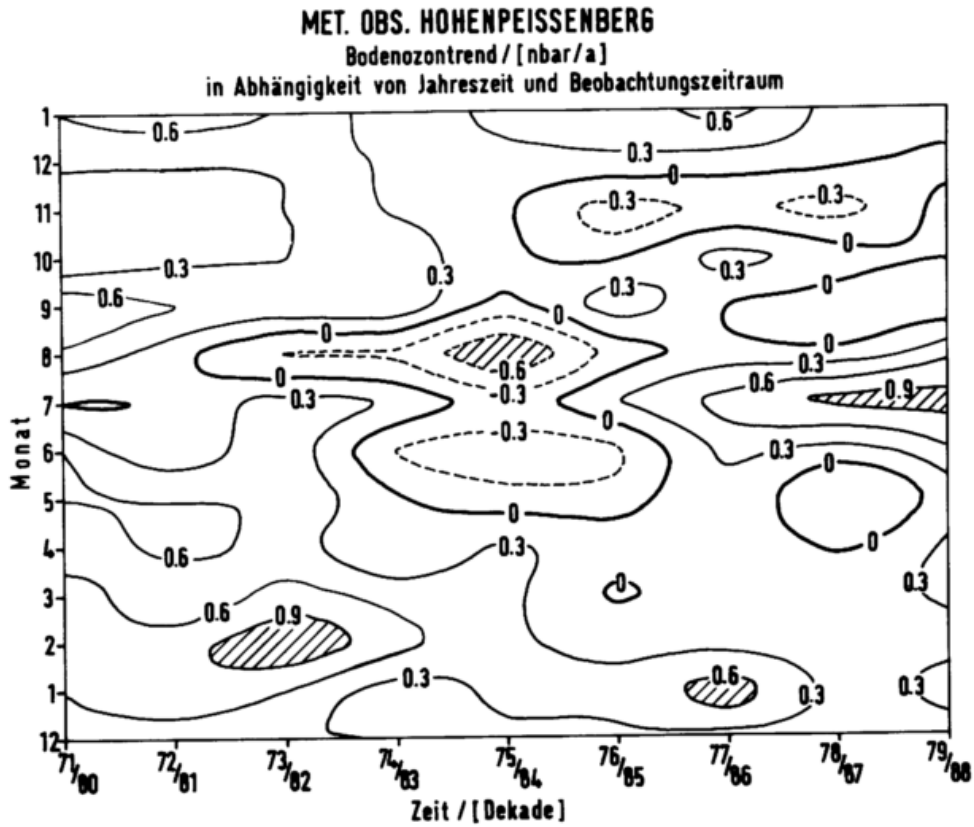


Abb.: 4.2.2 Dynamische Trendanalyse in Abhängigkeit von der Jahreszeit. Durchgezogene Linien bezeichnen eine Zunahme, gestrichelte Linien eine Abnahme. Schraffierte Flächen bezeichnen Bereiche mit 2σ -signifikanten Änderungen.

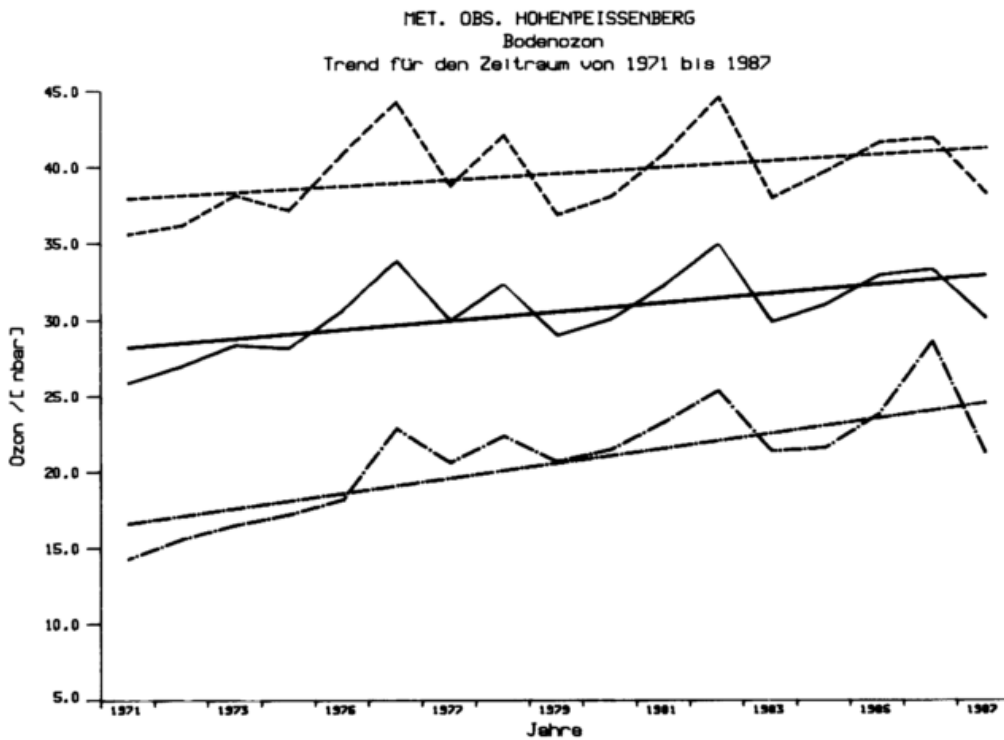


Abb.: 4.2.3 Trend der Jahresmittel, -maxima und -minima des Bodenzons für den Zeitraum 1971 bis 1987.

In Abbildung 4.2.3 sind die zeitlichen Verläufe der Jahreswerte des Bodenzons für die mittleren Maxima, Minima und die Mittel dargestellt. Dazu sind die jeweiligen Regressionsgeraden eingezeichnet. Bemerkenswert ist, daß die Minima stärker zunehmen als die Maxima.

In Abbildung 4.2.4 sind die Abweichungen der Jahreszeitenwerte von den 20jährigen Mittelwerten dargestellt. Zusätzlich sind die Regressionsgeraden für die drei Zeiträume 1971 - 1976, 1977 - 1990 und 1971 - 1990 eingezeichnet. Nach einem markanten Anstieg während des ersten Zeitraums folgte eine Periode mit geringem, z. T. auch negativen Trend. Während der letzten Jahre befinden sich die Ozonwerte wieder auf hohem Niveau. Zu Beginn der Messungen wurde nur das naßchemische Verfahren eingesetzt, das gegen SO₂ querempfindlich ist. Am Hohenpeißenberg ist die SO₂-Konzentration allgemein gering, so daß nur während bestimmter Episoden mit einer Verfälschung (zu geringe O₃-Werte) zu rechnen ist. Erst im Jahre 1976 wurde ein SO₂-Filter vorgeschaltet. Als in den folgenden drei Jahren etwa gleich hohe Jahresmittel gemessen wurden, wurde seinerzeit der vorhergehende Anstieg als nicht reell angesehen (ATTMANNSPACHER et al. 1979). Sich darauf stützend, wird der Anstieg der Ozonkonzentration von LOW et al. (1991) bezweifelt.

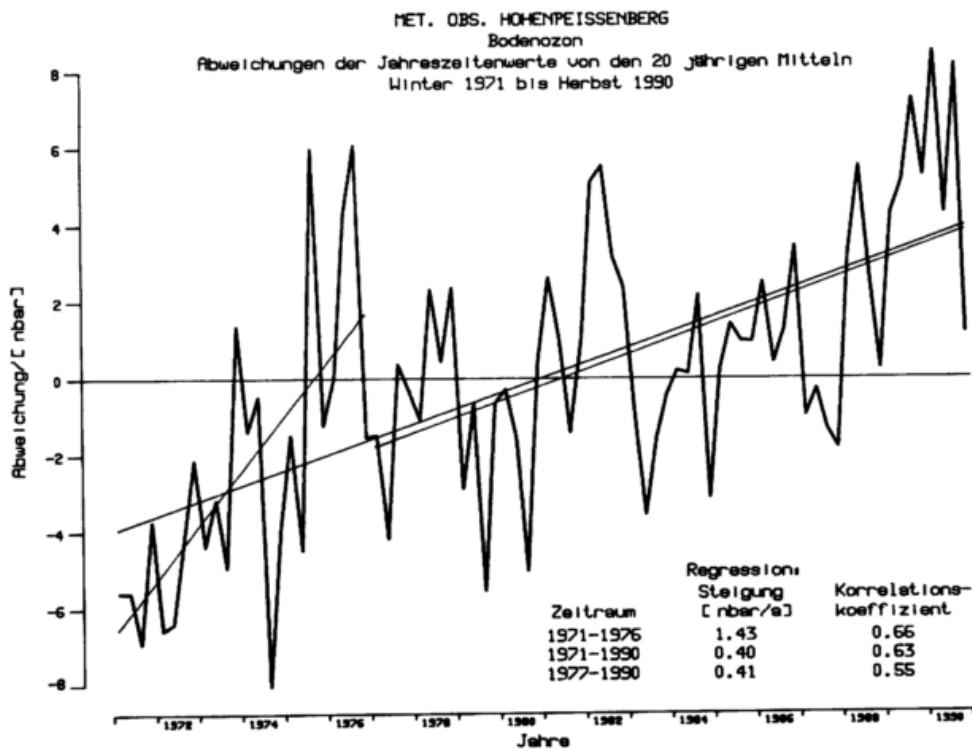


Abb.: 4.2.4 Zeitlicher Verlauf der Abweichungen der Jahreszeitenmittel des Bodenzons von den 20jährigen Mitteln, dazu die Regressionsgeraden für verschiedene Zeiträume.

Mittlerweile ist die Bodenozone Reihe lang genug, um sie auf etwaige Inhomogenitäten statistisch zu prüfen. Dazu wurde sie am Eintrittszeitpunkt der vermuteten Inhomogenität in zwei Teil-Reihen geteilt und hinsichtlich der Frage verglichen, ob sie aus derselben Grundgesamtheit stammen. Da der SO₂-Filter im Laufe des Jahres 1976 angebracht wurde, wurden sowohl die Reihen 1971 - 1975 und 1976 - 1989 wie auch von 1971 - 1976 und 1977 - 1989 getestet. Aufgrund der Ergebnisse des Vergleichs nach Kolmogoroff und Smirnow (SACHS 1984) muß in beiden Fällen die Alternativhypothese, die entsprechenden Teilreihen entstammen nicht aus derselben Grundgesamtheit, abgelehnt werden. Die Irrtumswahrscheinlichkeit bei einseitigem Test beträgt 36 %.

Dieses Ergebnis bedeutet, daß im ersten Zeitabschnitt einzelne Tagesmittelwerte während SO₂-Episoden durch die Querempfindlichkeit verfälscht sein können, bei Jahreszeitenmitteln aber der Einfluß von untergeordneter Bedeutung ist. Eine pauschale Erhöhung der Jahreszeitenmittelwerte um etwa 3 nbar, wie LOW et al. (1991) anregen, ist daher nicht zu rechtfertigen. Läßt man die ersten Jahre unberücksichtigt und berechnet den Trend ab 1977, so erhält man einen Anstieg von 0,41 nbar pro Jahr, was etwa 1 % /Jahr entspricht. Dieser Wert ist infolge der großen Veränderlichkeit nur auf dem 2 σ -Niveau signifikant. Der Korrelationskoeffizient mit der Zeit liegt bei 0,54. Der Trend für den gesamten Zeitraum seit 1971 mit 0,40 nbar pro Jahr unterscheidet sich allerdings sehr wenig: Selbst unter der Annahme, daß der Trend in den ersten Jahren überhöht ist, wirkt sich dies auf den gesamten Zeitraum nur geringfügig aus, da die Reihe mittlerweile sehr lang ist und gerade während der letzten Jahre das Ozon wieder stärker angestiegen ist.

Abbildung 4.2.5 zeigt den Tagesgang des Trends für den Zeitraum von 1971 bis 1987. An der Abszisse sind zusätzlich die Eintrittszeitpunkte des mittleren Minimums und Maximums markiert. Auffällig ist, daß der größte Anstieg nicht zur Zeit des Maximums erfolgt. Dort ist die Zunahme eher etwas unterdurchschnittlich. Weiter fällt auf, daß das bodennahe Ozon während aller Tageszeiten einen positiven Trend von mindestens 0,20 nbar pro Jahr aufweist. Der stärkste Trend tritt in den späten Vormittagsstunden auf. Zu dieser Zeit setzt die photochemische Ozonproduktion ein.

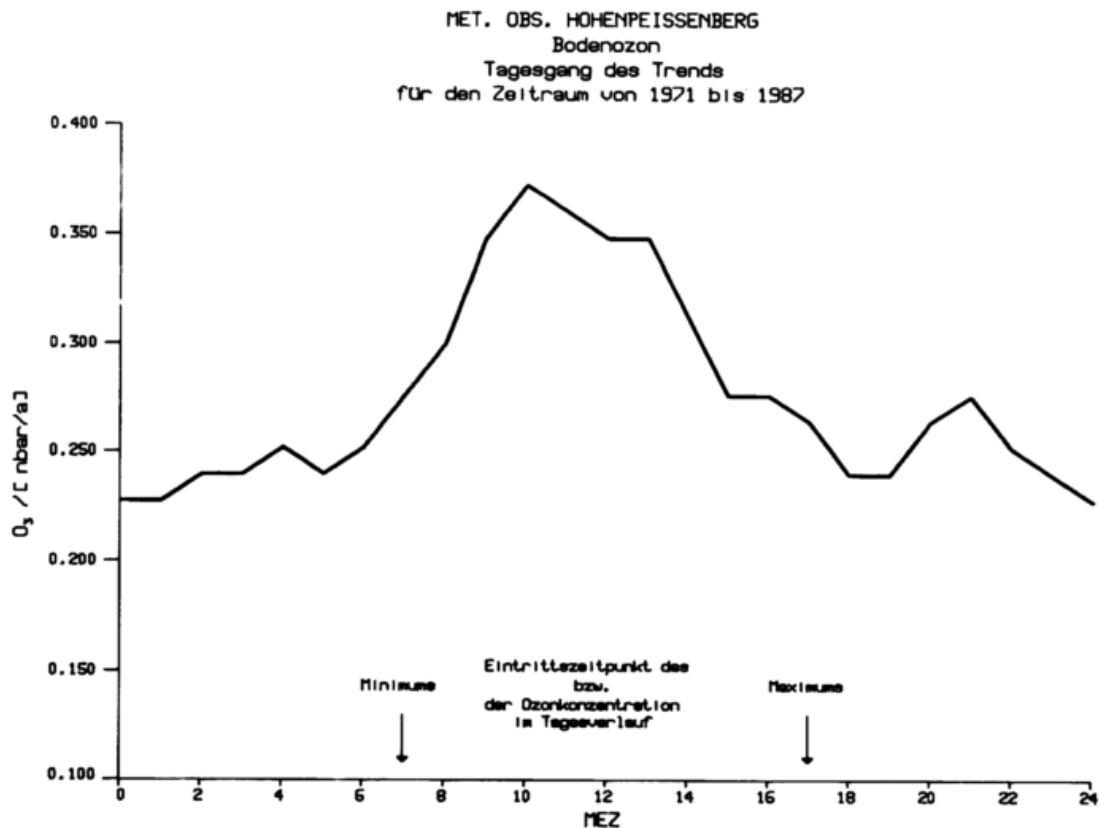


Abb.: 4.2.5 Tagesgang des Trends der Bodenozone für den Zeitraum 1971 bis 1987.

Zusammenfassend ist zu bemerken: Da die bodennahe Ozonkonzentration (wie auch die Temperatur und der Niederschlag) stark von den vorherrschenden Großwetterlagen abhängt und eine große Variabilität aufweist, ist es wenig sinnvoll, Trends für zu kurze Zeiträume zu berechnen. Vielmehr ist möglichst die gesamte vorliegende Beobachtungsperiode zu verwenden. Die 20jährige Hohenpeißenberger Meßreihe zeigt einen Anstieg von etwa 1 % / Jahr.

4.3. Abhängigkeit der Ozonkonzentration in Bodennähe von der Windrichtung

Da bei einer ländlich gelegenen Station wie der Hohenpeißenberg die Ozonkonzentration in Bodennähe im starken Maße durch die Advektion von ozonreichen bzw. -armen Luftmassen bestimmt wird, wurde die Abhängigkeit der Ozonkonzentration von der Windrichtung untersucht. Grundlage dazu bilden die Stundenmittel des Ozons und die des Windes von 1971 bis 1988. Die vorherrschende Windrichtung am Hohenpeißenberg ist SW mit 44 %, siehe Abbildung 4.3.1.

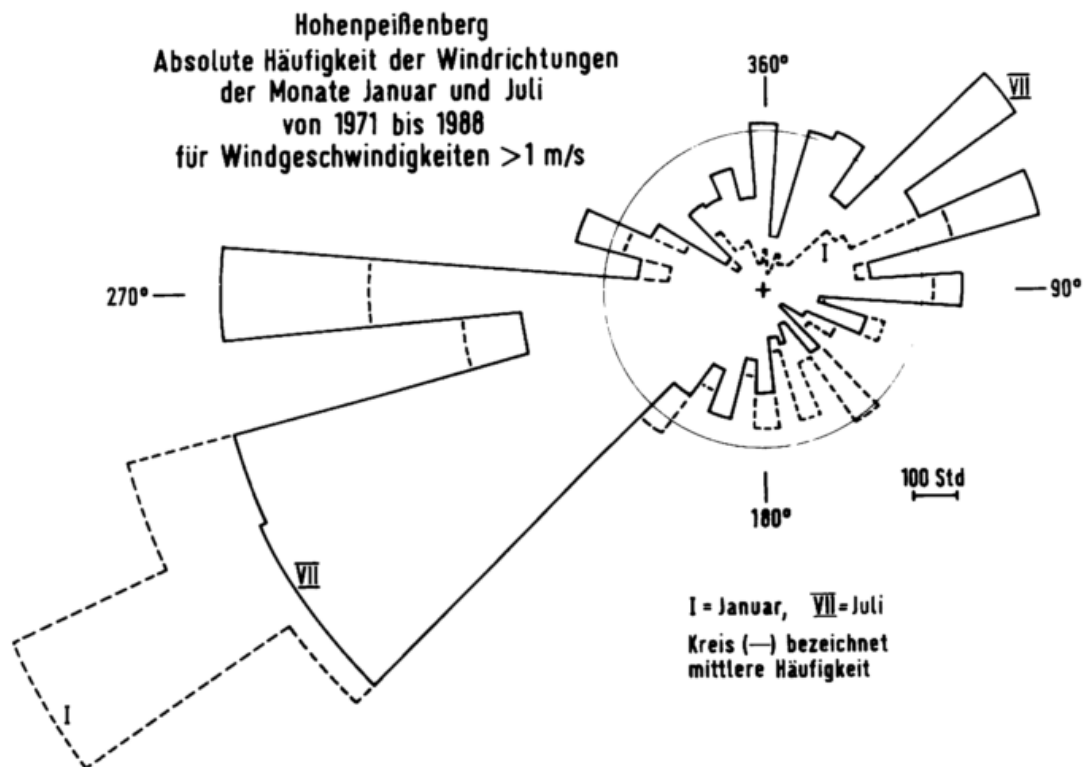


Abb.: 4.3.1 Häufigkeitsverteilung der Windrichtungen der Monate Januar und Juli für den Zeitraum 1971 bis 1988 für Windgeschwindigkeiten > 1 m/s. Die mittlere Häufigkeit wird durch den Kreis bezeichnet.

Bei dieser Windrichtung werden im Mittel auch die höchsten Windgeschwindigkeiten erreicht. Die zweithäufigste Windrichtung mit 24 % ist NE. Abbildung 4.3.2 zeigt die mittlere Ozonkonzentrationsrose über den Zeitraum von 1971 bis 1988 für die Monate Januar und Juli. Um Schwachwindlagen auszuschließen, bei denen die vorherrschende Windrichtung nicht eindeutig ist, wurden nur Windgeschwindigkeiten von mehr als 1 m/s berücksichtigt. Die beiden Kreise bezeichnen den jeweiligen Monatsmittelwert. Man erkennt, daß im Januar, stellvertretend für den Winter, bei Wind mit südlicher Komponente wesentlich mehr Ozon vorhanden ist als bei Wind aus nördlichen Richtungen. Eine photochemische Ozonproduktion in Bodennähe findet im Winter praktisch nicht statt. Durch die NO-Emission in den Ballungsgebieten München - Augsburg - Ingolstadt wird dort vor allem in den unteren Schichten Ozon abgebaut. Bei N- und NE-Wind wird demzufolge ozonarme Luft advehiert. Bei Wind mit südlicher Komponente werden zum einen kaum

Luftbeimengungen advehiert, die Ozon abbauen, zum anderen bewirken die höheren Windgeschwindigkeiten, vor allem aus SW, daß bei einer starken dynamischen Durchmischung Luft mit relativ hoher Ozonkonzentration aus der freien Troposphäre herangeführt wird.

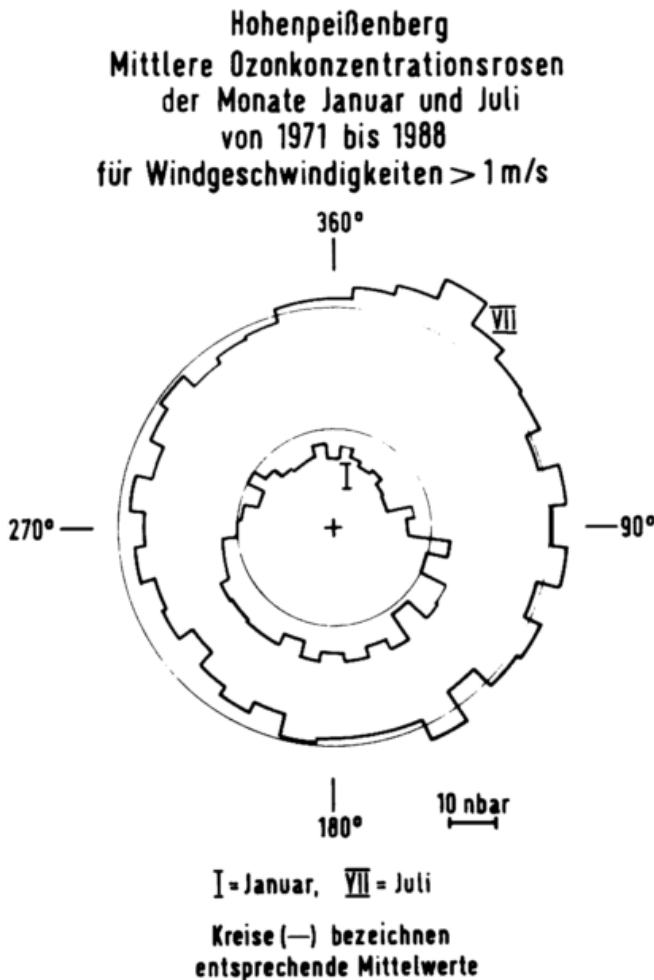


Abb.: 4.3.2
 Mittlere Ozonkonzentrationsrose der Monate Januar und Juli für den Zeitraum 1971 bis 1988 für Windgeschwindigkeiten > 1 m/s. Die entsprechenden Monatsmittel der Ozonkonzentration der beiden Monate sind durch die entsprechenden Kreise bezeichnet.

Auch Absinkvorgänge bei Föhn können zu höheren Ozonwerten beitragen. Im Juli dagegen sind die höchsten Ozonkonzentrationen bei N- und NE-Wind vorhanden als Folge der photochemische Ozonproduktion in den Ballungszentren bzw. der Advektion von Vorläufersubstanzen aus diesen Gebieten. Hier spiegeln sich Smogepisoden wider, die bevorzugt bei Hochdruckgebieten mit relativ geringen Windgeschwindigkeiten auftreten und am Hohenpeißenberg mit dem sogenannten Schönwetterwind verbunden sind (ATTMANNSPACHER et al. 1981). Unterdurchschnittliche Ozonkonzentrationen sind im Juli bei westlichen Winden vorhanden. Hier sind die Windgeschwindigkeiten höher, und die dadurch stärkere dynamische Durchmischung verhindert offenbar eine Anreicherung anthropogen gebildeten Ozons an der Obergrenze der Grundschicht. Diese Durchmischung, d. h. der turbulente

vertikale Transport, bewirkt, daß bei Wind aus südwestlichen Richtungen die mittlere Differenz zwischen Januar und Juli relativ gering ist, sie beträgt etwa 14 nbar.

In den Abbildungen 4.3.3 und 4.3.4 sind für Sommer und Winter die mittleren Tagesgänge der Ozonkonzentration für die Windrichtungen N, E, S und W bzw. für NE, SE, SW und NW für den Sommer dargestellt. Auch hier wurden nur Windgeschwindigkeiten berücksichtigt, die größer 1 m/s sind. Die ausgeprägtesten Tagesgänge sind bei Wind aus nördlichen, nordöstlichen und östlichen Richtungen im Sommer vorhanden. Hier sind die Einflüsse der Ballungszentren München - Augsburg - Ingolstadt maßgebend, in denen das Ozon tagsüber durch photochemische Prozesse sehr hohe Konzentrationen erreicht, während es in der Nacht stark abgebaut wird. Dem sind am Hohenpeißenberg in situ Ozonproduktion und -abbau sowie vertikaler Austausch überlagert. Bei W- und SW-Wind ist die Tagesamplitude wesentlich geringer. Die höheren Windgeschwindigkeiten tragen zu einer wesentlich stärkeren Durchmischung bei. Vertikale wie horizontale Ozongradienten werden vermindert. Bemerkenswert ist der "inverse" Tagesgang bei S- und SE-Wind. Das Minimum der Ozonkonzentration liegt kurz vor Mittag, das Maximum um Mitternacht. Wegen fehlender urbaner Ballungsräume im Süden wird die Ozonkonzentration regional in der unteren Troposphäre kaum beeinflusst. Photochemisch bedingte Variationen in der Ozonkonzentration treten dort kaum auf. Die Luftmassen, die mit dem S-Wind zum Hohenpeißenberg transportiert werden, waren dem Berg-Tal-Wind-Regime der Alpen unterworfen. In den Alpen wird durch den Bergwind nachts ozonreiche Luft nach unten transportiert. Tagsüber gelangt mit dem Talwind ozonärmere Luft nach oben (BRODER und GYGAX 1985). Einen quasi inversen Tagesgang, allerdings mit geringen Amplituden, findet SCHNEIDER (1989) im Sommer auf der Zugspitze. PUXBAUM et al. (1991) haben ebenfalls im Sommer im Zillertal in einer Höhe von 1950 m einen inversen Tagesgang gemessen. Ist dem lokalen Berg-Tal-Wind-Regime in den Alpen eine südliche Strömung überlagert, so wirkt sich dies im Tagesgang der Ozonkonzentration am Hohenpeißenberg aus. Dieser Effekt scheint auch bei SW-Wind überlagert zu sein (Abb. 4.3.4).

Im Winter ist der Ozongehalt wesentlich niedriger als im Sommer. Die Höhe der Ozonkonzentration ist auch hier von der Windrichtung abhängig. Die höchsten Ozonwerte treten bei S-Wind auf. Auffällig sind die geringen oder gar nicht vorhandenen Tagesgänge. Zum einen sind die Windgeschwindigkeiten im Winter we-

sentlich höher als im Sommer, darüber hinaus ist im Winter die Tagesamplitude der Windgeschwindigkeit am Berg gering; die starke dynamische Durchmischung sorgt für die Ausbildung eines nur schwachen Tagesgangs des Ozons.

