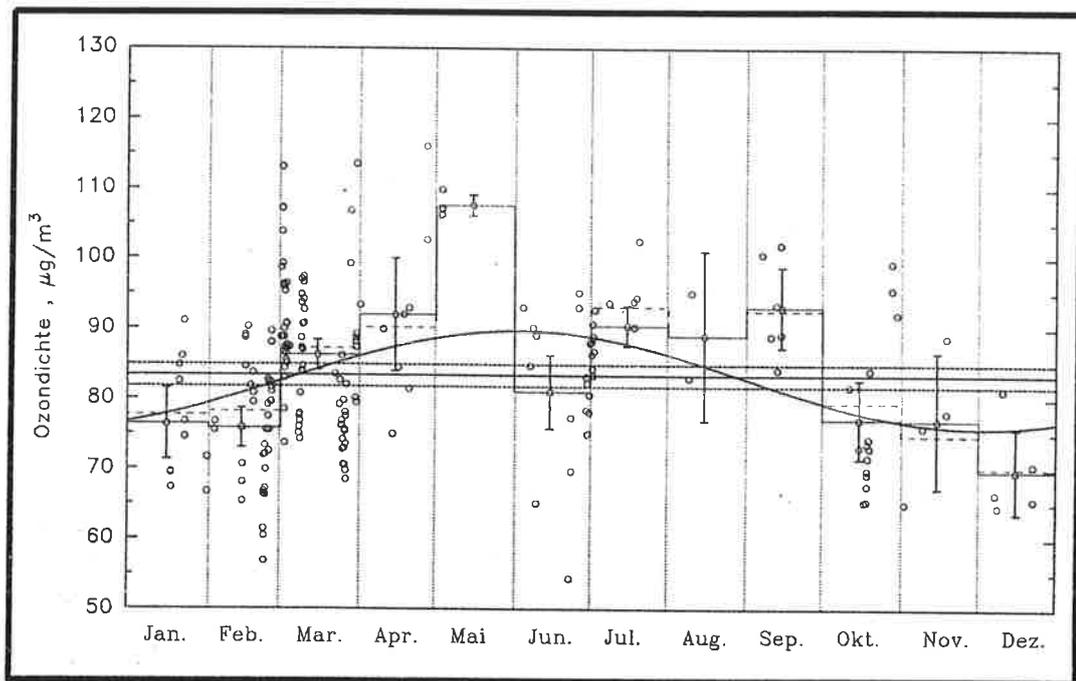




Max-Planck-Institut für Meteorologie

EXAMENSARBEIT Nr. 31



UNTERSUCHUNGEN TROPOSPHÄRISCHEN OZONS MIT DIAL

VON

GUNTHER C. GRABBE

HAMBURG, November 1995

Dissertation im Rahmen des Promotionsverfahrens

Autor:

Gunther C. Grabbe

Max-Planck-Institut
für Meteorologie

MAX-PLANCK-INSTITUT
FÜR METEOROLOGIE
BUNDESSTRASSE 55
D-20146 Hamburg
F.R. GERMANY

Tel.: +49-(0)40-4 11 73-0
Telefax: +49-(0)40-4 11 73-298
E-Mail: <name> @ dkrz.d400.de

Untersuchungen troposphärischen Ozons mit DIAL

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften im Fachbereich
Geowissenschaften
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Gunther C. Grabbe
aus Stade

angefertigt im
Max-Planck Institut für Meteorologie Hamburg
1995

ISSN 0938-5177

Als Dissertation angenommen vom Fachbereich Geowissenschaften
der Universität Hamburg

aufgrund der Gutachten von Herrn Prof. Dr. H. Graß
und Herrn Prof. Dr. H. Jeske

Hamburg, den

Prof. Dr. M. Dunst
Sprecher des Fachbereiches Geowissenschaften

meiner lieben Frau

Vivian

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden Meßdaten, die von einem Ozon-DIAL stammen, unter verschiedenen meteorologischen Aspekten untersucht.

Zur Prüfung der Zuverlässigkeit der Daten wird zunächst ein umfangreicher Vergleich von Messungen des DIAL mit Messungen von herkömmlichen elektrochemischen Sonden durchgeführt. Erstmals wird ein Systemvergleich nicht nur zwischen Ozon-DIAL und freifliegenden Sonden durchgeführt, sondern auch mit Fesselballonsonden. Die Ergebnisse zeigen eine sehr gute Übereinstimmung. Die mittlere Abweichung der 10 verglichenen Messungen mit freifliegenden Sonden beträgt $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (4.1 %). Die sechs Vergleiche der Fesselsondenmessungen mit DIAL-Messungen haben im Mittel eine Abweichung von $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.5 %). Durch die neuartige Vergleichsmethode mit Fesselsonden sind bei längeren Messungen auch Vergleiche der Trends und der Standardabweichungen der Meßdaten möglich. Zur Klärung der Frage, was die größere Standardabweichung der Lidarmessung in drei von vier Fällen verursacht, werden von diesen Vergleichsmessungen Analysen der spektralen Varianzdichte durchgeführt. Nur an Grenzen mit starken Aerosolgradienten ist die DIAL-Auswertung durch mangelnde Kenntnis der Aerosolparameter nennenswert fehlerbehaftet.

Bei der Untersuchung einer Ozonepisode ergibt sich ein Anstieg der Ozondichte um $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Grenzschicht (PBL) innerhalb von 60 Stunden und nur von ca. 3% in der unteren freien Troposphäre (LFT) in den ersten 24 Stunden. In der Nacht existieren anhaltend hohe Werte in der ehemaligen PBL, während nur in Bodennähe ein Ozonabbau stattfindet. Ein Teil des Ozonanstiegs in der PBL kann mittels Rückwärtstrajektorienberechnungen auf Advektion aus Ostdeutschland und Tschechien zurückgeführt werden.

Bei der Modellierung einer Episode müssen drei Faktoren genau bekannt sein: Advektion, Durchmischung und Schichtdicken der Atmosphäre. In dem hier gezeigten Beispiel sind die Werte in der PBL besser modelliert als am Boden. Insgesamt werden mit dem hier benutzten Modell gute Ergebnisse bei der Modellierung einer Episode erzielt, wenn die drei Faktoren berücksichtigt werden.

Mit dem Ozon-DIAL war es möglich, den Jahresgang der Ozondichte in der LFT zu messen. Der Minimalwert der Messungen innerhalb der drei Meßjahre ist $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$, der Maximalwert $116 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Mittel über alle Messungen ergibt sich ein Wert von $83 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Monatsmittel liegen zwischen ca. $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Dezember und $108 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Mai.

Der Einfluß der meteorologischen Parameter Temperatur, relative Feuchte, Windrichtung und -geschwindigkeit ist in der LFT bis auf die Windrichtung deutlich geringer als am Boden. Durch lineare Regression, bzw. Anpassung einer Kosinus Funktion, kann die Standardabweichung der Residuen im Vergleich zur Standardabweichung der Einzelwerte vom Mittelwert in der LFT nicht signifikant reduziert werden, während dieses in Bodennähe bei der Korrelation mit der Temperatur und der relativen Feuchte gelingt.

Bei verschiedenen Großwetterlagen (GWL) ergibt sich bei tropischen Luftmassen im Mittel 6% mehr Ozon in der LFT, während sich bei maritimen Luftmassen bis zu 8% weniger Ozon ergeben. In Bodennähe sind die Ozonwerte bei kontinentaler Tropikluft 14% höher, bei maritimer Tropikluft sind sie 15% niedriger als im Mittel über alle Messungen. Bedingt durch die große Streuung der Werte, ist die Standardabweichung der Residuen auch bei einer Einteilung in GWL nicht signifikant gegenüber der Standardabweichung der Einzelwerte vom Mittelwert verringert.

Abstract

This work contains meteorological investigations of ozone measurements by using the DIAL technique.

An extensive intercomparison of DIAL measurements and measurements made by an ECC sonde was made to check the reliability of the system. For the first time results of an ozone DIAL were compared to results of free flying sondes and tethersondes. The agreement is very good. The average difference of the 10 compared measurements with free flying sondes was $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (4.1 %). The six comparisons of results of the tethersonde showed an average difference of $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.5 %). The new technique of comparing DIAL measurements with tethersondes also allowed intercomparisons of trends and standard deviations of the measurements. In order to answer the question of what caused the larger standard deviation of the lidar measurement in three out of four cases an analysis of the spectral density of the variance was made. The lidar measurement contains errors only at heights with large gradients in the aerosol concentration caused by uncertainties in the knowledge of the aerosol parameters.

During an ozone episode the increase of the ozone density was about $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in the boundary layer (PBL) within 60 hours, while there is an increase of only 3 % in the lower free troposphere (LFT) within the first 24 hours. During the night persisting high ozone densities exist within the former PBL while there is a reduction of ozone at ground level. The increase of ozone within the PBL could partly be explained with advection of ozone rich air from East Germany and the Czech Republic by calculating backward trajectories.

To model an ozone episode three factors have to be known: advection, turbulent mixing and thickness of the atmospheric layers. In the case shown here, the PBL values were modeled better than the values at ground level. Altogether, the results from the model used here were satisfying, if the three factors are taken into account.

With the MPI ozone DIAL it is possible to measure the annual variation of the ozone density in the LFT. The minimal measured value within the three years of measurements is $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$, the maximal value $116 \mu\text{g}/\text{m}^3$. The average is $83 \mu\text{g}/\text{m}^3$. The monthly mean values varied between $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in December and $108 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in May.

The influence of meteorological parameters, such as temperature, relative humidity, wind direction and wind velocity is much less in the LFT than at ground level with the exception of the wind direction. Due to linear regression or fit of a cosinus function to the data, the standard deviation can not be reduced significantly in comparison to the standard deviation from the mean value within the LFT, while at ground level there is a significant reduction when correlating ozone with temperature or relative humidity.

Under different Grosswetterlagen (GWL), there was 6 % more ozone during tropical air masses in the LFT, while there was 8 % less ozone during maritime air masses than on the average. At ground level there was 14 % more ozone during continental air masses of tropical origin and 15 % less during maritime air masses of tropical origin than on the average. Due to the large scattering of the data, the standard deviation could not be reduced significantly in comparison to the standard deviation from the average value by splitting up the data into GWL.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Meßmethodik	4
2.1	Das LIDAR-Prinzip	4
2.2	Das DIAL-Prinzip	5
2.3	Wellenlängenbereich für Ozonuntersuchungen	7
2.4	Korrekturen	8
2.4.1	Rayleighkorrektur	9
2.4.2	Aerosolkorrektur	10
2.4.3	Korrektur aufgrund anderer absorbierender Gase	12
3	Messungen	14
3.1	Das MPI-Ozon-DIAL	14
3.2	Der Ozonmonitor	19
3.3	Der Meteorologische Mast	20
3.4	Der Meßort	21
4	Datenauswertung	22
4.1	Bearbeitung der Rohdaten	22
4.1.1	Technische Parameter	22
4.1.2	Beispiel einer graphischen Rohdatendarstellung	23
4.1.3	Auswertebedingte Parameter	25
4.2	Berechnung der Profile	26
4.2.1	Das Aerosolrückstreuprofil	26
4.2.2	Das Ozonprofil	30
5	Vergleich Lidar / ECC-Sonde	32
5.1	Ozonmessungen mit ECC-Sonden und Lidar	34

