

M. DAMERIS

1 Klima-Chemie-Wechselwirkungen und der stratosphärische Ozonabbau

Climate-chemistry interaction and stratospheric ozone decrease

Zusammenfassung

Klima und chemische Zusammensetzung der Erdatmosphäre haben sich durch menschliches Handeln in den letzten Jahrzehnten nachhaltig verändert. Änderungen des Klimas und der chemischen Zusammensetzung der Erdatmosphäre sind eng miteinander verknüpft. Eine Vertiefung des Verständnisses der komplexen Wechselwirkungen zwischen sich simultan ändernden chemischen, physikalischen und dynamischen Prozessen in der Atmosphäre ist notwendig. Untersuchungen von wechselwirkenden Mechanismen physikalischer, dynamischer und chemischer Prozesse können mit Hilfe gekoppelter Chemie-Klima-Modelle durchgeführt werden. Gerade in den letzten Jahren wurde eine Reihe von Fortschritten erzielt, vor allem durch intensive Vergleiche von Modellresultaten und Beobachtungen.

1 Einleitung

Unzweifelhaft ist, dass sich das Klima und die chemische Zusammensetzung der Erdatmosphäre durch menschliches Handeln in den letzten Jahrzehnten nachhaltig verändert haben. Änderungen des Klimas und der chemischen Zusammensetzung der Erdatmosphäre, insbesondere des stratosphärischen Ozons, sind eng miteinander verknüpft (z. B. WMO 2003; EU-BERICHT 2003), jedoch ist vielfach ungeklärt, inwieweit sie sich gegenseitig beeinflussen. Deutlich wird dies am Beispiel des Rückgangs des stratosphärischen Ozongehalts. Derzeit ist nicht klar, in welchem Maße der Treibhauseffekt die in den vergangenen beiden Jahrzehnten beobachteten globalen Ozonverluste bereits beeinflusst hat, beziehungsweise in der Zukunft die erwartete Regenerierung der stratosphärischen Ozonschicht beeinflussen wird. Ozon spielt im Energiehaushalt der Atmosphäre eine zentrale Rolle (z. B. durch die Absorption ultravioletter Strahlung) und ist in eine Reihe von chemischen und physikalischen Kopplungsprozessen eingebunden. Die stratosphärische Ozonabnahme beeinflusst indirekt die chemische Zusammensetzung der Troposphäre durch geringere Absorption insbesondere im kurzwelligen Spektrum der UV-Strahlung.

Physikalische, chemische und dynamische Prozesse sowie deren Wechselwirkungen bestimmen den Zustand der Atmosphäre. Natürliche und anthropogene Emissionen, zum Beispiel der Treibhausgase Kohlendioxid: CO_2 , Methan: CH_4 , Lachgas: N_2O und Partikeln (Aerosole), beeinflussen auf direktem oder indirektem Wege alle diese Prozesse. Veränderungen der Konzentration von strahlungsaktiven Spurengasen und Spurenstoffen beeinflussen den Strahlungsantrieb, d. h. die Erwärmungs- und Abkühlungsraten, und damit die Temperaturverteilung in der Atmosphäre. Schwankungen oder Trends in der Temperatur führen zu geänderten Windgeschwindigkeiten und Windrichtungen und damit zu veränderten Transporten von Spurengasen. Viele che-

mische Reaktionen sind stark temperaturabhängig und auf diese Weise direkt mit Veränderungen des Klimas verknüpft. Durch Emissionen von Gasen und Aerosolen wird die Chemie der Atmosphäre natürlich auch direkt beeinflusst.

Da der anthropogene Treibhauseffekt zu einer zusätzlichen Erwärmung der Troposphäre (Abb. 1-1) und einer verstärkten Abkühlung der Stratosphäre (Abb. 1-2) führt (z. B. SHINE et al. 2003) ist die Klärung der Frage nach der wechselseitigen Bedeutung einer Klimaänderung und der Chemie der Atmosphäre im Allgemeinen beziehungsweise der stratosphärischen Ozonschicht im Speziellen nicht trivial. Während die strahlungsbedingte Abkühlung der Stratosphäre zum Beispiel das Bildungspotential von polaren Stratosphärenwolken (engl. **Polar Stratospheric Clouds**, PSCs) erhöht und damit zu einer Verstärkung des dortigen Ozonabbau führt, kann die Erwärmung der Troposphäre die Anregungs- und Ausbreitungsbedingungen von planetaren Wellen verändern. Planetare Wel-

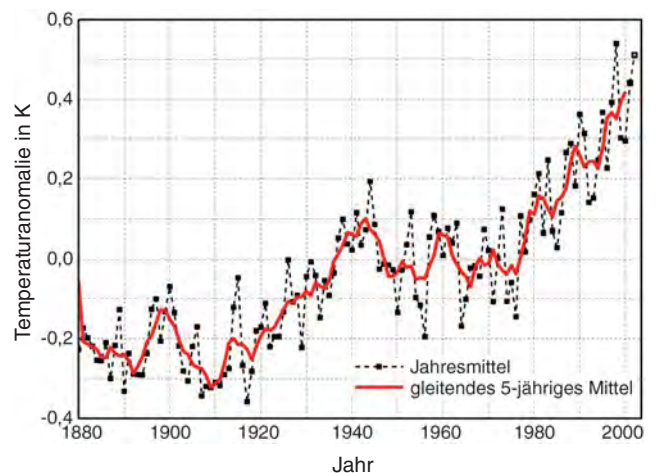


Abb. 1-1: Trend der global gemittelten Oberflächentemperatur sowie ihres fünfjährigen gleitenden Mittels. Dargestellt ist die Anomalie bezogen auf das Mittel der Jahre 1951 bis 1980 (Quelle: Goddard Institute for Space Studies (GISS), NASA).

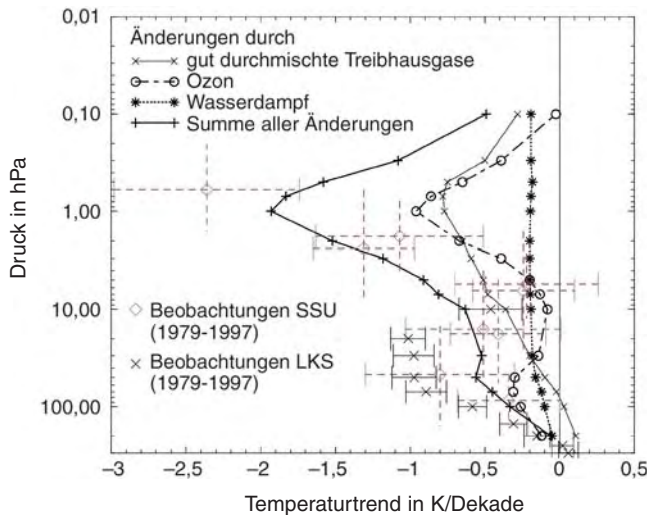


Abb. 1-2: Jahresmittel des global gemittelten Temperaturtrends in der Stratosphäre. Dargestellt sind Ergebnisse von Modellrechnungen für vorgegebene Wasserdampf-, Ozon- und Treibhausgaskonzentrationen. Die aus Beobachtungen abgeleiteten Temperaturtrends stammen von den Satelliten MSU und SSU sowie von Radiosonden-Messungen (LKS, LANZANTE et al. 2003). Die horizontalen Fehlerbalken an den Beobachtungen geben den 2σ -Fehler an (Quelle: SHINE et al. 2003).

len beeinflussen die Dynamik der Stratosphäre und damit auch die thermodynamischen Bedingungen, die die Chemie der Stratosphäre entscheidend bestimmen.

Wie aus diesem Beispiel deutlich wird, ist die gegenseitige Beeinflussung von physikalischen, chemischen und dynamischen Prozessen vielschichtig und komplex. Aus diesem Grund ist es häufig ausgesprochen schwierig, den Anteil einzelner Prozesse an beobachteten Vorgängen und Veränderungen (Trends) zu bestimmen. Die Untersuchung der Kopplungsmechanismen von physikalischen, chemischen und dynamischen Prozessen in der Stratosphäre ist sicherlich nicht neu. In der letzten Zeit sind im Zusammenhang mit der Diskussion zur Umsetzung und Einhaltung der Protokolle von Montreal und Kioto (internationale Abkommen zur Reglementierung von Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKW) und Treibhausgasen) Fragen über die Zusammenhänge von Klimaänderung und der Veränderung der chemischen Zusammensetzung der Stratosphäre wieder stärker in das Zentrum des wissenschaftlichen und öffentlichen Interesses gerückt. Nicht zuletzt durch die Verwendung von Rechenmodellen, die versuchen, die Komplexität des Systems Atmosphäre in ihrer Gesamtheit darzustellen, sind in der letzten Zeit interessante neue Erkenntnisse erzielt worden. Am Ende dieses Kapitels werden einige Ergebnisse dieser Studien zusammengefasst.