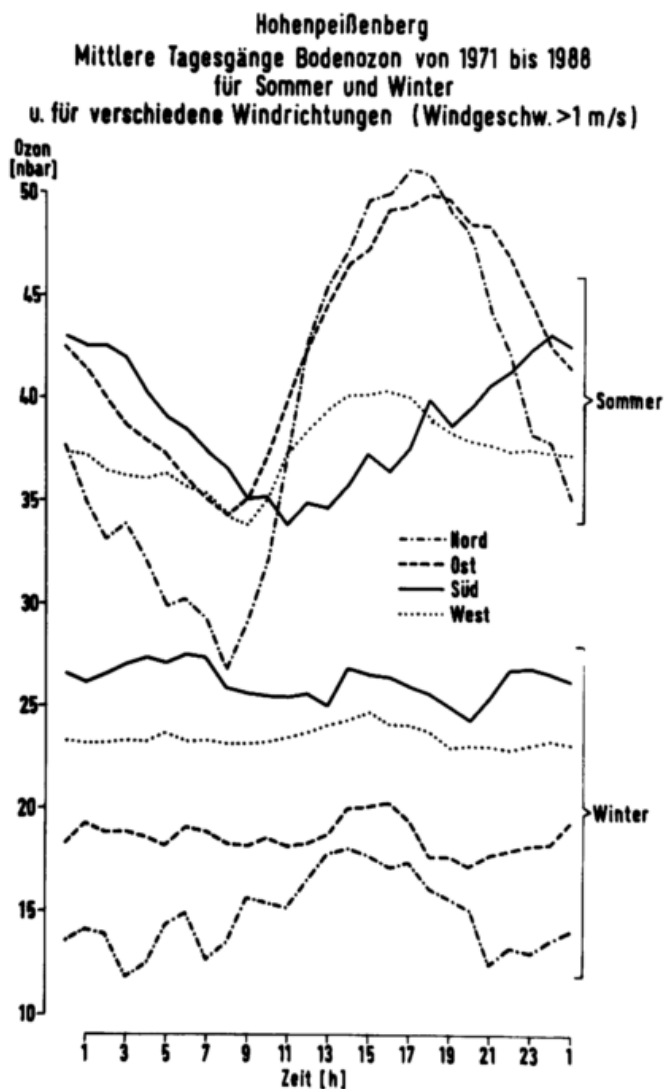


Abb.: 4.3.3
 Mittlere Tagesgänge des Bodenozons für Sommer und Winter für den Zeitraum 1971 bis 1988 für Windgeschwindigkeiten > 1 m/s bei Wind aus N, E, S und W.

Zum anderen fehlt im Winter die photochemische Ozonproduktion in Bodennähe, der konvektive Austausch ist gering. So bewirken die den ganzen Tag in den Ballungsgebieten wirksamen Abbauprozesse bei N- und E-Wind die niedrigsten Ozonkonzentrationen.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 mittlere Tagesgänge Bodenozon von 1971 bis 1988
 für Sommer und für verschiedene Windrichtungen
 [Windgeschwindigkeit grösser 2 m/s]

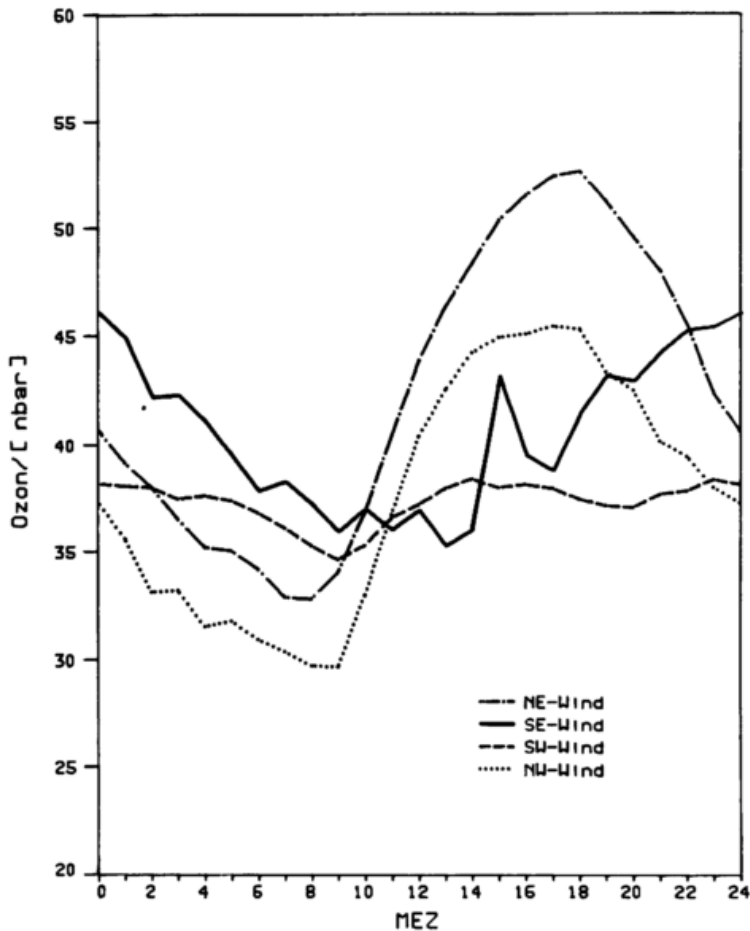


Abb. 4.3.4
 Mittlere Tagesgänge des
 Bodenozons im Sommer für
 den Zeitraum 1971 bis 1988
 für Windgeschwindigkeiten
 > 2 m/s bei Wind aus NE, SE,
 SW und NW.

Die Ergebnisse führen zu dem Schluß, daß die Zunahme der Ozonkonzentration im Sommer durch photochemische Ozonproduktion zu einem überwiegenden Teil in den untersten Luftschichten stattfindet, und dies auch in ländlichen Regionen. Die Vorläufersubstanzen werden in Bodennähe emittiert: zum einen Stickoxide und Kohlenwasserstoffe durch den KFZ-Verkehr in überwiegend urbanen Regionen, zum anderen Stickoxide durch die Oxidation von Ammoniak in ländlichen Regionen (LOGAN 1981). Bei windschwachen Lagen bleiben die Luftmassen am Ort, und es entstehen bei der Ozonproduktion in den unteren Luftschichten vertikale Ozongradienten. Bei höheren Windgeschwindigkeiten werden die Ozongradienten durch den dann stärkeren turbulenten vertikalen Transport abgebaut. Bei Wind aus N bis E vermischen sich hohe Ozonkonzentrationen auf dem Weg von den Ballungsgebieten Augsburg/München mit relativ geringen Konzentrationen aus der freien

Troposphäre, so daß am Hohenpeißenberg nicht mehr die urbanen Spitzenwerte gemessen werden.

Für die Wintermonate führen die Ergebnisse dagegen zu dem Schluß, daß für die Ozonzunahme in Bodennähe, also den Trend am Hohenpeißenberg, nicht die photochemische Ozonproduktion, sondern vor allem die Advektion von Luftmassen verantwortlich ist, die eine von Jahr zu Jahr höhere Ozonkonzentration mit sich führen. Die Advektion erfolgt auch aus Richtungen, in denen sich keine urbanen Ballungszentren befinden. Ursache für die höheren Ozonkonzentrationen bei S-Wind könnte der Abwärtstransport aus der freien Atmosphäre bei dieser Windrichtung sein (Föhn). Für die Ozonproduktion in der freien Troposphäre sind Stickoxidemissionen, z. B. auch durch Flugzeuge, in Verbindung mit Methan oder Kohlenmonoxid verantwortlich. Nach DIETZE (1991) ist es denkbar, daß Ozon in der freien Atmosphäre eine so große Lebensdauer hat, daß es in höheren Luftschichten gespeichert werden kann, sich also Reste des Sommersmogs ansammeln. Bei S-Wind im Winter würde das akkumulierte Ozon an den Hohenpeißenberg herangeführt werden. Bereits ATTMANNSPACHER und HARTMANNSTRUBER (1975) gaben Hinweise auf ein Ozonmaximum, daß sich an der Obergrenze der Grundschicht befindet. Dieses Maximum ist im Sommer am stärksten ausgeprägt. Die mittlere Höhe schwankt im Jahresverlauf zwischen 1,7 und 2,1 km über NN. Grundlage bildet die in den frühen Morgenstunden durchgeführten Sondierungen. Auch PAFFRATH und PETERS (1988) weisen auf eine "Ozonreservierschicht" an der Inversionsobergrenze hin.

4.4 Der Zusammenhang zwischen Strahlung und bodennahem Ozon

Daß das Ozon in Bodennähe in den letzten 20 Jahren zugenommen hat, wurde in Kapitel 4.2. ausführlich dargelegt. Daß in ländlichen Regionen, wie sie der Hohenpeißenberg repräsentiert, die Ozonkonzentration im starken Maß von der Windrichtung abhängt, wurde in Kapitel 4.3. geschildert. Jetzt soll der Frage nachgegangen werden, inwieweit photochemische Ozonproduktion in ländlichen Regionen dort zur Ozonkonzentration in Bodennähe beiträgt.

Lange Zeit wurde eine photochemische Ozonproduktion, wie sie seit Auftreten des Los-Angeles-Smogs Ende der 40er Jahre bekannt ist, unter mitteleuropäischen Klimaverhältnissen in urbanen Gebieten als Singularität betrachtet (FETT 1970). Als Bedingung für die Ozonbildung wurden neben hohen Vorläufer-

konzentrationen auch eine intensive Sonnenstrahlung in niedriger geographischer Breite angesehen. Die vergleichsweise ungünstigen Klimaverhältnisse unserer Breiten wurden aber in der Folge durch eine zunehmende Urbanisierung und steigende Emissionen von Vorläufersubstanzen überkompensiert (FRICKE 1980). Hohe Ozonkonzentrationen, die als anthropogen interpretiert wurden, haben beispielsweise BECKER und SCHURATH 1975 im Bonner Raum Mitte der 70er Jahre während der Sommermonate gemessen. Daß es nicht nur in urbanen Gebieten zu Episoden mit erhöhten Ozonkonzentrationen kommt, sondern auch in ländlichen Regionen der USA und Europas, wurde bereits von COX et al. (1975) und LOGAN (1989) erwähnt. Diese Ozonepisoden sind im allgemeinen mit hohen Temperaturen, klarem Himmel, geringen Windgeschwindigkeiten und sich langsam verlagernden Hochdruckgebieten verbunden. Im Gegensatz zu urbanen Regionen, in denen das tagsüber gebildete Ozon während der Nacht durch NO weitgehend abgebaut wird, sind die nächtlichen Abbauraten in ländlichen Regionen gering, so daß es während einer Ozonepisode zur Akkumulation kommt. VOLZ et al. (1989) fanden dieses Phänomen auch am Hohenpeißenberg während mehrerer Tage im April 1979. Zwar halten sie die hohen Ozonkonzentrationen während dieser Episode durch den Großraum München beeinflusst, weisen aber auch darauf hin, daß die NO_x -Konzentration in ländlichen Regionen auf rund 1 ppb zugenommen hat und damit in einer Größenordnung liegt, bei der Ozon bei Einstrahlung photochemisch gebildet werden kann. Nach VOLZ et al. (1989) ist daher zu erwarten, daß in ländlichen Gebieten eine Änderung der Einstrahlung zu einer gleichsinnigen Änderung der Ozonkonzentration führt. Neben VOLZ et al. (1989) hat sich auch SCHMIDT (1989) mit dem Zusammenhang zwischen Strahlung und Ozon befaßt, wobei er u. a. Messungen vom Hohenpeißenberg verwendet.

Die Ergebnisse der hier vorgenommenen Untersuchungen wurden teilweise von VANDERSEE et al. (1991) schon veröffentlicht. Die umfangreiche Chemie, die die photochemische Ozonproduktion beschreibt, wird hier auf die Voraussetzung reduziert, daß genügend Vorläufersubstanzen vorhanden sind und daß ab einer bestimmten Einstrahlung der Abbau von Ozon durch photochemische Produktion überkompensiert wird. Die Datenbasis dieser Untersuchungen bilden die Messungen des bodennahen Ozons, der Globalstrahlung und der Sonnenscheindauer von 1971 bis 1987. Die Sonnenscheindauer wurde in die Untersuchungen mit einbezogen, da viele Stationen diesen Parameter, aber nicht die Globalstrahlung messen.

4.4.1 Jahresgänge und spektrale Untersuchung der Reihen

Zunächst wurden die Reihen von Ozon, Globalstrahlung und Sonnenscheindauer auf der Basis von Monatsmittelwerten bzw. Monatssummen untersucht. Wegen der unterschiedlichen Anzahl von Tagen wurden die Monatssummen der Globalstrahlung und Sonnenscheindauer normiert. Abbildung 4.4.1 zeigt die Jahresgänge auf der Basis von mittleren Monatswerten. Die Maxima treten jeweils im Juli auf, die Minima im Dezember bzw. Januar. Daneben zeigt Abbildung 4.4.1 auch die relativen Standardabweichungen der entsprechenden Monatswerte. Die relativen Standardabweichungen sind im Winter bei allen drei Reihen am größten; sie erreichen bis zu 35 %. Ansonsten sind sie gering, um 20 % bei der Reihe der Sonnenscheindauer und etwa 10 - 15 % bei der Bodenozon- und Globalstrahlungsreihe.

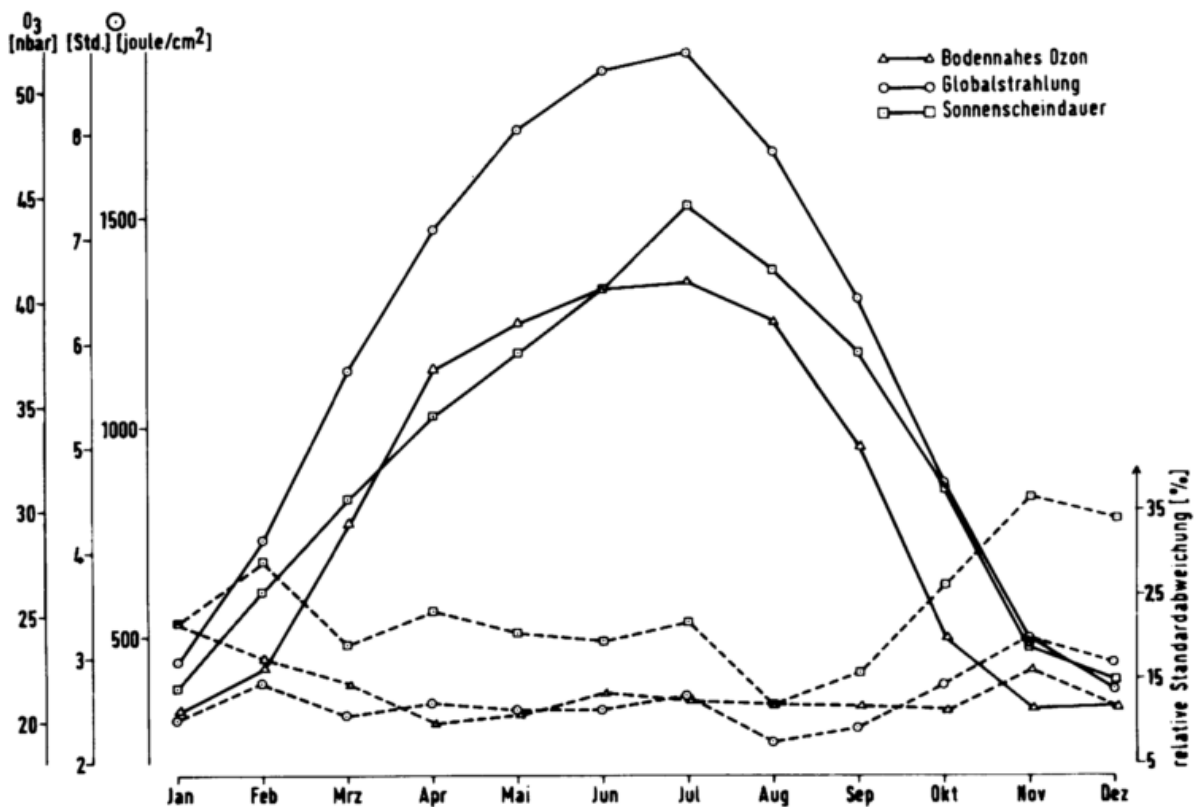


Abb.: 4.4.1 Mittlere Jahresgänge des Bodenozens, der Globalstrahlung und der Sonnenscheindauer sowie der relativen Standardabweichungen der entsprechenden Monatsmittel für den Zeitraum 1971 bis 1987.

Die relativ hohen Jahresamplituden und die insgesamt geringen relativen Standardabweichungen der Monatswerte zeigen, wie stark die Jahresgänge der Reihen

ausgeprägt sind. Dies kommt auch durch den zyklischen Verlauf der jeweiligen Autokorrelationsfunktionen zum Ausdruck. Bei allen drei Reihen sind hohe positive Korrelationen bei Verschiebungen von $\tau = k \cdot 12$ Monate, Werte um Null bei $\tau = k \cdot 6 + 3$ Monate und hohe negative Korrelationen bei $\tau = k \cdot 12 + 6$ Monate mit $k = 0, 1, 2, \dots$ vorhanden (siehe Kap. 4.1.). Die Varianzspektrumsanalyse (BLACKMAN und TUKEY 1958) zeigt denn auch nur im Periodenbereich des Jahresgangs signifikante Varianzanteile. Bei der Bodenozone entfallen 42 % der Gesamtvarianz auf die Periode von 12 Monaten. Bei den Reihen der Sonnenscheindauer und der Globalstrahlungsreihe sind es 36 bzw. 50 %. Die restliche Varianz der Globalstrahlungsreihe verteilt sich auf die übrigen Perioden bzw. Frequenzintervalle mit Werten von unter 3 ‰ pro Frequenzintervall. Allen drei Reihen ist gemeinsam, daß deren Jahresgänge derart stark ausgeprägt sind, daß sie alle übrigen Schwankungsstrukturen überdecken. So ist es nicht verwunderlich, daß die einfache Korrelation der Reihe des Bodenozens mit denen der Globalstrahlung bzw. Sonnenscheindauer, ohne daß ein unmittelbarer kausaler Zusammenhang zwischen den Reihen bestehen muß, allein wegen der engen Phasenbeziehung der Jahresgänge statistisch hochsignifikante Zusammenhänge herstellt.

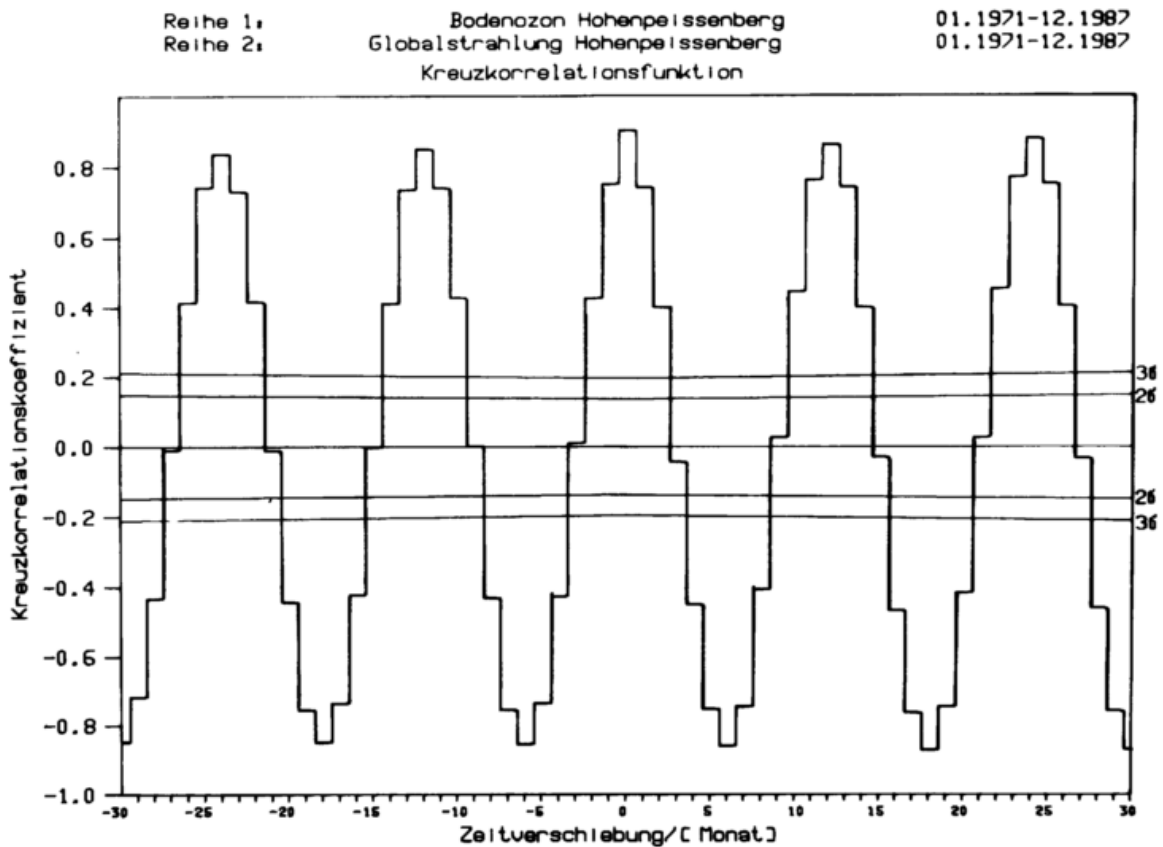


Abb.: 4.4.2 Kreuzkorrelationsfunktion zwischen Bodenozone und Globalstrahlung für den Zeitraum 1971 bis 1987; mit Jahresgang. Positive/negative Verschiebung: Reihe 1 ist der Reihe 2 um den Betrag der Verschiebung voraus/hinterher.

Die Ergebnisse der einfachen Korrelationen zwischen der Bodenozon- und der Globalstrahlungsreihe bzw. der Reihe der Sonnenscheindauer zeigen somit einen sehr guten Zusammenhang: Die Korrelationskoeffizienten erreichen Werte von 0,90 bzw. 0,81. Die Kreuzkorrelationsfunktion zwischen den Reihen des Bodenozons und der Globalstrahlung ist in Abbildung 4.4.2 dargestellt. Sie zeigt ein zyklisches Verhalten, wobei sich die Maxima bei $\tau = k \cdot 12$ Monate und die Minima bei $\tau = k \cdot 12 + 6$ Monate mit $k = 0, +/- 1, +/- 2, \dots$ befinden. Das bedeutet, daß sich die Reihen in Phase befinden, allerdings beträgt hier die zeitliche Auflösung lediglich einen Monat.

Um neben dem linearen Zusammenhang auch den spektralen Zusammenhang zwischen den Reihen aufzudecken, wurde auf die Reihen die Kreuzspektrumsanalyse angewandt, wie sie etwa von FLEER (1981) beschrieben wird. Das Kreuzspektrum ist eine komplexe Größe und setzt sich aus dem reellen Teil, dem Wirk- bzw. Kospektrum, sowie dem imaginären Teil, dem Blind- bzw. Quadraturpektrum, zusammen. Die Abbildungen 4.4.3 und 4.4.4 zeigen das normierte Ko- und Quadraturpektrum zwischen der Bodenozon- und Globalstrahlungsreihe.

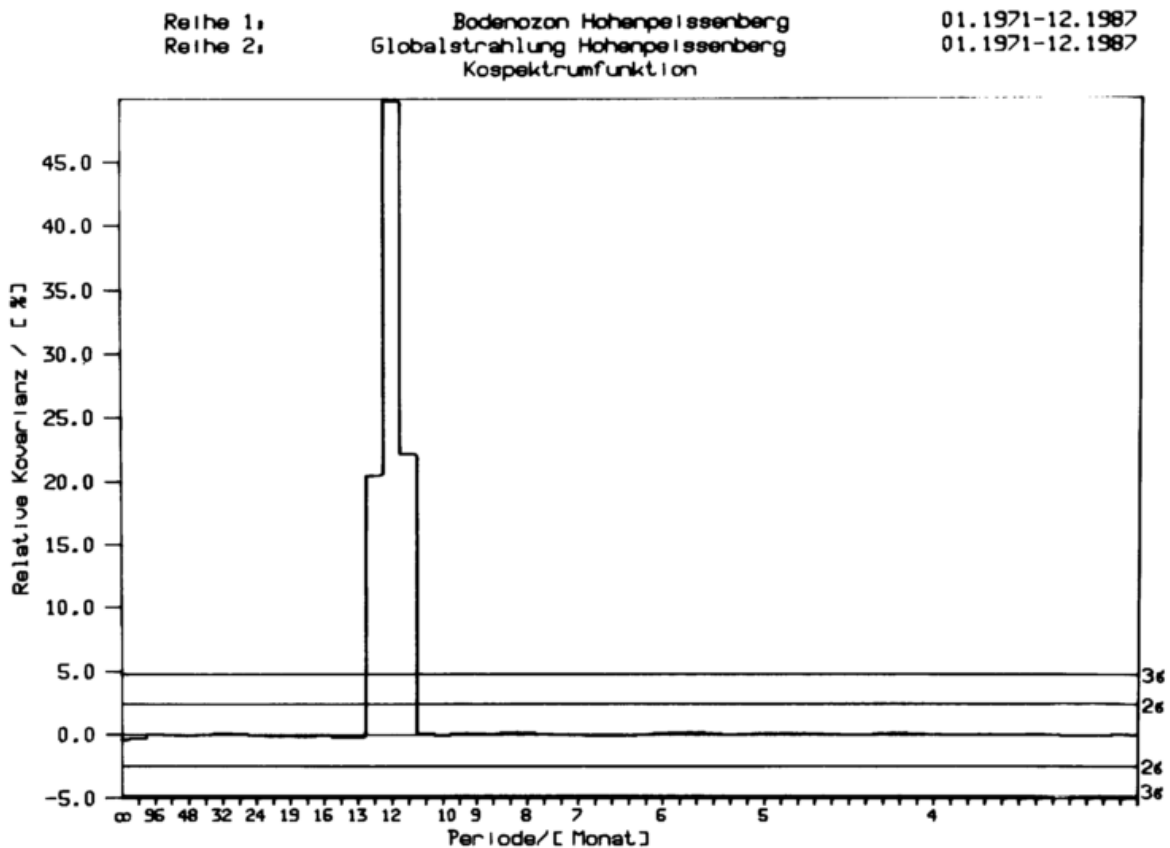


Abb.: 4.4.3 Kospektrumfunktion zwischen Bodenozon und Globalstrahlung für den Zeitraum 1971 bis 1987; mit Jahresgang. Um die Übersichtlichkeit der Achsenbeschriftung zu erhalten, wurden die Perioden an der Abszisse ganzzahlig dargestellt. Die Berechnungen wurden mit den exakten Werten durchgeführt.