5.1.1	Der Meßort	34
5.1.2	Das Meßprinzip der Sonde	35
5.1.3	Vorbereitung der Messungen	36
5.1.4	Erfassung und Aufbereitung der Sondendaten	37
5.2	Definition der statistischen Variablen	38
5.3	Meßergebnisse	39
5.3.1	Vergleich Fesselballonsonde / Lidar	39
5.3.1.1	Vergleiche am 8.6.94	41
5.3.1.2	Vergleiche am 14.6.94	48
5.3.1.3	Vergleich am 20.6.94	53
5.3.2	Vergleich freifliegende Sonde / Lidar	57
5.3.2.1	Vergleich der Bodenwerte	59
5.3.2.2	Allgemeiner Vergleich	60
5.3.2.3	Vergleich am 8.6.94, 16:44 UT	62
5.3.2.4	Vergleich am 18.6.94, 5:00 UT	63
5.3.2.5	Vergleich am 20.6.94, 10:49 UT	65
5.3.2.6	Vergleich am 21.6.94, 4:52 UT	66
5.3.3	Fehlerbetrachtung	68
5.4	Zusammenfassung	72
6	Untersuchung einer Ozonepisode	73
6.1	Untersuchung mit DIAL	74
6.1.1	DIAL - Parameter während der Episode	74
6.1.2	Meßergebnisse	75
6.1.2.1	Lidarergebnisse am Vor- und Nachmittag	75
6.1.2.2	Lidarergebnisse am Abend	76
6.1.2.3	Lidarergebnisse unter nächtlichen Bedingungen	76
6.2	Untersuchungen mit einem Trajektorienmodell	79
6.2.1	Modellparameter	79
6.2.2	Modellergebnisse	80
6.2.3	Genauigkeitsabschätzung	82
6.3	Simulation mit einem Säulenmodell	86
6.3.1	Das Säulenmodell	86
6.3.1.1	Feste Modellparameter	86
6.3.1.2	Freie Modellparameter	88
6.3.2	Modellvarianten	89

6.3.3	Vergleich Lidarergebnisse - Modellergebnisse	92
6.3.3.1	Initialisierung	92
6.3.3.2	Vergleich nach 26 Stunden	94
6.3.3.3	Vergleich nach 36 Stunden	95
6.3.3.4	Vergleich nach 50 Stunden	97
6.3.3.5	Vergleich nach 60 Stunden	98
6.3.4	Bewertung und Fazit	99
6.4	Zusammenfassung	101
7	Die Variation des Ozons	103
7.1	Allgemeine Methodik	103
7.2	Der Jahresgang der Ozondichte	105
7.2.1	Methodik	105
7.2.2	Ergebnisse	106
7.2.2.1	Der Jahresgang in der LFT	106
7.2.2.2	Der Jahresgang in Bodennähe	108
7.3	Ozonvariation in Abhängigkeit meteorologischer Parameter	110
7.3.1	Methodik	110
7.3.2	Ergebnisse	112
7.3.2.1	Korrelation Temperatur – Ozondichte	117
7.3.2.2	Korrelation relative Feuchte – Ozondichte	117
7.3.2.3	Korrelation Windgeschwindigkeit – Ozondichte	118
7.3.2.4	Korrelation Windrichtung – Ozondichte	118
7.4	Einfluß der Großwetterlage auf die Ozondichte	119
7.4.1	Methodik	119
7.4.2	Ergebnisse	120
7.5	Fehlerdiskussion	123
7.6	Zusammenfassung	123
8	Schlußbetrachtung und Ausblick	126
9	Symbolverzeichnis	130

Kapitel 1

Einleitung

Die Troposphäre ist der unterste Teil der Atmosphäre. Die Luft der Troposphäre ist ein Gasgemisch, hauptsächlich bestehend aus 78.08 % Stickstoff, 20.95 % Sauerstoff und 0.93 % Argon Möller (1973). Neben Kohlendioxid ist Ozon das wichtigste Spurengas in trockener Luft. Ozon ist kein primäres Gas, sondern es wird durch andere Gase, sogenannte Vorläufergase, gebildet. Die für die Bildung von troposphärischem Ozon in erster Linie verantwortlichen Substanzen sind Stickoxide, flüchtige organische Substanzen VOC (volatile organic compounds) und Kohlenmonoxid. Damit ist der Anteil des Ozons in der Luft abhängig von der Konzentration dieser Gase in der Troposphäre.

Ozon absorbiert in verschiedenen Bereichen des Spektrums der elektromagnetischen Strahlung. Im ultravioletten Bereich spielt Ozon eine wichtige Rolle aufgrund der vollständigen Absorption von Sonnenlicht unterhalb von $0.29 \mu\text{m}$. Diese Absorption verhindert zu hohe Pegel der für alle Lebewesen gefährlichen Strahlung im UV-B Strahlungsbereich von 0.28 bis $0.32 \mu\text{m}$ Wellenlänge. Im spektralen Bereich des atmosphärischen Fensters, welches den Wellenlängenbereich zwischen 8 und $13 \mu\text{m}$ umfaßt, kann die Erdoberfläche Energie in den Weltraum abstrahlen, sofern keine Wolken vorhanden sind. Innerhalb dieses Fensters besitzt Ozon eine starke Absorptionsbande um $9.6 \mu\text{m}$ (Ramanathan und Dickinson (1979)). Deshalb trägt Ozon wesentlich zum Treibhauseffekt bei.

In den letzten Jahren wird in der Wissenschaft nicht nur über einen starken Abbau stratosphärischen Ozons zu Beginn des polaren Winters berichtet (WMO (1989)), sondern auch über einen Anstieg des troposphärischen Ozons (Mc Keen (1989)). Während sommerlicher Hochdruckwetterlagen ergeben sich unter bestimmten meteorologischen Bedingungen dramatisch hohe Ozonwerte in dem unteren Teil der Troposphäre. Im Bun-

desstaat Kalifornien, 60 Kilometer westlich von Los Angeles, sind von Zhao et al. (1994) weit mehr als $600 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in wenigen hundert Metern Höhe gemessen worden.

Die Diskussion um troposphärisches Ozon ist in den vergangenen Jahren mehr und mehr in den Vordergrund geraten, bedingt durch bodennah hohe Ozonwerte während über mehrere Tage andauernder sommerlicher Hochdruckwetterlagen mit hoher Sonneneinstrahlung, sogenannter Ozonepisoden. Im Jahr 1994 sind die ersten direkten politischen Schritte unternommen worden, indem das Bundesland Hessen ein Tempolimit auf Autobahnen von 90 km/h und auf Landstraßen von 80 km/h auferlegt hat, sobald der Grenzwert von $215 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an mehr als 3 Meßstationen überschritten wird. Gleichzeitig muß eine windschwache Wetterlage auch in den nächsten 28 Stunden zu erwarten sein (Hessisches Landesamt für Umweltschutz (1994)). Eine bundeseinheitliche Sommersmogverordnung wurde im Frühjahr 1995 im Bundestag diskutiert und im Juli 1995 verabschiedet. Um entsprechende politische Entscheidungen treffen zu können, bedarf es der Kenntnisse über Ozonchemie und vertikale Verteilungen von Ozon in der Atmosphäre, da das bodennahe Ozon stark durch turbulente Prozesse beeinflusst wird.

In dieser Arbeit sollen die Vertikalverteilungen von Ozon eingehend untersucht werden. Während Ozonvertikalprofile konventionell gewonnen werden, indem eine auf dem elektrochemischen Prinzip basierende Sonde an einem Ballon befestigt und zusammen mit einer Radiosonde in die Atmosphäre entsandt wird, werden Lidardaten durch das Prinzip der aktiven Fernerkundung gewonnen. Lidar steht dabei für **L**ight **d**etecting and **r**anging. Zur Messung eines Gases in der Atmosphäre wird das DIAL-Prinzip benutzt, was **D**ifferential **A**bsorption **L**idar bedeutet. Dabei macht man sich die oben erwähnte Absorption von Ozon im UV-Bereich zunutze, indem im Idealfall eine Wellenlänge innerhalb und eine außerhalb der Absorptionsbande in die Atmosphäre emittiert wird. Der Quotient der rückgestreuten Signale ist proportional zum Ozongehalt der Atmosphäre.

Seit 1985 existiert das europäische Projekt EUROTRAC, welches als Acronym steht für: **E**uropean **E**xperiment on **T**ransport and **T**ransformation of **E**nvironmentally **R**elevant **T**race **C**onstituents in the **T**roposphere over **E**urope. In dem Subprojekt **T**OR, **T**ropospheric **O**zone **R**esearch, werden hauptsächlich die atmosphärischen Prozesse hinsichtlich der vertikalen und horizontalen Ozonverteilung in der Atmosphäre untersucht. Das DIAL des MPI, **M**ax-**P**lanck-**I**nstitut für **M**eteorologie **H**amburg, deckt für Ozonvertikalmessungen den Höhenbereich der planetaren Grenzschicht (PBL) und den unteren Teil der freien Troposphäre (LFT) ab. Letzterer ist für den Menschen ein wichtiger Bereich

der Atmosphäre, da die Luft aus diesem Höhenbereich unter bestimmten meteorologischen Bedingungen bis zum Boden heruntergemischt wird. Das Meßgerät ist innerhalb des EUROTRAC-Subprojektes TESLAS, **T**ropospheric **E**nvironmental **S**tudies by **L**aser **S**ounding, entstanden. In dieser Arbeit wird das DIAL des MPI eingesetzt, um die Möglichkeiten, die diese neue Meßtechnik bietet, im Routineeinsatz zu untersuchen und zu nutzen.

Nach einer kurzen Beschreibung der Meßmethodik in Kapitel (2), der Messungen in Kapitel (3), erfolgt in Kapitel (4) die Beschreibung der Datenauswertung. Vergleichsmessungen zwischen DIAL- und Ozonsondenmessungen werden in Kapitel (5) behandelt. In Kapitel (6) wird ein mit dem Lidar gemessener zeitlicher Verlauf der Ozonvertikalprofile mit verschiedenen Simulationen der Ozonvertikalprofile eines Modells verglichen. Dabei werden die Einflüsse von Advektion und turbulenter Durchmischung innerhalb der planetaren Grenzschicht auf ihre Bedeutung für eine realistische Simulation überprüft. Im Anschluß daran soll in Kapitel (7) anhand einer Statistik geprüft werden, ob und wie stark die Ozonwerte in der freien Troposphäre variieren. Hierzu werden, neben dem Jahresgang in der Ozondichte, die Abhängigkeit der Ozondichte von meteorologischen Parametern und von der Großwetterlage untersucht. Abschließend wird ein Fazit in Kapitel 8 gezogen und diskutiert, was in Zukunft notwendig ist, um die bisher erreichten Ergebnisse zu verbessern. Ferner wird eine Anregung zur Bewältigung der Ozonproblematik gegeben.

Kapitel 2

Meßmethodik

In diesem Kapitel wird das Meßprinzip der hier angewandten Technik beschrieben. Obwohl in der Literatur schon vielfach behandelt (Schotland (1964), Zaromb (1969), Mégie und Pelon (1985), Browell et al. (1985), Kempfer et al. (1994), Goers (1994)), soll hier für ein leichteres Verständnis der technischen Einzelheiten eine kurze Zusammenfassung gegeben werden. Ferner sollen prinzipbedingte Korrekturen dieser Methodik grundsätzlich diskutiert werden.

2.1 Das LIDAR-Prinzip

Die in die Atmosphäre emittierten Lichtpulse eines Lidarsystems werden beim Durchgang durch diese geschwächt. Verantwortlich für die Schwächung sind sowohl Absorption als auch Streuung. Das aus der Atmosphäre rückgestreute Licht wird durch ein Teleskop gebündelt und auf einen Detektor gelenkt. Die Intensität des Lichts am Detektor berechnet sich nach der LIDAR-Gleichung (Collis und Russell (1976)):

$$P(\lambda, R) = P_0(\lambda) K(\lambda) \frac{c\tau}{2} A \frac{O(R)}{R^2} \beta(\lambda, R) \exp\left(-2 \int_0^R \alpha(\lambda, R') dR'\right) , \quad (2.1)$$

wobei gilt

$$\alpha(\lambda, \zeta) = \alpha_{mol}(\lambda, R') + \alpha_{aer}(\lambda, R') + \alpha_{Gas}(\lambda, R') . \quad (2.2)$$

Dabei ist

$P(\lambda, R)$	Intensität des empfangenen Lichts
P_0	Intensität des ausgesandten Lichts
λ	Wellenlänge des ausgesandten Lichts
R	Entfernung des Streuvolumens
c	Lichtgeschwindigkeit
τ	Dauer des Laserpulses
A	Empfangsfläche des Teleskops
$K(\lambda)$	Systemkonstanten
$O(R)$	Überlappfunktion
$\beta(\lambda, R)$	Rückstreukoeffizient
$\alpha_{mol}(\lambda, R')$	Extinktion durch Molekülstreuung
$\alpha_{aer}(\lambda, R')$	Extinktion durch Aerosolpartikelstreuung
$\alpha_{Gas}(\lambda, R')$	Absorption durch Gase .