2 Beobachtungen und Analysen

Der Anstieg der Treibhausgaskonzentrationen (z. B. CO_2 , CH_4 , N_2O) beeinflusst direkt die Temperatur der

Troposphäre und der Stratosphäre über sich ändernde Erwärmungs- und Abkühlungsraten. In den letzten Jahrzehnten werden eine zunehmende Erwärmung der unteren Troposphäre und eine Abkühlung der Stratosphäre beobachtet (siehe auch Kapitel 4). Langzeitbeobachtungen, vor allem durch Messungen von Bodenstationen, dokumentieren diese Temperaturänderungen eindrucksvoll. Eine statistisch signifikante und damit zweifelsfrei dokumentierte Abkühlung der Stratosphäre konnte für die Sommermonate in beiden Hemisphären nachgewiesen werden (Abb. 1-3). Die große dynamische Variabilität der nördlichen Stratosphäre im Winter und Frühling macht die Bestimmung statistisch signifikanter Veränderungen (Trends) wesentlich schwieriger. Wie in der polaren Südhemisphäre gibt es allerdings auch in der polaren Nordhemisphäre Anzeichen dafür, dass die Stratosphäre nicht nur kälter wird, sondern sich auch die Lebensdauer des polaren Stratosphärenwirbels verlängert (ZHOU et al. 2000). Der Einfluss des antarktischen Ozonlochs verstärkt den Abkühlungseffekt der südpolaren Stratosphäre in den Frühlingsmonaten massiv (RANDEL und WU 1999). Auch in der polaren Nordhemisphäre deuten niedrigere Temperaturen im Spätwinter und Frühling einen Einfluss des stratosphärischen Ozonabbaus an.

Chemisch verursachte Ozonverluste im polaren Winter und Frühling sind unter anderem stark abhängig von der Existenz polarer Stratosphärenwolken (PSCs) sowie der Lebensdauer des stratosphärischen Polarwirbels. Die Bildung von PSCs erfolgt nur dann, wenn die Temperaturen unter einen kritischen Wert abfallen. PSC-Partikel beeinflussen das Ozonbudget durch direkte und indirekte Effekte auf Halogenverbindungen, die in die Ozon zerstörenden katalytischen Zyklen ver-

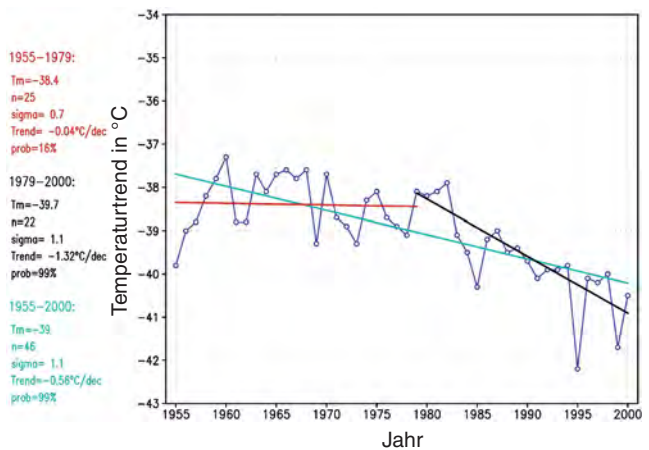


Abb. 1-3: Monatsmittel der Temperatur im Juli über dem Nordpol in etwa 24 km Höhe (30 hPa Luftdruck) von 1955 bis 2000. Deutlich zu erkennen ist der Abkühlungstrend, der sich seit dem Beginn der 80er Jahre deutlich verstärkt hat (Quelle: K. LABITZKE, Institut für Meteorologie, Freie Universität Berlin). Am linken Bildrand sind für die Zeitspannen 1955-1979 (rot), 1979-2000 (schwarz) sowie 1955-2000 (blau) die folgenden Kennzahlen angegeben: T_m : Mitteltemperatur, n: Anzahl der Jahre, sigma: Streuung, Trend, prob: Wahrscheinlichkeit.

wickelt sind. Die direkte Wirkung geht über heterogene chemische Reaktionen auf oder in diesen Partikeln, wobei schwach reaktive Chlorverbindungen (die so genannten Chlorreservoirs ClONO_2 und HCl) in aktive Chlorsubstanzen (Cl , Cl_2 , ClO) umgewandelt werden, die in die Ozon zerstörenden Zyklen eingreifen können. Eine indirekte Wirkung ist, dass die Ozonzerstörung längere Zeit andauert, wenn die Sedimentation größerer salpetersäurehaltiger PSC-Teilchen zu einer Denitrifizierung der relevanten Atmosphärenschichten führt. Diese Denitrifizierung erhöht die Lebenszeit der reaktiven Chlorverbindungen, weil es die Deaktivierung zurück zu den stabilen Reservoirs verlangsamt. Die Bedeutung der Denitrifizierung für die Ozonzerstörung in der polaren Stratosphäre ist eng an Temperaturänderungen geknüpft (z. B. WAIBEL et al. 1999). Eine längere Lebenszeit des Polarwirbels wäre eine bedeutende Veränderung, da dies den Prozess der Denitrifizierung verstärken könnte und somit den Ozonabbau in der Stratosphäre. Ein Anstieg der Denitrifizierung in einer möglicherweise zukünftig kälteren Stratosphäre würde die Erholung der Ozonschicht zusätzlich verlangsamen.

Darüber hinaus haben REX et al. (2004) bei Analysen von Temperaturänderungen im arktischen Polarwirbel gefunden, dass die kältesten arktischen Winter kälter werden, was auch als ein Indiz für die Intensivierung der polaren Winde in Winter spricht. Nach wie vor unklar ist, ob sich der beobachtete Abkühlungstrend in der Stratosphäre in Zukunft fortsetzen wird, und ob dies zu einem stabileren Polarwirbel über der Arktis führen wird. Änderungen in der Stärke des Polarwirbels, d. h. Zunahme der mittleren zonalen Windgeschwindigkeiten, würden die Ausbreitungsbedingungen für planetare Wellen verändern und damit auch die Bedingungen für die Wechselwirkungen dieser Wellen mit dem Grundstrom. Dies wiederum hätte Einfluss auf die Dynamik des Polarwirbels. Eine Stabilisierung des arktischen Wirbels würde zu einem vermehrten Auftreten von PSCs führen und damit zu einem verstärkten Ozonabbau durch heterogene chemische Prozesse. Es bleibt festzuhalten, dass die Änderung der Stratosphärentemperatur, die Bildung polarer Stratosphärenwolken und die Ozonzerstörung ein System mit positiver Rückkopplung bilden.

Die beobachtete Erwärmung der Troposphäre beeinflusst die Dynamik der Troposphäre und damit die Anregung und die vertikale Ausbreitung von planetaren Wellen. Dies hat Auswirkungen auf die stratosphärische Dynamik, zum Beispiel die Brewer-Dobson Zirkulation. Der absteigende Ast der Brewer-Dobson Zirkulation wird durch die Wechselwirkung der Wellen mit dem Grundstrom modifiziert. Dies wiederum beeinflusst den Transport von atmosphärischen Spurengasen einschließlich Ozon und damit deren Verteilung in der Stratosphäre. Eine Quantifizierung des Anteils der hierdurch verursachten Veränderungen dynamischer Prozesse und Änderungen der Verteilung von

Spurengasen ist aufgrund der Nichtlinearität des Systems ausgesprochen schwierig.