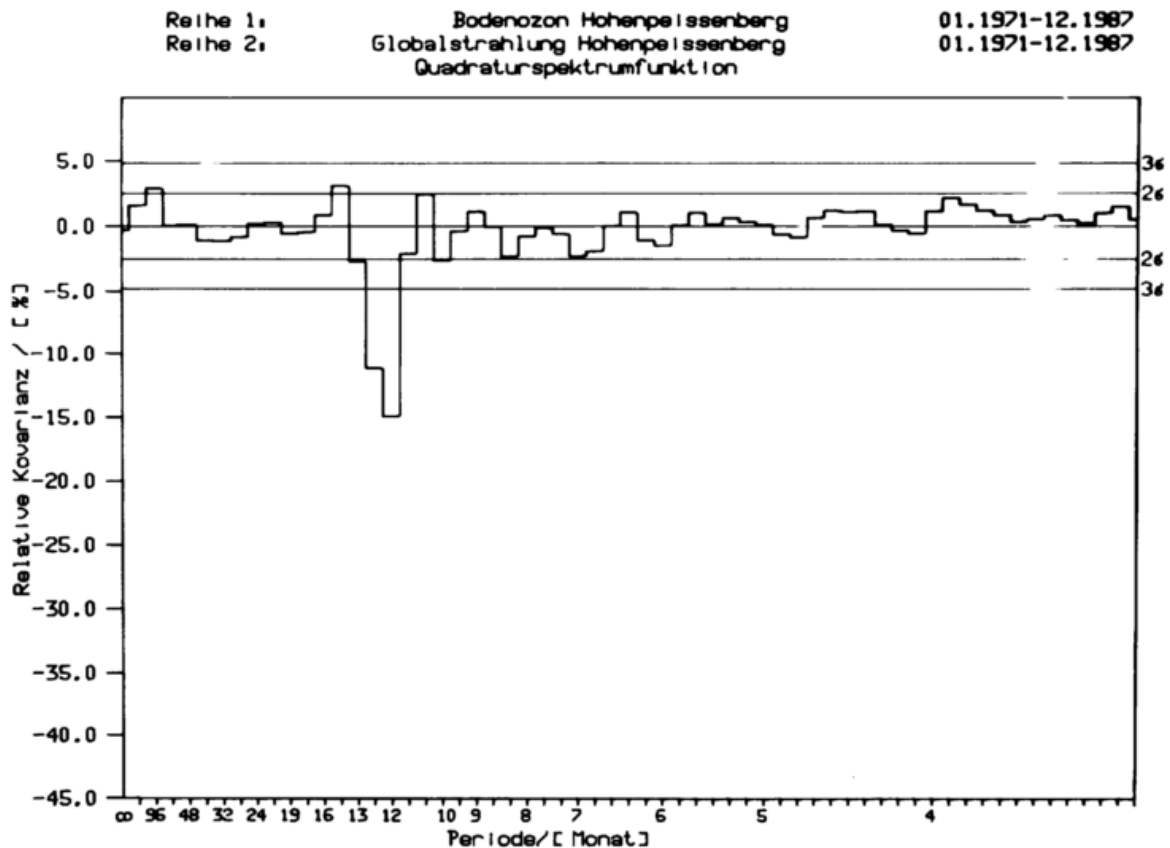


Abb.: 4.4.4 Quadraturspektrumfunktion zwischen Bodenzon und Globalstrahlung für den Zeitraum 1971 bis 1987; mit Jahresgang. Um die Übersichtlichkeit der Achsenbeschriftung zu erhalten, wurden die Perioden an der Abszisse ganzzahlig dargestellt. Die Berechnungen wurden mit den exakten Werten durchgeführt.

Wie auch bei den Spektren zwischen den Reihen des Bodenzons und Sonnenscheindauer sind nur im Periodenbereich der Jahresgänge im statistischen Sinne signifikante Signale vorhanden. Das bedeutet, wie auch schon die oben erwähnten Ergebnisse belegen, daß die Reihen zum wesentlichen Teil über deren Jahresgänge miteinander gekoppelt sind. So spiegeln hier die positiven Kovarianzen der Kospektren mit 49,9 % bezüglich der Globalstrahlungsreihe (und 45,2 % bezüglich der Reihe der Sonnenscheindauer) die positiven Korrelationen wider. Darüber hinaus gibt aber die Kreuzspektrumsanalyse detailliertere Auskunft über die Phasenverschiebung der Reihen, als dies der Kreuzkorrelation möglich ist, denn Quadratur- und Kospektren bestimmen für jedes Frequenzintervall Größe und Vorzeichen der Phase eines jeden spektralen Anteils der Reihen. Die negativen Kovarianzen der Quadraturspektren im Periodenbereich der Jahresgänge, - 14,9 % bezüglich Globalstrahlung (Abb. 4.4.4) und - 38,4 % bezüglich

Sonnenscheindauer, bedeuten zusammen mit den positiven Kovarianzen des Kospektrums (Abb. 4.4.3), daß die Basisreihe den Sekundärreihen vorausseilt. Das heißt: Das Maximum/Minimum des Jahresgangs der Bodenozonreihe tritt vor den Maxima/Minima der Jahresgänge der Reihen der Globalstrahlung und Sonnenscheindauer ein, und zwar um 1,5 Tage bzw. 15 Tage. Daß das Verfahren diese Phasenverschiebungen und ihre Vorzeichen sicher zu erkennen vermag, zeigt ein Test mit zwei Sinusreihen, die um 3° bzw. 1° verschoben sind und mit 12 Werten einen Jahresgang simulieren. Aus der Kohärenzanalyse ist zu entnehmen, daß die spektrale Phasenverschiebung der Reihen im Periodenbereich der Jahresgänge auf dem 3σ -Niveau signifikant sind, die Zufälligkeit des Vorausseilens des Jahresgangs der Bodenozonreihe mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,1 % auszuschließen ist. Die Kohärenz, spektraler Korrelationskoeffizient mit Werten zwischen 0 und + 1, beträgt im Periodenbereich der Jahresgänge für beide Fälle 0,998.

Offenbar wird am Hohenpeißenberg der Jahresgang der Bodenozonreihe keineswegs allein durch die Strahlungsverhältnisse bestimmt. Vielmehr wird er wesentlich auch durch andere Faktoren beeinflusst. Vor allem ist hier der Austausch mit der oberen Troposphäre zu nennen. Dieser hat zwar einen etwa gleichsinnigen Jahresgang, jedoch liegt in der oberen Troposphäre das Ozonmaximum im Frühjahr, das Minimum im Herbst (siehe Kap. 2.3.). Damit ließe sich das Voreilen des Maximums bzw. Minimums gegenüber denen der Globalstrahlung und Sonnenscheindauer erklären.

4.4.2 Elimination der Jahresgänge

Um andere mögliche Zusammenhänge in anderen Periodenbereichen aufzudecken, wurden die Jahresgänge der Reihen eliminiert. Diese Elimination wurde so durchgeführt, daß die Differenz zwischen dem Monatswert und dem entsprechenden 17jährigen Mittel 1971 - 87 für jeden Monat gebildet wurde. Die einfache Korrelation zwischen Bodenozon und Globalstrahlung ohne Jahresgang ergibt einen Korrelationskoeffizienten von 0,38. Dieser Wert ist zwar statistisch signifikant, liegt aber erheblich unter dem Wert von 0,90 bei Einschluß des Jahresgangs. Die erklärte Varianz beträgt damit aber nur 14 %. Das bedeutet, daß in Bezug auf Monatswerte überdurchschnittlich viel/wenig Strahlung nicht unbedingt überdurchschnittlich viel/wenig Ozon zur Folge haben muß. Wie bedeutend die Verschlechterung des Zusammenhangs zwischen Bodenozon und Strahlungspara-

metern bei Elimination der Jahresgänge tatsächlich ist, zeigt der Vergleich der Korrelationskoeffizienten zwischen den Reihen der Globalstrahlung und der Sonnenscheindauer: Mit Jahresgang beträgt der Korrelationskoeffizient 0,898, ohne Jahresgang 0,893, die erklärte Varianz entsprechend 81 % bzw. 80 %. Der Rückgang der Korrelation ist also vernachlässigbar. Hier wird der direkte Zusammenhang zweier Reihen deutlich: Lange Sonnenscheindauer ist mit viel Globalstrahlung gekoppelt und umgekehrt.

In Abbildung 4.4.5 ist die Kreuzkorrelationsfunktion zwischen den jahresgangbereinigten Reihen des Bodenozons und der Globalstrahlung dargestellt. Der höchste Korrelationskoeffizient wird bei der Verschiebung $\tau = 0$ erreicht; ein Zeichen dafür, daß die jahresgangbereinigten Reihen in Phase sind und der Einfluß der Globalstrahlung sich also noch im gleichen Monat auf das Bodenozon auswirkt.

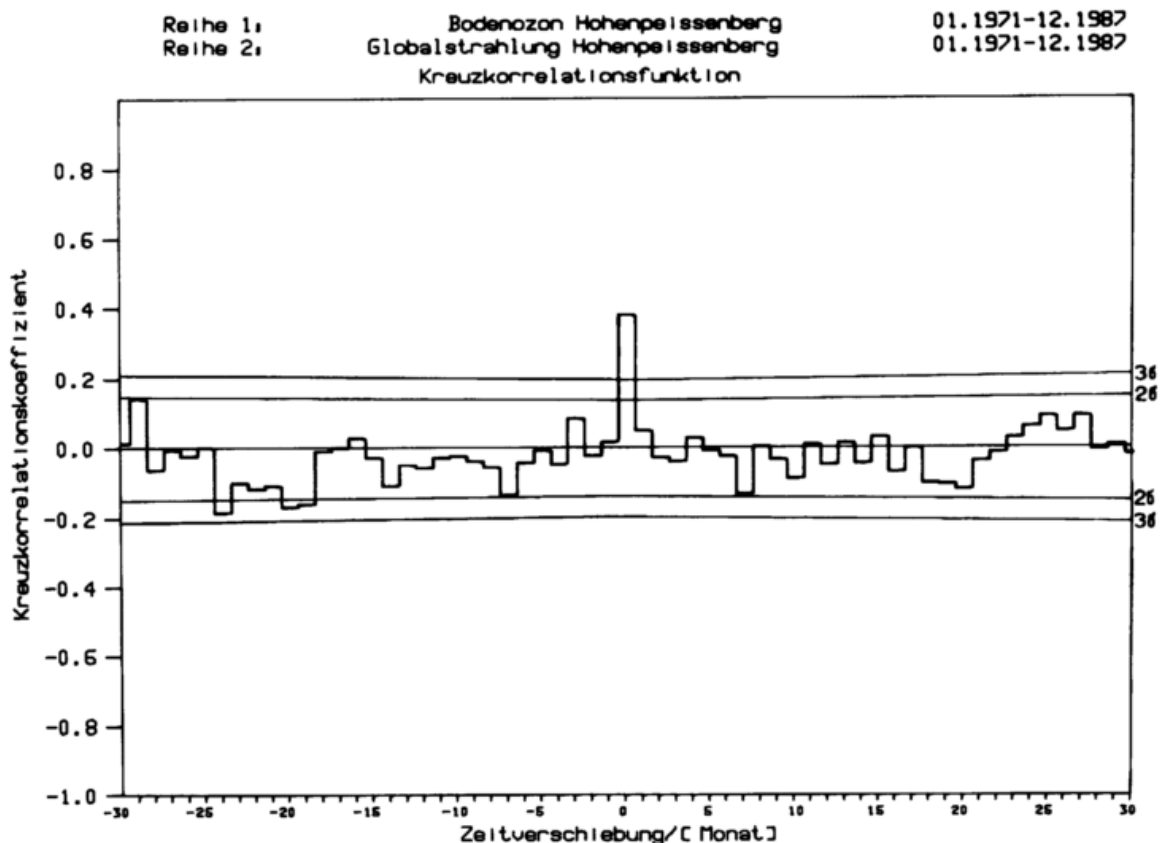


Abb.: 4.4.5 Wie Abb. 4.4.2, OHNE Jahresgang.

Die Abbildungen 4.4.6 und 4.4.7 zeigen das Ko- und Quadraturspektrum der beiden jahresgangbereinigten Reihen. Es ist kein Signal bei 12 Monaten vorhanden. Der einzige gerade noch signifikante Periodenbereich liegt zwischen 13,7 und 14,8 Monaten. Diese Phasenbeziehung ist als einzige auch kohärent. Die Frage, inwieweit dieser spektrale Zusammenhang mit der "Chandler-Kompensation" (BRYSON und STARR 1976) besteht, kann hier nicht beantwortet werden. Im kurzwelligen Teil des Spektrums ($T < 12$ Monate) lassen sich mit Hilfe der Kreuzspektrums- und Kohärenzanalyse keine Periodenbereiche finden, bei denen sowohl die Kovarianzen als auch die Kohärenz signifikant sind. Beziehungen im Bereich $T < 2$ Monate sind mit Monatswerten natürlich nicht darstellbar.

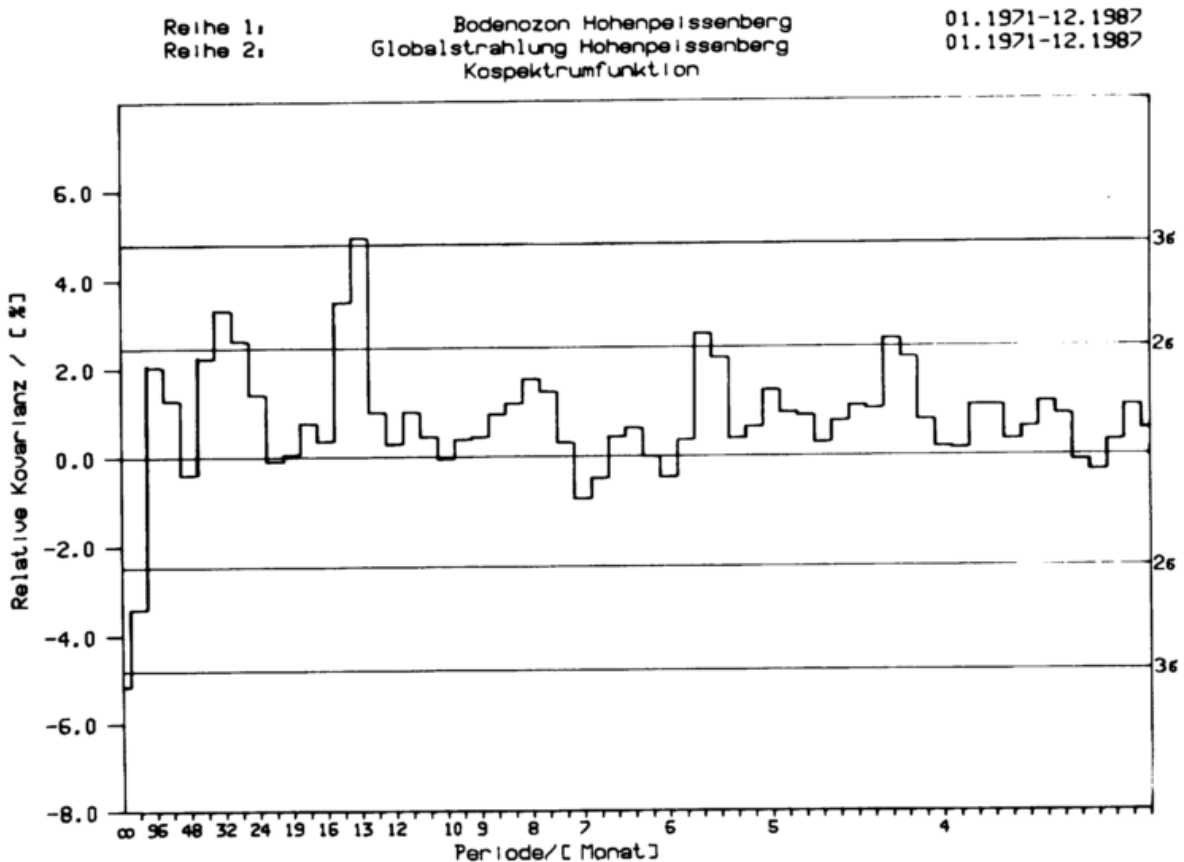


Abb.: 4.4.6 Wie Abb. 4.4.3, OHNE Jahresgang.

Für das Residuum zeigt das Kospektrum ein interessantes Ergebnis. Das Residuum, der nicht auflösbare langwellige Anteil der Zeitreihen, beschreibt den sogenannten Trend der Reihen (siehe auch Kap. 4.2.). Hier sind nun alle Perioden mit Wellenlängen größer 192 Monate, d. h. 16 Jahre, enthalten. Das Kospektrum (Abb. 4.4.6) zeigt auf dem 3σ -Niveau, daß die sogenannten Trends beider Rei-

hen negativ miteinander korreliert sind, desgleichen das Kospektrum zwischen der Bodenozonreihe und der Reihe der Sonnenscheindauer. Diese Ergebnisse werden auch durch die Trendanalyse der einzelnen Reihen bestätigt.

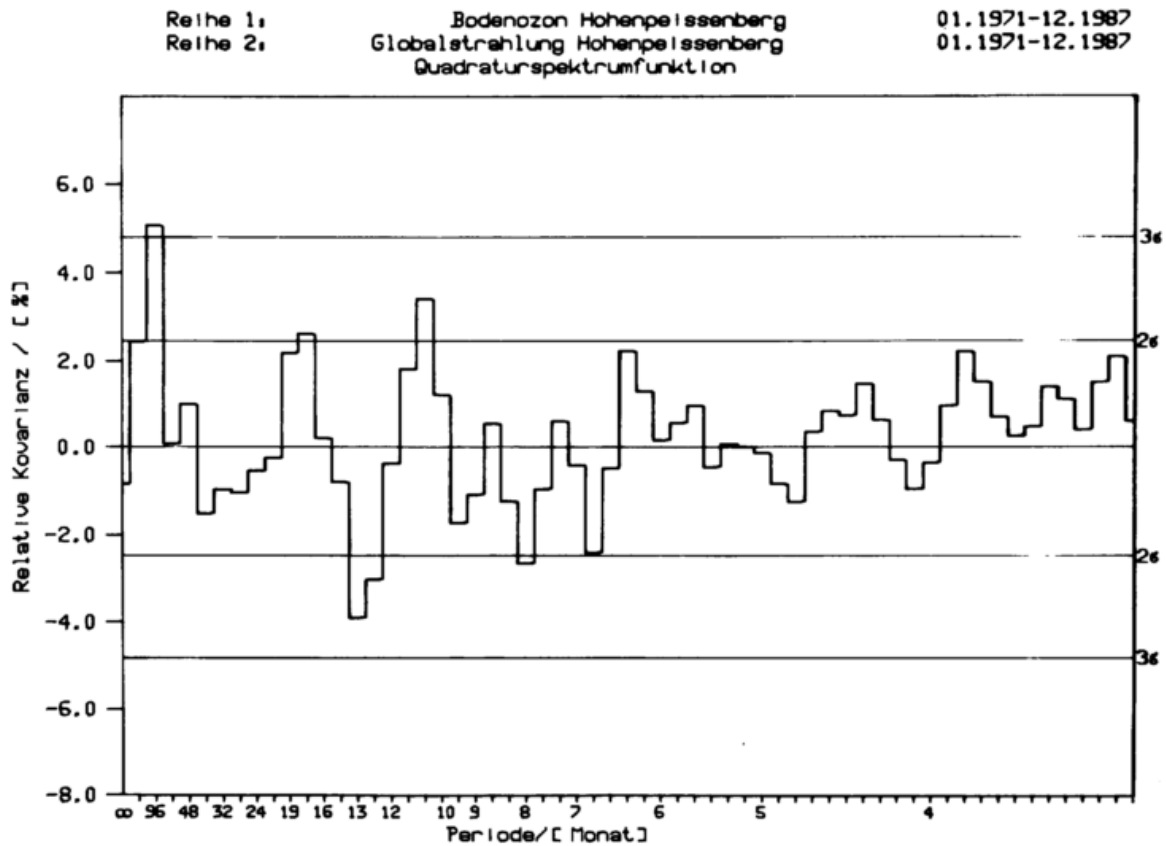


Abb.: 4.4.7 Wie Abb. 4.4.4, OHNE Jahresgang.

Die Trends von Globalstrahlung (sowie Sonnenscheindauer) und Bodenozon sind also gegenläufig. LIEPERT (1991) führt als mögliche Ursache für den langfristigen Rückgang der Strahlung eine Trübungszunahme an. Diese gegenläufigen Trends wirken sich natürlich auf die Korrelation zwischen den beiden Größen aus. So liegt der Korrelationskoeffizient der Jahreswerte bei lediglich 0,10, steigt bei Trendelimination auf 0,30 an. Dieser Wert ist jedoch nicht signifikant. In sogenannten "Strahlungsjahren" ist das Zusammentreffen von überdurchschnittlich viel Strahlung mit überdurchschnittlich viel Ozon also zufällig.

Der Zusammenhang zwischen den Bodenozonreihen und den Reihen der Globalstrahlung bzw. Sonnenscheindauer, basierend auf Monats- und Jahresmitteln, zeigt also folgendes: Für den Zeitmaßstab von etwa einem Jahr bis zu der den gesamt-

ten Meßzeitraum umfassenden Periode wird die Ozonkonzentration am Hohenpeißenberg durch die Strahlung nur wenig beeinflusst. Der Zusammenhang zeigt sich besser bei kürzeren Zeiträumen .

4.4.3 Diskussion der Korrelationen von Monatswerten

In Abbildung 4.4.8 sind die Korrelationen mit und ohne Jahresgang für die einzelnen Jahre, die Jahreszeiten und den gesamten Zeitraum dargestellt. Grundlage bilden die Monatsmittel von 1971 bis 1987. Für den Gesamtzeitraum ist der Korrelationskoeffizient mit 0,90 unter Einschluß des Jahresgangs sehr hoch, sinkt aber bei Elimination des Jahresgangs erheblich ab (s. o.). Mit 0,38 bleibt er allerdings auf dem 3σ -Niveau signifikant und erhöht sich um circa 10 %, wenn die gegenläufigen Trends eliminiert werden. Auch für die einzelnen Jahre verschlechtern sich die Korrelationen bei Elimination des Jahresgangs. Zum Teil ist überhaupt kein Zusammenhang vorhanden (Korrelationskoeffizienten ~ 0), nur bei 3 Jahren bleibt die Korrelation auf dem 3σ -Niveau signifikant. Interessant sind die Ergebnisse der vier Jahreszeiten. Die Korrelationen unter Einschluß des Jahresgangs sind in den Übergangsjahreszeiten am höchsten, da hier sowohl Globalstrahlung als auch Ozon einen starken Anstieg bzw. Abfall aufweisen (Abb 4.4.1). Im Sommer und Winter sind die Korrelationen mit Jahresgang geringer. Bei Elimination des Jahresgangs fallen die Korrelationen der Übergangsjahreszeiten unter die des Sommers. Für den Sommer selbst ist kaum ein Rückgang festzustellen, während im Winter ein Abfall auf 0,11 zu verzeichnen ist. Abbildung 4.4.8 zeigt, daß bei Einschluß des Jahresgangs die Beziehung zwischen Globalstrahlung und bodennahem Ozon, auch in einzelnen Jahren, überbewertet wird. Vielmehr ist eine jahreszeitliche Abhängigkeit dieser Beziehung vorhanden: Während im Sommerhalbjahr bei relativ hohem Sonnenstand ein guter Zusammenhang nachzuweisen ist, ist er im Winter nicht vorhanden. Dies kann zum schlechten Abschneiden einzelner Jahre im linken Teil der Abbildung beitragen.

Die bisher dargestellten Ergebnisse zeigen, daß am Hohenpeißenberg auch andere Vorgänge wie z. B. die Advektion von ozonreicher bzw. -armer Luft einen wesentlichen Beitrag zur Variation des bodennahen Ozons liefern. Dadurch können photochemische Effekte überlagert werden. Um diese nichtphotochemisch bedingten Anteile der Variationen in der Bodenozonreihe zu minimieren, wurden Monatsmittel von Tagesamplituden und Tagesmaxima gebildet, im folgenden kurz

"Monatsamplitude" und "Monatsmaximum" genannt.

Hohenpeißenberg Korrelation zwischen Bodenozone und Globalstrahlung

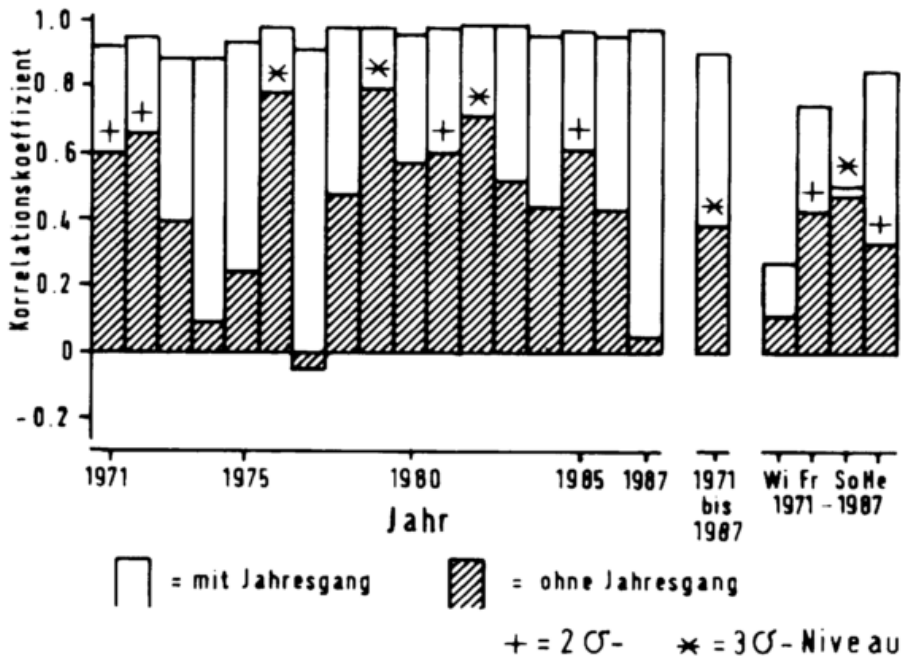


Abb.: 4.4.8 Korrelationen zwischen den Monatsmitteln des Bodenozens und den nomierten Monatssummen der Globalstrahlung für die einzelnen Jahre 1971 bis 1987, den Gesamtzeitraum und die einzelnen Jahreszeiten.

Alle Korrelationen, bei denen der Jahresgang enthalten ist, sind bis auf den Winter auf dem 3 σ -Niveau signifikant. Die Signifikanzen, für die Korrelationen, bei denen der Jahresgang eliminiert ist, sind durch + bzw. * entsprechend für das 2 σ - und 3 σ -Niveau gekennzeichnet.

Bei der Verwendung der Monatsmaxima ist die Vorstellung die, daß bei stärkerer Einstrahlung im allgemeinen höhere Ozonmaxima im Tagesverlauf erreicht werden als bei niedriger Einstrahlung. Bei den Monatsamplituden, das sind die mittleren Differenzen von Tagesmaxima und Tagesminima, kann man davon ausgehen, daß der Ozonanstieg im Verlauf des Tages durch die Photochemie geprägt wird und umso stärker ist, je stärker die Einstrahlung ist. Synoptische Einflüsse auf Maxima bzw. Amplituden an einzelnen Tagen werden durch die Bildung der entsprechenden Monatswerte so weit herausgemittelt, daß sie kaum noch Auswirkungen haben.

Werden die Reihen der Monatsamplituden bzw. der Monatsmaxima mit der Globalstrahlungsreihe korreliert, so ergeben sich Korrelationskoeffizienten mit Werten von 0,69 bzw. 0,92. Dies sind ähnliche Ergebnisse, wie sie mit den Monatsmitteln der Bodenozonreihe erzielt werden. Den besten linearen Zusammenhang im statistischen Sinne weisen dabei die Reihen der Monatsmaxima und der Globalstrahlung mit einer erklärten Varianz von 84 % auf. Nach der spektralen Varianzanalyse entfallen bei den Reihen der Monatsmaxima und Monatsamplituden auf die Periode 12 Monate 43,0 % bzw. 39,2 % der Gesamtvarianz. Anders aber als bei der Reihe der Monatsmittel des Bodenozons zeigt die Kreuzspektrumanalyse, daß die Jahresgänge der Reihen der Monatsamplituden und Monatsmaxima denen der Globalstrahlungsreihe nacheilen, und zwar um 14,2 bzw. 2,5 Tage. Die Kohärenzen der Phasenbeziehungen der Jahresgänge betragen 0,995 und 0,999 und sind auf dem 3 σ -Niveau signifikant. Dieses Ergebnis besagt, daß mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,1 % die Maxima/Minima der Monatsamplituden und Monatsmaxima dem Maximum/Minimum der Globalstrahlung mit der entsprechenden Phasenverschiebung nacheilen. Dieses Nacheilen läßt eine stärkere Beziehung zwischen Globalstrahlung und Monatsmaxima bzw. -amplitude als zwischen Globalstrahlung und Monatsmittel vermuten.

Werden bei den Reihen der Monatsamplituden und -maxima die Jahresgänge eliminiert, so gehen die Korrelationskoeffizienten auf Werte von 0,44 bzw. 0,47 zurück. Sie sind damit höher als bei der Korrelation der Monatsmittel und sind ebenso auf dem 3 σ -Niveau signifikant. Die erklärte Varianz beträgt 19 bzw. 22 %. Nach den Ergebnissen der Kreuzspektrumsanalyse sind keine signifikanten Phasenbeziehungen im gesamten Periodenbereich vorhanden; die oben erwähnte quasi 14monatige Periode deutet sich zwar auch hier an, ist aber nicht kohärent.