Die Systemkonstanten sind durch den Aufbau der optischen Geräte bestimmt, wie z.B. der Detektoreffizienz oder Transmissionen und Reflektivitäten optischer Elemente. $O(R)$ beschreibt die Überlappung von Sendestrahle und Gesichtsfeld des Teleskops. In dem Höhenbereich, in dem dieser Faktor den Wert eins annimmt, liegt der Sendestrahle des Lidars voll im Gesichtsfeld des Teleskops. $\beta(\lambda, R)$ repräsentiert die spektrale Rückstreuung an Molekülen und Partikeln in der Atmosphäre. Der Exponentialterm gibt die Schwächung durch Absorption von Gasen und Extinktion von Luftmolekülen und Aerosolpartikeln wieder.

2.2 Das DIAL-Prinzip

Mit dem DIAL-Prinzip läßt sich die Anzahldichte eines Gases in der Atmosphäre bestimmen. Dazu werden zwei verschiedene Wellenlängen gleichzeitig oder in sehr kurzen Zeitabständen (so daß Gleichzeitigkeit annähernd gewährleistet ist) in die Atmosphäre emittiert, bei denen das zu untersuchende Gas unterschiedlich stark absorbiert. Die Wellenlänge mit der stärkeren Absorption wird im folgenden als online, die mit der schwächeren Absorption als offline bezeichnet. In Abbildung (2.1) ist die Bestimmung der Anzahldichte des zu untersuchenden Gases mit dem DIAL-Prinzip in einem Höhenintervall der Atmosphäre von der Höhe R bis zur Höhe R schematisch dargestellt.

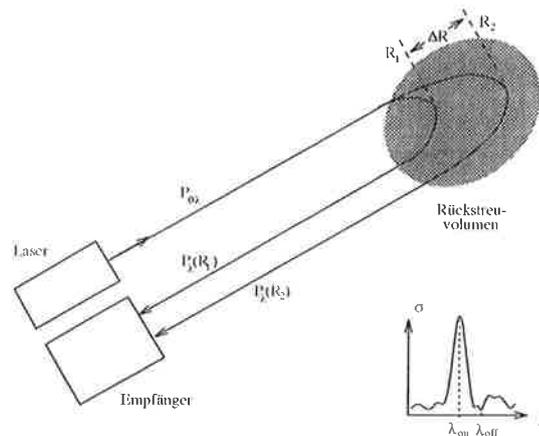


Abbildung 2.1: Das DIAL-Prinzip (nach Collis und Russel (1976)). Groß eingezeichnet die Entsendung des Laserlichtes und der Empfang des rückgestreuten Lichtes. Klein dargestellt die spektrale Abhängigkeit des Absorptionsquerschnittes σ .

Die Anzahldichte eines Gases läßt sich bestimmen durch Quotientenbildung der von beiden Wellenlängen nach Gleichung (2.1) empfangenen Signalintensitäten $P_{on}(R)$ und $P_{off}(R)$, anschließender Bildung des natürlichen Logarithmus und der Ableitung nach der Höhe R :

$$\frac{d}{dR} \ln \frac{P_{on}(R)}{P_{off}(R)} = \frac{d}{dR} \ln \frac{\beta_{on}(R)}{\beta_{off}(R)} - 2 \cdot \left(\Delta\alpha_{mol}(R) + \Delta\alpha_{aer}(R) + \Delta\alpha_{Gas}(R) \right) \quad , \quad (2.3)$$

mit

$$\beta = \beta_{mol} + \beta_{aer} \quad , \quad \Delta\alpha_{Gas}(R) = N(R) \Delta\sigma_{Gas} \quad . \quad (2.4)$$

Die verwendeten Symbole bedeuten:

- P_{on} empfangenes Signal der Wellenlänge λ_{on}
- P_{off} empfangenes Signal der Wellenlänge λ_{off}
- β_{on} Rückstreuoeffizient der Wellenlänge λ_{on}
- β_{off} Rückstreuoeffizient der Wellenlänge λ_{off}
- $\Delta\alpha_{mol}$ Differenz der Molekülextinktion $\alpha_{mol}(\lambda_{on}) - \alpha_{mol}(\lambda_{off})$,
- $\Delta\alpha_{aer}$ Differenz der Aerosolpartikelextinktion $\alpha_{aer}(\lambda_{on}) - \alpha_{aer}(\lambda_{off})$,
- $\Delta\sigma_{Gas}$ Differenz der Absorptionsquerschnitte des zu messenden Gases $\sigma_{Gas_{on}} - \sigma_{Gas_{off}}$
- $N(R)$ Anzahldichte des zu messenden Gases in der Höhe R .

Die Auflösung von Gleichung (2.3) nach der Anzahldichte $N(R)$ ergibt:

$$N(R) = \frac{1}{2\Delta\sigma} \cdot \left(\frac{d}{dR} \ln \frac{P_{off}(R)}{P_{on}(R)} - \frac{d}{dR} \ln \frac{\beta_{off}(R)}{\beta_{on}(R)} - 2\Delta\alpha_{mol}(R) - 2\Delta\alpha_{aer}(R) \right). \quad [B] \quad [\alpha] \quad (2.5)$$

Durch Übergang vom Differentialquotienten zum Differenzenquotienten läßt sich in einem endlichen Höhenbereich der Ozongehalt bestimmen.

Gleichung (2.5) beinhaltet zwei Korrekturterme. Der zweite Term in der Klammer gibt den differentiellen Rückstreuterm B , der dritte und vierte Term der Klammer den differentiellen Extinktionsterm α von Luftmolekülen und Aerosolen wieder. Die Behandlung dieser Korrekturterme bei der Berechnung der Anzahldichte eines Gases in dem Höhenbereich R der Atmosphäre wird im übernächsten Abschnitt beschrieben.

2.3 Wellenlängenbereich für Ozonuntersuchungen

In zwei Wellenlängenbereichen findet starke Absorption von Ozon statt. Zum einen absorbiert Ozon im infraroten Wellenlängenbereich in einer Bande um $9.6 \mu m$, zum anderen liegt zwischen 200 nm und 360 nm in einer breiten Absorptionsbande, der Hartley-Huggins-Bande, Ozonabsorption vor. Diese Absorptionsbande, die für die hier vorgestellten Lidarmessungen ausgenutzt wird, ist in Abbildung (2.2) dargestellt. Ihre Struktur ist nur schwach ausgeprägt. Das Maximum der Absorption liegt um 255 nm. Im Wellenlängenbereich ab 265 nm findet ein Abfall der Absorption zu größeren Wellenlängen statt. Oberhalb von 315 nm ist im Vergleich zum Maximum eine nur noch sehr schwache Absorption von Ozon vorhanden. Dieser Umstand wird für DIAL-Messungen ausgenutzt. Die verwendeten Wellenlängen des hier benutzten Lidars werden im nächsten Kapitel vorgestellt.

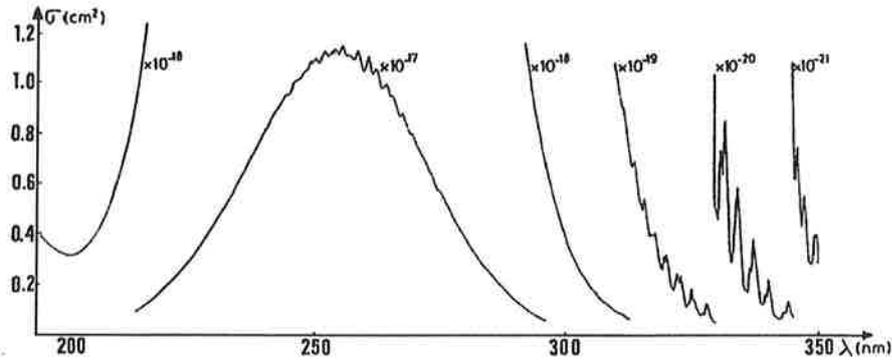


Abbildung 2.2: Die Ozonabsorptionsquerschnitte der Hartley-Huggins-Bande bei Zimmertemperatur mit einer Auflösung von 0.01 nm, nach Daumont et al. (1992).

2.4 Korrekturen

Bei der Auswertung der Ozondaten aus Lidarsignalen mittels DIAL-Gleichung bedarf es einer Korrektur aufgrund von differentieller Aerosolrückstreuung und -extinktion und differentieller Rayleighrückstreuung und -extinktion (Browell et al. (1985)). Diese meteorologisch bedingten Korrekturen sind von Messung zu Messung unterschiedlich und müssen somit vor der DIAL-Auswertung berechnet werden.

Um die Extinktion und Rückstreuung genauer zu untersuchen, läßt sich Gleichung (2.5) weiter umformen zu:

$$\begin{aligned}
 N_{O_3}(R) = & \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \left(\frac{d}{dR} \ln \frac{P_{off}(R)}{P_{on}(R)} \right) \\
 & - \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \left(\frac{d}{dR} \ln \frac{\beta_{off}(R)}{\beta_{on}(R)} \right) & [B] \\
 & - \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \left(\Delta\alpha_{aer}(R) \right) & [E_{aer}] \\
 & - \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \left(\Delta\alpha_{mol}(R) \right) & [E_{mol}] \\
 & + Q \quad . & (2.6)
 \end{aligned}$$

Dabei ist $\Delta\sigma_{O_3}$ die Differenz der Ozonabsorptionsquerschnitte bei den Wellenlängen λ_{on} und λ_{off} und Q der Querempfindlichkeitsterm zu anderen bei diesen Wellenlängen absorbierenden Gasen.

2.4.1 Rayleighkorrektur

In Term [B] der Gleichung (2.6) ist $\beta = \beta_{mol} + \beta_{aer}$. Für die Wellenlängen online und offline läßt sich β_{mol} nach Elterman (1968) berechnen aus:

$$\beta_{mol_{on/off}} = \frac{3}{8 \cdot \pi} \cdot N(R) \cdot \sigma_{mol}(\lambda_{on/off}) \quad (2.7)$$

Durch Quotientenbildung von Online- und Offlinerückstreukoeffizienten ergibt sich:

$$\frac{\beta_{mol_{off}}}{\beta_{mol_{on}}} = \frac{\sigma_{mol}(\lambda_{off})}{\sigma_{mol}(\lambda_{on})}. \quad (2.8)$$

Dieses ist unabhängig von der Höhe R , also wird der Term [B] in (2.6) dem Betrage nach Null für reine Rayleighatmosphären. Für aerosolhaltige Luft ist dieser Term von Null verschieden, es läßt sich allerdings β_{mol} nicht von β_{aer} separieren.

Der Term für die Molekülextinktion [E_{mol}] läßt sich mit der bekannten Wellenlängenabhängigkeit der Molekülstreuung von ca. λ^{-4} umformen zu:

$$\frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \left(\Delta\alpha_{mol}(R) \right) = \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \left(\alpha_{mol_{on}} - \alpha_{mol_{off}} \right) = \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \alpha_{mol_{off}} \cdot \left(\left(\frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}} \right)^{k_r} - 1 \right), \quad (2.9)$$

mit k_r als Wellenlängenexponent für Molekülstreuung. In Anlehnung an Elterman (1968), ergibt sich:

$$\alpha_{mol_{off}} = N_{Luft} \cdot \sigma_{mol}(\lambda_{off}) \quad (2.10)$$

Die Teilchenzahldichte der Luft N_{Luft} und der Rückstreukoeffizient von Luft für die offline Wellenlänge $\sigma_{mol}(\lambda_{off})$ ist bekannt und kann für die Höhe R berechnet werden.

2.4.2 Aerosolkorrektur

Die durch Aerosolpartikel bedingte Korrektur ist in Gleichung (2.6) durch zwei wellenlängenabhängige Terme, die Aerosolextinktion und -rückstreuung, verursacht. Die Wellenlängenabhängigkeit wird durch einen Potenzansatz mit den Exponenten k_β für die Rückstreuung mit

$$\beta_{aeron} = \left(\frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}} \right)^{k_\beta} \cdot \beta_{aeroff} \quad (2.11)$$

gemacht, während für die Extinktion mit k_α

$$\alpha_{aeron} = \left(\frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}} \right)^{k_\alpha} \cdot \alpha_{aeroff} \quad (2.12)$$

eingeführt wird.