Ein gut bekanntes und dokumentiertes Beispiel für die dynamische Wechselwirkung von Troposphäre und Stratosphäre ist der Effekt troposphärischer Wettersysteme auf das Ozon der unteren Stratosphäre: Hohe (niedrige) Werte der Ozongesamtsäule sind verbunden mit troposphärischen Zyklonen (Antizyklonen) sowie einer tief (hoch) liegenden Tropopause. Analysen von Daten einer Vielzahl verschiedener Quellen zeigen eine stetige Erwärmung der Erdoberfläche während der letzten 30 Jahre, global etwa 0,1 K pro Dekade, über Europa etwa 0,6 K pro Dekade (Jahresmittel; IPCC-TAR 2001). Radiosonden-Daten für Zentraleuropa, zum Beispiel vom Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg (Deutscher Wetterdienst), zeigen eine Erwärmung der gesamten Troposphäre von 0,6 K pro Dekade bei gleichzeitiger Abkühlung der unteren Stratosphäre von $-0,5$ K pro Dekade über die letzten 20 Jahre. Diese Änderungen gehen in Hand mit einem Anstieg der Tropopausenhöhe von etwa 120 m pro Dekade (Jahresmittelwert; STEINBRECHT et al. 1998, Abb. 1-4). Ähnliche Werte werden auch für andere Stationen der Nordhemisphäre gefunden (FORSTER und TOURPALI 2001). SANTER et al. (2003) zeigten, dass Änderungen in der Tropopausenhöhe ein hilfreicher „Fingerabdruck“ für anthropogene Klimaänderungen sein können. Die in der neueren Literatur diskutierten dynamischen Beiträge einer Klimaänderung beschränken sich jedoch nicht nur auf die Position der Tropopause und Temperaturänderungen. Dargestellt werden ferner langzeitliche Veränderungen bevorzugter Klimamuster (APPENZELLER et al. 2000), Veränderungen in der diabatischen Zirkulation (Brewer-Dobson Zirkulation) durch geänderte vertikale Ausbreitung planetarer Wellen (FUSCO und SALBY 1999) oder Veränderungen der Ozontransporte auf Isentropen aus den Tropen (REID et al. 2000). Klar ist, dass alle diese möglichen Veränderungen nicht unabhängig voneinander sind (siehe auch STÄHELIN et al. 2002).

In den vergangenen Jahren wurden ferner langzeitliche Veränderungen in der Stratosphäre im Zusammenhang mit troposphärischen Mustern bzw. Klimaindizes untersucht. Es wurden Korrelationen von Mustern dynamischer Größen und Parameter zwischen der Troposphäre und der Stratosphäre identifiziert. Besonders zu erwähnen sind hier Studien zur Nordatlantischen Oszillation (engl. North Atlantic Oscillation, NAO) bzw. zur Arktischen Oszillation (AO). Der so genannte NAO-Index ist definiert als die Differenz des Bodendrucks zwischen den Azoren und Island (siehe z. B. HURRELL et al. 2003). Die AO ist die führende Empirische Orthogonale Funktion (EOF) des nordhemisphärischen Bodendruckfelds im Winter, die mit der NAO korreliert ist (z. B. THOMPSON und WALLACE 1998). Die NAO beschreibt die vorherrschende Mode der winterlichen Klimavariabilität im

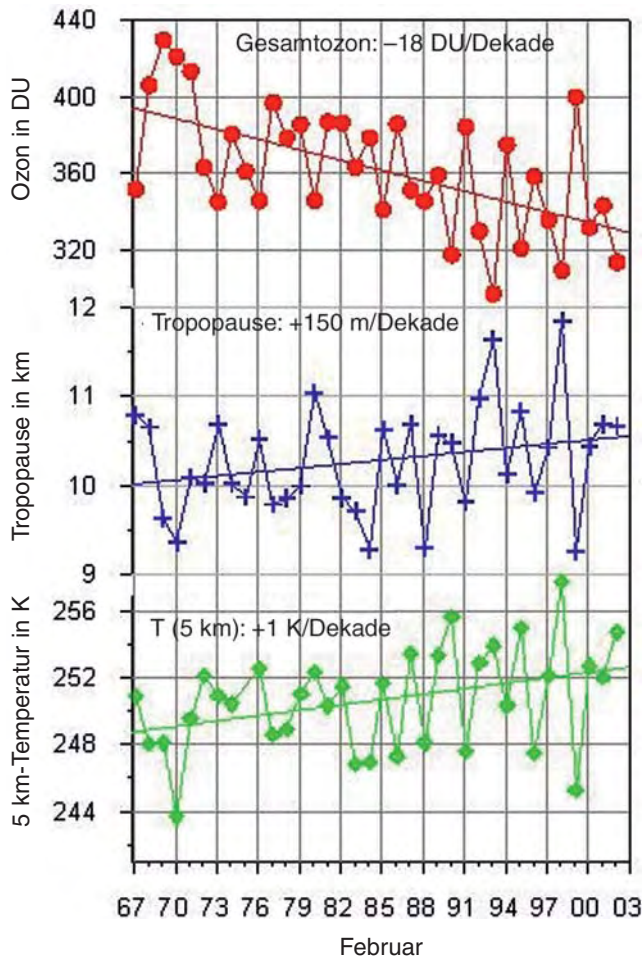


Abb. 1-4: Interannuale Variabilität und Trends für Gesamtozon (oben), die Tropopausenhöhe (Mitte) und die Temperatur in 5 km Höhe an der Station des Meteorologischen Observatoriums Hohenpeißenberg des Deutschen Wetterdienst (unten). Dargestellt sind die Ergebnisse für Februar (jeweils die Monatsmittelwerte) (Quelle: DWD/MetObs Hohenpeißenberg, W. STEINBRECHT).

Bereich des Nordatlantisch-Europäischen Raums. Positive NAO Phasen stehen in Verbindung mit über den Mittelwerten liegenden Temperaturen im Winter in Europa (starkes Azorenhoch). Während negativer NAO Phasen beobachtet man im Winter niedrigere Temperaturen als gewöhnlich (schwaches Azorenhoch). Das bevorzugte Auftreten von negativen NAO-Phasen in den 60er und 70er Jahren des letzten Jahrhunderts und positiven NAO Phasen in den 80er und 90er Jahren gehen einher mit einem Anstieg der Anzahl der Tage, an denen über Europa eine hohe Tropopause beobachtet wird (APPENZELLER et al. 2000). Aufgrund des bekannten Zusammenhangs zwischen der Ozongesamtsäule und dem Tropopausendruck ist klar, warum in den letzten Jahren vermehrt Tage mit wenig Ozon in der unteren Stratosphäre (zwischen Tropopause und 20 km Höhe) gefunden wurden. Eine Reihe von Untersuchungen deuten darauf hin, dass über Zentral-Europa etwa ein Drittel des langzeitlichen Ozonverlustes im direkten Zusammenhang mit langzeitlichen Änderungen der dynamischen Struktu-

ren der Atmosphäre zu sehen sind (PETERS et al. 1996; HOOD et al. 1999; APPENZELLER et al. 2000). Bekannt ist auch, dass ein positiver NAO-Index mit einem stabilen (kalten) stratosphärischen Polarwirbel im Winter verbunden ist, während zu Zeiten eines negativen NAO Index der polare Wirbel eher labil (warm) ist (z. B. PERLWITZ und GRAF 1995; THOMPSON und WALLACE 1998). Ein Trend im NAO-Index könnte also die Regenerierung der stratosphärischen Ozonschicht über der Nordhemisphäre unmittelbar beeinflussen (z. B. SCHNADT und DAMERIS 2003).

Obwohl die beobachtete Erwärmung der Troposphäre und die Abkühlung der Stratosphäre im Einklang stehen mit den erwarteten Veränderungen aufgrund des Anstiegs der Konzentrationen der gut durchmischten Treibhausgase sowie des Rückgangs der stratosphärischen Ozonkonzentration (z. B. RAMASWAMY et al. 2001), und obwohl einige Klimamodelle auf einen Trend zu positiverem NAO-Index durch ansteigende Treibhausgaskonzentrationen hindeuten, versteht man zur Zeit die zugrunde liegenden Mechanismen nur unzureichend. Unklar ist zum Beispiel, ob die beobachtete langzeitliche Veränderung der NAO-Variabilität ein Hinweis auf einen durch den Menschen verursachten Klimawandel ist.