In Abbildung 4.4.9 sind die Jahresverläufe der Korrelationen zwischen Globalstrahlung und Monatsmittel, -amplitude und -maximum des Bodenozons dargestellt. Bei der Betrachtung der Veränderung von Monat zu Monat ist zu berücksichtigen, daß jeweils nur 17 Wertepaare pro Monat zur Verfügung stehen. Die Korrelationen mit den Monatsmitteln und -maxima streuen im Jahresverlauf sehr stark. Den glattesten Verlauf weisen die Korrelationen mit den Monatsamplituden auf, deren Augustwert als höchster Sommerwert auch auf dem 3 σ -Niveau signifikant ist. Im allgemeinen sind die besten Zusammenhänge zwischen der Globalstrahlung und den Ozonreihen im Sommer zu finden. Dies wird auf der rechten

Seite der Abbildung 4.4.9 deutlich, wo die Korrelationskoeffizienten für die einzelnen Jahreszeiten dargestellt sind (jeder Jahreszeit liegen jetzt 3 x 17 Wertepaare zugrunde). Der Jahresgang wurde eliminiert. Die schwächsten Zusammenhänge sind im Winter vorhanden, während die Korrelationskoeffizienten für Frühjahr und Sommer auf dem 3 σ -Niveau signifikant sind. Sie spiegeln somit einen saisonalen photochemischen Verlauf wider.

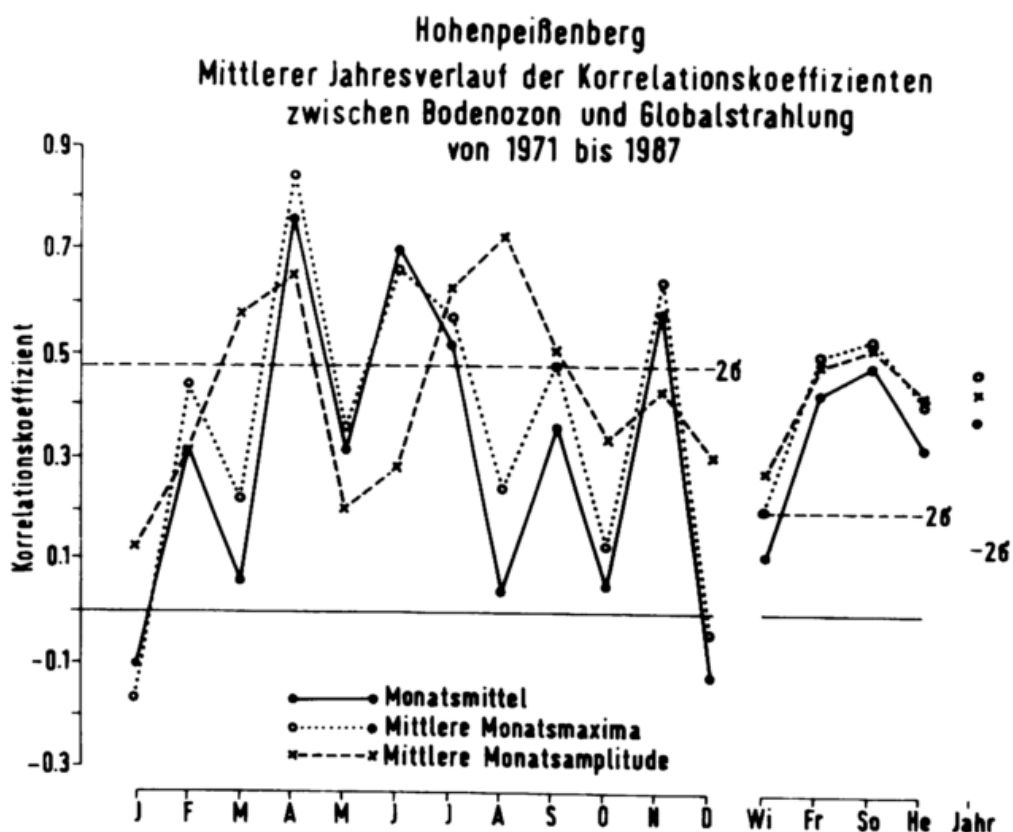


Abb.: 4.4.9 Korrelationen zwischen den normierten Monatssummen der Globalstrahlung und den Monatsmitteln der Bodenozoneparameter Monatsmittel, -amplitude und -maximum für die einzelnen Monate, Jahreszeiten und den Gesamtzeitraum, ohne Jahresgang.

4.4.4 Diskussion der Korrelationen von Tageswerten

Da die Relaxationszeit, mit der der photostationäre Zustand sich nach einer Änderung der Lichtintensität wieder einstellt, sehr kurz ist (BECKER und SCHURATH 1975), ist zu erwarten, daß in kleineren Zeitskalen die Zusammenhänge zwischen Ozon und Strahlung kaum noch von den Änderungen der Großwetterlagen

und Luftmassenwechseln beeinflusst werden. Deshalb sind auch Beziehungen zwischen Tageswerten des Bodenozone und Tagessummen der Globalstrahlung untersucht worden. Abbildung 4.4.10 zeigt den Jahresverlauf der Korrelation zum Tagesmittel des Ozons, zum täglichen Maximum (Stundenmittel), zur Tagesamplitude und dem Tagesanstieg. Dabei ist der Tagesanstieg wie folgt definiert: Aus den mittleren langjährigen Tagesgängen für die einzelnen Monate wurden die mittleren Eintrittszeiten des Minimums und des Maximums bestimmt. Der Tagesanstieg für jeden einzelnen Tag ergibt sich dann aus der Differenz der Stundenwerte der Ozonkonzentration zu den mittleren Eintrittszeiten. Die Amplitude dagegen ist aus der Differenz der individuellen Maxima und Minima gebildet.

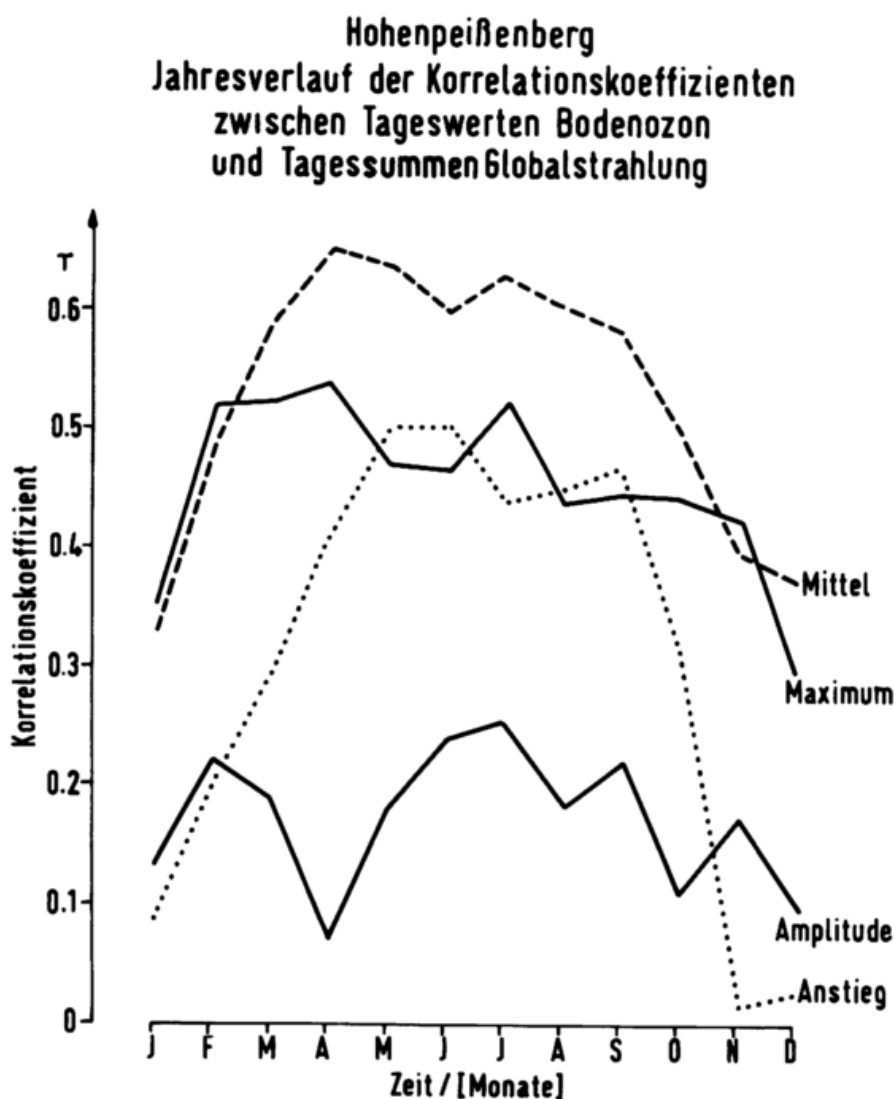


Abb.: 4.4.10 Korrelationen zwischen den Tagessummen der Globalstrahlung und den Tagesmitteln der Bodenozoneparameter Tagesmittel, -amplitude, -maximum und -anstieg.

Abbildung 4.4.10 zeigt ein sehr klares Bild und einen wesentlich ausgeglicheneren Verlauf als Abbildung 4.4.9. Im Sommer sind die Korrelationen für Mittel, Maximum und Anstieg sehr hoch (bis zu 0,66 beim Tagesmittel), im Winter sind die Zusammenhänge deutlich schlechter. Besonders beim Anstieg ist der Jahresgang der Korrelation ausgeprägt, im Winter ist keine Beziehung nachzuweisen. Im Vergleich zum Jahresverlauf der Monatsamplitude hat sich das Ergebnis der Tagesamplitude allerdings verschlechtert. Die Korrelationskoeffizienten sind hier recht niedrig. Durch die Verkleinerung des Zeitmaßstabs von Monatswerten auf Tageswerte kommt der Einfluß von Transportvorgängen bei der Tagesamplitude deutlich zur Geltung. Die Tagesamplitude wird aus der Differenz der Maxima und Minima bestimmt, ohne daß die individuellen Eintrittszeiten berücksichtigt werden. So kann es vorkommen, daß bei hoher/geringer Einstrahlung durch Advektion von ozonarmer/-reicher Luft die Amplitude für diesen Tag gering/hoch ist. Besonders zu erwähnen ist der inverse Tagesgang der Ozonkonzentration bei S-Wind im Sommer, wo das Maximum um 24.00 Uhr, das Minimum um 11.00 Uhr erreicht wird (siehe Kap. 4.3.). Die Häufigkeit dieser Windrichtung ist zwar gering und die advektionsbedingten Minima und Maxima mitteln sich über einen Monat weg, werden aber bei der Korrelation auf der Basis von Tageswerten entsprechend berücksichtigt und führen so zu einem schlechten Zusammenhang. Erstaunlich ist, daß die Beziehung für das Tagesmittel ausgeprägter ist als für den Anstieg. Die Untersuchungen zwischen Ozon und Windrichtung zeigen (siehe Kap. 4.3), daß im Sommer bei NE-Wind am Hohenpeißenberg überdurchschnittlich hohe Ozonkonzentrationen vorhanden sind. Diese Wetterlagen sind häufig auch mit hoher Einstrahlung verbunden, so daß das Zusammenwirken beider Faktoren eine Ursache für die besonders hohe Korrelation beim Tagesmittel sein kann. Dieser Parameter ist bezüglich der Photochemie vermutlich etwas überbewertet. Die Korrelationsrechnungen zeigen, daß im Sommerhalbjahr im Mittel etwa 25 % der Variationen von Anstieg und Maximum am Hohenpeißenberg auf Photochemie am Ort zurückzuführen sind.

4.4.5 Untersuchung spezieller Sommermonate

Anhand von drei Beispielen soll gezeigt werden, wie unterschiedlich sich der jeweilige Zusammenhang zwischen Ozon und Globalstrahlung im Sommer darstellen kann. Ausgewählt wurden die Monate Juli '82, '83 und '85. Jeder der drei Monate wies überdurchschnittlich hohe Monatsmittel sowohl der Globalstrahlung als auch der Ozonkonzentration auf. Die Korrelationen zwischen den Tagessummen der

Globalstrahlung und den Tagesmitteln, -maxima und Tagesanstieg liefern für die drei Monate folgende Korrelationskoeffizienten (Tab. 4.4.1) :

	VII. '82	VII. '83	VII. '85
Mittel:	0,66	0,20	0,42
Maxima:	0,69	0,10	0,47
Anstieg:	0,00	0,16	0,54

Tabelle 4.4.1: Korrelation Globalstrahlung und Ozonparameter für Juli 1982, 1983 und 1985

Für Juli '82 und '85 liegen die Werte für Mittel und Maxima etwa in der gleichen Größe wie sie für den Juli im Gesamtzeitraum zu finden sind (Abb.4.4.9). 20 bis 50 % der gesamten Varianz werden durch den Zusammenhang von Globalstrahlung und Ozon erklärt. Dem gegenüber ist der Zusammenhang im Juli '83 äußerst gering: lediglich 4 bzw. 1 % der Gesamtvarianz wären erklärt. Daß dieser Monat ein außergewöhnliches Verhalten aufweist, haben auch REITER et al. (1987) in Garmisch-Partenkirchen gefunden. Sie haben mittlere Tagesgänge aus Tagen mit mehr als 80 % der relativen Sonnenscheindauer (RSD) und mit $RSD < 20\%$ gebildet. Außer einer systematischen Zunahme der Ozonkonzentration bei $RSD > 80\%$ fanden sie, daß die Differenz der Ozonkonzentration zwischen Tagen $RSD < 20\%$ bzw. mit $RSD > 80\%$ ebenfalls von 1978 bis 1984 im allgemeinen zunahm. Dabei fällt aber der Juli '83 mit einer recht geringen Differenz heraus.

Betrachtet man nur die Tage, an denen die Globalstrahlungssumme größer gleich 2000 J/m^2 war, so waren an diesen Tagen in allen drei Julimonaten die Ozonkonzentrationen im Mittel höher als die entsprechenden Tagesmittel (Tab. 4.4.2):

	VII. 1982	VII. 1983	VII. 1985	VII. 1971 - 87
Mittel über alle Tage				
Ozon/(nbar) :	47,2	43,7	45,5	40,9
Globalstrahlung/(J/cm^2):	2043	2456	2014	1892
Mittel über Tage mit mehr als 2000 J/cm^2				
Anzahl der Tage :	20	26	16	----
Ozon/(nbar) :	51,3	44,5	48,3	----
Globalstrahlung/(J/cm^2):	2653	2624	2481	----

Tabelle 4.4.2: Mittlere Ozonkonzentrationen und Strahlungssummen für alle Tage und für Tage mit Strahlungssummen $> 2000 \text{ J/cm}^2$.

Diese Tage sind für Episoden mit Photosmog günstig, und man sollte eine Zunahme der Korrelationskoeffizienten erwarten, wenn nur diese Tage berücksichtigt werden. Allerdings wird diese Erwartung für den Juli '83 durch die Korrelationskoeffizienten von - 0,08, - 0,14 und - 0,29 für Mittel, Maxima und Anstieg nicht erfüllt. Ähnliches gilt auch für Juli '82 und '85. Hier bleiben die Werte allerdings positiv (0,16, 0,33, 0,09 und 0,12, 0,20, 0,23 entsprechend für Mittel, Maxima, Anstieg im Juli '82 und '85). Das bedeutet, daß die Höhe der Globalstrahlung im Bereich der Spitzenwerte keinen eindeutigen Einfluß mehr auf die Höhe der Ozonkonzentration hat; es spielt keine Rolle mehr, ob oberhalb eines Schwellwertes sich die Strahlung noch ändert. - Bemerkenswert ist die Korrelation für den Anstieg im Juli '82. Der Anstieg ist völlig unabhängig von der Strahlung. Die Ozonkonzentration am Hohenpeißenberg wurde in diesem Monat im wesentlichen durch Transport und nicht durch photochemische Produktion am Ort bestimmt; das advehierte Ozon kann durchaus an anderer Stelle photochemisch gebildet worden sein. Den besten Zusammenhang zwischen Strahlung und Anstieg findet man im Juli '85. Dieser Monat zeigt zwischen Strahlung und den verschiedenen Ozonparametern gleichmäßig hohe Korrelationskoeffizienten.

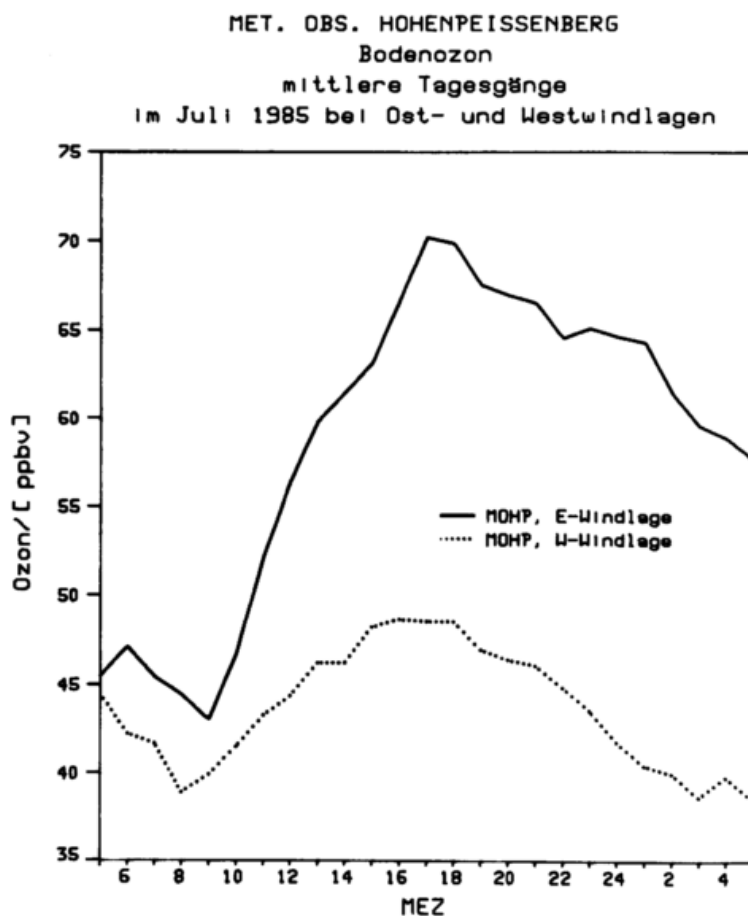


Abb.: 4.4.11
Mittlerer Verlauf der Ozonkonzentration in Bodennähe im Juli 1985 bei Ost- bzw. Westwind.

Er kann als typisch für die photochemische Ozonproduktion angesehen werden. Unterscheidet man zwischen den Tagen mit vorwiegend W-Wind und vorwiegend E-Wind, so zeigt sich, daß bei Tagen mit E-Wind die Ozonkonzentration zunimmt, Ozon wird während dieser Tage akkumuliert (siehe Abbildung 4.4.11). Die E-Winde zeichnen sich durch relativ niedrige Windgeschwindigkeiten aus. Die turbulente Durchmischung ist recht gering. Bei W-Wind mit allgemein höheren Windgeschwindigkeiten sind dagegen die Ozonkonzentrationen vor allem tagsüber geringer. Die Höhe der Ozonkonzentrationen unterscheiden sich bei E- und W-Wind im Mittel um 14,2 nbar. Im Tagesverlauf ist dieser Unterschied ab 14.00 Uhr signifikant. - Im Juli '82 und '83 sind zwischen den Tagesgängen bei E- und W-Wind keine wesentlichen Unterschiede vorhanden.

4.4.6 Schlußfolgerungen

Die Ergebnisse zeigen, daß bei der Beziehung zwischen Globalstrahlung und bodennahem Ozon der Zeitmaßstab eine Rolle spielt: Im langjährigen Zeitraum sind gegenläufige Trends vorhanden, einer Zunahme des Ozons steht eine Abnahme der Globalstrahlung gegenüber. Strahlung und Ozon haben hierbei nichts miteinander zu tun. Bei Jahreswerten ist praktisch auch kein Zusammenhang vorhanden, strahlungsreiche Jahre sind nur selten ozonreiche.

Dagegen ist ein saisonaler photochemischer Verlauf vorhanden mit Korrelationen nahe Null im Winter und 3 σ -signifikante positive Korrelationen im Sommer. Dabei bestehen die besten Beziehungen bei Tageswerten, da Ozonepisoden oft nur einige Tage andauern. Die Hohenpeißenberger Daten zeigen somit, daß es auch in ländlichen Gebieten zu einer photochemischen Ozonproduktion kommt. Allerdings werden die photochemischen Zusammenhänge durch Witterungseinflüsse überlagert. So lassen sich selbst im Sommer nur etwa 25 - 40 % der gesamten Varianz der Ozonkonzentration durch die Strahlung erklären. FEISTER und BALZER (1991) haben versucht, mit einer nichtlinearen Regressionsanalyse den meteorologischen Einfluß auf die Ozonkonzentration von fünf Stationen in der ehemaligen DDR für den Zeitraum von 1972 bis 1987 auf der Basis von Tageswerten zu quantifizieren. Die beiden wichtigsten Einflußgrößen für die Ozonkonzentration sind danach die Erhaltungsneigung (Persistenz) mit 33 - 46 % und die Strahlung mit 6 - 21 % erklärter Varianz. Daß die Persistenz, wenn man den Zeitmaßstab von Tagesmittelwerten betrachtet, einen so großen Einfluß auf die Ozonkonzentration hat, ist nicht verwunderlich wenn man bedenkt, daß dies im engen Zusammenhang mit der Dauer von Großwetterlagen steht. Denn die Größe der mete-

orologischen Parameter wie Temperatur, Windrichtung und -geschwindigkeit oder auch Globalstrahlung und Sonnenscheindauer ist dann über mehrere Tage ähnlich. Sind die Konzentrationen der Vorläufersubstanzen während dieser Zeiträume konstant, so wird notwendigerweise tagsüber ähnlich viel Ozon photochemisch gebildet und nachts ähnlich viel Ozon wieder abgebaut.

4.5. Bodennahe Ozon in Abhängigkeit von Nebel- und Talnebellagen im Winter

Im Winter befindet sich das Observatorium öfters in Wolken, es herrscht also Nebel. Oft liegt es aber auch oberhalb einer Bodeninversion und unterhalb der Station ist Talnebel zu beobachten. Um Unterschiede des Ozongehalts festzustellen, wurden für den Zeitraum 1980 - 1989 diejenigen Tage im Winter bestimmt, an denen länger als 12 Stunden Nebel bzw. Talnebel vorhanden war. In den Wolken bzw. im Nebel ist die Ozonkonzentration gering, was auf Oberflächenprozesse zurückgeführt werden kann. Das mittlere Tagesmittel für "Wolkentage" liegt mit 15,3 nbar erheblich unter dem Mittelwert von 24,3 nbar für alle Tage (Winter 1980 - 89). Der mittlere Tagesgang an Wolkentagen ist wie überhaupt im Winter sehr schwach ausgeprägt. Am frühen Nachmittag deutet sich ein schwaches Maximum an. Im Mittel ist die Ozonkonzentration am Ende des Tages geringer als am Morgen. Das heißt, an Wolkentagen ist generell Ozonrückgang zu beobachten (siehe Abbildung 4.5.1). Ganz anders ist die Situation an Tagen mit Talnebel. In den Morgen- und Vormittagsstunden nimmt die Ozonkonzentration im Gegensatz zu den mittleren Tagesgängen zu. Das Maximum wird um 12.00 Uhr MEZ erreicht, früher als beim mittleren Tagesgang. Dann nimmt die Ozonkonzentration ab, um nach einem Minimum zwischen 18.00 Uhr und 19.00 Uhr MEZ wieder anzusteigen und mit einer höheren Ozonkonzentration als am Morgen den Tag zu beenden. Mit 26,3 nbar ist das Tagesmittel für Tage mit Talnebel etwas höher als das Tagesmittel über alle Tage. Talnebel ist im allgemeinen an winterliche Hochdrucklagen gekoppelt, so daß oberhalb der Inversion durch Absinken die Ozonkonzentration erhöht ist.

Eine winterliche Hochdruck-Episode wurde einer näheren Untersuchung, deren Ergebnisse zum Teil von WEGE und VANDERSEE (1991) bereits veröffentlicht wurden, unterzogen. Am 04.12.1989 erstreckte sich von England nach Mitteleuropa ein Hochdruckgebiet, in dessen Bereich über Süddeutschland eine ausgeprägte Bodeninversion vorhanden war. Aus der Ballon-Sondierung von 7.00 Uhr UTC geht hervor, daß die vertikale Temperaturzunahme 60 m oberhalb des Observatoriums be-

endet war.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
mittlere Tagesverläufe des Bodenozone
im Winter bei Talnebel und Station in Wolken
für den Zeitraum von 1980 bis 1989

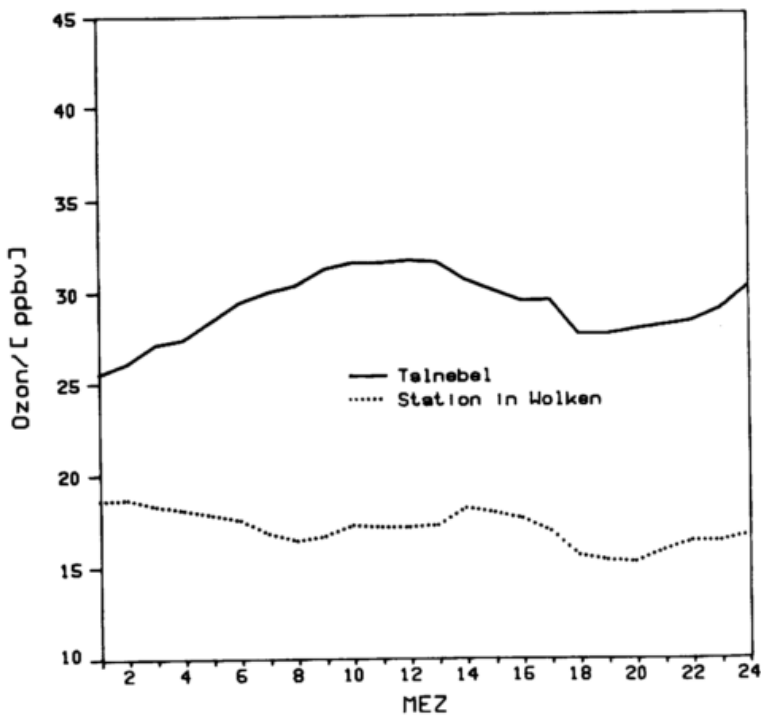


Abb.: 4.5.1
Mittlerer Verlauf der Ozonkonzentration in Bodennähe für Winter 1980 - 89 bei Talnebel bzw. Station in Wolken.

Abbildung 4.5.2 zeigt neben dem Temperaturprofil, das am Hohenpeissenberg gemessen wurde, auch Temperaturprofile von München für den 04. und 05.12.1989. Die Sicht oberhalb der Inversion betrug 100 - 110 km, unterhalb der Station herrschte starker Taldunst, zum Teil waren Talnebel oder Wolken unterhalb der Station vorhanden. Abbildung 4.5.3 zeigt die Schwankungen der Ozonkonzentration, die offensichtlich mit den Schwankungen der Inversionshöhe gekoppelt sind.