Neueste Erkenntnisse von Völger et al. (1995) führen zu Werten für k_α zwischen -0.5 und -1, während für k_β unter mitteleuropäischen Verhältnissen der Wert Null empfohlen wird. Der Einfluß von k_β ist im Allgemeinen erheblich größer als der von k_α . Das Auswerteprogramm läßt nur gleiche Werte von k_α und k_β zu. Deshalb werden bei der in Kapitel (4) beschriebenen Datenauswertung k_α und k_β mit dem Wert Null angesetzt. Dieses führt zu Fehlern, die zumeist nur in der Größenordnung von wenigen $\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen.

Für den Term B in Gleichung (2.5), der die Rückstreuorkorrektur der Aerosole beinhaltet, ergibt sich nach weiterer Umformung dieser Gleichung unter Verwendung des Ansatzes aus (2.11) und durch Potenzreihenentwicklung mit der Annahme, daß $\Delta\lambda \ll \lambda$ nach Völger et al. (1995), der in Anlehnung an Browell et al. (1985) folgte:

$$\Delta N_{O_3} = -\frac{\Delta\lambda}{2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}} \cdot (4 + k_\beta) \cdot \frac{d}{dR} \left(\frac{S_r}{1 + S_r} \right) \quad (2.13)$$

mit

$$\Delta\lambda = \lambda_{off} - \lambda_{on}$$

und

$$S_r = \frac{\beta_{aer,off}}{\beta_{ray,off}}$$

Also ist die Stärke der Aerosolrückstreuakorrektur ΔN_{O_3} bei der Ozonberechnung abhängig vom Verhältnis $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ und dem differentiellen Rückstreuoeffizienten $\Delta\sigma$.

Ferner wird durch den Term $(4 + k_\beta)$ die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolpartikelrückstreuung bestimmt. Hier wird, wie oben beschrieben, der Wert Null angenommen. Allerdings kann dieser Wert mit den individuellen Rückstreuereigenschaften des vorkommenden Aerosols variieren. Aus diesem Grund ist die Aerosolkorrektur möglicherweise fehlerbehaftet.

Der dritte Term in der Aerosolrückstreuakorrektur beinhaltet den vertikalen Gradienten im Aerosolrückstreuoeffizienten. Dieses ist der einzige höhenabhängige Term in der Korrektur. An Schichtgrenzen in der Atmosphäre ändert sich $\beta_{aer,off}$ stark mit der Höhe, was zur Folge hat, daß dieser Term dort sehr groß wird. Dieses wiederum führt zu einer hohen Korrektur. Diese hohe Korrektur kann durch ungenaue Kenntnis der Rückstreuereigenschaften der Aerosole zu einem großen Fehler in der zu berechnenden Ozondichte führen.

Die Berechnung des Vertikalprofils der Aerosolrückstreuung für die Online- und die Offlinewellenlänge geschieht nach der von Fernald (1984) vorgeschlagenen Methode. Dazu muß ein Anteil der Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung in einer beliebigen Höhe abgeschätzt werden. Ein Beispiel hierzu wird in Kapitel (4.2.1) gegeben. Die Methode der Aerosolkorrektur lehnt sich an den Vorschlag von Browell et al. (1985) an. Bei der Errechnung des Vertikalprofils der Onlinewellenlänge spielt allerdings die Extinktion des Signals aufgrund von Ozon eine Rolle, welches a priori unbekannt ist. Um trotzdem dieses Profil auch für diese Wellenlänge berechnen zu können, bedarf es einer Extrapolation von der Offlinewellenlänge mit den obigen Wellenlängenabhängigkeiten. Für den Fall, daß beide Wellenlängen keine Offlinewellenlängen sind, aber verschieden starke Absorption durch Ozon besitzen, findet ein iterativer Prozeß bei der Berechnung der Aerosolprofile statt. Dieser Prozeß beginnt bei der Berechnung des Ozonwertes nach dem DIAL-Prinzip ohne Berücksichtigung der Aerosole. Nach Erhalt dieses Ozonwertes wird aufgrund des Rückstreuprofiles auf das Aerosolprofil geschlossen. Nun wird der Einfluß der Aerosole auf die Ozondichte bestimmt. Die Berücksichtigung dieses Einflusses ergibt den korrigierten

Wert.

Der Term E_{aer} gibt die differentielle Extinktion der Aerosolpartikel wieder. Dieser kann ähnlich wie Gleichung (2.9) umgeformt werden zu:

$$\frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \left(\Delta\alpha_{aer}(R) \right) = \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \left(\alpha_{aeron}(R) - \alpha_{aeroff}(R) \right) = \frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \alpha_{aeroff}(R) \cdot \left(\left(\frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}} \right)^{k_a} - 1 \right) \quad (2.14)$$

2.4.3 Korrektur aufgrund anderer absorbierender Gase

Benutzt man für DIAL-Messungen Wellenlängen, bei denen nicht nur das zu untersuchende Gas absorbiert, so müssen diese als querempfindliche Gase berücksichtigt werden. Für den hier zur Untersuchung von Ozon benutzten UV-Bereich kommen molekularer Sauerstoff, Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Wasserdampf in Frage.

In Gleichung (2.6) ist der Einfluß der Querempfindlichkeit folgendermaßen zu berücksichtigen:

$$Q = -N_Q \cdot \frac{\Delta\sigma_Q}{\Delta\sigma_{O_3}}, \quad (2.15)$$

wobei N_Q die Anzahldichte und $\Delta\sigma_Q$ den differentiellen Absorptionsquerschnitt des die Ozonmessung störenden Gases wiedergibt. Um diesen Term berücksichtigen zu können, bedarf es genauer Kenntnis sowohl der Anzahldichte als auch der spektralen Absorptionsquerschnitte dieses Gases in dem betrachteten Höhenbereich.

Die Berücksichtigung bzw. Vernachlässigung dieser Gase und der daraus resultierende Fehler bei der Berechnung der Ozonwerte wird im Detail in Schaberl (1995) diskutiert. Hier sei nur angemerkt, daß lediglich die Absorption von molekularem Sauerstoff in einem Wellenlängenbereich Berücksichtigung findet, in dem die Streuquerschnitte von molekularem Sauerstoff aufgrund von theoretischen Berechnungen hinreichend bekannt sind. Die

Anzahldichte von molekularem Sauerstoff ist über den Volumenanteil von Sauerstoff in Luft ebenfalls bekannt.

Kapitel 3

Messungen

3.1 Das MPI-Ozon-DIAL

Nachdem die Meßmethodik beschrieben worden ist, kann nun auf die Systemparameter des MPI-Ozon-DIALs eingegangen werden, mit welchem die in dieser Arbeit vorgestellten Ozonprofile gemessen worden sind. Eine Übersicht der Systemdaten gibt Tabelle (3.1), eine schematische Darstellung ist in Abbildung (3.1) gegeben.

Das MPI-DIAL basiert auf einem Krypton-Fluorid Excimer Laser mit instabiler Resonatoroptik. Die detaillierte Beschreibung dieses Systems ist in Bösenberg et al. (1993) und Schaberl (1995) zu finden. Das Meßsystem ist in einem 20-Fuß Standardcontainer installiert. Dadurch sind Messungen an verschiedenen Orten möglich.

Der Laser hat eine maximale Leistung von 250 mJ, die Ausgangswellenlänge liegt bei 248 nm mit einer Linienbreite von 0.8 nm. Der Laser wird gepulst betrieben, die Pulsdauer beträgt 22 ns. Die maximale Pulsrate beträgt 80 Hz, typisch für DIAL-Messungen sind 10 Hz.

Zur Erzeugung mehrerer Wellenlängen wird der Laserstrahl in eine mit 40 bar Wasserstoff oder Deuterium befüllte Ramanzelle fokussiert. Hier werden Anteile der emittierten Energie durch stimulierte Ramanstreuung zu anderen Wellenlängen verschoben, so daß Energieimpulse verschiedener Wellenlängen in die Atmosphäre entsandt werden. Neben der Ausgangswellenlänge werden bei einer Befüllung der Ramanzelle mit Wasserstoff die Wellenlängen 277 und 313 nm erzeugt, mit Deuterium ergeben sich 268, 292 und 319 nm. Anschließend wird der Strahl aufgeweitet und über einen Umlenkspiegel senkrecht in die Atmosphäre gesendet.

Das rückgestreute Laserlicht fällt auf ein Teleskop mit einem Parabolspiegel. Die

bistatische Anordnung des Systems, d.h. Sender und Empfänger sind nebeneinander angeordnet, bewirkt erst in einer bestimmten Höhe vollständige Überlappung zwischen Sendestrahl und Gesichtsfeld des Teleskops. Unterhalb dieser Höhe werden die Signalintensitäten aufgrund unvollständiger Überlappung unterdrückt. Die Überlappung zwischen Sendestrahl und Teleskop wird durch Verkippung des Sendestrahls in Richtung Teleskop erreicht.

Auf der Empfängerseite befinden sich Photomultiplier, die das eingefallene Licht in Strom umwandeln. Bei der Datenaufzeichnung muß darauf geachtet werden, daß die empfangenen Signale nicht übersteuert sind, da die Photomultiplier Nachwirkungen besitzen, die zu verfälschten Signalen führen Gast (1991).

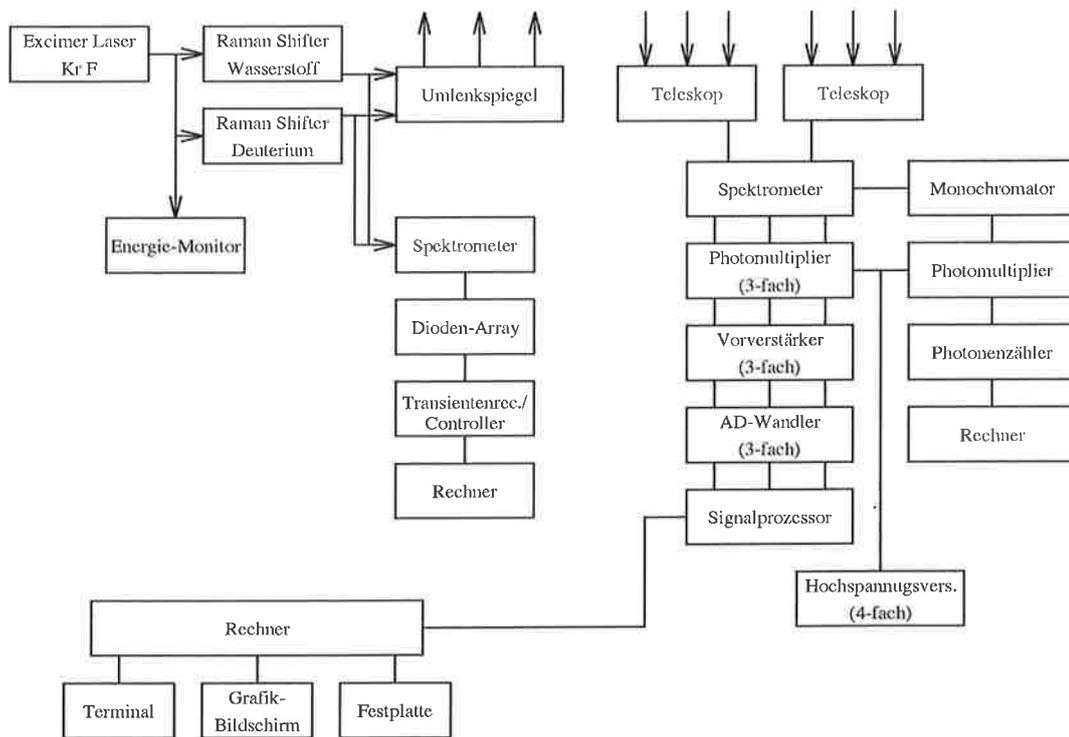


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des Ozon-DIAL

Laser		
Typ	Lambda Physik, EMG 150 MSC-T	
Wellenlänge	248 nm	
Ausgangsenergie	250 mJ	
Linienbreite (FWHM)	0.8 nm	
Pulsdauer (FWHM)	22 ns	
Wiederholungsrate	typ. 10 Hz, max. 80 Hz	
Ramanzellen		
Einkoppellinse	Plan-konvex, $f = 1$ m	
Kollimator	Parabolspiegel, $f = 3$ m	
Füllung	40 bar H ₂ / 40 bar D ₂	
Ausgangsenergie	62/19/19 mJ für 248/277/313 nm (H ₂) 60/23/13/4 mJ für 248/268/292/319 nm (D ₂)	
Divergenz	< 0.3 mrad	
Teleskope		
	Teleskop 1 (groß)	Teleskop 2 (klein)
Brennweite	1200 mm	450 mm
Durchmesser	400 mm	150 mm
Gesichtsfeld (voller Winkel)	1.0 mrad	2.7 mrad
Abstand optische Achsen Teleskop – Sendestrahl	370 mm	175 mm
Typ. Signalnutzbereich für DIAL-Messungen	800–3500 m	200–800 m
Spektrometer		
Typ	modifizierter Czerny-Turner	
Öffnungsverhältnis	f/2.5	
Lineare Dispersion	0.36 mm/nm	
Datenerfassung		
Photomultiplier	THORN EMI, 9883 QB	
Vorverstärker	Analog Modules, 10 Hz – 10 MHz	
AD-Wandler	Pentek, 12 bit, 10 MHz	
Rechner	Sun-Workstation	
Typische Auflösung		
	Zeitlich	Räumlich
Datenaufzeichnung	10 s	15 m
Ozонаuswertung	60 – 600 s	60 – 270 m