3 Erwartete zukünftige Entwicklung

Die Emissionen der wichtigsten strahlungsaktiven Treibhausgase (CO₂, CH₄, N₂O) steigen derzeit weiter an. Eine Reduzierung der atmosphärischen Konzentrationen strahlungsaktiver Gase ist in absehbarer Zeit nicht zu erwarten. Zukünftige Szenarien (IPCC-SRES 2000) über den weiteren Anstieg der Treibhausgasemissionen überdecken einen weiten Bereich, was letztendlich die Unsicherheiten in der weltwirtschaftlichen Entwicklung dokumentiert. Obwohl die Mehrzahl der Klimamodelle eine weitere Erwärmung der Troposphäre sowie eine Abkühlung der Stratosphäre vorhersagen, bleiben große Unsicherheiten über die tatsächlich zu erwartenden Ausmaße der Klimaänderung (siehe IPCC-TAR 2001). Nach wie vor ist es eine offene Frage, in welcher Weise bzw. wie stark die Atmosphäre auf die veränderten Bedingungen reagieren wird. Es gibt eine Reihe von direkten und indirekten Effekten über den Strahlungsantrieb und über chemische Prozesse, die zu einer veränderten Dynamik (Temperatur) der Atmosphäre führen. Veränderungen in der CO₂-Konzentration der Atmosphäre wirken über Strahlungsprozesse direkt auf die Temperatur, wogegen geänderte Konzentrationen von CH₄ und N₂O zusätzlich noch direkten Einfluss auf die Chemie nehmen. Ein Anstieg der natürlichen Methanemission in einer wärmeren Troposphäre könnte zu einem Anstieg des stratosphärischen Wasserdampfgehaltes führen und damit zu höheren Schwellwerten der Temperatur für die Existenz von PSCs, was wiederum mehr PSCs zur Folge hätte.

Eine weitere strahlungsbedingte Abkühlung der Stratosphäre wird in den nächsten Jahren erwartet. Die leichte Abkühlung der unteren Stratosphäre (z. B. durch höhere CO_2 -Konzentrationen) könnte unter anderem teilweise kompensiert werden durch den Rückgang der Konzentrationen von Kohlenwasserstoffen und der Erholung der Ozonschicht. Auf der anderen Seite könnte ein weiterer Anstieg der troposphärischen Ozonkonzentration die untere Stratosphäre abkühlen (WMO 2003). Große Unsicherheiten ergeben sich ferner aus der Unkenntnis der zukünftigen Entwicklung des Wasserdampfgehalts in der unteren Stratosphäre. Da die derzeit beobachteten Veränderungen nicht schlüssig erklärt werden können, ist auch eine belastbare Prognose der weiteren Entwicklung kaum möglich. Dies wäre jedoch für eine Abschätzung der zukünftigen Entwicklung der Temperatur in der unteren Stratosphäre notwendig. Es gibt Hinweise auf einen Anstieg der Wasserdampfkonzentration in der mittleren und oberen Stratosphäre (OLTMANS et al. 2000; ROSENLOF et al. 2001), wogegen in der unteren Stratosphäre und an der Hygropause kein eindeutiger Trend zu beobachten ist (RANDEL et al. 2004). Modelle sind derzeit nicht in der Lage, den beobachteten Trend in der mittleren und oberen Stratosphäre zu simulieren (AUSTIN et al. 2003). Der in den vergangenen Jahren beobachtete Anstieg von Methan in der Troposphäre kann lediglich nur etwa die Hälfte des beobachteten Anstiegs von Wasserdampf in der Stratosphäre (über die Methanoxidation) erklären. Der Anteil des „Restes“ im Trend ist nach wie vor nicht geklärt. Prozesse, die die Wasserdampfkonzentrationen in der Stratosphäre bestimmen, könnten sich durch den Treibhauseffekt verändert haben, z. B. die Brewer-Dobson Zirkulation, die welleninduzierte Vermischung von Luftmassen in der Stratosphäre, die vertikale Erstreckung der troposphärischen Zirkulation in die untersten Bereiche der Stratosphäre, die Konvektion, vor allem in den Tropen oder die Eigenschaften von Wolken (z. B. von Zirren).

Die Rolle von Ozon im Strahlungshaushalt der Atmosphäre ist komplexer als die der gut durchmischten Treibhausgase, da die Ozonverteilung räumlich sehr variabel ist, sowohl in der Vertikalen als auch in der Horizontalen. Während der letzten drei Dekaden hat an den meisten Europäischen Stationen die Konzentration in der Troposphäre zugenommen (SPARC 1998; WMO 2003). In der Stratosphäre hat Ozon global abgenommen, im besonderem im Frühling über der Antarktis (Ozonloch). Derzeit ist noch unklar, inwieweit erhöhte troposphärische Ozonkonzentrationen über den Strahlungsantrieb zu einer Veränderung der stratosphärischen Dynamik führen und damit Bedeutung für die weitere Entwicklung des Klimas haben.

Andere anthropogene Antriebsmechanismen in der Atmosphäre könnten in der Zukunft eine zunehmend wichtigere Rolle bei der Veränderung der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre und des Klimas

spielen. Ein Beispiel ist der potentielle Einfluss des troposphärischen Aerosols auf das Klima sowie die Verbindung von troposphärischem Sulfat mit Sulfataerosolen in der unteren Stratosphäre (PITARI et al. 2002). Nicht nur heterogene chemische Reaktionen auf oder in Partikeln sind wichtig, sondern auch der Einfluss von Aerosolen auf den Strahlungshaushalt. Aerosole können dynamische Prozesse maßgeblich beeinflussen, zum Beispiel in dem sie die Zirkulation und Temperatur stören, was wiederum Einfluss auf chemische Prozesse haben kann. Ein Anstieg von Sulfataerosolen in der unteren Stratosphäre könnte in Zukunft als Folge verstärkter globaler und regionaler Emissionen von Schwefeldioxid beobachtet werden, aufgrund rasch wachsender anthropogener Sulfatemissionen in den Entwicklungsländern (z. B. IPCC-TAR 2001). Veränderungen in der Aerosolbelastung der Stratosphäre hätten unmittelbare Konsequenzen für die Ozonschicht.

Die Konzentrationen der FCKW in der Troposphäre gehen seit einiger Zeit zurück. Der Anstieg der Chlorbelastung der Atmosphäre scheint gestoppt (Abb. 1-5). In den nächsten Jahren wird ein Rückgang der Chlorkonzentration in der Stratosphäre erwartet. Ohne eine Änderung des Klimas würde dies zu einer Erholung der Ozonschicht führen und das antarktische Ozonloch sollte verschwunden sein, wenn die Chlorbelastung wieder auf Werte unter 1,5 ppbv zurückgegangen ist. Zukünftige Veränderungen des atmosphärischen Bromgehaltes, besonders in der unteren Stratosphäre, könnten die erwartete Erholung der Ozonschicht dagegen verlangsamen.

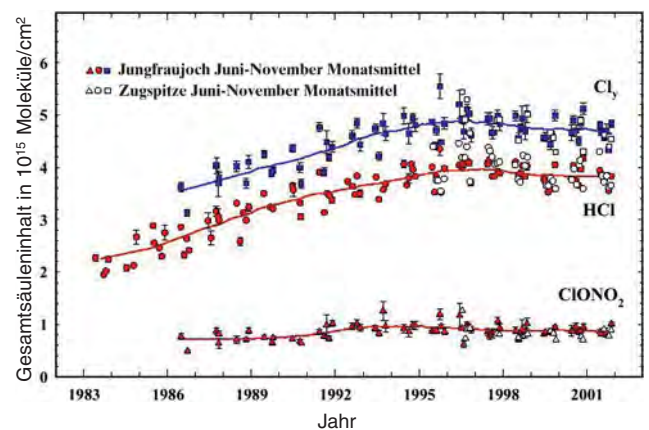


Abb. 1-5: Vertikale Säuleninhalte von HCl und ClONO₂ oberhalb der Station Jungfrauoch (Schweizer Alpen). Offene Symbole sind Messungen an der Station Zugspitze. Dargestellt sind nur die Messungen der Monate Juni bis November. Eine Darstellung der Werte im Winter und Frühling würde aufgrund der hohen Variabilität das Erkennen eines Trends erschweren. Die gezeigten Cl_v-Werte (Cl_v = HCl + ClONO₂ + ClO_x) beinhalten ClO-Hintergrund-Konzentrationen aus Modellrechnungen (Quelle: MAHIEU et al. 2000; aktualisiert).