Temperaturprofile vom 4./5.12.1989
für Hohenpeißenberg und München

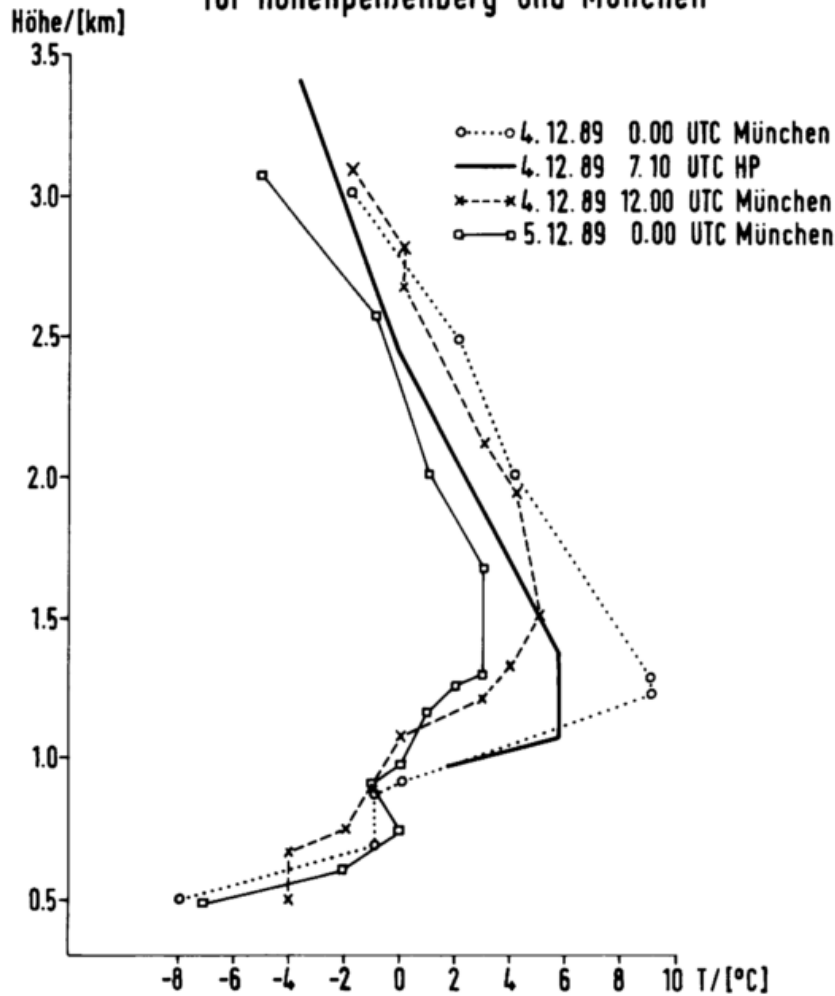


Abb.: 4.5.2
Temperaturprofile in
der unteren Troposphäre
vom 4. und 5.12.1989 in
München und Hohen-
peißenberg.

Im Tal liegt ozonarme Luft, Folge der Abbauprozesse, während oberhalb der Inversion der verhältnismäßig hohe Ozongehalt der freien Atmosphäre vorhanden ist. Die Ozonkonzentration schwankt zwischen Werten von 10 und 40 nbar und ist also oberhalb der Inversion bis zu viermal höher als darunter. Zum Vergleich sind die Stundenmittel der Ozonkonzentration am Berg Laber (1684 m) eingetragen. Der Absinkvorgang während des Vormittags spiegelt sich im Rückgang der relativen Feuchte wider. Gleichzeitig nahm die Ozonkonzentration leicht zu, von kurzfristigen Einbrüchen abgesehen, bei denen die Inversion etwas anstieg.

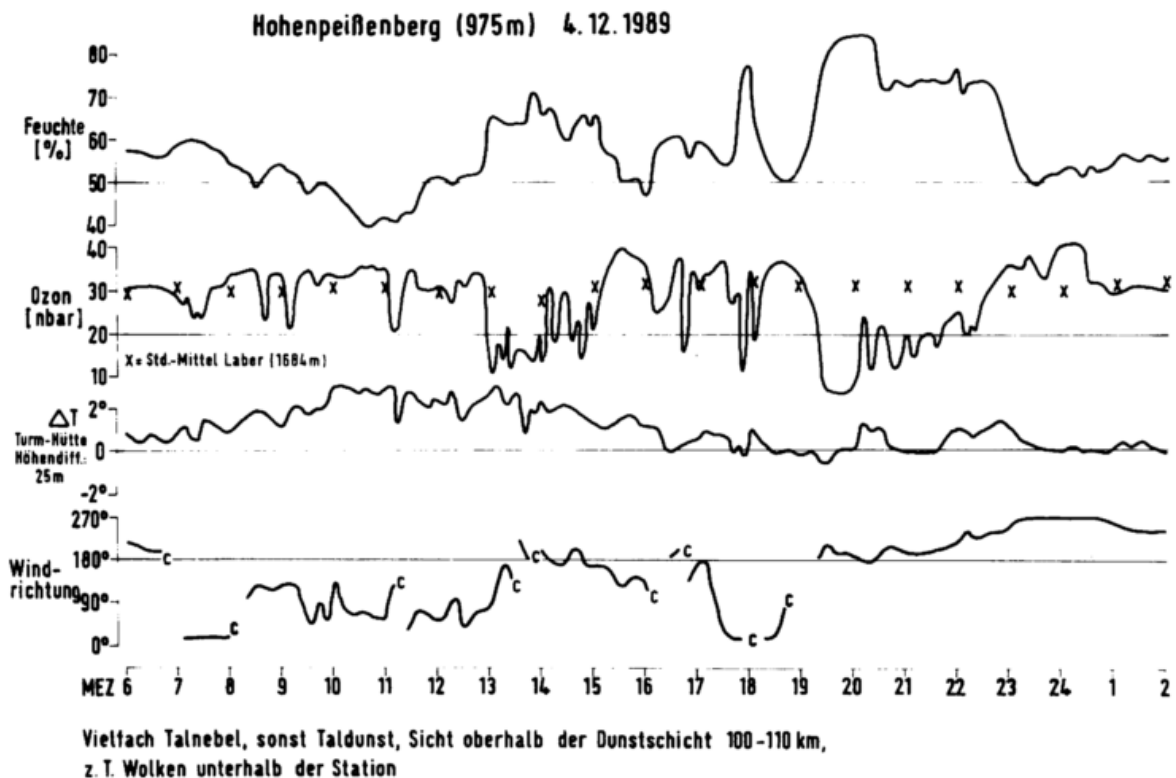


Abb.: 4.5.3 Verlauf der Parameter relative Feuchte, Ozon, Temperaturdifferenz Turm-Hütte und Windrichtung für den 4.12.1989.

Ab Mittag nahm die relative Feuchte zu, während die Ozonkonzentration abnahm. Der weitere Verlauf beider Parameter war starken Schwankungen unterworfen, was darauf hinweist, daß die Höhenlage der Obergrenze der Inversion stark wechselte. Diese Schwankungen können dadurch erklärt werden, daß der Südhang des Berges nach Absinken der Inversionsobergrenze durch Sonneneinstrahlung erwärmt werden kann. Durch die anschließend einsetzende kleinräumige Thermik wird wieder Nebelluft angesaugt, wodurch die Sonne den Hang nicht mehr erwärmen kann. Mit der folgenden Abkühlung ist dann wieder ein Absinken der Inversionsgrenze verbunden, der Berg ragt wieder stärker aus der Inversion heraus. Dies kann sich mehrfach wiederholen. - Während der Abendstunden erreichte die relative Feuchte ihr Maximum, das Ozon entsprechend ein Minimum. Bis dahin war der Wind schwach und kam innerhalb der Inversion aus östlicher Richtung. Nun drehte der Wind auf SW mit 2,7 m/s, und die Station gelangte permanent in den Bereich oberhalb der Inversion. Die Temperaturdifferenz zwischen Turm und Meßfeld, die mittags bis zu 3° betrug, ging auf Werte um Null zurück. Der starke Feuchte-

rückgang war von einem Anstieg der Ozonkonzentration begleitet. Es bestand an diesem Tag eine signifikante Antikorrelation zwischen Feuchte und Ozon mit einem Korrelationskoeffizienten von $-0,75$.

4.6. Ozonkonzentration im Mai 1989

Der Mai '89 hatte mit $53,0 \text{ nbar}$ ($= 58,8 \text{ ppb}$) den höchsten Monatsmittelwert überhaupt seit Beginn der Ozonmessung am Hohenpeißenberg. Abbildung 4.6.1 zeigt den mittleren Tagesgang für Mai über den Zeitraum von 1971 bis 1988. Dazu sind die Standardabweichungen der Stundenmittel eingezeichnet. Deutlich über den Standardabweichungen, bis fast 2σ , liegt der mittlere Tagesgang für den Mai '89. Der Tagesverlauf für Mai '89 entspricht dem für alle Maimonate, allerdings auf einem wesentlich höherem Niveau.

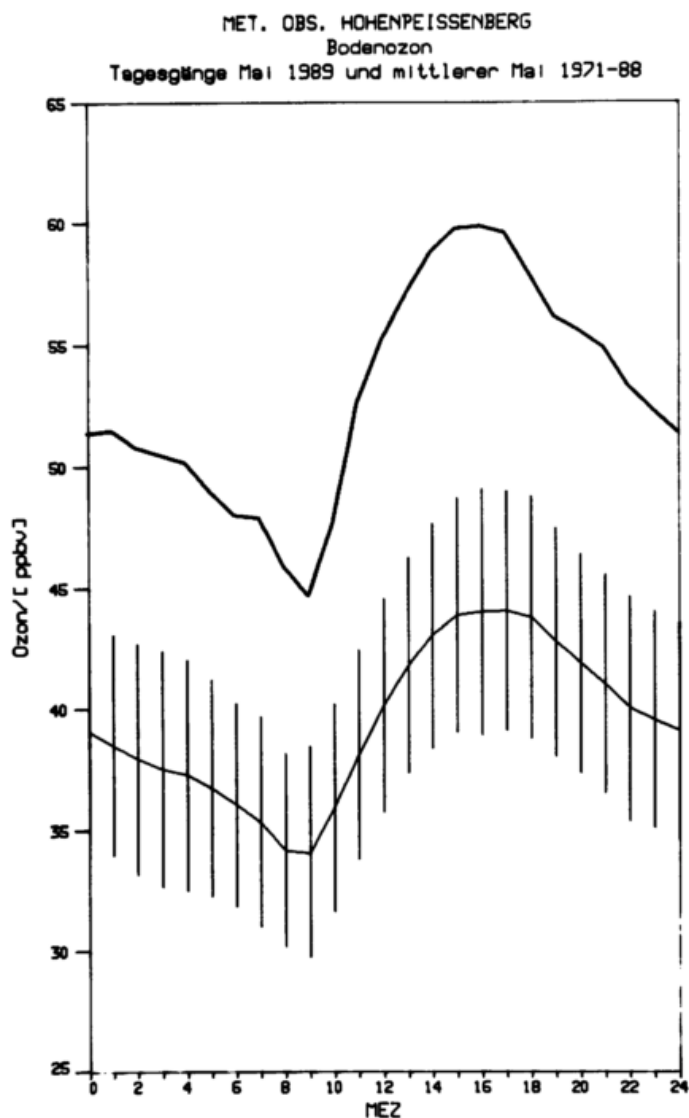


Abb.: 4.6.1
Mittlere Tagesgänge des Bodenozone am Hohenpeißenberg für den Mai 1989 und für Mai gemittelt über den Zeitraum 1971 - 88. Die senkrechten Balken geben die Standardabweichung der jeweiligen Monatsmittel an.

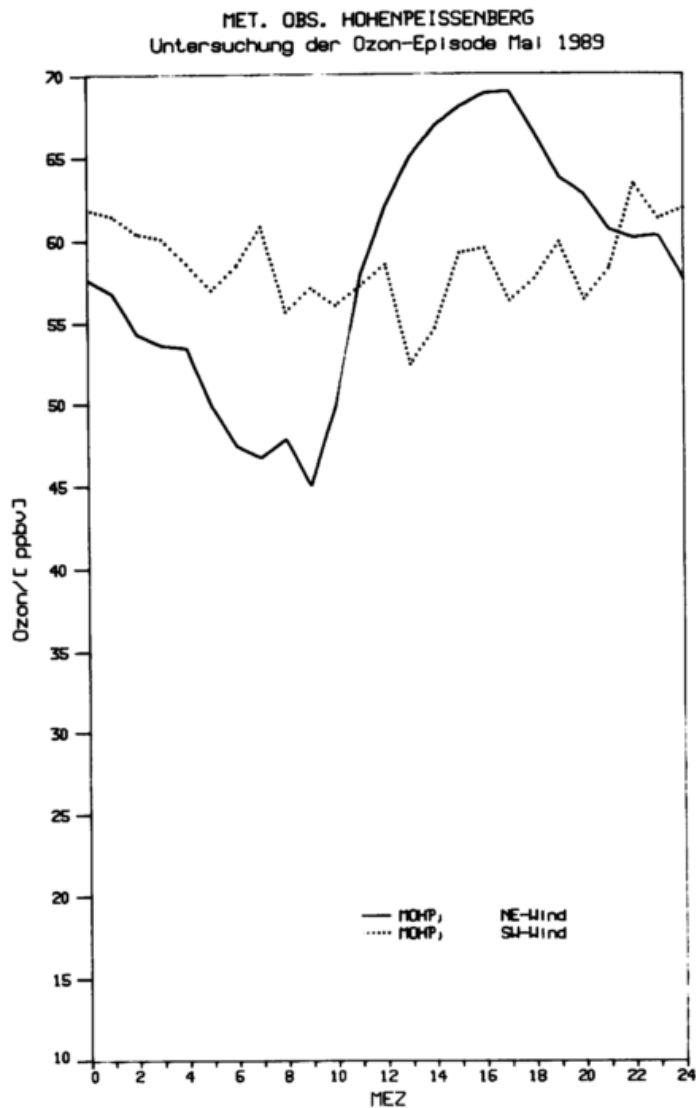


Abb.: 4.6.2
Mittlere Tagesgänge des Bodenzons am Hohenpeißenberg für Mai 1989 bei Nordost- bzw. Südwestwind.

Der Monat war antizyklonal geprägt. Die Großwetterlage "Hochdruckbrücke Mitteleuropa" war an 21 Tagen vorhanden, an fünf Tagen "Hoch Fennoskandien antizyklonal", nur an fünf Tagen herrschte zyklonale Witterung, nämlich "Westlage zyklonal". Insgesamt war der Monat Mai '89 am Hohenpeißenberg durch wenige, aber beständige Witterungsabschnitte bestimmt.

4.6.1 Abhängigkeit der Ozonkonzentration und des Tagesgangs vom Wind

Im wesentlichen herrschten im Mai 1989 nur zwei Windrichtungen, NE und SW, vor. Der Wind aus dem NE-Sektor kam während der Zeit vom 02. bis 08. und vom 15. bis 24.V., aus dem SW-Sektor vom 09. bis 14. und vom 25. bis 31.V.. Abbildung 4.6.2 zeigt die Tagesgänge der Ozonkonzentration am Hohenpeißenberg, die aus denjenigen Stundenmitteln gebildet wurden, an denen NE bzw. SW vor-

herrschten. Bei NE-Wind bildete sich ein ausgesprochen markanter Tagesgang aus. Das Minimum mit 45 ppb wurde im Mittel um 9.00 Uhr MEZ erreicht, das Maximum mit 69 ppb um 17.00 Uhr MEZ. Das Tagesmittel bei NE-Wind betrug über 58 ppb. Bis auf das höhere Niveau entspricht dies dem Verlauf des Tagesgangs, den man für Sommer bei NE-Wind erhält (siehe Kap. 4.3., Abb. 4.3.4). Der Tagesgang bei SW-Wind ist schwach ausgeprägt. Wie bei S-Wind im Sommer bildet sich hier ein inverser Tagesgang aus (Abb. 4.3.3 und 4.3.4). Im Mai '89 wird das Minimum mit 44 ppb um 13.00 Uhr MEZ erreicht, das Maximum mit 63 ppb um 22.00 Uhr MEZ. Der Verlauf der Ozonkonzentration ist recht rauh. Das Tagesmittel bei SW-Wind betrug ebenfalls reichlich 58 ppb.

Abbildung 4.6.3 zeigt einen Vergleich des Tagesgangs bei SW-Wind im Mai '89 mit den mittleren Tagesgängen für Mai bei SE-, S- und SW-Wind über die Jahre 1971 bis 1988. Die Werte für Mai '89 liegen um 10 bis 15 ppb höher als die der 18jährigen Mittel. Der langjährige Tagesgang für SW-Wind hat die Form einer Doppelwelle mit dem Hauptmaximum um 14.00 MEZ, dem sekundären Maximum um 1.00 Uhr MEZ und den Minima um 9.00 Uhr und 22.00 Uhr MEZ. Bei den anderen Windrichtungen verliert sich das Hauptmaximum um 14.00 MEZ in einem unruhigen Anstieg der Ozonkonzentration vom Minimum um 9.00 bzw. 10.00 Uhr MEZ zum nächtlichen Maximum um 24.00 Uhr MEZ. Typisch für die drei langjährigen Tagesgänge ist das Minimum um 9.00 bzw. 10.00 Uhr MEZ, das sich in allen drei Tagesgängen wiederfindet. Dieses Minimum ist dagegen im Tagesverlauf der Ozonkonzentration im Mai '89 für SW-Wind nicht vorhanden. Abbildung 4.6.4 zeigt im Vergleich die Tagesgänge bei NE-Wind, einmal für Mai '89, zum anderen für das langjährige Mittel von 1971 bis 1988. Die Ozonkonzentrationen im Mai '89 sind um 15 ppb höher als die im langjährigen Mittel, außerdem fällt auf, daß im Mai '89 das Minimum eine Stunde später, um 9.00 Uhr MEZ, und das Maximum eine Stunde früher, um 17.00 Uhr MEZ eintritt. Dadurch wird der Anstieg der Ozonkonzentration steiler.

Für die Stationen Laber (1684 m) und Lichtenau (610 m), temporäre Außenstellen des Observatoriums wurden, die Stundenmittel der Ozonkonzentration ebenfalls nach den Windrichtungen am Hohenpeißenberg eingeteilt. Zwar wird an den Stationen Laber und Lichtenau der Wind nicht exakt aus derselben Richtung und schon gar nicht mit derselben Geschwindigkeit geweht haben, aber diese aufgrund des Windes am Hohenpeißenberg getroffene Einteilung und Unterscheidung zweier "Ozonregime" zeigt sich auch an den beiden anderen Stationen. Abbildung 4.6.5 zeigt die Tagesgänge der drei Stationen bei Wind aus dem SW-Sektor.

MET. OBS. HOHENPEIßENBERG
 Untersuchung der Ozon-Episode Mai 1989

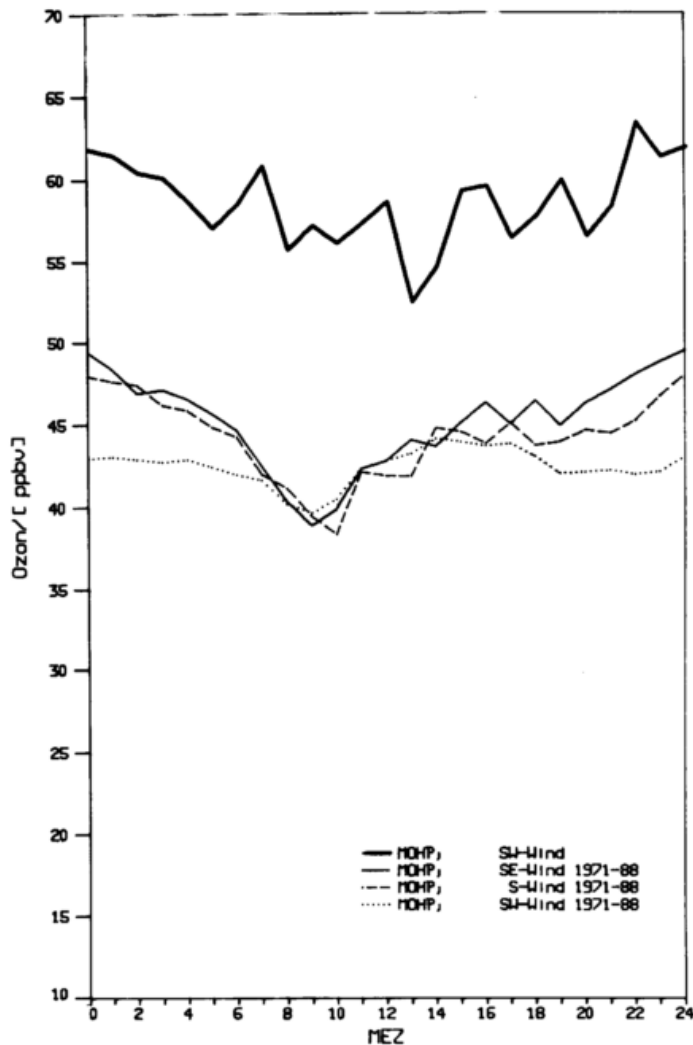


Abb.: 4.6.3
 Mittlere Tagesgänge des Bodenozone am Hohenpeißenberg für Mai 1989 bei Südwestwind und für Mai gemittelt über den Zeitraum 1971 bis 1988 bei Südost-, Süd und Südwestwind.

Die Einheit für Ozon ist ppb, und daher sind die Konzentrationen an den verschiedenen Stationen trotz ihrer unterschiedlichen Höhe besser miteinander vergleichbar. So zeigen die Tagesgänge für Laber und Hohenpeißenberg bei dieser Windrichtung nicht nur denselben inversen Verlauf, sondern auch fast identische Ozonkonzentrationen. In der Lichtenau (610 m) sind dagegen deutlich geringere Ozonkonzentrationen vorhanden. Zwar werden tagsüber hohe Ozonkonzentrationen von bis zu 50 ppb erreicht, doch nachts nimmt die Ozonkonzentration stark ab. Das Minimum mit 23 ppb wird um 6.00 MEZ erreicht. Die drei Tagesgänge legen den Schluß nahe, daß bei Wind aus dem SW-Sektor die Ozonkonzentration vorwiegend durch dynamische Vorgänge und weniger durch photochemische Prozesse am Ort bestimmt wird. Des Nachts befindet sich die Lichtenau innerhalb der Bodeninversion. In dieser Zeit, zwischen der Ausbildung und der Auflösung der Bodeninversion, wird in der Lichtenau das Ozon abgebaut, während

die Ozonkonzentration an den Bergstationen oberhalb der Bodeninversion vermutlich wegen der Bergwinde am Alpenrand zunimmt. Dadurch entsteht ein vertikaler Gradient, der in den frühen Morgenstunden am stärksten ausgebildet ist und bei Einsetzen der Konvektion abgebaut wird. Die Kurven der Ozonkonzentration nähern sich tagsüber aneinander an.

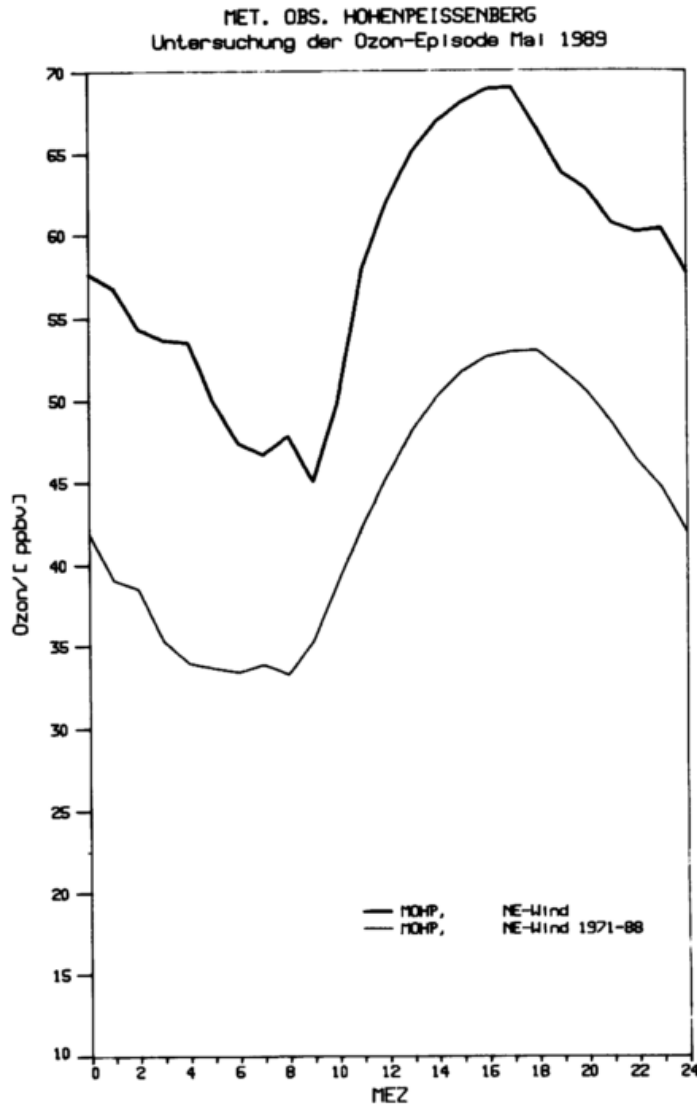


Abb.: 4.6.4
Mittlere Tagesgänge des Bodenzons am Hohenpeißenberg für Mai 1989 und für Mai gemittelt über den Zeitraum 1971 bis 1988 bei Nordostwind.

Abbildung 4.6.6 zeigt die Tagesgänge der drei Stationen für den Mai '89 bei NE-Wind. Bei allen drei Stationen tritt das Maximum Nachmittags, das Minimum morgens ein. Dabei ist eine Verschiebung der Eintrittszeit des Minimums mit der Höhe vorhanden. Während am Hohenpeißenberg und am Laber das Minimum erst um 9.00 Uhr MEZ erreicht wird, liegt es in der Lichtenau schon um 6.00 Uhr MEZ. Die in der Lichtenau dann einsetzende steile Zunahme kann zunächst nur durch vertikalen Austausch erklärt werden, da die Einstrahlung für die photochemische Ozonbildung noch zu gering ist. Ozonarme Luft wird mit ozonreicherer

Luft aus größeren Höhen vermischt.

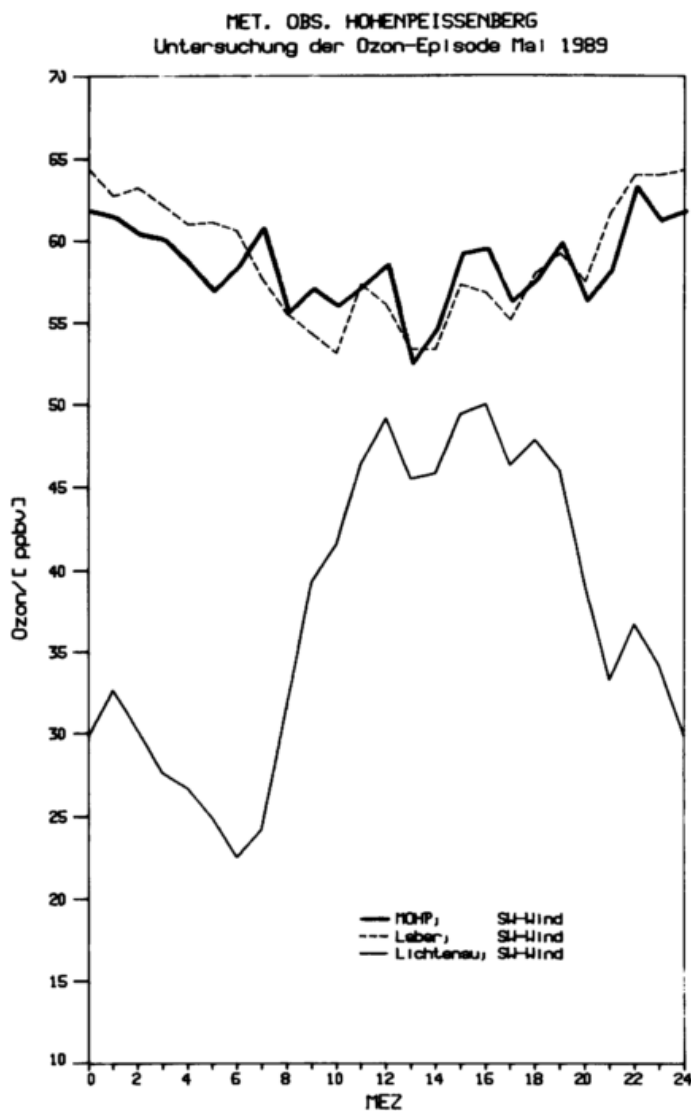


Abb.: 4.6.5
Mittlere Tagesgänge des Bodenozyons am Hohenpeißenberg, am Lichtenau und in der Leber für Mai 1989 bei Südwestwind.