Tabelle 3.1: Systemdaten

Aufgrund der zeitlichen Auflösung der Empfangselektronik von 100 ns, ist eine Höhenauflösung von 15 m möglich. Eine zeitliche Mittelung der Signale erfolgt typischerweise über 100 Laserpulse, was bei einer Pulsrate von 10 Hz einer Mittelung über 10 s entspricht. Die Daten werden kontinuierlich aufgezeichnet. Die hohe zeitliche und vertikale Auflösung des Systems ermöglicht Untersuchungen zeitlicher Verläufe von Ozondichten in einem bestimmten Höhenbereich.

Um verschiedene Höhenbereiche der Atmosphäre zu erreichen, werden zwei voneinander unabhängige Teleskope eingesetzt. Das kleine Teleskop (Durchmesser: 15 cm) deckt bei einem Abstand der optischen Achsen zwischen Sendestrahl und Teleskop von 17.5 cm den Höhenbereich zwischen 200 und maximal 800 Metern für Ozonauswertungen ab, während das große Teleskop (Durchmesser: 40 cm) mit einem Abstand der optischen Achsen von 37 cm für Bereiche zwischen 800 und ca. 3500 Metern geeignet ist. Regelmäßige Daten des kleinen Teleskops liegen erst seit Ende Juni 1993 vor. Vor diesem Zeitpunkt wurde - außer zu Testzwecken - nur mit dem großen Teleskop gemessen.

Eine Erweiterung des Signalbereiches für schwache Signale durch Photonenzählung ist in diesem System bisher nicht integriert. Diese technischen Methoden sind z.B. in Kempfer (1992) eingehend beschrieben. Photonenzählung hätte allerdings den Nachteil, daß die zeitliche Auflösung erheblich verschlechtert wird, da die Zählraten begrenzt sind.

Hier konnten maximal drei Wellenlängen gleichzeitig aufgezeichnet werden. Bei 248 nm Wellenlänge wird aufgrund der zentralen Lage innerhalb der Ozonabsorptionsbande in der Atmosphäre Energie stark absorbiert (Vgl. Abb. 2.2). Darum werden bei Benutzung von Deuterium nur die Wellenlängen 268, 292 und 319 nm aufgezeichnet. Um eine DIAL-Auswertung durchführen zu können, steht bei der Aufzeichnung von drei Wellenlängen nur der Höhenbereich eines Teleskops für die Auswertung zur Verfügung. Um den gesamten möglichen Höhenbereich abdecken zu können, bedarf es alternierender Messungen mit dem kleinen und dem großen Teleskop. Im Frühjahr 1995 ist die Datenerfassung auf fünf Kanäle erweitert worden, so daß seither gleichzeitige DIAL-Auswertung in beiden Höhenbereichen möglich ist.

Schichtung der Atmosphäre

Der Tagesgang der atmosphärischen Schichtung während Hochdruckwetterlagen ist in Abbildung (3.2) schematisch dargestellt. Die jeweiligen Höhenbereiche sind variabel und hängen von der Stärke der Turbulenz und der Einstrahlung ab.

Tagsüber, unter konvektiven Bedingungen, existiert oberhalb der Bodenschicht die Mischungsschicht. Bodenschicht mit Mischungsschicht zusammen wird auch häufig als planetare Grenzschicht (PBL) bezeichnet. In Abbildung (3.2) ist diese Schicht als (convective) mixed layer bezeichnet. Oberhalb dieser planetaren Grenzschicht befindet sich eine Entrainmentzone. Sie ist definiert als der Bereich, in dem sich Luft aus der darüberliegenden freien Troposphäre (als free atmosphere in Abbildung (3.2) gekennzeichnet) und der Grenzschicht mischt (Stull (1988)). Die Höhe der Grenzschicht ist definiert als die Höhe, in der je zur Hälfte Luft aus Grenzschicht und freier Troposphäre existiert.

Nach Sonnenuntergang bildet sich rasch eine stabile nächtliche Grenzschicht (SBL) aus, welche als stable (nocturnal) boundary layer in Abbildung (3.2) bezeichnet ist. Darüber befindet sich die Restschicht (RL), welche die ehemalige Grenzschicht vom Tage zuvor repräsentiert und als residual layer bezeichnet ist. Diese Restschicht ist nicht turbulent durchmischt, so daß nur wenig Austausch mit der darunter liegenden stabilen Grenzschicht besteht. Die darüber liegende freie Troposphäre (LFT) ist zusätzlich durch eine Temperaturinversion am Oberrand der Restschicht abgeschottet. Somit ist auch zwischen diesen Schichten kein turbulenter Austausch möglich.

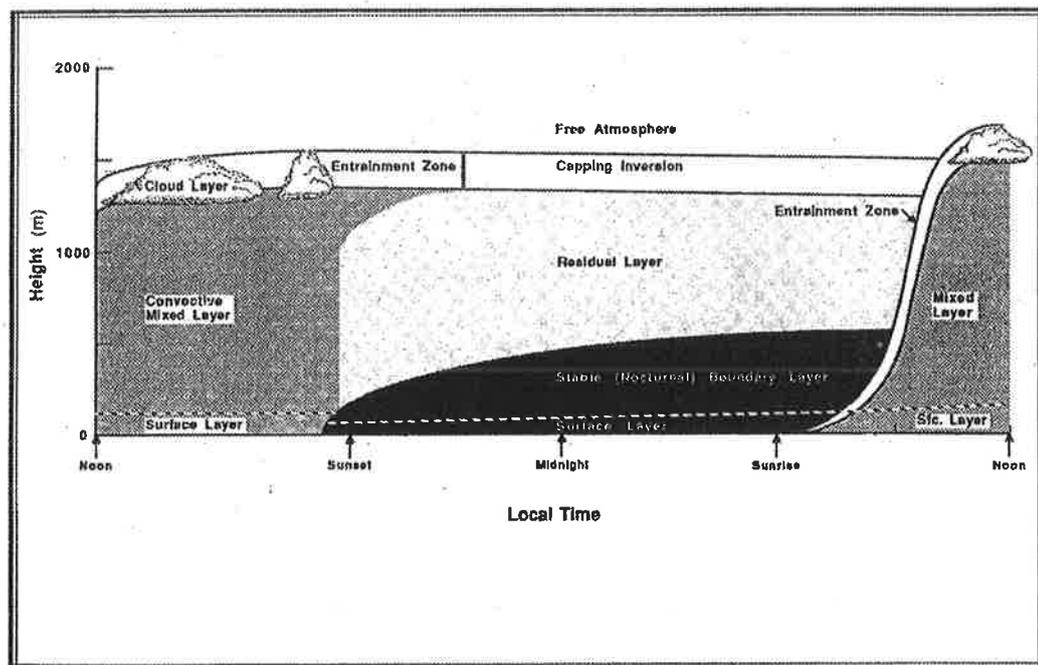


Abbildung 3.2: Schichtung der Atmosphäre bei Hochdruckwetterlagen nach Stull (1988)

Am frühen Morgen, bei einsetzender Konvektion kurz nach Sonnenaufgang, wird eine neue Grenzschicht gebildet, in der sich die Luft von der stabilen nächtlichen Grenzschicht mit der Luft der Restschicht vermischt. Die Konsequenzen für die vertikale Ozonverteilung werden in den folgenden Kapiteln eingehend beschrieben.

Aufgrund dieser Modellvorstellung der atmosphärischen Schichtung, ist das kleine Teleskop mit dem von ihm abgedeckten Höhenbereich zwischen typischerweise 200 und 800 m besonders für Untersuchungen innerhalb der Grenzschicht und der Restschicht geeignet. Unter winterlichen Bedingungen, bei tagsüber nur schwacher Konvektion, ist es mit dem kleinen Teleskop möglich, auch die freie Troposphäre zu erreichen. Das große Teleskop dringt mit dem von ihm erreichten Höhenbereich von 800 bis ca. 3500 m für Untersuchungen oft in die freie Troposphäre oder zumindest den oberen Teil der Grenzschicht vor. Der auswertbare Höhenbereich variiert von Messung zu Messung aufgrund von meteorologischen Parametern (z.B. Wolken), aber auch aufgrund von technischen Änderungen wie z.B. der Verkippung des Sendestrahls.

3.2 Der Ozonmonitor

Um Routinemessungen des Ozons in Bodennähe durchzuführen, ist in der Nähe des Lidars von weniger als 10 m Horizontalabstand in der Standardhöhe von 2 m der Ansaugschlauch eines Ozonmonitors (Typ O₃41M der Fa. Environnement S.A.) angebracht. Eine detaillierte Beschreibung dieses Meßgerätes befindet sich in Ansyco (1991).

Dieser Ozonmonitor basiert auf dem Prinzip, daß zwei verschiedene Gase mit einer Wellenlänge untersucht werden. Im ersten Schritt wird zur Messung eines Ozonwertes die angesaugte Luft zunächst durch einen Ozonfilter geschickt, in dem sämtliches vorhandene Ozon in der Luftprobe abgebaut wird. Anschließend wird diese Luft in eine Meßküvette geschickt, in der die Transmission der Luftprobe mit einer Quecksilberniederdrucklampe gemessen wird. Die stärkste Emissionslinie dieser Lampe liegt bei 253.7 nm, nahe des Maximums der Hartley-Bande. Im zweiten Schritt wird neu angesaugte Umgebungsluft direkt in die Meßküvette zur Messung der Transmission geschickt. Der Quotient der Transmissionen ist proportional zur Ozondichte.

Um die Messung möglichst wenig zu beeinflussen, ist von einem dem Ozonlidar benachbarten Standardcontainer, dem Datencontainer, ein horizontaler Ausleger von ca. 1 m Länge angebracht, an dem der Ansaugschlauch befestigt ist. Der Ausleger bewirkt,

daß die Zusammensetzung der Luft nicht durch unmittelbar benachbarte Oberflächen, wie z.B. der Containerwand, beeinträchtigt wird.

Die Genauigkeit des Meßgerätes beträgt 1 ppbV, was am Boden unter meteorologischen Standardbedingungen ca. $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ entspricht. Der Ozonmonitor ist so eingestellt, daß alle 10 Sekunden ein Ozonwert ermittelt wird und gleitende Minutenmittel gespeichert werden. Somit ist es möglich, jeder Lidarmessung einen entsprechenden Bodenwert zuzuordnen.

3.3 Der Meteorologische Mast

Parameter	Meßgerät	Hersteller	Datendichte
Luftdruck p	Barometer	Fa. Siggelkow	Momentanwert alle 6 sec.
rel. Feuchte r	Haarhygrometer	Fa. Siggelkow	alle 6 sec.
Globalstrahlung G	Albedometer	Fa. Kipp & Zonen	alle 6 sec.
Temperatur (2m) T, T_D	Aßmanusches Aspirationspsychrometer	Fa. Friedrichs	alle 6 sec.
Windrichtung (10m) dd	Windfahne	Fa. Siggelkow	Mittelwert von 6 sec.
Windgeschwindigkeit (10m) ff	Schalenkreuzanemometer	Fa. Siggelkow	Mittelwert von 6 sec.