Atmosphärische Winde werden durch Temperaturänderungen direkt verändert. Änderungen der stratosphärischen Dynamik modifizieren Transportprozesse und dies nicht nur in der Stratosphäre sondern auch in der Troposphäre. Der vertikale Austausch von Luftmassen zwischen der Stratosphäre und der Troposphäre ist dadurch ebenfalls beeinflusst mit Konsequenzen für die Verweilzeiten von Spurengasen (z. B. von FCKW) und damit für die Ozonkonzentration und -verteilung in der Stratosphäre. Der Austausch troposphärischer und stratosphärischer Luftmassen ist für die chemische Zusammensetzung beider Schichten von Bedeutung. Eine Region von besonderem Interesse ist dabei die tropische Tropopause. In jüngster Zeit wird viel von der TTL (engl. **T**ropical **T**ropopause **L**ayer) gesprochen, einer Schicht in den Tropen, die etwa zwischen 150 und 70 hPa liegt. Veränderungen gerade in diesem Bereich der Atmosphäre scheinen von besonderer Bedeutung für die Stratosphäre zu sein. Der Eintrag von Wasserdampf und anderer kürzerlebiger Substanzen aus der Troposphäre in die Stratosphäre geschieht besonders in diesem Bereich. Mögliche zukünftige Veränderungen der TTL sind nicht nur für die Ozonschicht von Bedeutung, sondern generell für die Dynamik und Chemie der Atmosphäre. Das derzeitige Wissen über die Transportmechanismen durch die TTL ist sehr unvollständig. Dies schränkt die Vorhersagefähigkeit über die zukünftige chemische Zusammensetzung der Stratosphäre stark ein. Aus diesem Grund sind in naher Zukunft umfangreiche Messkampagnen in den Tropen geplant.

4 Modellierung der Klima-Chemie Wechselwirkung

Untersuchungen von wechselwirkenden Mechanismen physikalischer, dynamischer und chemischer Prozesse können mit Hilfe von Zirkulations- (Klima-) modellen (engl. **g**eneral **c**irculation **m**odel, GCM) und gekoppelten Chemie-Klima-Modellen (engl. **c**hemistry-**c**limate **m**odel, CCM) durchgeführt werden. Mit diesen Werkzeugen ist es möglich, Sensitivitätsstudien durchzuführen, die es erlauben, direkte und indirekte Auswirkungen von veränderten Bedingungen besser zu erkennen und diese dann gezielt zu analysieren und zu quantifizieren. Diese Aufgabe ist eine Herausforderung, da die wechselwirkenden Mechanismen zwischen physikalischen, dynamischen und chemischen Prozessen sehr komplex sind. Vor kurzen wurden acht verschiedene CCMs dazu genutzt, den Einfluss der in der Vergangenheit beobachteten Veränderungen der Konzentration von Treibhausgasen und von FCKW auf die Ozonschicht zu untersuchen (AUSTIN et al. 2003).

Die verwendeten Chemie-Klima-Modelle werden in der Regel über lange Zeiträume (Dekaden) integriert. Sie variieren zum Teil deutlich in ihrer Komplexität. Unterschiedliche Diagnostiken kommen zur Anwendung, um die Qualität der Modelle untereinander und im Vergleich zu Beobachtungen zu bestimmen. Ver-

gleiche von Modelldaten mit Beobachtungen, im besonderem mit langzeitlichen und globalen Messdaten von Bodenstationen und Satelliten, sind die Grundlage für die Erkennung von Modellfehlern. Dies ist notwendig für die Abschätzung der Konsistenz der verschiedenen Szenarienrechnungen zur Vorhersage der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre und des Klimas. Da die gekoppelten Modelle sehr rechenzeitintensiv sind ist es nicht möglich, mit einem einzelnen Modell umfangreiche Sensitivitätsstudien durchzuführen, um die jeweiligen Unsicherheiten abzuschätzen. Derzeit kann jedes einzelne Modell aus Kostengründen nur für eine relativ kleine Anzahl von Rechnungen eingesetzt werden. Aus diesem Grund ist es eine Möglichkeit die Belastbarkeit von Modellresultaten dadurch zu überprüfen, indem die verschiedenen Modelle zu Szenarienrechnungen mit möglichst gleichen Randbedingungen eingesetzt werden und die Ergebnisse vergleichend untersucht werden.

Der Grad der dynamischen Variabilität wird von den gekoppelten Klima-Chemie-Modellen meist unterschätzt, die modellierten Temperaturen der polaren unteren Stratosphäre sind meistens zu niedrig. Viele der derzeit zum Einsatz kommenden CCMs haben einen signifikanten Kältefehler (engl. **c**old **b**ias) in hohen Breiten, besonders in der Südhemisphäre während der Winter- und Frühlingsmonate. Dies hat natürlich Konsequenzen für die polare Chemie, vor allem für die Bildung der polaren Stratosphärenwolken. Des Weiteren ist der Prozess der Denitrifizierung, der in nichtlinearer Weise von der Temperatur abhängt, in den Modellen oft nicht richtig erfasst und stellt damit eine weitere Unsicherheit dar. Ein anderes, derzeit noch ungelöstes Problem ist, dass kaum ein verwendetes Modell in der Lage ist, den beobachteten Wasserdampftrend in der mittleren und oberen Stratosphäre zu reproduzieren. Als Ergebnis der unterschiedlich simulierten polaren Temperaturen und Wasserdampfverhältnisse werden von den CCMs verschiedene Mengen an PSCs simuliert, was sich dann in deutlich unterschiedlichen Ozonwerten niederschlägt (Abb. 1-6).

Eine außergewöhnliche dynamische Situation wurde im September 2002 in der antarktischen Stratosphäre beobachtet. Eine große Stratosphärenenerwärmung wurde durch verstärkte Aktivität planetarer Wellen erzeugt. So stieg die Temperatur Ende September binnen weniger Tage in polaren Breiten um etwa 60 K an (30 hPa) und in mittleren Breiten (60° S, 10 hPa) wurden Ostwinde von 20 m/s (zonales Mittel) beobachtet (Abb. 1-7). Der winterliche Polarwirbel wurde in zwei kleine Wirbel gespalten. Bedingt durch die hohen Temperaturen wurden die für diese Jahreszeit üblichen hohen chemisch bedingten Ozonverluste nicht beobachtet (Abb. 1-8). Vergleichbare Ereignisse gibt es normalerweise nur in der Nordhemisphäre. Eine Stratosphärenenerwärmung von diesem Ausmaß wurde in den letzten 50 Jahren nicht beobachtet (ROSCOE et al. 2004). Obwohl derzeit noch keine plausible Erklärung für

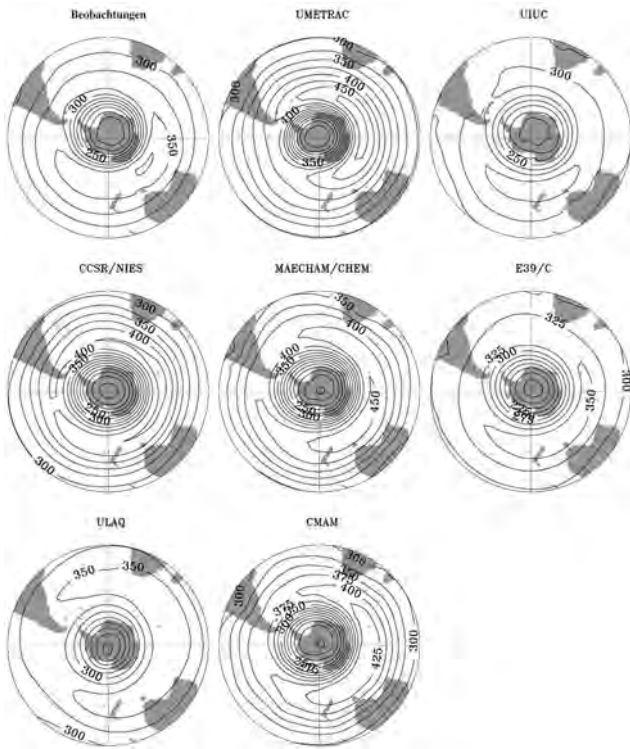


Abb. 1-6: Oktober-Mittelwerte der Ozongesamtsäule über der Südhemisphäre, Angaben in DU. Oben links sind die Daten von Satellitenbeobachtungen der Jahre 1993 bis 2000 (Mittelwert aller Oktobermittel) dargestellt. Die übrigen Bilder stellen entsprechende klimatologische Mittelwerte von verschiedenen Modellen dar (Quelle: AUSTIN et al. 2003).