Erst wenn die Strahlung stark genug ist, kann photochemische Ozonproduktion einsetzen. Die Einwirkungen von Photochemie und Vertikalaustausch auf die Ozonkonzentration in einer bestimmten Höhe überlagern sich jetzt. Im Tagesverlauf werden die höchsten Ozonwerte am Hohenpeißenberg erreicht, das Maximum beträgt 69 ppb. Obgleich der ausgeprägte Anstieg der Ozonkonzentration in der Lichtenau im Laufe des Tages auch auf photochemische Ozonproduktion schließen läßt, scheint die Effizienz der Photochemie im Höhenbereich des Hohenpeißbergs am größten zu sein. Zu keiner Zeit übersteigt die Ozonkonzentration in der Lichtenau zur selben Stunde die am Hohenpeißenberg. Oberhalb des Hohenpeißbergs nimmt der Einfluß der Photochemie ab. Am Leber sind die Werte tagsüber geringer als am Hohenpeißenberg, ebenso die Amplitude des Tagesgangs.

Da die Windrichtung eine bedeutende Rolle spielt, soll nun auf die Besonderheiten der Windgeschwindigkeiten bei den verschiedenen Windrichtungen eingegangen werden.

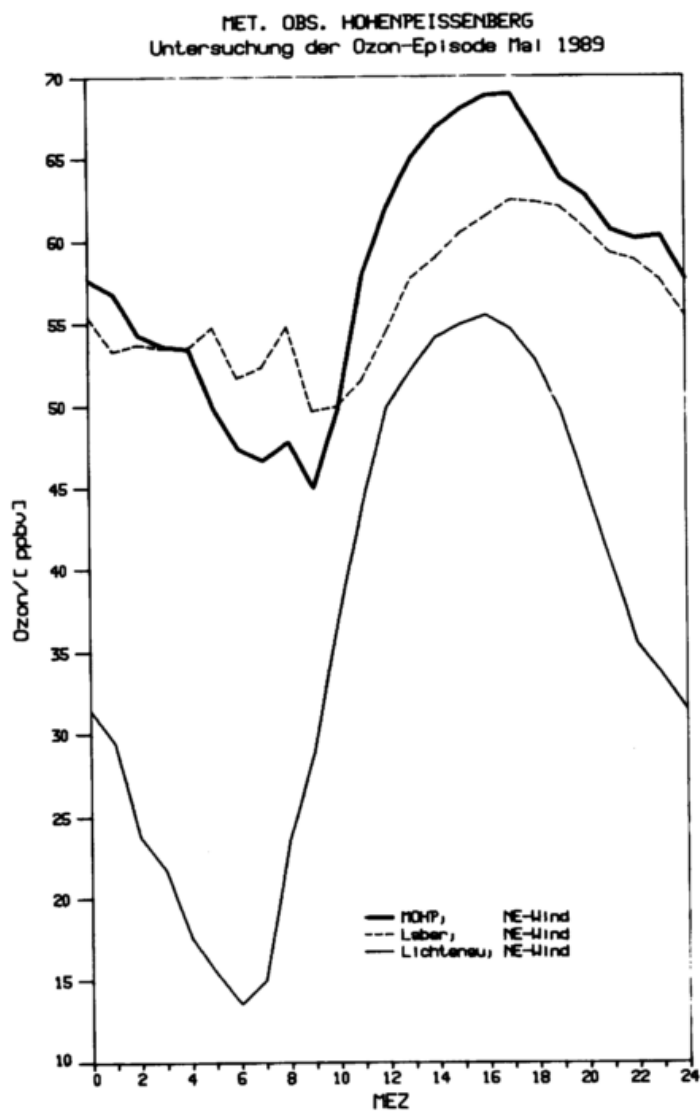


Abb.: 4.6.6 Wie Abb. 4.6.5 bei Nordostwind.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 Untersuchung der Ozon-Episode Mai 1989

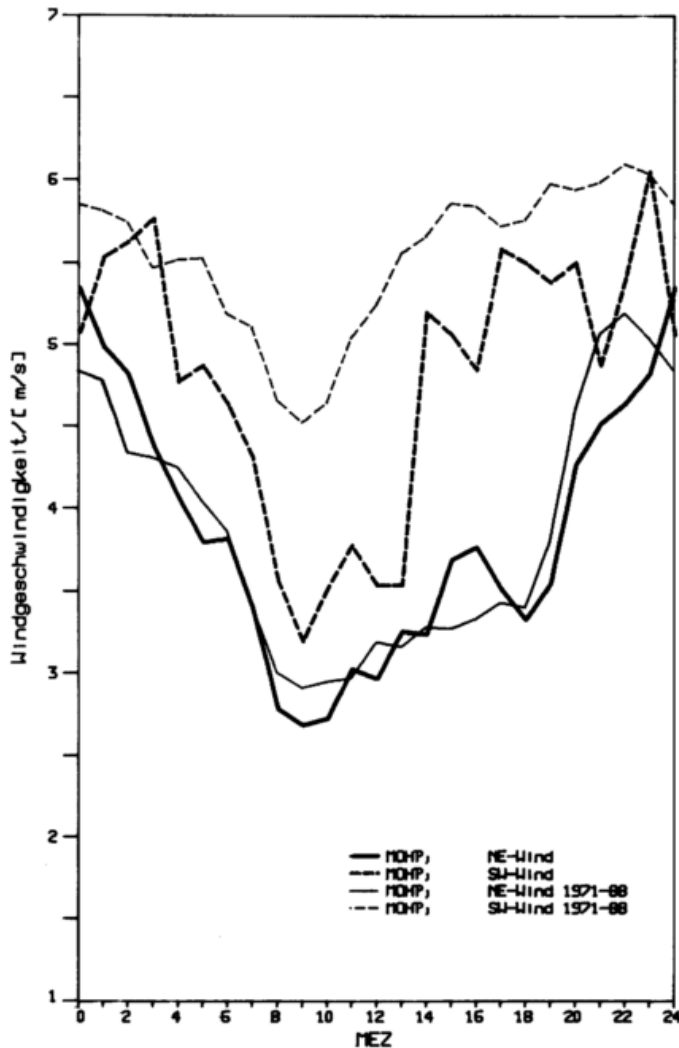


Abb.: 4.6.7
 Mittlere Tagesgänge der
 Windgeschwindigkeit am Ho-
 henpeißenberg für Mai 1989
 und für Mai gemittelt über
 den Zeitraum 1971 bis 1988
 bei Nordost- und Südwest-
 wind.

Abbildung 4.6.7 zeigt die Tagesgänge der Windgeschwindigkeit bei NE- und SW-Wind sowohl für Mai als auch für die langjährigen Mittel. Als bedeutende Unterschiede zwischen den Windrichtungen, die gleichermaßen im Mai '89 und in den langjährigen Mitteln vorhanden sind, fallen zum einen die höheren Windgeschwindigkeiten bei SW-Wind auf, zum anderen aber unterscheiden sich die Tagesgänge in ihrem Verlauf erheblich. Zwar wird bei beiden Windrichtungen das Minimum um 9.00 MEZ erreicht, aber bei SW-Wind nimmt die Windgeschwindigkeit wesentlich schneller wieder zu als bei NE-Wind. Bei NE-Wind wächst die Windgeschwindigkeit mittags sowohl im Mai '89 als auch beim langjährigen Mittel relativ schwach an, und zwar von 2,7 bzw. 2,9 m/s um 9.00 Uhr MEZ auf 3,3 m/s um 18.00 Uhr MEZ. Danach erst nimmt die Windgeschwindigkeit deutlich zu. Um 1 bzw. 22.00 Uhr MEZ werden im Mai '89 und dem langjährigen Mittel die Maxima mit 5,5 bzw. 5,2 m/s erreicht. Bei SW-Wind dagegen erfolgt nach dem Minimum um 9.00 Uhr MEZ sofort eine stetige Zunahme der Windgeschwindigkeit von 3,2 bzw. 4,5 m/s auf 6,0 bzw. 6,1 m/s um 23.00 Uhr bzw. 22.00 Uhr MEZ.

Durch die höheren Windgeschwindigkeiten hat die dynamische Turbulenz bei SW-Wind einen wesentlich größeren Einfluß auf die Ozonkonzentration als bei NE-Wind. Neben hohen Temperaturen und klarem Himmel sind Ozonepisoden mit geringen Windgeschwindigkeiten und sich langsam verlagernden Hochdruckgebieten verbunden, so wie es bei NE-Wind in Süddeutschland häufig ist. Dies läßt den Schluß zu, daß bei NE-Wind die hohen Ozonkonzentrationen am Hohenpeißenberg hauptsächlich durch Photochemie am Ort bzw. im Raum München hervorgerufen wurden, bei SW-Wind werden dagegen hohe Ozonkonzentrationen mehr durch dynamische Durchmischung und durch Transportvorgänge verursacht.

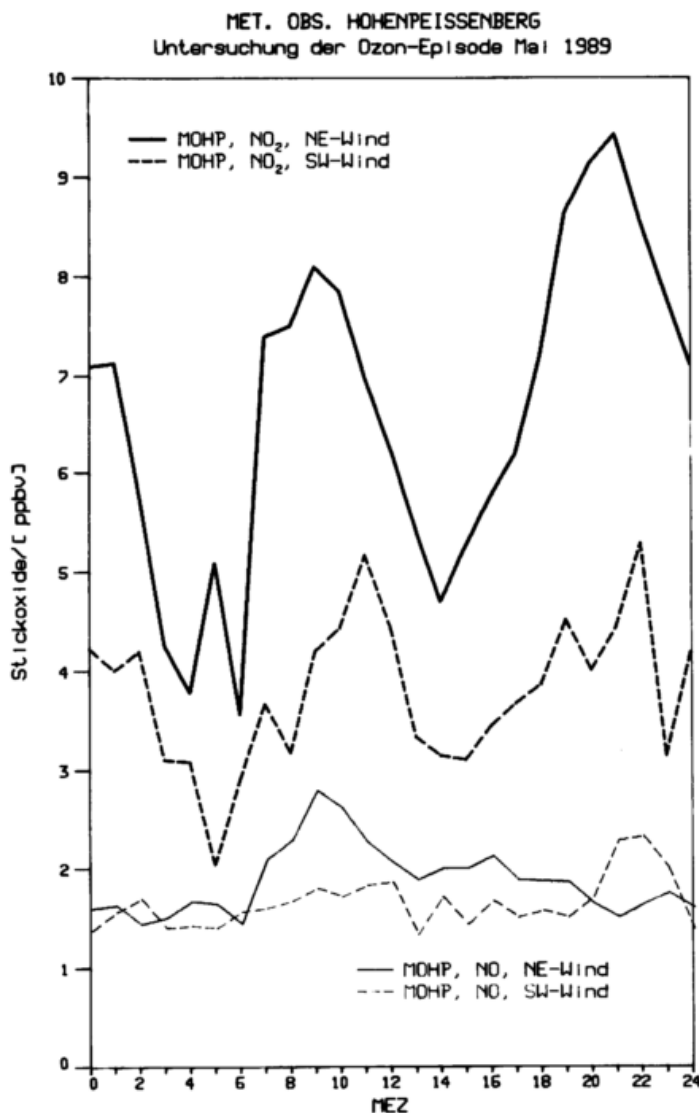


Abb.: 4.6.8
Mittlere Tagesgänge von NO und NO₂ am Hohenpeißenberg für Mai 1989 bei Nordost- und Südwestwind.

Abbildung 4.6.8 zeigt die Tagesverläufe der Stickoxidkonzentration für NE- und SW-Wind. Während sich die Tagesverläufe von NO für die beiden Windrichtungen kaum unterscheiden, die Werte liegen nahe an der Nachweisgrenze, unterscheiden sich die Tagesverläufe von NO₂ vor allem in der Höhe des Mischungs-

verhältnisses. Das Tagesmittel bei SW-Wind beträgt 3,8 ppb, bei NE-Wind 6,6 ppb. Der Verlauf weist die typische Doppelwelle auf, wie sie auch in Ballungsräumen, allerdings auf höherem Niveau, vorhanden ist. Das erste Maximum tritt um 9.00 Uhr bzw. 11.00 Uhr auf mit 8 bzw. 5 ppb. Das zweite Maximum ist um 21.00 Uhr bzw. 22.00 Uhr vorhanden. 9,4 bzw. 5,3 ppb werden erreicht. Die höheren NO₂-Konzentrationen bei NE-Wind zeigen, wie auch beim Ozon, den Einfluß des Münchener Ballungsgebiets.

4.6.2 Fanden stratosphärische Intrusionen während dieses Monats statt?

Im folgenden wird der Einfluß stratosphärischer Intrusionen auf das bodennahe Ozon untersucht um zu klären, ob die hohen Ozonwerte dieses Monats auch durch solche Ereignisse verursacht sein können. Jahresgänge des bodennahen Ozons in völlig unbelasteten Gegenden zeigen das Maximum der Ozonkonzentration nicht im Sommer, sondern im Frühjahr und folgen damit mehr dem Jahresgang des Ozons in der oberen Troposphäre/unteren Stratosphäre. Ansätze eines Frühjahresmaximums finden sich auch am Hohenpeißenberg (siehe Kap. 3.1.). Die klassische Ozontheorie (siehe Kap. 2.1.) geht davon aus, daß das Ozon im tropischen Bereich der Stratosphäre gebildet, polwärts transportiert und durch Intrusionen in die Troposphäre eingebracht wird. Der Eintrag von Ozon aus der Stratosphäre ist eine wichtige Quelle für troposphärisches Ozon.

FABIAN und PRUCHNIEWICZ (1977) fanden aufgrund von Boden- und Flugzeugmessungen einen verstärkten stratosphärisch-troposphärischen Ozoneintrag bei ungefähr 30°, 45° und 60° N. Zu einem ähnlichen Ergebnis kamen CHATFIELD und HARRISON (1977). DANIELSON (1980) und KELLY et al. (1982) beobachteten stratosphärische Ozon-Intrusionen im Sommerhalbjahr. SHAPIRO (1980) untersuchte die Rolle der "clear air turbulence" im frontalen Strahlstrom als einen Mechanismus für den Transport von stratosphärischen Ozons in die Troposphäre. JOHNSON und VIEZZE (1981) führte intensive Flugzeugbeobachtungen durch, um den Intrusionsmechanismus zu klären. CHUNG und DANN (1985) untersuchten eine Ozonepisode in Bodennähe und diskutierten den möglichen Zusammenhang mit stratosphärischem Ozon. MOHNEN et al. (1977) analysierten Ozondaten, die auf einem Berg gemessen wurden und zeigten die Möglichkeit des Transports ozonreicher Luft zum Erdboden aus größeren Höhen auf. VAUGHAN und PRICE (1989) untersuchten den stratosphärischen Ozoneintrag bei einem Cut-Off Tief. Um die Dynamik stratosphärischer Intrusionen in die untere Troposphäre zu untersuchen, wurde

von WAKAMATSU et al. (1989) eine intensive Feldmessung im Mai 1986 im Süden Japans durchgeführt. Ihre Beobachtungsergebnisse zeigen zwei Hauptmechanismen der stratosphärischen Ozonintrusion. Zuerst wird stratosphärisches Ozon in die obere Troposphäre durch einen abwärtsgerichteten Fluß nahe einer Kaltfront transportiert. Danach gelangt das Ozon im nachfolgenden Hochdruckgebiet bis zum Erdboden. - Da im Mai '89 das bisher höchste Bodenozon-Monatsmittel gemessen wurde, stellt sich die Frage, ob diese hohe Ozonkonzentration auch durch mögliche Intrusionen mit verursacht wurde.

Abbildung 4.6.9 zeigt einen Zeit-Höhen-Schnitt der Ozonkonzentration für den Zeitraum vom 28.IV bis zum 5.VI '89 und den Höhenbereich von 1 bis 13 km, bestimmt aus den operationellen Ozon-Sondierungen. Die strichpunktierte Linie gibt die Lage der Tropopause an. An der Abszisse sind diejenigen Zeiträume im Mai '89 vermerkt, die am Hohenpeißenberg in Bodennähe durch die vorwiegenden Windrichtungen NE und SW charakterisiert waren. Darüber hinaus sind auch die Zeitabschnitte der Großwetterlagen nach DWD (1991) eingetragen. Es soll hier nicht auf alle Einzelheiten, die sich aus der Isoplethendarstellung ergeben, sondern nur auf einige markante Vorgänge eingegangen werden.

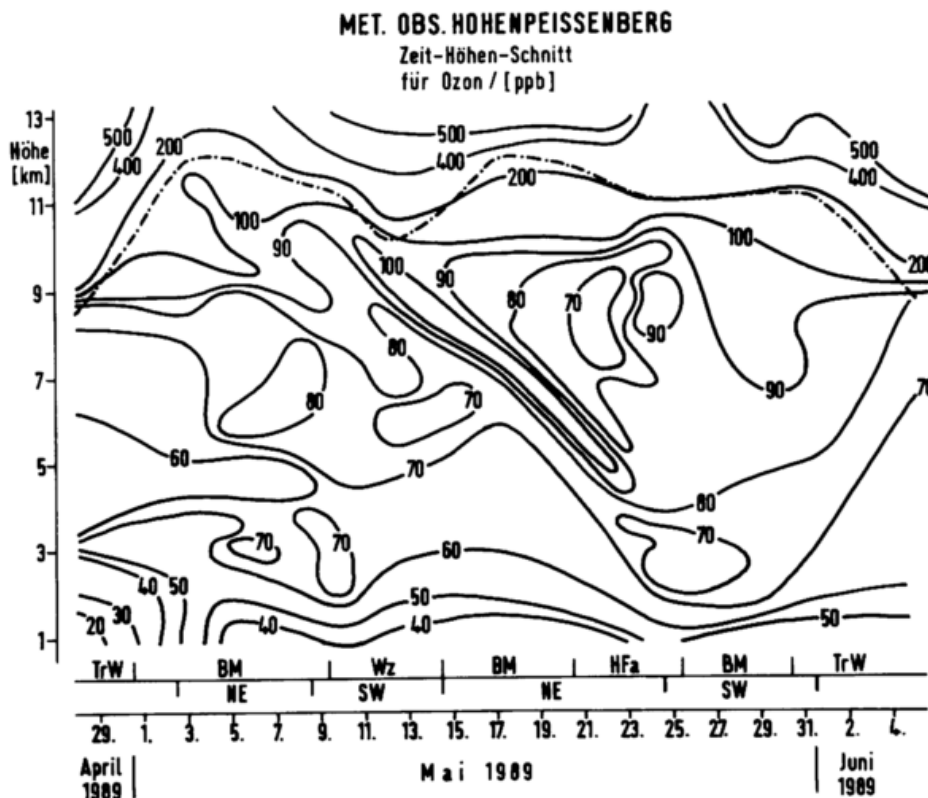


Abb.: 4.6.9 Zeit-Höhen-Schnitt der Ozonkonzentration für Mai 1989. An der Abszisse sind die in diesem Zeitraum herrschenden Großwetterlagen und deren Dauer sowie die Zeiträume mit vorwiegendem Nordost- bzw. Südwestwind am Hohenpeißenberg angegeben. Die strichpunktierte Linie bezeichnet die Lage der Tropopause.

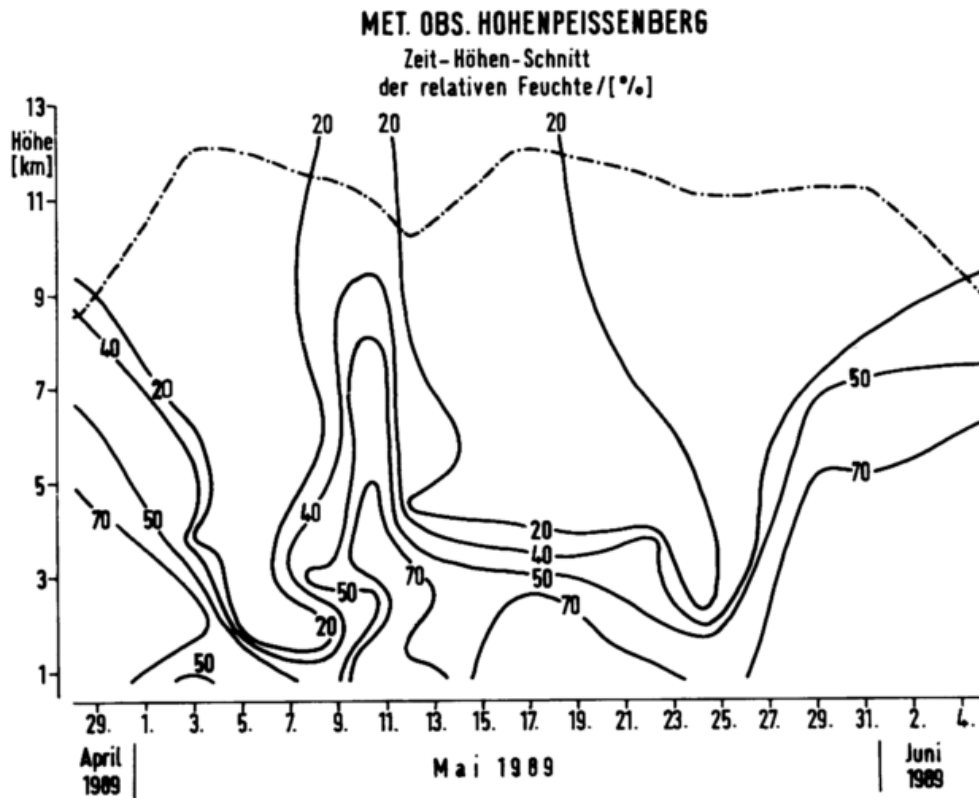


Abb.: 4.6.10 Zeit-Höhen-Schnitt der relativen Feuchte für Mai 1989.
Die strichpunktierte Linie bezeichnet die Lage der Tropopause.

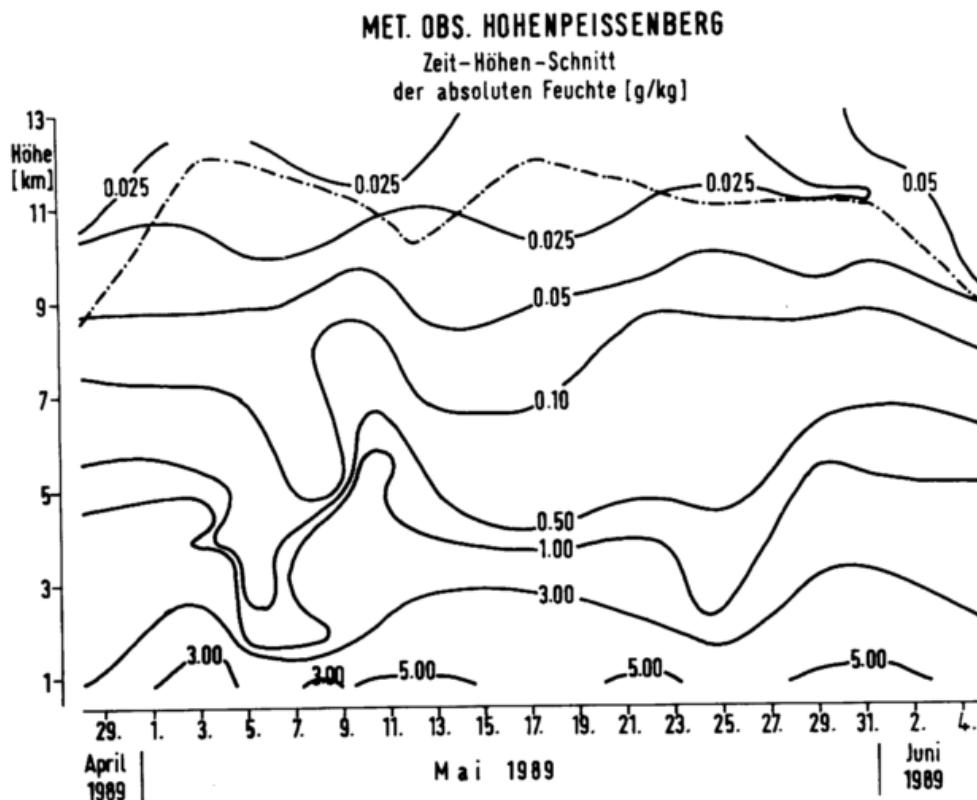


Abb.: 4.6.11 Wie Abb. 4.6.10, absolute Feuchte

Ende April war kalte Luft mit tiefliegender Tropopause nach Mitteleuropa vorgedrungen. Die nachfolgende Großwetterlage Hochdruckbrücke Mitteleuropa (BM) brachte wärmere Luft, was zu einer Hebung der Tropopause auf etwa 12 km Höhe führte. Am 6. Mai überquerte dann eine Kaltfront Hohenpeißenberg. Absinkvorgänge, die bereits mit Beginn dieser Großwetterlage in der oberen Troposphäre begannen, setzten sich jetzt nach unten durch (siehe hierzu die Höhen-Zeit-Schnitte der relativen, Abb. 4.6.10, und der absoluten Feuchte, Abb. 4.6.11). Damit gelangte ozonreichere Luft nach unten, die sich bis etwa 7 km Höhe nachweisen läßt. Anschließend setzte eine zyklonale Westlage ein, die zu Hebungsvorgängen führte und vor allem die relative Feuchte ansteigen ließ, die Ozonkonzentration in der mittleren und oberen Troposphäre ging etwas zurück. Am 12. Mai zog wiederum eine Kaltfront über Hohenpeißenberg hinweg, nachfolgend sank die Troposphäre auf etwa 10 km ab, und offensichtlich gelangte ozonreicherer Luft in die obere Troposphäre. Die Trajektorienanalyse in der unteren Troposphäre (950, 900, 700 hPa) zeigt eine Zufuhr von frischer Atlantikluft, die um ein Tief über den Britischen Inseln über Frankreich hinweg nach Bayern strömte. In Bodennähe herrschte SW-Wind, und ein Zusammenhang mit den Vorgängen in der oberen Troposphäre ist nicht zu erkennen. Nachfolgend setzte sich wieder die Großwetterlage Hochdruckbrücke Mitteleuropa (BM) und damit Absinken durch (siehe Abb. 4.6.10). Die in die obere Troposphäre gelangte ozonreiche Luft (mehr als 100 ppb) sank im Laufe der nächsten Tage (bis zum 25. Mai) bis etwa 4 km Höhe ab. Gleichzeitig geht die Ozonkonzentration in der oberen Troposphäre allmählich wieder zurück. In der unteren Troposphäre bis 3 km Höhe zeigen die Trajektorienanalysen, daß Luft vom Balkan nach Süddeutschland geführt wurde. In Bodennähe kam der Wind aus NE, und die hohen Ozonwerte wurden offensichtlich durch photochemische Vorgänge im Münchener Ballungsgebiet und/oder vor Ort hervorgerufen.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die sehr hohen bodennahen Ozonkonzentrationen im Mai 1989 in der unteren Troposphäre (oberhalb der Grundschicht) nicht vorhanden sind. Zwar ist ein markantes Absinken hochtroposphärisch/stratosphärischer Luft um die Monatsmitte nachweisbar, doch gelangte diese Luft nur bis etwa 4 km Höhe. Die hohen Ozonwerte im Mai 1989 können also nicht durch ein Vordringen stratosphärischer Luft bis zum Boden erklärt werden.