Tabelle 3.2: *Meßspezifikationen der meteorologischen Parameter*

Ebenfalls in unmittelbarer Nähe von weniger als 15 m zum Lidar, befindet sich ein meteorologischer Mast, an dem die Parameter Feucht- und Trockentemperatur, relative Feuchte und Globalstrahlung in der Standardhöhe von 2 m und ferner Windrichtung und -geschwindigkeit in der Standardhöhe von 10 m gemessen werden. Dieser Mast ist freistehend, um ungestörte Messungen zu garantieren. Darüberhinaus wird im Datencontainer der Luftdruck gemessen. Die Spezifikationen der Geräte sind in Tabelle (3.2) wiedergegeben.

Die gemessenen Werte werden über 10 Minuten gemittelt. Dieses ermöglicht, die gemessenen Ozonwerte mit meteorologischen Parametern zu verknüpfen, wie es in Kapitel 7 geschehen wird.

3.4 Der Meßort



Abbildung 3.3: Umland des Meßstandortes. Der Standort ist mit einem schwarzen Quadrat gekennzeichnet (nordwestlich von Hamburg).

Der Standort der Meßgeräte, an dem routinemäßig Messungen stattfinden, befindet sich knapp 10 Kilometer nordöstlich des Zentrums der Schleswig-Holsteinischen Kleinstadt Itzehoe, 60 Kilometer nordwestlich von Hamburg. Abbildung (3.3) gibt einen Überblick über das Umland des Standortes. Die geographischen Koordinaten der Meßstation betragen $53^{\circ}59'34''$ nördlicher Breite und $9^{\circ}34'38''$ östlicher Länge.

Die Luftmassen in diesem Gebiet sind durch die 40 Kilometer westlich gelegene Nordseeküste überwiegend maritimen Ursprungs. Die Meßinstrumente befinden sich auf einem Flugplatz der Heeresflieger der Bundeswehr. Die Umgebung wird hauptsächlich in Form von Wiesen, Weiden, Äckern und teilweise Wald wirtschaftlich genutzt.

Kapitel 4

Datenauswertung

4.1 Bearbeitung der Rohdaten

Für die Auswertung der Lidardaten bedarf es zunächst der Bestimmung der technischen Parameter, die bei der Messung eine Rolle spielen. Anschließend ist man in der Lage, den möglichen Auswertebereich festzulegen, nachdem die Daten visuell dargestellt worden sind. Nach der Beurteilung der auswertebedingten Parameter können die Vertikalprofile des Aerosolrückstreuoeffizienten und der Ozondichte errechnet werden. Die zugehörigen Annahmen werden in Kapitel (4.2.1) und (4.2.2) diskutiert.

4.1.1 Technische Parameter

Vor der Auswertung der Vertikalprofile müssen zur Beurteilung der auswertebedingten Parameter die technischen Parameter bestimmt werden. Zu diesen Parametern gehört zunächst eine Verschiebung der Nulllinie des Signals, hervorgerufen durch elektromagnetische Interferenzen. Diese Verschiebung wird minimiert, indem typischerweise 500 bis 1000 Laserpulse vor Beginn oder nach Beendigung einer Atmosphärenmessung aufgenommen und von den Lidarsignalen abgezogen werden.

Ferner bedarf es einer Festlegung des Nullpunktes. Er bezeichnet die Signalhöhe, in der der Laser zündet. Bedingt durch interne Steuerungen im Laser kann diese Höhe von Messung zu Messung variieren. Zur Kontrolle, wo der Meßnullpunkt liegt, wird die Datenaufzeichnung schon vorher, äquivalent zu ca. 750 m Laufstrecke, begonnen. Feststellen läßt er sich durch den sprunghaftigen Anstieg des Signals. Dazu bedarf es der visuellen Darstellung der Signale.

4.1.2 Beispiel einer graphischen Rohdatendarstellung

Die Aufzeichnung der aus der Atmosphäre empfangenen Signale in dem in Abbildung (4.1) gezeigten Meßbeispiel vom 8.6.1993, kurz nach 12:00 UT, erfolgte mit einer zeitlichen Auflösung von 10 s und mit einer vertikalen Auflösung von 15 m. Die Repetitionsrate des Lasers bei der Messung betrug 10 Hz. Die Ramanzelle war zu dieser Messung mit Wasserstoff gefüllt, so daß die Wellenlängen 248, 277 und 313 nm aufgezeichnet werden konnten. Nachdem die Daten auf den PC kopiert worden sind, ist es möglich, die Rohdaten visuell darzustellen. Im gezeigten Beispiel wurden die Signale über 2900 Laserimpulse zeitlich (4 Minuten und 50 Sekunden) zwischen ca. 12:05 UT und 12:10 UT und vertikal über 90 Meter gemittelt, was auch den Mittelungen für die Auswertung entspricht. Die Mittelung der Signale verbessert das Signal-Rausch-Verhältnis der Daten. Um systematische Fehler auch bei niedrigen Signal-Rausch-Verhältnissen in den Ozonwerten so klein wie möglich zu halten, werden die Rohdaten zunächst gemittelt und erst danach die DIAL-Auswertung durchgeführt (Bösenberg und Theopold (1988)).

Im oberen Teil der Abbildung (4.1) ist das gemessene Signal P gegen die Einheit LSB (least significant Bit, Bit = basic indissoluble information unit) für die Wellenlängen 313, 277 und 248 nm gegen die Höhe aufgetragen. Die durchgezogene Linie stellt das Signal bei 313 nm dar, das Signal bei 277 nm ist punktiert und das Signal bei 248 nm Wellenlänge ist gestrichelt dargestellt.

Das höhenkorrigierte und logarithmierte Signal ist in Abbildung (4.1) unten gezeigt. Die Steigung dieser Kurve ist direkt proportional zur Summe aus Extinktion und Gradienten im Rückstreuoeffizienten β , wie aus Gleichung (2.3) ersichtlich. An Schichtgrenzen, wo starke Gradienten im Rückstreuoeffizienten auftreten, resultiert ein erheblicher Gradient in diesem Signal. Somit sind Schichtgrenzen anhand dieses Signals leicht zu erkennen.

Im unteren Teil der Abbildung (4.1) ist der Übergang zwischen der PBL und der LFT zwischen 1600 und 2000 Metern erkennbar an dem Übergang von einem stark geneigten und fast horizontalen, zu einem nahezu geraden und steilen Verlauf der Wellenlänge 313 nm. Der steile Verlauf in der LFT ergibt sich durch die verminderte Aerosolpartikelextinktion. Der Bereich starker Gradienten im höhenkorrigierten Signal gibt den Entrainmentbereich an. Allerdings ist die Höhe der Grenzschicht nur aus den Rückstreudaten ersichtlich, sofern am Oberrand dieser Schicht auch Gradienten in der Aerosolrückstreuung auftreten.

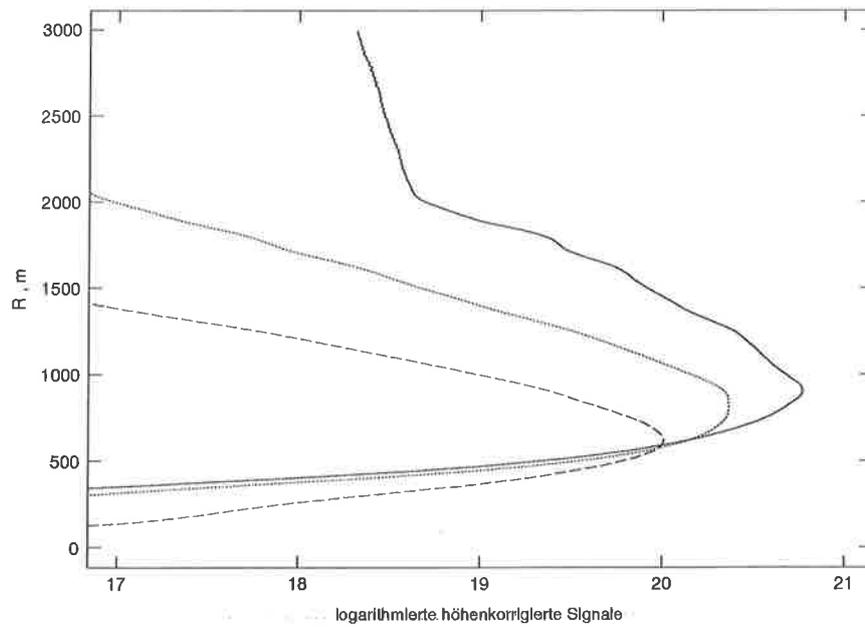
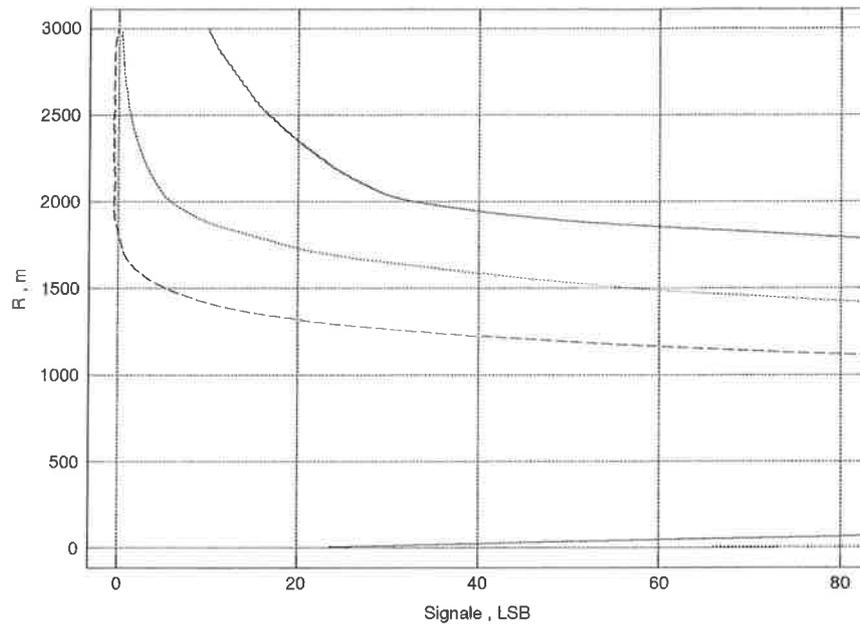


Abbildung 4,1: Signale (oben) und logarithmierte höhenkorrigierte Signale (unten) der Wellenlängen 248 (gestrichelt), 277 (punktiert) und 313 nm (durchgezogen).

4.1.3 Auswertebedingte Parameter

Möglicher Auswertehöhenbereich

Zu den auswertebedingten Parametern gehört zunächst die Auswahl der zu bearbeitenden Zeit- und Höhenabschnitte. Die Zeitabschnitte sind hauptsächlich begrenzt durch Wolken im Meßhöhenbereich. Der Meßhöhenbereich gibt das Höhenintervall wieder, in dem mindestens zwei Wellenlängen genügend Signal aufweisen und der emittierte Strahl vollständige Überlappung mit dem Gesichtsfeld des Teleskops hat. Die Abschnitte der Messungen mit Wolken in der Meßhöhe sind leicht zu detektieren, da an der Unterkante der Wolken das Signal aufgrund starker Rückstreuung an den Wassertropfen ansteigt. In Wolken können die Lidardaten nicht ausgewertet werden, zum einen durch starke Extinktion der Signale in der Wolke, zum anderen durch die an der Wolkenunterkante verursachte starke Rückstreuung, die zu übersteuerten Signalen führen.