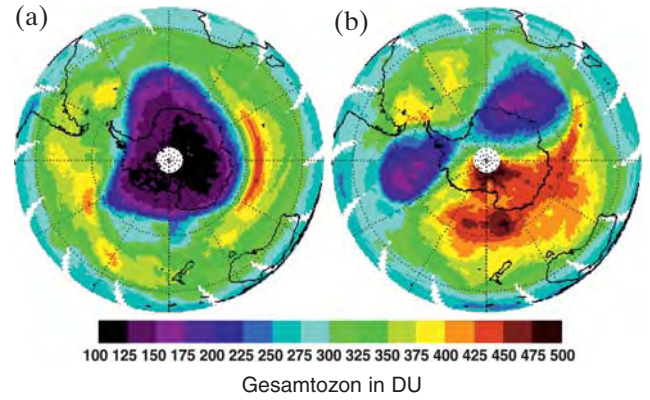


Abb. 1-8: Darstellung der Ozongesamtsäule über der Südhemisphäre, Angaben in DU. Messungen des TOMS-Instruments auf dem Satelliten Earth Probe am 25. September 2001 (a) und am 25. September 2002 (b) (Quelle: NASA/GSFC).

diese ungewöhnliche Situation in der Südhemisphäre gegeben werden kann, zeigt es doch auf sehr beeindruckende Art den starken Einfluss der Dynamik auf die Chemie und damit auf die Ozonmenge in den Polargebieten. Bisher hat kein GCM/CCM eine große Stratosphärenenerwärmung in der Südhemisphäre simuliert. Die Tatsache, dass solch ein extremes Ereignis bisher nicht von Modellen dieser Art simuliert wurde, deutet darauf hin, dass es möglicherweise noch weitere Defizite in den Modellen gibt, die unter Umständen im Zusammenhang mit der Anregung und Ausbreitung von planetaren Wellen stehen.

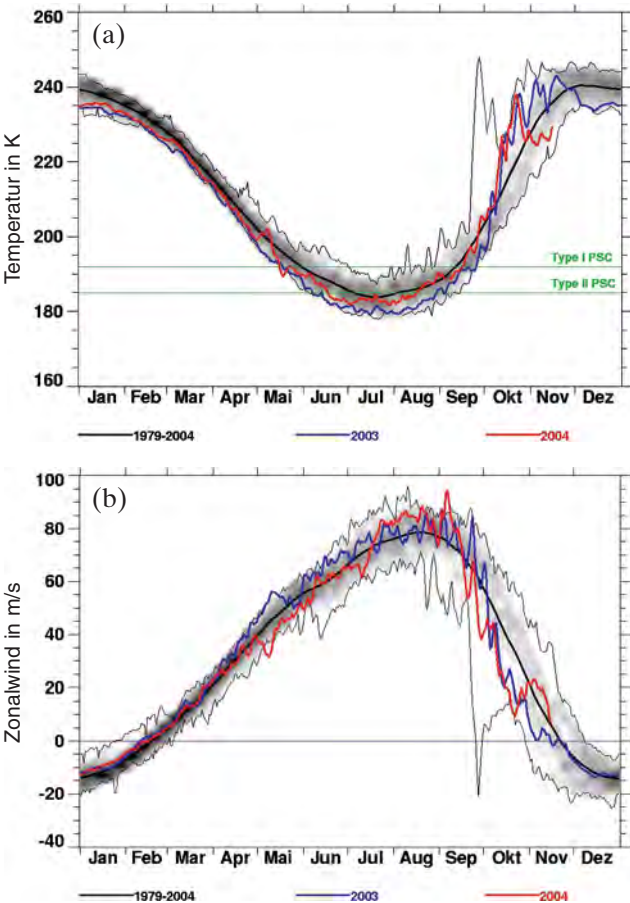


Abb. 1-7: Zeitliche Entwicklung (a) der zonal gemittelten Temperatur in 80° S, 30 hPa und (b) des zonal gemittelten Zonalwindes in 60° S, 10 hPa. Dargestellt ist jeweils der klimatologische Mittelwert (schwarze Linien) sowie die Minimum- und Maximumwerte für den Zeitraum 1979 bis 2003 (Schattierungen). Die Werte für das Jahr 2003 sind als blaue Linien eingetragen. Im Teilbild (a) geben die Linien Type I PSC bzw. Type II PSC die Bildungstemperaturen für polare Stratosphärenwolken vom Typ I (NAT) bzw. vom Typ II (EIS) an, bei Mischungsverhältnissen für HNO₃ = 6 ppbv und H₂O = 4 ppmv. (Quelle: P. NEWMAN (NASA), E. NASH (SSAI) und R. NAGATANI (NCEP CPC). NCEP Statistical and Climatological Analyses, NASA/GSFC).

ner deutlichen Erholung der Ozonschicht über der südlichen Hemisphäre in den darauf folgenden Jahren zu rechnen ist. Der Regenerierungsprozess ist allerdings durch den Treibhauseffekt verlangsamt. Eine vollständige Erholung wird etwa für die Mitte dieses Jahrhunderts prognostiziert. Der Beginn der Erholung der Ozonschicht über der polaren Nordhemisphäre ist weitaus schwieriger vorher zu sagen. Bedingt durch die hohe interannuale Variabilität der Dynamik der Stratosphäre ist der Zeitpunkt nicht eindeutig festzulegen. Eine sichtbare (im statistischen Sinne signifikante) Zunahme der Ozonschichtdicke wird nach diesen Modellrechnungen etwa ab dem Jahr 2010 erwartet. Die Unsicherheiten der Prognosen für die Entwicklung der Ozonschicht der Nordhemisphäre werden ferner dadurch erhöht, weil nicht klar ist, ob der Treibhauseffekt in den nächsten Jahren zu einer weiteren Abkühlung der Stratosphäre führen wird (reiner Strahlungseffekt) oder ob möglicherweise durch dynamische Vorgänge eine Erwärmung (engl. dynamic heating) zu erwarten ist. Es ist nicht auszuschließen, dass durch stärkere Anregung planetarer Wellen in einer wärmeren Troposphäre die Stratosphäre dynamisch stärker gestört wird und damit eine Kompensation der strahlungsbedingten Abkühlung durch erhöhte Treibhausgaskonzentrationen stattfinden kann (SCHNADT et al.

2002). In dem einen Fall würde, wie in der antarktischen Stratosphäre, eine verlangsamte Erholung der Ozonschicht die Folge sein, wogegen sich bei einer Erwärmung der Stratosphäre die Ozonschicht relativ schnell (in weniger als 20 Jahren) zurückbilden könnte. Für die Nordhemisphäre ist dies die alles entscheidende Frage. Sie macht deutlich, dass die Kopplung von dynamischen und chemischen Prozessen in der Atmosphäre von herausragender Bedeutung ist.

Die zu erwartenden Verbesserungen in unserem Verständnis der dynamischen, physikalischen und chemischen Prozesse und ihrer Wechselwirkungen werden sicherlich zu einer weiteren Entwicklung der Modelle führen. Dies setzt allerdings voraus, dass Langzeitbeobachtungen fortgesetzt werden, um eine belastbare Datengrundlage zu haben, mit der die Modelle überprüft werden können.

5 Schlussbemerkungen

Das modellhafte Nachbilden der in den vorherigen Abschnitten beschriebenen komplexen Prozesse erfordert den Einsatz der höchsten jeweils verfügbaren Computerressourcen. Neben der Weiterentwicklung des Verständnisses der dynamischen, chemischen und physikalischen Prozesse in der Atmosphäre muss auch die Effizienz der Modelle vorangetrieben werden. Die derzeit verfügbaren Modellsysteme müssen anhand von Beobachtungen überprüft werden. Dies geschieht durch Nachsimulation von Vorgängen in der Vergangenheit. Fällt die Überprüfung der Modelle befriedigend aus, können Vorhersagen für die Zukunft gewagt werden. Dann treten allerdings zu den Defiziten im wissenschaftlichen Verständnis noch Unsicherheiten in der Voraussage der zukünftigen sozio-ökonomischen Entwicklung hinzu. Die letzteren führen zu der Notwendigkeit, verschiedene „Emissionsszenarien“ hinsichtlich der zu erwartenden anthropogenen Eingriffe in das System zu berücksichtigen.