4.7. Vergleich zwischen Lichtenau, Hohenpeißenberg und Laber

Wie bereits oben erwähnt, werden vom Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg temporär zwei Außenstationen zur Messung des bodennahen Ozons unterhalten. Diese sind auf dem Laber (1684 m) im Ammergebirge bei Oberammergau und in der Lichtenau (610 m) am Fuße des Hohenpeißenbergs gelegen. Alle drei Meßstationen sind durch Stadtferne charakterisiert. Die Messungen in der Lichtenau wurden erst Anfang 1989 aufgenommen. Eine erste klimatologische Bewertung kann schon vorgenommen werden.

Im Vergleich der verschiedenen Höhenlagen ergeben sich zwei Merkmale:

1. Die Amplitude ist in der Lichtenau wesentlich größer als am Hohenpeißenberg oder am Laber.
2. Das tägliche Minimum tritt zuerst in der Lichtenau auf, später am Hohenpeißenberg und zuletzt am Laber.

Die Abbildungen 4.7.1, 4.7.2 und 4.7.3 zeigen die mittleren Tagesgänge in der Lichtenau, am Hohenpeißenberg und am Laber für Frühjahr, Sommer und Herbst. Grundlage bilden die Messungen von 1989 und 90. Da die Meßdichte durch Geräteausfall an den abgelegenen Stationen Lichtenau und Laber im Winter zu gering war, wurde auf die Darstellung eines mittleren Tagesgangs für den Winter verzichtet. In der Lichtenau sind in den drei Jahreszeiten ausgeprägte Tagesgänge vorhanden. Sie sind dadurch charakterisiert, daß nach dem Minimum um 6 bzw. 7 MEZ mit 19.2, 15.9, und 8.0 ppb entsprechend für Frühjahr, Sommer und Herbst ein Anstieg bis um 15 -16 MEZ erfolgt. Die Maxima erreichen entsprechend Werte von 43.1, 45.0 und 20.9 ppb. Im weiteren Tagesverlauf setzen sich dann die Abbauprozesse durch. Die Ozonkonzentration nimmt stetig bis zum frühen Morgen ab. Im Frühjahr und Sommer sind etwa gleich hohe Ozonkonzentrationen vorhanden, während im Herbst die Ozonkonzentration weniger als die Hälfte beträgt. Im Winter sind im allgemeinen mit weniger als 20 ppb in der Lichtenau noch geringere Ozonkonzentrationen vorhanden.

Am Hohenpeißenberg (Abb. 4.7.2) sind im Frühjahr und Sommer die Tagesgänge ebenfalls deutlich ausgeprägt. Die Tagesamplituden betragen 10,2 bzw. 13,4 ppb. Die Minima werden mit 40,0 und 46,7 ppb um 9 MEZ erreicht. Das Maximum tritt im Frühjahr mit 50,1 ppb um 16 MEZ, im Sommer mit 60,1 ppb um 18 MEZ ein. Im Herbst ist der Tagesgang nur noch schwach ausgeprägt. Das breite Mini-

mum mit 31,0 ppb wird in den Vormittagsstunden erreicht, das Maximum mit 35,5 schon um 15 MEZ.

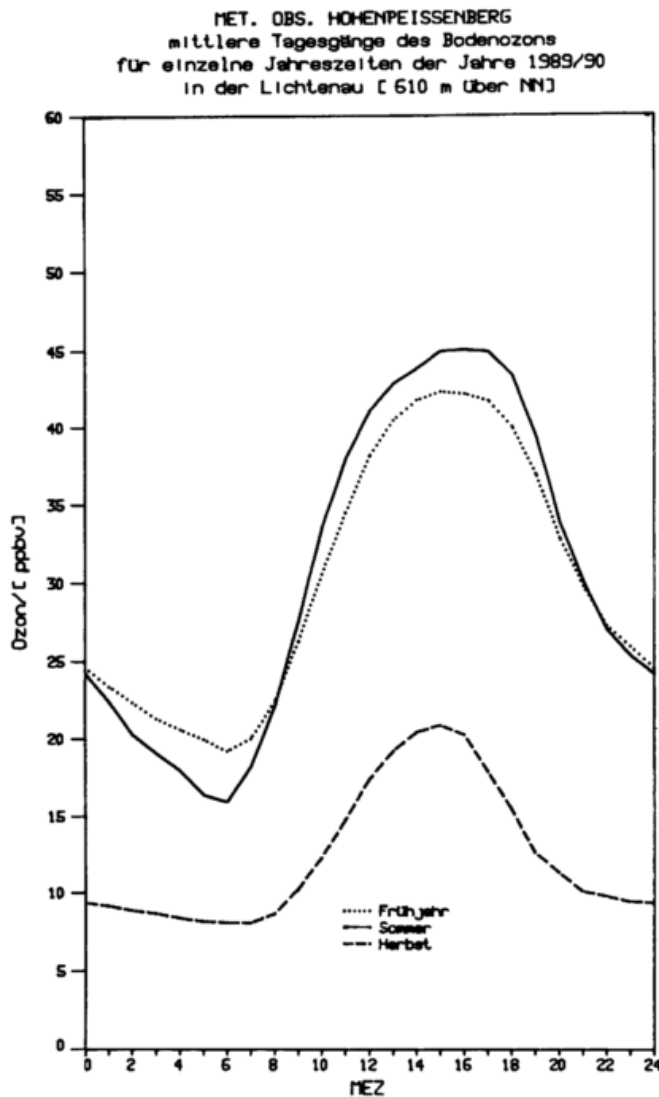


Abb.: 4.7.1
Mittlere Tagesgänge des Bodenozone für Frühjahr, Sommer und Herbst für den Zeitraum 1989 bis 1990 in der Lichtenau.

Am Laber (Abb. 4.7.3) sind die mittleren Ozonkonzentrationen denen am Hohenpeißenberg ähnlich, im Herbst liegt das Tagesmittel von 35 ppb etwas höher. Mit einer Amplitude von 2 ppb ist der Tagesgang allerdings nur schwach angedeutet, auch im Frühjahr und Sommer ist er entsprechend der Höhenlage geringer als am Hohenpeißenberg. Die Minima befinden sich um 11 bzw. 13 MEZ. Die Eintrittszeiten der Maxima sind uneinheitlich: 18, 21 und 20 MEZ entsprechend für Frühjahr, Sommer und Herbst. Mit einer Amplitude von 8 ppb ist der Tagesgang im Sommer noch am stärksten ausgeprägt, er deutet die Auswirkung des Berg- und Talwindsystems an, wie sie am Hohenpeißenberg im Sommer bei Wind aus südlichen Richtungen gefunden wurde (siehe Kap. 4.3.).

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 mittlere Tagesgänge des Bodenozone
 für einzelne Jahreszeiten der Jahre 1989/90
 am Hohenpeissenberg (975 m über NN)

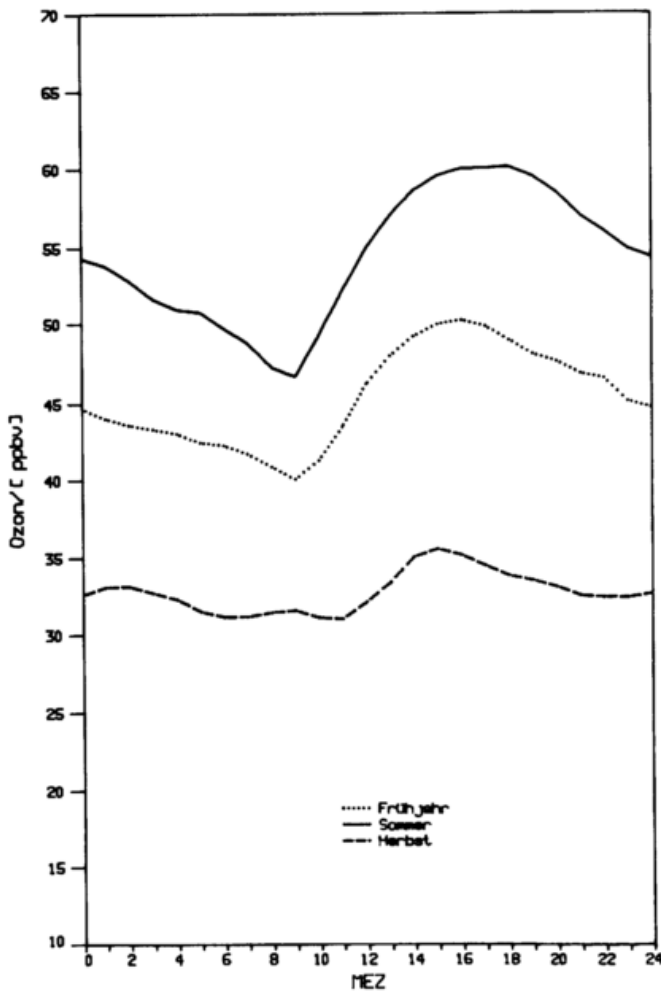


Abb.: 4.7.2
 Wie Abb. 4.7.1, Hohenpeissenberg.

Wie sich der Witterungsverlauf auf die Ozonkonzentration an den drei Stationen auswirkt, soll an drei Beispielen gezeigt werden (siehe auch WEGE und VANDER-SEE, 1991 b). Abbildung 4.7.4 zeigt den mittleren Tagesgang an allen drei Stationen für April '89. Nach der Großwetterlagenstatistik war der April '89 zyklonal bestimmt. An 20 Tagen traten zyklonale Wetterlagen auf: Tief Mitteleuropa (TM), Trog Westeuropa (TrW), an 10 Tagen Hoch Nordmeer - Fennoskandien, zyklonal (HNFz) bzw. Hoch Fennoskandien, zyklonal (HFz). Bei diesen Großwetterlagen lag das Hoch sehr weit im Norden, und Mitteleuropa war zyklonal beeinflusst. Insgesamt wurde die Ozonkonzentration in allen drei Höhenlagen durch die tags wie nachts etwa gleiche Durchmischung dominiert, so daß, verglichen mit Mai '89 (s. u.), der tägliche Gang verhältnismäßig gering ist.

MET. OBS. HOHENPEISSENBERG
 mittlere Tagesgänge des Bodenozone
 für einzelne Jahreszeiten der Jahre 1989/90
 am Laber (1684 m über NN)

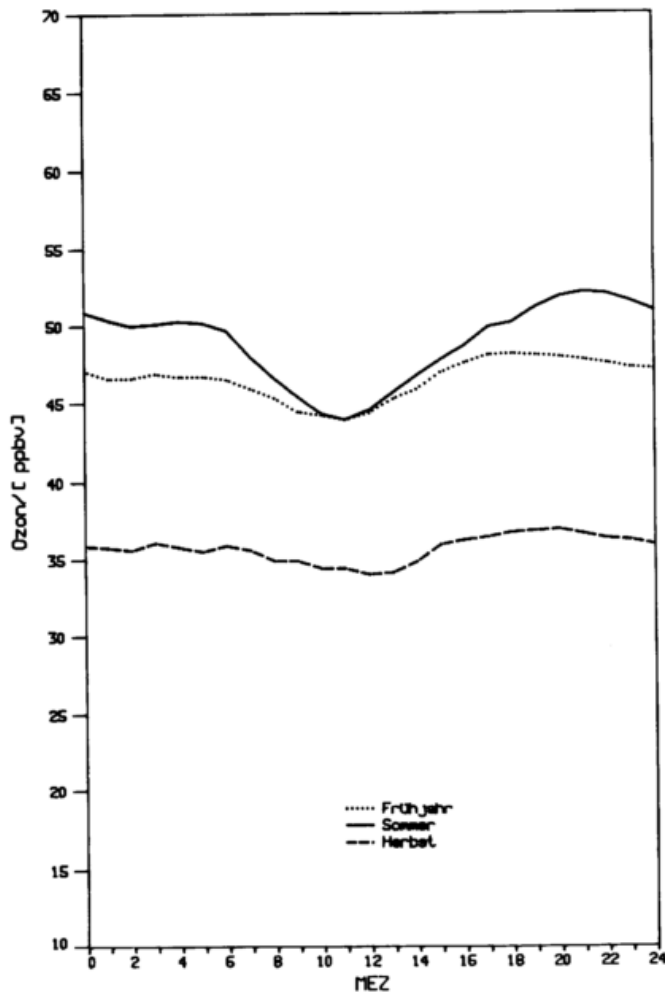


Abb.: 4.7.3
 Wie Abb. 4.7.1, Laber

Der positive Vertikalgradient, der zwischen den Bergstationen vorhanden ist, bleibt während des gesamten Tagesverlaufs erhalten. Abbildung 4.7.5 zeigt den mittleren Tagesgang für den Mai '89, jetzt unabhängig von der Windrichtung. Dieser Monat war im Gegensatz zum vorangegangenen antizyklonal geprägt (siehe Kap. 4.6.). Die Amplituden an allen drei Stationen sind im Vergleich zum Vormonat um den Faktor 2 größer. Der Vertikalgradient ändert sich im Tagesverlauf im Höhenbereich zwischen Laber und Hohenpeißenberg, vermutlich durch photochemische Ozonproduktion im Höhenbereich um den Hohenpeißenberg bedingt. Zu ausführlicheren Darlegungen bezüglich Mai '89 siehe Kap. 4.6. Abbildung 4.7.6 zeigt den mittleren Tagesgang für Oktober '89. In der fortgeschrittenen Jahreszeit ist die Einstrahlung geringer. Der photochemische Einfluß auf die Ozonkonzentration ist damit praktisch nicht mehr vorhanden. Am Laber sind nun die Ozonwerte geringer als am Hohenpeißenberg. Der Tagesgang am Laber ist ver-

schwunden, am Hohenpeißenberg ist er nur noch schwach ausgeprägt. Die Ozonwerte in der Lichtenau sind erheblich niedriger. An 20 Tagen sind antizyklonale Wetterlagen aufgetreten: Hoch Britische Inseln (HB), Westlage antizyklonal (Wa) und Südwestlage, antizyklonal (SWa). Damit verbunden waren häufige Inversionen zwischen der Ebene und dem Berg, wobei unterhalb der Inversion Ozon abgebaut wurde. Die mittlere Tagesamplitude beträgt in der Ebene nur noch reichlich 10 ppb gegenüber 37 ppb im Mai '89. Der nächtliche Ozonabbau läßt das Minimum in der Lichtenau auf etwa 3 ppb absinken.

Mittl. Tagesgang bodennahes Ozon, Monat April 1989

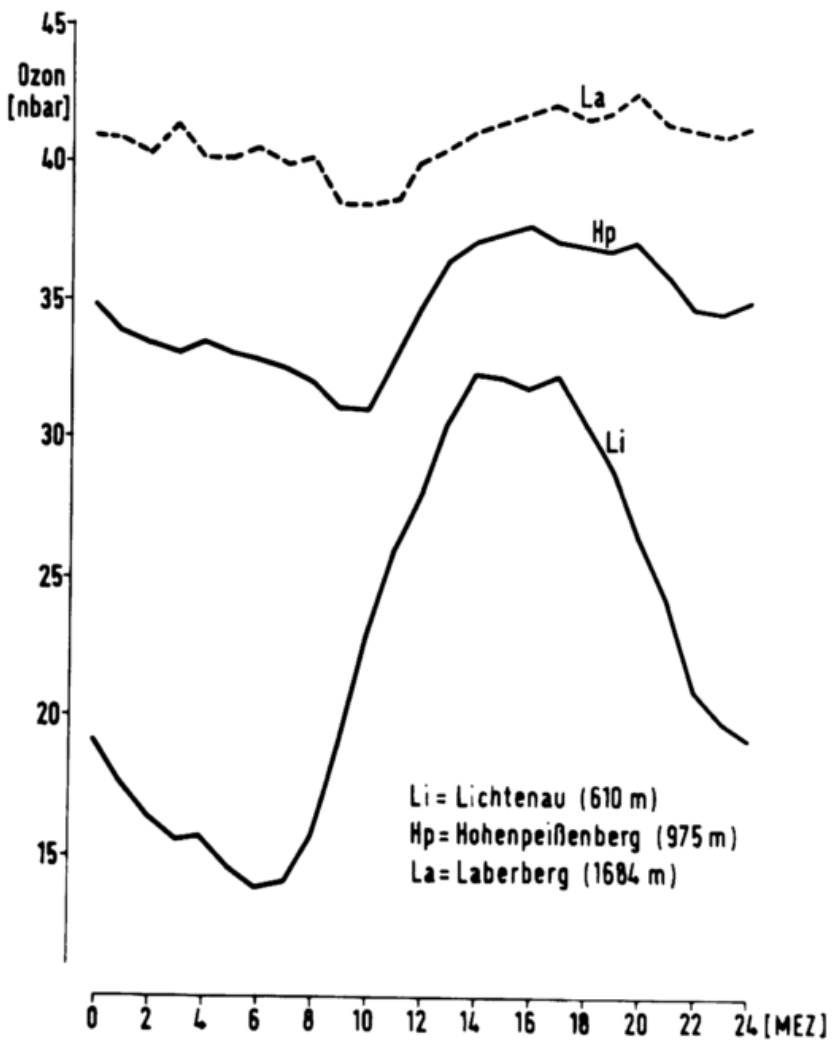


Abb.: 4.7.4 Tagesgänge des Bodenzons im April 1989 für die Lichtenau, Hohenpeißenberg und Laber.

Mittl. Tagesgang bodennahes Ozon, Monat Mai 1989

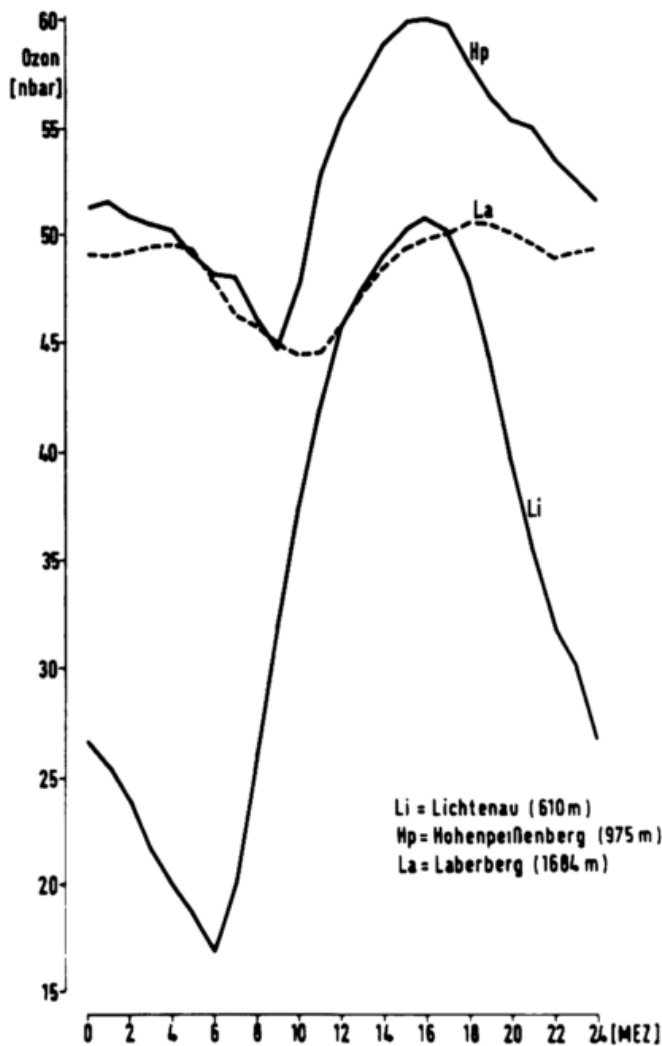


Abb.: 4.7.5
Wie Abb. 4.7.4, Mai 1989.

Interessant in diesem Zusammenhang sind die Messungen, die von EHMERT und EHMERT (1949/50) in der zweiten Hälfte des September 1940 in der Nähe von Friedrichshafen und auf dem Pfänder durchgeführt wurden. Die Ergebnisse weisen darauf hin, daß die Ozonkonzentration in der damaligen Zeit bedeutend geringer war: Das Tagesmittel auf dem Pfänder betrug seinerzeit etwa 15 ppb, in der Nähe Friedrichshafens etwa 10 ppb. Zum anderen zeigen die Messungen, daß auf dem Pfänder im Gegensatz zu Friedrichshafen kein Tagesgang vorhanden war. Während in Friedrichshafen das Maximum der Ozonkonzentration zwischen 13 und 15 Uhr erreicht und nachts das Ozon zur Gänze abgebaut wurde, zeigt der Verlauf der Ozonkonzentration auf dem Pfänder eine Variabilität, die nicht an Tageszeiten gebunden ist.

Mittl. Tagesgang bodennahes Ozon, Monat Oktober 1989

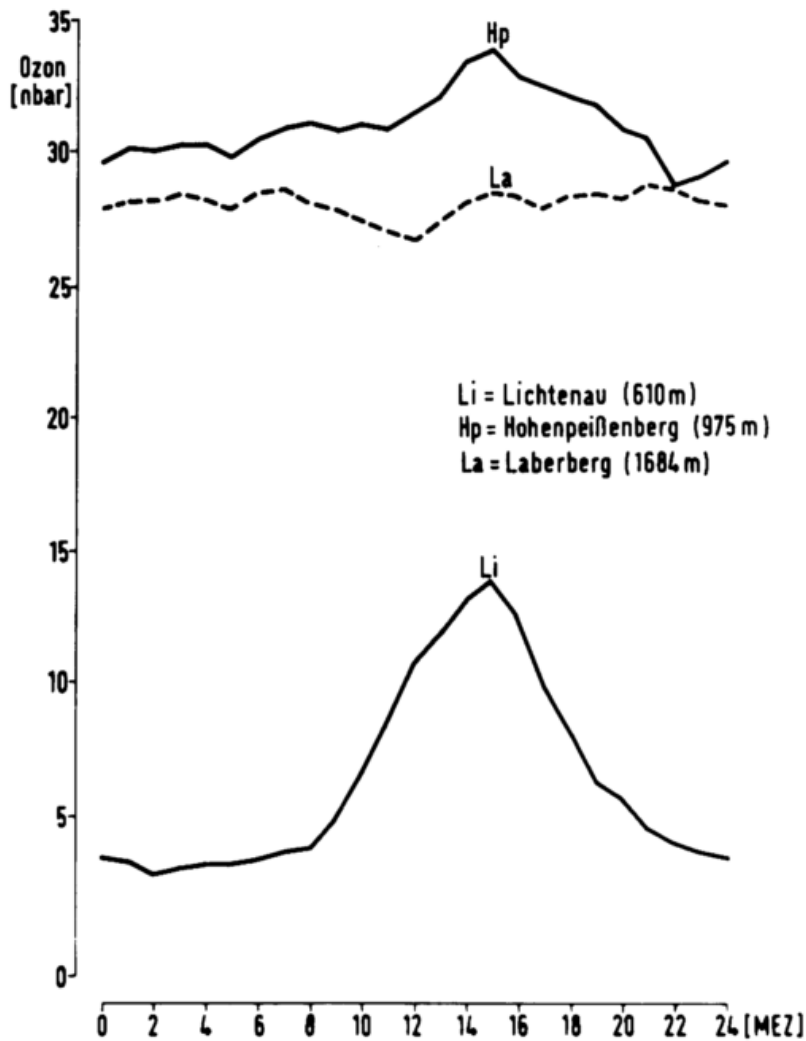


Abb.: 4.7.6 Wie Abb. 4.7.4, Oktober 1989.

Den Tagesgang des bodennahen Ozons bei Friedrichshafen erklären EHMERT und EHMERT (1949/50) mit der Ozonerstörung durch Deposition am Boden, welche nachts in stagnierender oder langsam über den Boden streichender Luft örtlich das Ozon völlig abbauen könne. Sobald durch Thermik oder Gradientwind ein größerer Luftraum durchmischt wird, sei der Einfluß des Bodens um so weniger spürbar, je höher dieser durchmischte Luftraum sei. Die Ausbildung stagnierender Verhältnisse am Abend und die Aufhebung dieses Zustandes mit der am Morgen einsetzenden Konvektion verursachen so den beobachteten Tagesgang. Einen Einfluß auf den Tagesgang in Bodennähe durch photochemische Prozesse schlossen sie seinerzeit aus.

5. Vergleichsaufstiege mit der "Bonner" Chemilumineszenzsonde

Am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg wurde die "Bonner" Sonde insgesamt 28mal zur Erprobung geflogen. Diese Sonde wurde entwickelt, um im Höhenbereich von 40 km Ozon messen zu können, da dort die größten Ozonänderungen erwartet werden (siehe Kap. 2.1.). Die Brewer/Mast-Sonde kann wegen Erreichen des Tripelpunktes nur bis in Höhen von 35 km messen, die ECC-Sonde, die zwar noch im Höhenbereich um 40 km messen kann, erhält dort aber bis zu 10 % zu wenig Ozon (SPEUSER und SCHURATH, 1991). Daher besteht der Bedarf an einer Sonde, die in der oberen Stratosphäre operationell Ozon zuverlässig erfassen kann.

Die "Bonner" Sonde mißt die Oberflächen-Chemilumineszenz-Intensität, die bei der Reaktion von Ozon mit Coumarin 47 auf Silicagel emittiert wird. Nähere Angaben zum Meßprinzip, den Querempfindlichkeiten, Temperatur- und Feuchteabhängigkeiten geben SCHURATH et al. (1991) und SPEUSER und SCHURATH (1991). Die Sonde ist aufgrund der geringen Ansprechzeit in der Lage, beim Aufstieg und Abstieg Feinstrukturen des Ozonprofils zu messen, die mit der Brewer/Mast-Sonde und auch dem Lidar nicht zu erfassen sind.

Durch den Vergleich mit dem Lidar konnte die im Labor gemessene Druckabhängigkeit zu niedrigen Drucken, d. h. auf die großen Einsatzhöhen der "Bonner" Sonde, extrapoliert werden. Die Vergleichsaufstiege zeigen, daß mit der "Bonner" Sonde ein Ozonmeßsystem zur Verfügung steht, das seine Praxistauglichkeit unter Beweis gestellt hat. Die einzelnen Aufstiege sind von SPEUSER und SCHURATH (1991) ausführlich beschrieben.

Inzwischen wird die Sonde auch industriell gefertigt, wobei noch gewisse Verbesserungen angebracht wurden. Im Dezember 1991 wurde am Hohenpeißenberg in einer kleinen Meßkampagne die "Industrie-Version" geflogen und mit den Lidarmessungen verglichen. Abbildung 5.1 zeigt die Sondierung der "Bonner" Sonde vom 12.12.91, 12.38 UTC, und die Lidarmessung von der Nacht vom 11. auf 12.12.91. Durch die hohe Aerosolfracht unterhalb und im Bereich des Ozonmaximums (Pinatubowolke) ist die Lidarmessung wegen der noch unzureichenden Aerosolkorrektur dort mit einer größeren Ungenauigkeit behaftet. Oberhalb des Ozonmaximums ist eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Lidar und "Bonner" Sonde vorhanden. Darüberhinaus erkennt man, daß die "Bonner" Sonde ein feiner

aufgelöstes Profil zu liefern in der Lage ist.