Im wolkenfreien Fall werden die Höhenbereiche für die Datenauswertung nach oben durch die Schwächung des Signals begrenzt. Unter der Vorgabe eines maximalen systematischen Fehlers von $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ müssen zur DIAL-Auswertung mit den Wellenlängen 277/313 nm mehr als 20 Bit Signal vorliegen (Schaberl (1995)). Die Ordinate in Abbildung (4.1) oben ist hoch aufgelöst wiedergeben, um festzustellen, bis zu welcher Höhe die einzelnen Wellenlängen ein Signal von mehr als 20 Bit erzielen. Diese Höhe ist bei der 277 nm Wellenlänge in ca. 1750 m erreicht. Also ist eine Datenauswertung bis zu dieser Höhe möglich. Der untere Auswertebereich ist begrenzt durch unvollständige Überlappung des Laserstrahls mit dem Gesichtsfeld des Teleskops. Für die Datenauswertung sollte der Faktor $O(R) = 1$ sein (Vgl. Kap. (2.1)). Dieses ist der Fall, nachdem das höhenkorrigierte Signal, welches das Signal multipliziert mit dem Quadrat der Höhe R bedeutet, sein Maximum erreicht hat und bereits abnimmt (vgl. Abbildung 4.1, unten). Die Abnahme des Signals mit der Höhe muß mindestens so groß sein wie die Summe aus zweifacher Rayleigh-Extinktion und Dichteabnahme. Im Beispiel von Abbildung (4.1, unten) ist die unterste Auswertehöhe bei ca. 1000 m angesiedelt. Unterhalb dieser Höhe, hinunter bis zu der Höhe des Maximums im höhenkorrigierten Signal der Offlinewellenlänge, würde ein negativer Aerosolrückstreuoeffizient resultieren, was physikalisch nicht sinnvoll ist. Eine Datenauswertung ohne Aerosolkorrektur ist in diesem Höhenbereich möglich, aber im hier gezeigten Beispiel ist dieser Höhenbereich kleiner als ein Mittelungsintervall. Somit ist die Datenauswertung in beiden Fällen, mit und ohne Aerosolkorrektur, auf den gleichen Höhenbereich beschränkt. Um sicher zu gehen, daß die vollständige Überlappung von Laserstrahl und Gesichtsfeld des Teleskops in einer Auswertehöhe gewährleistet ist, sollte

die unterste Auswertehöhe immer so hoch angesiedelt sein, daß für das gesamte gemittelte Intervall diese Bedingung erfüllt ist.

Signalmittelungen

Nach der Bestimmung des Auswertehöhenbereiches bedarf es einer Mittelung über ein Zeitintervall Δt und ein Höhenintervall ΔR . Durch zeitliche Mittelung verringert sich das Rauschen der Signale um den Faktor $\sqrt{\Delta t \cdot \Delta R}$. Bedingt durch das Fehlerfortpflanzungsgesetz verringert sich der statistische Fehler in der Ozonberechnung um $\sqrt{\Delta t \cdot \Delta R^3}$. Eine ausführliche Beschreibung dieser Herleitung befindet sich in Schaberl (1995). Durch die hier durchgeführte Mittelung von ursprünglich 100 auf 2900 gemittelten Laserimpulsen und von der maximal möglichen Höhenauflösung von 15 m auf 90 m, ergibt sich somit eine Reduzierung des statistischen Fehlers um den Faktor 79.

Die Rayleighkorrektur

Molekülextinktion und -rückstreuung werden über die Luftdichte unter der Annahme der Standardatmosphäre berechnet. Um einen Fehler in der Berechnung möglichst klein zu halten, werden die aktuell gemessenen Druck- und Temperaturwerte am Boden miteinbezogen.

Der resultierende Fehler in der Luftdichte ist im allgemeinen klein und beträgt maximal nur wenige Prozent (Russel et al. (1982)), da Frontdurchgänge, bei denen eine deutliche Abweichung vom Standardprofil auftreten kann, mit starker Bewölkung einhergehen und somit für das Lidar keine Meßbedingungen gegeben sind.

Im Falle einer stark ausgeprägten nächtlichen Temperaturinversion in den untersten Dekametern, ist das mittels Standardatmosphäre berechnete Temperaturprofil nicht wesentlich fehlerbehaftet. Unter der Annahme einer Temperaturzunahme von 5 Kelvin im Bereich von 280 Kelvin in der stabilen bodennahen Schicht ergibt sich ein um $< 2\%$ abweichendes Temperaturprofil vom Standardprofil, falls keine weitere Abweichung von diesem Profil auftritt.

4.2 Berechnung der Profile

4.2.1 Das Aerosolrückstreuprofil

Vor der Berechnung des Aerosolrückstreuprofils bedarf es Annahmen über das Verhältnis von Extinktion zu Rückstreuung der Aerosole und ferner über den Anteil der Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung in einer bestimmten Höhe.

Das Lidarverhältnis

Als Lidarverhältnis wird das Verhältnis von Aerosolextinktion zu -rückstreuung bezeichnet. Dieses muß bekannt sein, um die Lidargleichung (Gl. (2.1)) zu lösen. In der vorliegenden Arbeit wird höhenunabhängig ein Wert von 25 für dieses Verhältnis angenommen. Dieser Wert lehnt sich einem Vorschlag von Deepak und Gerber (1983) an und steht in gutem Einklang mit den Ergebnissen von Salemink et al. (1984), die aus Lidarmessungen bei Wellenlängen 532 und 1064 nm festgestellt haben, daß das Lidarverhältnis stark abhängig ist von der relativen Feuchte. Für niedrige relative Feuchten, wie sie typischerweise in der wolkenfreien LFT anzutreffen sind, ergeben sich Werte um 25 für das Lidarverhältnis. Da der Hauptanteil der hier vorgestellten Messungen aus der freien Troposphäre stammt, kann dieser Wert für diesen Höhenbereich als gute Schätzung angesehen werden. Aber auch innerhalb der unteren PBL herrschen während Ozonepisoden niedrige relative Feuchten. Deshalb kann auch für solche Fälle der Wert des Lidarverhältnisses von 25 als eine gute Annahme angesehen werden.

Aus neuesten theoretischen Untersuchungen von Völger et al. (1995) geht hervor, daß ein Lidarverhältnis von 25 ebenfalls im UV-Bereich für maritim verschmutztes Aerosol angesetzt werden kann. Durch die geographische Lage ist vorwiegend mit maritimen Aerosol am Meßort zu rechnen. Für kontinentales Aerosol ergibt sich nach seinen Berechnungen ein höherer Wert. Bei diesen Untersuchungen gehen Annahmen über das Absorptionsverhalten der Aerosole ein. Messungen dieser Werte existieren zur Zeit noch nicht. Schaberl (1995) hat gefolgert, daß selbst bei extremen Annahmen des Lidarverhältnisses von Werten zwischen 20 und 70 die Ergebnisse nur um wenige $\mu\text{g}/\text{m}^3$ variieren, sofern Schichtgrenzen in der Atmosphäre außer acht gelassen werden.

Die Eichung

Bevor aus dem entfernungskorrigierten Offline-Signal der höhenabhängige Aerosolrückstreckkoeffizient $\beta_{off}(R)$ berechnet wird, wird in einer Höhe der Anteil der Aerosolrückstreuung an der gesamten Rückstreuung geschätzt (Fernald (1984)). Diese Höhe bezeichnet man als Eichhöhe. Da das Rechenverfahren bei einer Berechnung des Rückstreuoprofils oberhalb der Eichhöhe numerisch instabil ist, wird diese Höhe möglichst weit oben angesiedelt.

Im oben gezeigten Beispiel ist die Berechnung des Aerosolprofils mit der Wellenlänge 313 nm geschehen. In der Höhe von 2400 bis 2500 Metern wird der Anteil der Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung angenommen. Um in der Schätzung keinen Fehler aufgrund eines zu schlechten Signal-Rausch-Verhältnisses zu machen, wird die Eichhöhe

dort angesiedelt, wo die Offlinewellenlänge, die am wenigsten geschwächt wird, noch mindestens 10 Bit Signal hat. Unter der Verwendung von 268 und 292 nm als Wellenlängenpaar zur DIAL-Auswertung, sollte eine Starthöhe gewählt werden, in der bei 268 nm noch genügend Signal zur Ozonauswertung vorhanden ist. Auch bei 292 nm existiert noch keine reine Offlinewellenlänge.

Für die Auswertung des Wellenlängenpaares 268/292 nm findet ein iterativer Prozeß zwischen Ozonberechnung und Aerosolprofilberechnung statt. Für den gezeigten Fall wurden 20 % Rückstreuung durch Aerosole verursacht angenommen. Falls dieser Wert falsch geschätzt ist, macht sich dieses in einem starken Gradienten im berechneten Aerosolrückstreuprofil bemerkbar, da das benutzte Rechenverfahren konvergiert. Auf das Ozonprofil hat die Eichung einen mit der Höhe variablen Einfluß, der mit der Entfernung vom Eichniveau abnimmt und der umso stärker ist, je größer der Gradient im Aerosolrückstreuprofil ist.

Das berechnete Profil

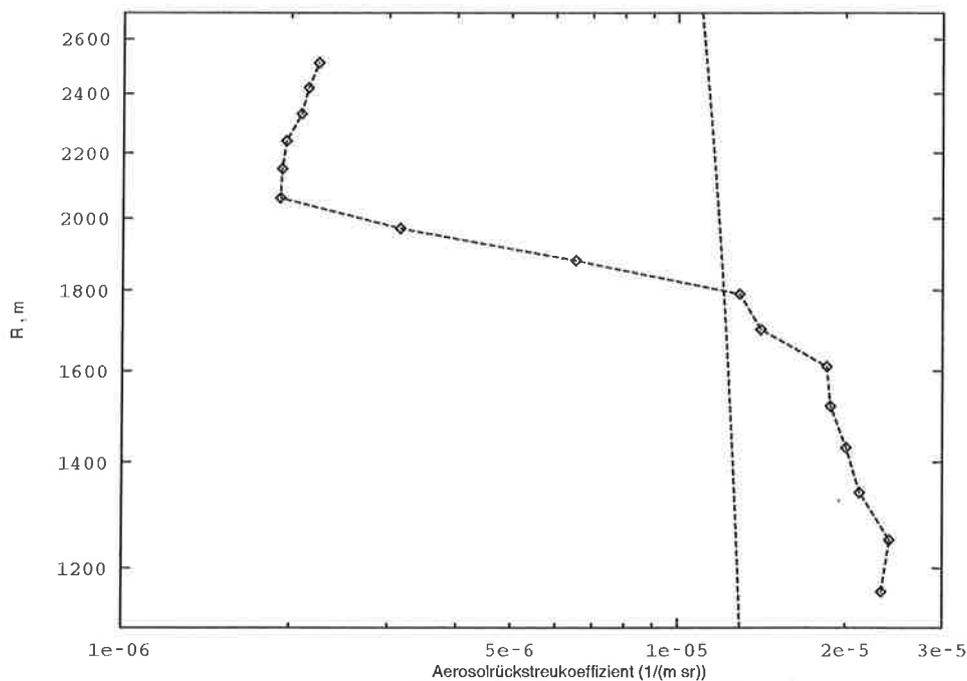


Abbildung 4.2: Profile des Aerosolrückstreukoeffizienten β (mit Markierungspunkten versehen) und des Rayleighrückstreukoeffizienten für 313 nm.

Das Aerosolrückstreuprofil bei der Offlinewellenlänge in Abbildung (4.2) ist im Bereich 1150 bis 2550 Metern berechnet. Da keine Wellenlängenabhängigkeit bei der Berech-

$\lambda_{on}/\lambda_{off}$ (nm)	$\frac{\Delta\lambda}{2 \cdot \Delta\sigma \cdot \lambda_{off}}$ ($\mu g/m^2$)
268/292	1485
277/313	9531
292/319	31640

Tabelle 4.1: *Empfindlichkeit der Aerosolkorrektur bei verschiedenen Wellenlängenpaaren.*

nung des Aerosolprofils eingegangen ist, ergibt sich für die Onlinewellenlänge das gleiche Profil. Die vertikale Auflösung des Profils beträgt 90 Meter, dargestellt durch einen Markierungspunkt in der Mitte des berechneten Intervalls. Zum Vergleich ist das Rayleighrückstreuprofil gezeigt. Klar erkennbar unterhalb der Starthöhe von 2500 Metern im Aerosolprofil ist die gleichmäßige Rückstreuung, was darauf hindeutet, daß die Eichung in 2500 m mit der Annahme von 20 % Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung als gute Abschätzung angesehen werden kann. Unterhalb von 2000 Metern nimmt die Rückstreuung drastisch zu, ausgehend von einem Wert von ca. $2 \cdot 10^{-6}$ bis hin zu knapp $2 \cdot 10^{-5}$ ($1/(m \cdot sr)$) in 1600 Metern. Die Mitte dieses Bereiches starker Gradienten gibt nach Senff (1993) die Höhe der Grenzschicht an. Der gesamte Bereich zwischen 1600 und 2000 Metern kennzeichnet nach Stull (1988) den Entrainmentbereich. Im gezeigten Beispiel ist an der Oberkante der Grenzschicht in 1800 Metern auch in etwa der Übergang zwischen dominierender Aerosol- bzw. Molekülrückstreuung. In der Grenzschicht ist die Aerosolrückstreuung auf fast den doppelten Betrag der Molekülrückstreuung angewachsen.