Bei den halogenierten Kohlenwasserstoffen ist ein Rückgang ihrer atmosphärischen Konzentrationen und damit ihres Beitrages zum Treibhauseffekt und zur stratosphärischen Ozonerstörung zu erwarten. Dagegen muss für die gut durchmischten Treibhausgase, insbesondere für CO₂ aber auch für CH₄ und N₂O, mit einem weiteren Anstieg gerechnet werden. Dies führt zu einer weiteren Erwärmung der Troposphäre und des Erdbodens und zu einer weiteren strahlungsbedingten Abkühlung der Stratosphäre. Eine Abkühlung der Stratosphäre begünstigt die chemischen Reaktionen für die stratosphärische Ozonerstörung, so dass die antarktische Ozonschicht (Ozonloch) sich wahrscheinlich langsamer regenerieren wird als es der bereits einsetzende Rückgang der troposphärischen Konzentration halogenierter Kohlenwasserstoffe erwarten ließe. Es käme zu einer effektiveren Chloraktivierung und dieser Effekt überwiegt nach neuesten Modellrech-

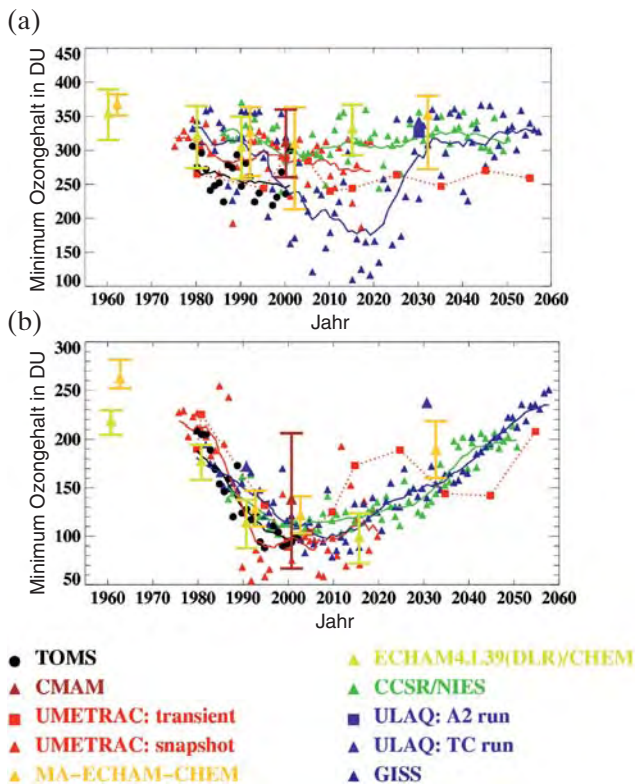


Abb. 1-9: Minimum-Werte der Ozongesamtsäule über der (a) Arktis (März/April) und der (b) Antarktis (September/Okttober/November) der verschiedenen gekoppelten Chemie-Klima-Modelle. Zum Vergleich wurden die Beobachtungen der verschiedenen TOMS-Instrumente (seit 1979) eingetragen (schwarze Punkte). Erläuterungen zu den einzelnen Modellexperimenten finden sich in AUSTIN et al. (2003) (Quelle: WMO 2003).

nungen zunächst den positiven Einfluss sinkender Chlorkonzentrationen (AUSTIN et al. 2003). Für die arktische Ozonschicht sind zurzeit keine eindeutigen Trendaussagen möglich. Dies liegt daran, dass dort die natürliche Variabilität und Trends stark von dynamischen Rückkopplungsprozessen beeinflusst werden, die besonders schwierig vorherzusagen sind.

Die Bedeutung von troposphärischem Ozon als Treibhausgas wird in Zukunft weiter zunehmen, wenn die Emissionen der Vorläufersubstanzen CO und NO_x sowie nicht- bzw. teil-halogenierter Kohlenwasserstoffe wie erwartet weiter ansteigen. Damit wird auch der Rückkopplungseffekt von Ozon auf die Chemie der Troposphäre (z. B. die Methankonzentration) ansteigen.

Der Gesamteffekt der atmosphärischen Aerosolzunahme ist aufgrund der Komplexität besonders schwer vorherzusagen. Klimatisch wirkt er wohl eher der treibhausbedingten Erwärmung entgegen, wobei verschiedene Aerosole unterschiedlich wirken können (Sulfataerosole eher abkühlend, Rußpartikel eher erwärmend). Festzuhalten ist, dass die Lebensdauer der Aerosole in der Atmosphäre deutlich geringer ist als die der meisten Treibhausgase. Maßnahmen zur Reduktion der Aerosolemissionen würden daher ihren Einfluss im Erdsystem weit schneller reduzieren, als zum Beispiel eine Reduktion der CO₂-Emissionen.

Ein wichtiger Mechanismus des Klimaantriebs, der in den CCMs in Zukunft mehr Berücksichtigung finden muss, ist die Wechselwirkung von troposphärischem und stratosphärischem Aerosol mit der solaren und terrestrischen Strahlung. Es ist notwendig, die verschiedenen physikalischen Prozesse zu berücksichtigen, die die Verteilung der verschiedenen Aerosolkomponenten beeinflussen.

Bei der Komplexität der in der Atmosphäre wirkenden Prozesse ist die Quantifizierung des Gesamteffektes aller anthropogenen Einflüsse sowie der gleichzeitig ablaufenden natürlichen Veränderungen eine Herausforderung für die Wissenschaft. Überraschungen sind dabei nicht auszuschließen, zum Beispiel ist die Wirkung der Ersatzstoffe (teil-halogenierte Fluorchlorkohlenwasserstoffe, HFCKW) für die nicht mehr produzierten FCKW noch weitgehend unerforscht, ebenso die Wirkung vieler Aerosolkomponenten auf Chemie, Wolken und Klima.

Aufgrund dynamischer, chemischer und physikalischer Störungen können chemische Prozesse in der Atmosphäre selbst modifiziert werden, wodurch sich Produktions- und Verlustraten und damit die Lebenszeiten von Aerosolen und Treibhausgasen verändern. Auf längeren Zeitskalen (Dekaden) müssen ferner Rückkopplungseffekte berücksichtigt werden, bei denen Klimaänderungen zu veränderten Zirkulationsmustern (Windsystemen) führen. Diese Faktoren wieder-

rum können die Quellen und Senken, d. h. die atmosphärischen Budgets von Spurengasen und Aerosolen beeinflussen, die dann ihrerseits auch wieder auf das Klima Einfluss nehmen.

Eine Vertiefung des Verständnisses der komplexen Wechselwirkungen zwischen sich simultan ändernden chemischen, physikalischen und dynamischen Prozessen in der Atmosphäre ist notwendig. Gerade in den letzten Jahren wurde eine Reihe von Fortschritten erzielt, vor allem durch intensive Vergleiche von Modellresultaten und Beobachtungen. Trotz aller Schwierigkeiten bei der Modellierung atmosphärischer Prozesse darf nicht vergessen werden, dass die zur Verfügung stehende Datenbasis zur Überprüfung der wissenschaftlichen Theorien, Konzepte und Modelle immer noch lückenhaft ist. In Zukunft müssen die zur Verfügung stehenden Daten effektiv genutzt werden. Nicht nur die Messungen der verschiedenen Instrumente an Bord des Umweltforschungssatelliten ENVISAT (z. B. MIPAS, SCIAMACHY, GOMOS) stehen hier zur Verfügung (siehe Kapitel 8). Weiterhin müssen weitere Anstrengungen unternommen werden, um neue Techniken und Programme zur Untersuchung der sich verändernden Atmosphäre zu entwickeln.