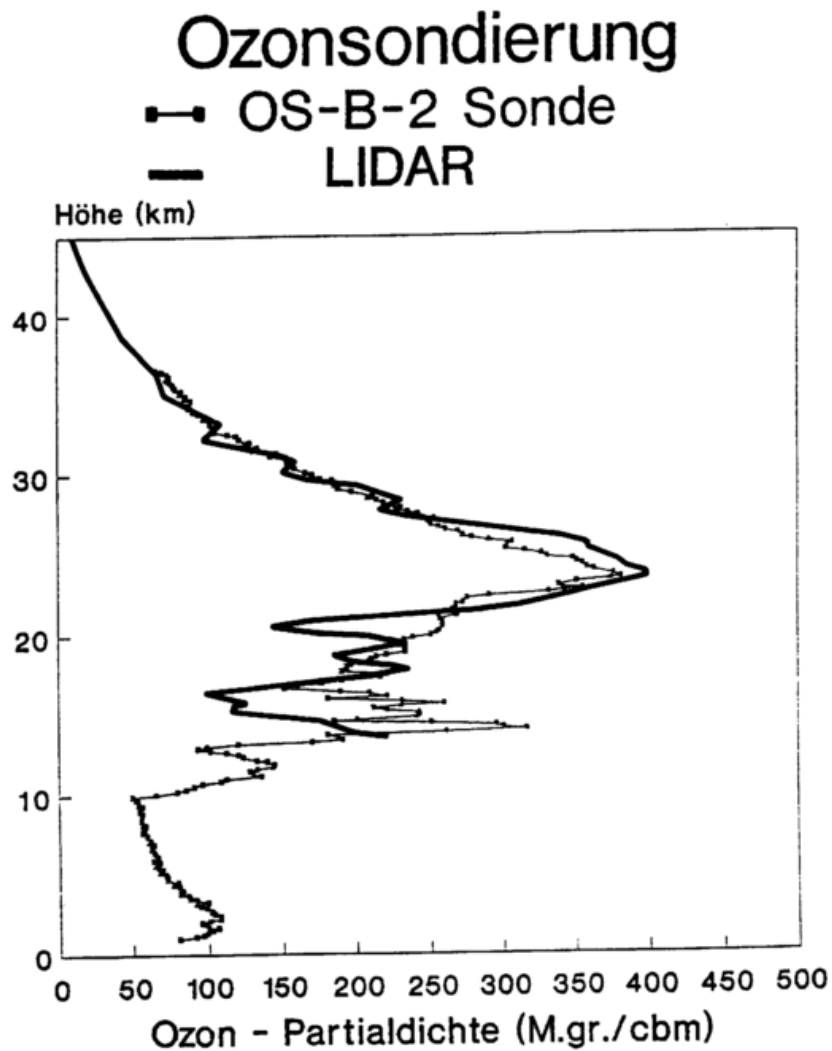


Abb.: 5.1 Ozonprofil am 12. Dezember 1991, gemessen mit der Industriever-
sion der "Bonner" Sonde, und für die Nacht vom 11. auf den 12.
Dezember 1990 gemessen, mit dem Lidar.

Die Vergleichsmessung hat gezeigt, daß

- 1) die "Bonner" Sonde in ihrer Industriever-
sion operationell einsetzbar ist,
- 2) die Sonde sich einfach handhaben läßt,
- 3) der Vergleich mit dem Lidar übereinstimmende Ozon-
daten bis in große Höhen
(37 km) liefert,

und somit die in sie gesetzten Erwartungen gut erfüllt.

6. Abschlußbetrachtung

Die Auswertungen der Hohenpeißenberger Ozonreihen zeigen u. a. die unterschiedlichen Trends in der Strato- und Troposphäre, wobei der Abbau in der Stratosphäre offensichtlich vor allem durch die Einbringung von Chlorfluormethan in die Atmosphäre verursacht wird. Die Ozonzunahme in der Troposphäre wird durch vermehrte photochemische Produktion hervorgerufen, wobei die Vorläufersubstanzen durch menschliche Aktivitäten vermehrt werden. Das Wirken von photochemischen Prozessen wird durch den Zusammenhang von Globalstrahlung und Ozon belegt. Auch die Abhängigkeit der Ozonkonzentration von der Windrichtung weist zum Teil auf anthropogene Ursachen hin. Es besteht wohl kein Zweifel mehr, daß der Ozonhaushalt der Atmosphäre durch den Menschen beeinflusst wird. Dies läßt Einwirkungen auf das Klima, aber auch auf Pflanzen, Mensch und Tier befürchten, da Ozon toxisch und die UV-B-Strahlung von der Ozonsäulendichte abhängig ist.

7. Danksagung

Die Autoren sprechen an dieser Stelle dem gesamten technischen Personal des Observatoriums ihre Anerkennung aus. Es hat mit Engagement und großer Sorgfalt die Messungen durchgeführt und damit eigentlich das Projekt erst ermöglicht. Die Herren Dipl.-Ing. Schönenborn und Dipl.-Met. Köhler haben stets mit Rat und Tat bei auftretenden Problemen beigetragen. Einige Auswertungen wurden von Herrn Dipl.-Met. Hartmannsgruber beigetragen. Frau Schießl schrieb das Manuskript, Herr Steiner fertigte viele Zeichnungen. Ihnen allen sei herzlich gedankt.

Der Bundesminister für Forschung und Technologie (BMFT) hat das Projekt über die Projektträgerschaften beim Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit (GSF), München, gefördert.

Beiden Institutionen gilt unser Dank.

8. Literatur

- Angell, J. K., J. Korshover, Quasi-biennial Variations in Temperature, Total Ozone, and Tropopause Height, J. Atmos. Sci., 21, 479-492, 1964
- Angle, R. P., H. S. Sandhu, Urban and Rural Ozone Concentrations in Alberta, Canada, Atmos. Environ., 23, 215-221, 1989
- Attmannspacher, W., Extreme der horizontalen Windgeschwindigkeit und Vertikalwind, Meteorol. Rdsch., 12, 112-117, 1959
- Attmannspacher, W., Ein einfaches, naßchemisches Gerät mit geringer Trägheit zur Messung des bodennahen Ozons in der Atmosphäre, Meteorol. Rdsch., 24, 183 - 188, 1971
- Attmannspacher, W., R. Hartmannsgruber, 6 Jahre (1967-1972) Ozonsondierungen am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg, ein Beitrag zur Klimatologie der freien Atmosphäre, Ber. Deutschen Wetterdienstes, Nr.137, 1975
- Attmannspacher, W., R. Hartmannsgruber, B. Ziegler, Normales Verhalten des bodennahen Ozons am Hohenpeißenberg und kurzzeitiger Einbruch anthropogen verursachten Ozons, in: Photochemische Luftverunreinigungen in der Bundesrepublik Deutschland, Tagung des Umweltbundesamtes am 29. Oktober 1979 im VDI-Haus, Duesseldorf, 229-238, 1979
- Attmannspacher, W., R. Aniol, I. Buschner, M. Dieringer, R. Hartmannsgruber, P. Lang, J. Mois, J. Riedl, B. Ziegler, 200 Jahre meteorologische Beobachtungen auf dem Hohenpeißenberg 1781-1980, Ber. Deutsch. Wetterdienst, Nr.155, 1981
- Attmannspacher, W., R. Hartmannsgruber, Intercomparison of Instruments Measuring Ozone near the Ground at the Hohenpeissenberg Observatory, 1. Oct. 1978 - 30. Apr. 1979, Ber. Deutsch. Wetterdienste Nr.161, 1-14, 1982
- Attmannspacher, W., R. Hartmannsgruber, P. Lang, Langzeittendenzen des Ozons aufgrund der 1967 begonnenen Ozonmeßreihen am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg, Meteorol. Rdsch., 37, 193-199, 1984

- Auer, R., Über den täglichen Gang des Ozongehalts der bodennahen Luft, Gerlands Beiträge zur Geophysik, 54, 137-145, 1939
- Becker, K. H., U. Schurath, Der Einfluß von Stickstoffoxiden auf atmosphärische Oxidationsprozesse, Staub-Reinhaltung der Luft, 35, 156-161, 1975
- Blackman, R. B., J. W. Tukey, The Measurement of Power Spectra, Dover Publications, New York, 1958
- Bloomfield, P., M. L. Thompson, S. Zeger, A Statistical Analysis of Umkehr Measurements of 32-46 km Ozone, J. Appl. Meteorol., 21, 1828-1837, 1982
- Bojkov, R. D., Ozone Changes at the Surface and in the Free Troposphere, in: Tropospheric Ozone, Hrsg.: Isaksen, I. S. A., pp. 83-96, D. Reidel Publishing Company, 1988
- Bojkov, R. D., L. Bishop, W. J. Hill, G. C. Reinsel, G. C. Tiao, A Statistical Trend Analysis of Revised Dobson Total Ozone Data over the Northern Hemisphere, J. Geophys. Res., 95, 9785-9807, 1990
- Broder, B., H. A. Gygax, The Influence of Locally Induced Wind Systems on the Effectiveness of Nocturnal Dry Deposition of Ozone, Atmos. Environ., 19, 1627-1637, 1985
- Brewer, A. W., I. R. Milford, The Oxford-Kew Ozone Sonde, Proc. Roy. Soc., Ser. A, Vol. 256, 470 - 495, 1960
- Brühl, C., P. I. Crutzen, Scenarios of possible changes in atmospheric temperatures and ozone concentrations due to man's activities, estimated with one-dimensional coupled photochemical climate model, Climate Dynamics, 2, 173 - 203, 1988
- Bryson, R. A., T. B. Starr, Indications of Chandler Compensation in the Atmosphere, Center of Clim. Res., Inst. Environ. Studies, Univ. Wisconsin 1976
- Cauer, H., Entnahmeapparatur für chemisch-klimatologische und technische Luftuntersuchungen, Z. analyt. Chemie, 103, 166-180, 1935

- Chatfield, R., H. Harrison, Tropospheric Ozone, 2. Variations along a Meridional Band, *J. Geophys. Res.*, 82, 5969-9576, 1977
- Chung, Y. S., T. Dann, Observations of stratospheric ozone at the ground level in Regina, Canada, *Atmos. Environ.*, 19, 157 - 162, 1985
- Cicerone, R. J., R. S. Stolarski, S. Walters, Stratospheric Ozone Destruction by Man-Made CFM's, *Science*, 185, 1165-1167, 1974
- Claude, H. J., R. Hartmannsgruber, U. Köhler, Measurement of Atmospheric Ozone Profiles Using the Brewer/Mast Sonde. Preparation, Procedure, Evaluation, WMO-Report No. 17, 1987
- Claude, H. J., W. Vandersee, On Two Years of Regular Ozone Monitoring by DIAL at Hohenpeissenberg, in: Fifteenth International Laser Radar Conference, Abstracts of Papers, Part I, pp. 206-209, Institute of Atmospheric Optics 1990
- Cox, R. A., A. E. J. Eggleton, R. G. Derwent, J. E. Lovelock, D. H. Pack, Long-Range Transport of Photochemical Ozone in Northwestern Europe, *Nature*, 255, 118-121, 1975
- Crutzen, J. P., The Influence of Nitrogen Oxides on the Atmospheric Ozone Content, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 96, 320-325, 1970
- DeLuisi, J. J., D. U. Longenecker, P. K. Bhartia, S. Taylor, C. L. Mateer, Ozone Profiles by Umkehr, SBUV, and Ozone-Sonde: A Comparison Including the Inversion Algorithms for Umkehr and SBUV, in: *Ozone in the Atmosphere*, Hsrg. Bojkov, R. D., P. Fabian, pp. 206-210, Deepak Publishing 1989
- Danielsen, E., F., R. Bleck, J. Shedlovsky, A. Wartburg, P. Haagenson, W. Pollock, Observed Distribution of Radioactivity, Ozone, and Potential Vorticity Associated with Tropopause Folding, *J. Geophys. Res.*, 75, 2353 - 2361, 1970
- Danielsen, E., F., Stratospheric source for unexpectedly large values of ozone measured over the Pacific ocean during Crameday, August 1977, *J. Geophys.*

Res., 85, 401 - 411, 1980

11. Deutscher Bundestag, Enquete-Kommission "Vorsorge zum Schutz der Erdatmosphäre". Eine internationale Herausforderung, Hrsg. Dt. Bundestag, Referat Öffentlichkeitsarbeit, Bonner Universitäts-Buchdruckerei, Bonn 1988

Dietze, G., Wirkt die freie Troposphäre als Ozonspeicher?, Meteorol Rdsch., 43, 148-156, 1991

Dignon, J., S. Hameed, A Model Investigation of the Impact of Increases in Anthropogenic NO_x Emissions Between 1967 and 1980 on Tropospheric Ozone, J. Atmos. Chem., 3, 491-506, 1985

Dütsch, H. U., J. Staehelin, How much Information on Anthropogenic Influences on the Ozone Layer Can Be Obtained from a Set of One-Station Observations, in: Ozone in the Atmosphere, Hrsg. Bojkov, R. D., P. Fabian, pp 76-79, Deepak Publishing, 1989

DWD, Die Großwetterlagen Europas, Amtsblatt des DWD, 42, 1991

Ehmert, A., Über das troposphärische Ozon, Vorträge und Diskussionen anlässlich der Sondertagung "Ozon" am 17. und 18. IV. 1944 in Tharandt. Abdruck in: Ber. des Deutschen Wetterdienstes in der US-Zone, 2. Bd, 26-28, 1949/50

Ehmert, A., H. Ehmert, Über den Tagesgang des bodennahen Ozons, Forschungs- und Erfahrungsberichte des Reichswetterdienstes Nr. 13, 1941. Abdruck in: Ber. des Deutschen Wetterdienstes in der US-Zone, 2. Bd., 58-62, 1949/50 b

Ehmert, A., Über den Ozongehalt der unteren Atmosphäre bei winterlichem Hochdruckwetter nach Messungen im Flugzeug, Forschungs- und Erfahrungsberichte des Reichswetterdienstes Nr. 13, 1941. Abdruck in: Ber. des Deutschen Wetterdienstes in der US-Zone, 2. Bd, 63-66, 1949/50 a

Ehmert, A., Ein einfaches Verfahren zur absoluten Messung des Ozongehaltes der Luft, Meteorol. Rdsch., 4, 64-68, 1951

Entzian, G., K. H. Grasnick, U. Feister, K. Wege, U. Köhler, Ozone Miniholes above Central Europe Observed in Total Ozone and Ozone Profiles. XX. General

- Assembly IUGG, Symposium GAM 2.1, M 10.4, Wien, 1991
- Fabian, P., P. G. Pruchniewicz, Meridional Distribution of Ozone in the Troposphere and its Seasonal Variations, *J. Geophys. Res.*, 82, 2063-2073, 1977
- Faust, H., Die Nullschicht, der Sitz des troposphärischen Windmaximums, *Meteorol. Rdsch.*, 6, 6-15, 1953
- Feister, U., W. Warmbt, Long-Term Measurements of Surface Ozone in the German Democratic Republic, *J. Atmos. Chem.*, 5, 1-21, 1987
- Feister, U., K. Balzer, Surface ozone and meteorological predictors on a subregional scale, *Atmos. Environ.*, 25 A, 1781 - 1798, 1991
- Fett, W., Zum Nachweis des Stadteinflusses auf den Ozongehalt der Luft mittels seiner Windrichtungsabhängigkeit, *Schriftenreihe Ver. Was.-Boden-Lufthyg.*, Nr.33, 117-128, 1970
- Fricke, W., Die Bildung und Verteilung von anthropogenem Ozon in der unteren Troposphäre. *Ber. Inst. Met. Geophys. Univ. Frankfurt/M.* 44, 1980
- Fishman, J., P. J. Crutzen, The Origin of Ozone in the Troposphere, *Nature*, 274, 855-858, 1978
- Fishman, J., S. Solomon, P. J. Crutzen, Observational and Theoretical Evidence in Support of a Significant In-Situ Photochemical Source of Tropospheric Ozone, *Tellus*, 31, 432-446, 1979
- Fleer, H., Large-Scale Tropical Rainfall Anomalies, *Bonner Meteorol. Abh.*, Heft 26, Dümmler, Bonn 1981
- Girgzdiene, R., Surface Ozone Measurements in Lithuania, *Atmos. Environ.*, 25A, 1791-1794, 1991
- Harrison, H., Stratospheric Ozone with Added Water Vapor: Influence of High-Altitude Aircraft, *Science*, 170, 734-736, 1970
- Hartmannsgurber, R., Erste Messungen des bodennahen Ozons am Hohenpeißenberg, *Meteorol. Rdsch.*, 31, 24-25, 1978
- Hofmann, D. J., T. L. Deshler, A. Aïmedieu, W. A. Matthews, P. V. Johnston,

- Y. Kondo, W. R. Sheldon, G. J. Byrne, J. R. Benbrook, Stratospheric Clouds and Ozone Depletion in the Arctic during January 1989, *Nature*, 340, 117-121, 1989
- Janach, W. E., Surface Ozone: Trend Details, Seasonal Variations, and Interpretation, *J Geophys. Res.*, 94, 18289-18295, 1989
- Johnson, W. B., W. Viezze, Stratospheric ozone in the lower troposphere.-I. Presentation and interpretation of aircraft measurements, *Atmos. Environ.*, 15, 1309 - 1323, 1981
- Johnston, H., Reduction of Stratospheric Ozone by Nitrogen Oxide Catalysts from Supersonic Transport Exhaust, *Science*, 173, 517-522, 1971
- Kelly, N. A., G. T. Wolff, M. A. Ferman, Background pollutant measurements in air masses affecting the eastern half of the United States.-I. Air masses arriving from the Northwest. *Atmos. Environ.*, 16, 1077 - 1088, 1982
- Köhler, U., K. Wege, R. Hartmannsgruber, H. Claude, Vergleich und Bewertung von verschiedenen Geräten zur Messung des atmosphärischen Ozons zur Absicherung von Trendaussagen, *Ges. f. Strahlen- und Umweltforschung*, BPT-Bericht 1/88, 1988
- Khrgian, A. K., *The Physics of Atmospheric Ozone*, Keterpress, Jerusalem, 1975
- Lauscher, F., Aus der Frühzeit atmosphärischer Ozonforschung, *Zeitschr. f. Angew. Meteor.*, 35, 69-80, 1983
- Lauscher, F., Erkenntnisse über den Ozongehalt der bodennahen Luft aus Messungen in Wien seit 1853, Eigenverlag Prof. Dr. Friedrich Lauscher, Wien, 1988
- Liepert, B. G., Statistische Untersuchungen längerer Globalstrahlungszeitreihen von Deutschland, Diplomarbeit Ludwig-Maximilians-Universität München, 1991
- Linville, D. E., W. J. Hooker, B. Olson, Ozone in Michigan's Environment 1876-1880, *Mon. Weather Rev.*, 108, 1883-1891, 1980

- Liu, S. C., D. Kley, M. McFarland, J. D. Mahlman, H. Levy II, On the Origin of Tropospheric Ozone, *J. Geophys. Res.*,85, 7546-7552, 1980
- Liu, S. C., M. Trainer, F. C. Fehsenfeld, D. D. Parrish, E. J. Williams, D. W. Fahey, G. Huebler, P. C. Murphy, Ozone Production in the Rural Troposphere and Implications for Regional and Global Ozone Distributions, *J. Geophys. Res.*, 92, 4191 - 4207, 1987
- Logan, J. A., M. J. Prather, S. C. Wofsy, M. B. Mc Elroy, Tropospheric Chemistry: A Global Perspective, *J. Geophys. Res.*, 86, 7210 - 7254, 1981
- Logan, J. A., Tropospheric Ozone: Seasonal Behavior, Trends, and Anthropogenic Influence, *J. Geophys. Res.*,90, 10463-10482, 1985
- Logan, J. A., Ozon in Rural Areas of the United States, *J. Geophys. Res.*,94, 8511-8532, 1989
- Low, P. S., T. D. Davies, P. M. Kelly, G. Farmer, Trends in Surface Ozone at Hohenpeissenberg and Arkona, *J. Geophys. Res.*,95, 22441-22453, 1990
- Low, P. S., T. D. Davies, P. H. Kelly, R. Reiter, Uncertainties in Surface Ozone Trend at Hohenpeissenberg, *Atmos. Environ.*,25A, 511-515, 1991
- Mohnen, V. A., A. Hogan, P. Coffey, Ozone measurements in rural areas, *J. Geophys. Res.*, 82, 5889 - 5895, 1977
- Molina, M. J., F. S. Rowland, Stratospheric Sink for CFM's: Chlorine Atom-Catalyzed Destruction of Ozone, *Nature*,249, 810-812, 1974
- Paffrath, D., W. Peters, Betrachtungen der Ozonvertikalverteilung in Zusammenhang mit den neuartigen Waldschäden, *Forstwirtschaftliches Centralblatt*, 107, 152 - 159, 1988
- Pitts, M. C., L. R. Poole, M. P. McCormick, SAGE II Observations: Polar Stratospheric Clouds near 50° N, January 31 - February 2, 1989, *Geophys. Res. Lett.*,17, 405-408, 1990
- Puxbaum, H., K. Gabler, S. Smidt, F. Glattes, A One-Year Record of Ozone Profiles in an Alpine Valley (Zillertal/Tyrol, Austria, 600-2000m a.s.l.),

- Atmos. Environ.,25A, 1759-1765, 1991
- Pruchniewicz, P. G., Über ein Ozongegistriergerät und Untersuchung der zeitlichen und räumlichen Variationen des troposphärischen Ozons auf der Nordhalbkugel der Erde, Mitt. Max-Planck-Inst. Aeronomie Nr.42, Berlin, 1970
- Pruchniewicz, P. G., The Average Tropospheric Ozone Content and its Variation with Season and Latitude as a Result of the Global Ozone Circulation, Pure and Appl. Geophys.,106-108, 1058-1073, 1973
- Reed, R. J., W. J. Campbell, L. A. Rasmussen, D. G. Rogers, Evidence of Downward-propagating Annual Wind Reversal in the Equatorial Stratosphere, J. Geophys. Res.,66, 813-818, 1961
- Regener, E., V. H. Regener, Aufnahmen des ultravioletten Sonnenspektrums in der Stratosphäre und vertikale Ozonverteilung, Phys. Z.,35, 788-793, 1934
- Regener, V. H., Messungen des Ozongehaltes der Luft in Bodennähe, Meteo. Z., 55, 459-462, 1938
- Regener, E., Ozonschicht und stratosphärische Turbulenz, Meteo. Z.,60, 253-269, 1943
- Reiter, R., R. Sladkovic, H.-J. Kanter, Concentration of Trace Gases in the Lower Troposphere, Simultaneously Recorded at Neighboring Mountain Stations Part II: Ozone, Meteorol. Atmos. Phys.,37, 27-47, 1987
- Sachs, L., Angewandte Statistik, Springer, Berlin, 1984
- Schmidt, M., Relationships Between Tropospheric Ozone and Global Solar Radiation in Germany, in: Ozone in the Atmosphere, Hrsg. Bojkov, R. D., P. Fabian, pp 451 - 454, Deepak Publishing, 1989
- Schneider, U., Persönliche Mitteilung, 1989
- Schneider, U., Die Verteilung des troposphärischen Ozons im bayerischen Nordalpenraum, Dissertation, Mainz 1992
- Schönenborn, F., H.-J. Claude, Lidarmessungen in der Stratosphäre, Ein Auswerteverfahren zur Bestimmung von Ozonprofilen, Proceedings LASER 91, Mün-

- chen, 1991
- Schönbein, C. F., Einige Bemerkungen über die Anwesenheit des Ozons in der atmosphärischen Luft und die Rolle, welche es bei langsamen Oxidationen spielen dürfte, Poggendorfs Ann.,65, pp. 161, 1845
- Schönwiese, C. D., Schwankungsklimatologie im Frequenz- und Zeitbereich, Mitt. Meteorol. Inst. Univ. München, Nr.24, 1974
- Schurath, U., W. Speuser, R. Schmidt, Principle and Application of a Fast Sensor for Atmospheric Ozone, Fresenius' J. Anal. Chem., 340, 544-547, 1991
- Shapiro, M. A., Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere, J. Atmos. Sci., 37, 997 - 1004, 1980
- Speuser, W., U. Schurath, Tandemaufstiege zur Messung des hochreichenden Ozonprofils über Hohenpeißenberg mit einer bis 1,5 hPa kalibrierten neuartigen Chemilumineszenz-Sonde, Abschlußbericht 1991
- Staelin, J., Persönliche Mitteilung, 1988
- Staelin, J., W. Schmid, Trend Analysis of Tropospheric Ozone Concentrations Utilizing the 20 Year Data Set of Ozone Balloon Soundings over Payerne (Switzerland), Atmos. Environ.,25A, 1739-1749, 1991
- St. John, D. S., S. P. Bailey, W. H. Fellner, J. M. Minor, R. D. Snee, Time Series Search for Trend in Total Ozone Measurements, J. Geophys. Res.,86, 7299-7311, 1981
- Stolarski, R. S., R. J. Cicerone, Stratospheric Chlorine: A Possible Sink for Ozone, Can. J. Chem.,52, 1610-1615, 1974
- Thompson, A. M., M. A. Huntley, R. W. Stewart, Perturbations of Tropospheric Oxidants, 1985-2035 1. Calculations of Ozone and OH in Chemically Coherent Regions, J. Geophys. Res.,95, 9829-9844, 1990
- Tiao, G. C., G. C. Reinsel, J. H. Pedrick, G. M. Allenby, C. L. Mateer, A. J. Miller, J. J. DeLuisi, A Statistical Trend Analysis of Ozonsonde Data, J.

- Vandersee, W., K. Wege, E. Weigl, Photochemische Ozonproduktion am Hohenpeißenberg: Der Zusammenhang zwischen Strahlung und Ozon, *Met. Zeitschrift*, im Druck
- Vaughan, G., J. D. Price, Ozone Transport into the Troposphere in a Cut-Off Low Event, in: *Ozone in the Atmosphere*, Hrsg. Bojkov, R. D., P. Fabian, pp. 415 - 418, Deepak Publishing 1989
- Veryard, R. G., R. A. Ebdon, Fluctuations in Tropical Stratospheric Winds, *Meteor. Mag.*, 90, 125-143, 1961
- Volz, A., D. Kley, Evaluation of the Montsouris Series of Ozone Measurements Made in the Nineteenth Century, *Nature*, 332, 240-242, 1988
- Volz, A., H. Geiss, S. McKeen, D. Kley, Correlation of Ozone and Solar Radiation at Montsouris and Hohenpeissenberg: Indications for Photochemical Influence, in: *Ozone in the Atmosphere*, Hrsg. Bojkov, R. D., P. Fabian, pp. 447 - 450, Deepak Publishing, 1989
- Wakamatsu, S., I. Uno, H. Ueda, K. Uehara, H. Tateishi, Observational Study of Stratospheric Ozone Intrusions Into the Lower Troposphere, *Atmos. Environ.*, 23, 1815 - 1826, 1989
- Wang, P.-H., M. P. McCormick, L. R. McMaster, S. Schaffner, G. E. Woodbury, Timeperiodic Variations in Stratospheric Ozone from Satellite Observations, in: *Ozone in the Atmosphere*, Hrsg. Bojkov, R. D., P. Fabian, 247-250, Deepak Publishing, 1989
- Wege, K., H. Claude, R. Hartmannsgruber, Several Results from 20 Years of Ozone Observations at Hohenpeissenberg, in: *Ozone in the Atmosphere*, Hrsg. Bojkov, R. D., P. Fabian, pp. 109-112, Deepak Publishing, 1989
- Wege, K., Extremely Low Temperatures in the Stratosphere and Very Low Total Ozone Amount above Northern and Central Europe during Winter 1989. *J. Atmos. Chem.*, 12, 381-390, 1991

- Wege, K., W. Vandersee, Über Ozontrends, in: Beiträge zur Physik der Atmosphäre, gewidmet Dr. Manfred Reinhard zum 65. Geburtstag, Hrsg. Schumann, U., K. P. Hoinka, Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt, Forschungsbericht, DLR-FB 91 - 30, 167 - 177, 1991 a
- Wege, K., W. Vandersee, Ozonbeobachtungen am Nordrand der Alpen, Meteorol. Rdsch., 44, 138 - 146, 1991 b
- Wofsy, S. C., M. B. McElroy, Y. L. Yung, The Chemistry of Atmospheric Bromine, Geophys. Res. Let., 2, 215-218, 1975
- Wuebbles, D. J., F. M. Luther, J. E. Penner, Effect of Coupled Perturbations on Stratospheric Ozone, J. Geophys. Res., 88, 1444-1456, 1983
- WMO, Report of the International Ozone Trends Panel - 1988, Global Ozone Research and Monitoring Project - Report No. 18, 1988