Literatur

- APPENZELLER, C., A. K. WEISS, J. STÄHELIN, 2000: North Atlantic Oscillation modulates total ozone winter trends. *Geophys. Res. Lett.* **27**, 1131-1134.
- AUSTIN, J., D. SHINDELL, S. R. BEAGLEY, C. BRÜHL, M. DAMERIS, E. MANZINI, T. NAGASHIMA, P. NEWMAN, S. PAWSON, G. PITARI, E. ROZANOV, C. SCHNADT, T. G. SHEPHERD, 2003: Uncertainties and assessments of chemistry-climate models of the stratosphere. *Atmos. Chem. Phys.* **3**, 1-27.
- EU-BERICHT, 2003: European Report on Ozone-Climate Interactions, The effect of changes in climate on stratospheric ozone, Air Pollution Research Report No. 81, Europäische Kommission, EUR 20623, ISBN 92-894-5619-1, 53-71.
- FORSTER, P. M. DE F., K. TOURPALI, 2001: The effect of tropopause height changes on the calculation of ozone trends and their radiative forcing. *J. Geophys. Res.* **106**, 12241-12252.
- FUSCO, A. C., M. L. SALBY, 1999: Interannual variations of total ozone and their relationship to variations of planetary wave activity. *J. Clim.* **12**, 1619-1629.
- HOOD, L. L., S. ROSSI, M. BEULEN, 1999: Trends in lower stratospheric zonal winds, Rossby wave breaking behaviour, and column ozone at northern midlatitudes. *J. Geophys. Res.* **104**, 24321-24339.
- HURRELL, J. W., Y. KUSHNIR, G. OTTERSEN, M. VISBECK (Hrsg.), 2003: An overview of the North Atlantic Oscillation, in *The North Atlantic Oscillation: Climatic significance and environmental impact*, *Geophys. Monogr.* **134**, 279 S.
- IPCC-SRES, 2000: Special report on emission scenarios, N. NAKICENOVIC et al., (Hrsg.), *Cambridge University Press*, 599 S.
- IPCC-TAR (Third Assessment Report), 2001: Climate Change 2001, J. HOUGHTON et al. (Hrsg.), *Cambridge University Press*, 944 S.

- LANZANTE, J. R., S. A. KLEIN, D. J. SEIDEL, 2003: Temporal homogenization of monthly radiosonde temperature data. Part II: Trends, sensitivities, and MSU comparison. *J. Clim.* **16**, 241-262.
- MAHIEU, E., R. ZANDER, P. DEMOULIN, M. DE MAZIÈRE, F. MELEN, C. SERVAIS, G. ROLAND, L. DELBOUILLE, J. POELS, R. BLOMME, 2000: Fifteen year-trend characteristics of key stratospheric constituents measured by FTIR above the Jungfrauoch, in Stratospheric Ozone 1999, Proc. 5th European Symp., 27 September - 1 October 1999, St. Jean de Luz, France, eds. N.R.P. Harris, M. Guirlet, and G. Amanatidis, Air Pollution Research Rep. 73, EUR 19340, 99-102, European Commission, Luxemburg.
- OLTMANS, S. J., H. VÖMEL, D. J. HOFMANN, K. H. ROSENLOF, D. KLEY, 2000: The increase of stratospheric water vapour from balloonborne, frostpoint hygrometer measurements at Washington D.C., and Boulder, Colorado. *Geophys. Res. Lett.* **27**, 3453-3456.
- PERLWITZ, J., H.-F. GRAF, 1995: The statistical connection between tropospheric and stratospheric circulation of the northern hemisphere in winter. *J. Clim.* **8**, 2281-2295.
- PETERS, D., G. ENTZIAN, G. SCHMITZ, 1996: Ozone anomalies over the North Atlantic-European region during January 1979-1992: Linear modeling of horizontal and vertical ozone transport by ultra-long waves. *Contrib. Atmos. Phys.* **69**, 477-489.
- PITARI, G., E. MANCINI, V. RIZI, D.T. SHINDELL, 2002: Impact of future climate and emission changes on stratospheric aerosols and ozone. *J. Atmos. Sci.* **59**, 414-440.
- RAMASWAMY, V., M. L. CHANIN, J. ANGELL, J. BARNETT, D. GAFFEN, M. GELMAN, P. KECKHUT, Y. KOSHELKOV, K. LABITZKE, J. J. R. LIN, A. O'NEILL, J. NASH, W. RANDEL, R. ROOD, K. SHINE, M. SHIOTANI, R. SWINBANK, 2001: Stratospheric temperature trends: Observations and model simulations. *Rev. Geophys.* **39**, 71-122.
- RANDEL, W. J., F. WU, 1999: Cooling of the Arctic and Antarctic polar stratosphere due to ozone depletion. *J. Clim.* **12**, 1467-1479.
- RANDEL, W. J., F. WU, S. J. OLTMANS, K. ROSENLOF, G. E. NEDOLUHA, 2004: Interannual changes of stratospheric water vapor and correlations with tropopause temperatures. *J. Atmos. Sci.* **61**, 2133-2147.
- REID, S. J., A. F. TUCK, G. KILADIS, 2000: On changing abundance of ozone minima at northern midlatitudes. *J. Geophys. Res.* **105**, 12169-12180.
- REX, M., R. J. SALAWITCH, P. VON DER GATHEN, N. R. P. HARRIS, M. P. CHIPPERFIELD, B. NAUJOKAT, 2004: Arctic ozone loss and climate change. *Geophys. Res. Lett.* **31**, doi:10.1029/2003GL018844.
- ROSCOE, H. K., J. D. SHANKLIN, S. R. COLWELL, 2004: Has the Antarctic vortex split before 2002? *J. Atmos. Sci.*, special issue on the 2002 ozone hole.
- ROSENLOF, K. H., S. J. OLTMANS, D. KLEY, J. M. RUSSELL III, 2001: Stratospheric water vapour increases and the past half-century. *Geophys. Res. Lett.* **28**, 1195-1198.
- SANTER, B. D., R. SAUSEN, T. M. L. WIGLEY, J. S. BOYLE, K. ACHUTARAO, C. DOUTRIAUX, J. E. HANSEN, G. A. MEEHL, E. ROECKNER, R. RUEDY, G. SCHMIDT, K. E. TAYLER, 2003: Behavior of tropopause height and atmospheric temperature in models, reanalyses, and observations. Part I: Decadal changes. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002JD002258.
- SCHNADT, C., M. DAMERIS, M. PONATER, R. HEIN, V. GREWE, B. STEIL, 2002: Interaction of atmospheric chemistry and its impact on stratospheric ozone. *Clim. Dyn.* **18**, 501-517.
- SCHNADT, C., M. DAMERIS, 2003: Relationship between North Atlantic Oscillation changes and an accelerated recovery of stratospheric ozone in the northern hemisphere. *Geophys. Res. Lett.* **30**, doi:10.1029/2003GL017006.
- SHINE, K. P., M. S. BOURQUI, P. M. DE F. FORSTER, S. H. E. HARE, U. LANGEMATZ, P. BRAESICKE, V. GREWE, M. PONATER, C. SCHNADT, C.A. SMITH, J. D. HAIGH, J. AUSTIN, N. BUTCHART, D. T. SHINDELL, W. J. RANDEL, T. NAGASHIMA, R. W. PORTMANN, S. SOLOMON, D. J. SEIDEL, J. LANZANTE, S. KLEIN, V. RAMASWAMY, M. D. SCHWARZKOPF, 2003: A comparison of model-simulated trends in stratospheric temperatures. *Q.J.R. Meteorol. Soc.* **129**, 1565-1588.
- SPARC, 1998: Assessment of trends in the vertical distribution of ozone, SPARC Report 1, WMO Ozone Research and Monitoring Project Report **43**, (verfügbar unter <http://www.aero.jussieu.fr/~sparc/>).
- STÄHELIN, J., A. J. MÄDER, K. WEISS, C. APPENZELLER, 2002: Causes of northern mid-latitude stratospheric ozone trends. *Phys. Chem. Earth* **27**, 461-469.
- STEINBRECHT, W., H. CLAUDE, U. KÖHLER, K. P. HOINKA, 1998: Correlations between tropopause height and total ozone: Implications for longterm changes. *J. Geophys. Res.* **103**, 19183-19192.
- THOMPSON, D. W. J., J.M. WALLACE, 1998: The Arctic Oscillation signature in the wintertime geopotential height and temperature fields. *Geophys. Res. Lett.* **25**, 1297-1300.
- WAIBEL, A. E., T. PETER, K. S. CARSLAW, H. OELHAF, G. WETZEL, P. J. CRUTZEN, U. PÖSCHL, A. TSIAS, E. REIMER, H. FISCHER, 1999: Arctic ozone loss due to denitrification. *Science* **283**, 2064-2069.
- WMO, 2003: Scientific Assessment of Ozone Depletion: 2002, World Meteorological Organisation, Global Ozone Research and Monitoring Project, Report Nr. **47**.
- ZHOU, S., M. E. GELMAN, A. J. MILLER, 2000: An inter-hemisphere comparison of the persistent stratospheric polar vortex. *Geophys. Res. Lett.* **27**, 1123-1126.