Die Korrektur

In Kapitel (2.4.2) wurde aus Gleichung (2.13) gefolgert, daß die Aerosolrückstreukorrektur proportional zu $\frac{\Delta\lambda}{2 \cdot \Delta\sigma \cdot \lambda_{off}}$ ist, welches in Tabelle (4.1) für die hier benutzten Wellenlängenpaare dargestellt ist. Aufgrund der aus dieser Tabelle ersichtlichen Empfindlichkeit des Wellenlängenpaares 292/319 nm bezüglich der Aerosolkorrektur, ist dieses Paar nur für Höhenbereiche mit geringen Gradienten in den Aerosolkonzentrationen, z.B. in der freien Troposphäre, geeignet. Das Paar 277/313 nm, demgegenüber nur etwa ein Drittel so empfindlich bezüglich der Aerosolkorrektur, ist ebenfalls für Ozonuntersuchungen in der Grenzschicht geeignet. Mit der geringsten Aerosolempfindlichkeit ist das Paar 268/292 nm am

besten für Ozonauswertung innerhalb der Grenzschicht geeignet.

Im allgemeinen sind durch die schon erheblich verminderte Absorption bei der Wellenlänge 277 nm, aufgrund ihrer Lage in der Flanke der Absorptionsbande (vgl. Abbildung 2.2), auch Untersuchungen in der freien Troposphäre möglich. Mit dem oben beschriebenen Aufbau des Systems, hinsichtlich des Achsenabstandes zwischen Teleskop und Strahlaustritt, sind Höhen bis maximal 2.5 km mit dieser Wellenlänge erreichbar. Bei 292 nm ist Strahlung typischerweise bei ca. 3.5 km Höhe von Ozon schon meistens soweit absorbiert, daß oberhalb eine Datenauswertung mit 292/319 nm unmöglich ist. Licht bei der Wellenlänge 268 nm ist häufig bereits bei 1.8 km absorbiert.

4.2.2 Das Ozonprofil

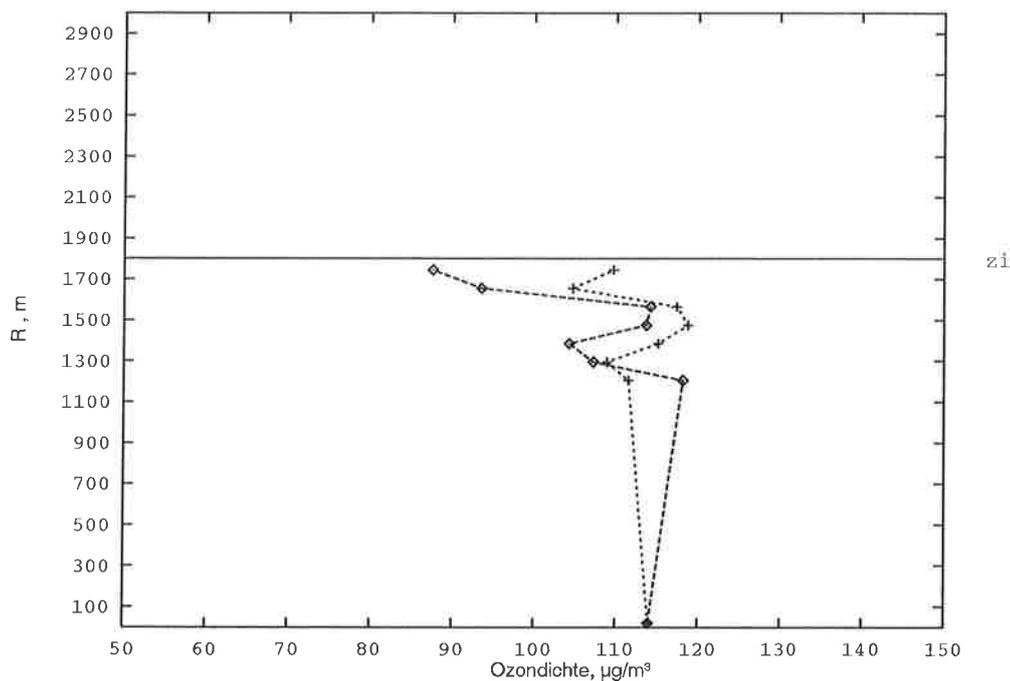


Abbildung 4.3: Profile der Ozondichten berechnet mit dem Wellenlängenpaar 277/313 nm: ohne Aerosolkorrektur (mit Rauten versehen) und mit wellenlängenunabhängiger Korrektur (mit Kreuzen versehen). Die Grenzschichthöhe ist mit z_i markiert.

Für das hier gezeigte Beispiel sind in Abbildung (4.3) die sich aus der DIAL-Gleichung (Gl. 2.3) ergebenden Ozonprofile mit und ohne Aerosolkorrektur wiedergegeben. Im Mittelwert des Berechnungsintervalls von je 90 Metern ist ein Markierungspunkt angegeben. Das mit Rauten versehene Profil ist aerosolkorrigiert unter der Annahme fehlender Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion und -rückstreuung. Das mit Kreuzen versehene Profil ist unkorrigiert. Der ausgewertete Höhenbereich ergibt sich aus Abbildung (4.1) oben. Die Unterschiede zwischen korrigiertem und unkorrigiertem Ozonprofil sind im allgemeinen in der Größenordnung von $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Am oberen Ende der Profile, nahe der Grenzschichtoberkante (sie ist durch die horizontale Linie in 1800 m und der Markierung 'zi' wiedergegeben), beträgt die Aerosolkorrektur ca. $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Diese hohe Korrektur ist bedingt durch dort auftretende starke Gradienten in der Aerosolrückstreuung. Der durch den Ozonmonitor ermittelte Bodenwert von ca. $114 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ist mit dem Lidarprofil verbunden. Unter Berücksichtigung der Dichteabnahme der Luft von ca. 10 % in dem untersten Kilometer der Atmosphäre, ergibt sich hinsichtlich des Mischungsverhältnisses ein leicht niedrigerer Wert am Boden als in der Grenzschicht. Dieses ist durch den Ozonabbau am Boden bedingt.

Hinsichtlich der Fehler in der Ozonberechnung, die trotz dieser zum Teil nicht unerheblichen Korrektur an Schichtgrenzen der Atmosphäre entstehen, wird das nächste Kapitel Aufschluß geben, in dem Lidarmessungen mit Messungen von ECC-Sonden verglichen werden. Aufgrund von Annahmen über optische Eigenschaften, wie über die Konzentration und die Wellenlängenabhängigkeit der Extinktion und des Rückstreuverhaltens der Aerosole, die mit in das Auswerteverfahren eingehen, können Restfehler in der Aerosolkorrektur auftreten. Die Quantifizierung dieser Fehler bewegt sich aufgrund von mangelhafter Kenntnis über spezielle Aerosoleigenschaften im Rahmen von einigen $\mu\text{g}/\text{m}^3$, wie Völger et al. (1995) durch eine theoretische Untersuchung festgestellt haben. Wie stark diese Restfehler die Messungen beeinflussen, wird im nächsten Kapitel anhand eines umfangreichen Systemvergleichs untersucht.

Kapitel 5

Vergleich Lidar / ECC-Sonde

Die Motivation für diesen aufwendigen Vergleich zwischen Lidar und sowohl freifliegender als auch an Fesselballonen befestigter ECC-Sonden war durch die Tatsache gegeben, daß das MPI-DIAL in umfangreichen Meßkampagnen wie TROLIX (**T**ropospheric **L**idar **E**xperiment), TRACT (**T**ransport of **A**ir **P**ollutants over **C**omplex **T**errain) und der TOR-Intensiv-Meßkampagne für zahlreiche Untersuchungen der Ozonvertikalprofile eingesetzt worden ist.

Vergleichende Horizontallidarmessungen während TROLIX mit am Boden installierten UV-Photometern sind zum Test hinsichtlich der Genauigkeit des MPI-DIALs erfolgreich durchgeführt worden (Bösenberg et al. (1993)). Allerdings ist ein Vergleich mit bodengebundenen UV-Photometern nicht in der Lage, die Auswirkungen der Aerosolkorrektur, wie sie im vorigen Kapitel beschrieben wurde, zu validieren. Denn Aerosolschichten treten typischerweise an Schichtgrenzen in der Atmosphäre, wie zum Beispiel am Übergang zwischen Grenzschicht und freier Troposphäre, auf. Dieses war auch der Grund, warum nicht nur in vertikal homogenen Schichten bezüglich der Aerosolkonzentration gemessen wurde, sondern daß die Vergleichsmessungen auch in Höhenbereichen durchgeführt wurden, in denen zum Teil stärkere Aerosolgradienten auftreten. Somit ist man in der Lage, auch diese mögliche Fehlerquelle zu erfassen.

In der Vergangenheit sind viele Fehlerabschätzungen von Lidarmessungen nur aufgrund der Methodik vorgenommen worden, wie z.B. durch Pelon und Mégie (1982) und Papayannis et al. (1990). Eine Genauigkeit allein aus den Systemparametern abzuschätzen, ist außerordentlich schwierig, da unklar bleibt, wie die einzelnen Fehler aufeinander wirken. Mit der Frage der Meßgenauigkeit des MPI-DIAL aufgrund von theoretischen Überlegungen hat sich Schaberl (1995) eingehend beschäftigt. Anfangen von

der genauen Justierung der Geräte über die Genauigkeit einzelner Bauteile, bis hin zur Datenerfassung sind viele Fehlerquellen möglich. Wie diese verschiedenen Fehlerquellen aufeinander wirken und wie groß der resultierende Gesamtfehler ist, ist, wenn überhaupt, nur eingeschränkt abschätzbar. Aufschluß über die Genauigkeit, auch im Bezug auf die Kenntnis der Aerosolparameter, kann nur ein detaillierter Vergleich zwischen zwei Meßsystemen erbringen.

Die Tatsache, daß es kein Ozonmeßgerät gibt, welches als Kalibriergerät angesehen werden kann, erschwert Fehleruntersuchungen. Auch wenn die ECC-Sonde (Electrochemical Concentration Cell) nicht als Kalibriergerät angesehen werden kann, so ist diese Sonde dennoch ein Standardmeßgerät zur Ozonsondierung. Umfangreiche Untersuchungen dieser Sonde bezüglich ihrer Zeitkonstante (Komhyr (1969)) und ihrer Querempfindlichkeiten zu anderen Gasen, sind von Schenkel und Broder (1982) Beekmann et al. (1994a) durchgeführt worden.

Bei Vergleichsexperimenten tritt immer wieder das Problem auf, daß nicht in exakt gleichen Luftvolumina gemessen wird. Besonders in der Grenzschicht können kleinskalige Änderungen in der Ozondichte aufgrund der Wechselwirkung von Wirbeln vorkommen. Die Kombination der ECC-Sonde mit einem Fesselballon macht es möglich, die Meßvolumina von Lidar und Sonde weitestgehend anzupassen. Dieses ist neu, denn bislang wurden bodengebundene Lidarsysteme nur mit freifliegenden Sonden verglichen, wie z.B. in Beekmann et al. (1994a) und Kempfer et al. (1994) oder aber es wurden bodengebundene Lidarsysteme mit Flugzeugmessungen verglichen (Bösenberg et al. (1993)).

In größeren Höhen ist es auch aus Sicherheitsgründen nicht möglich, mit einem Fesselballonsystem zu messen. Hier wurde die Lidarmessung mit Messungen einer freifliegenden ECC-Sonde verglichen. In diesen Höhen, insbesondere in der freien Troposphäre, ist aber die horizontale Homogenität der Ozondichte eher gegeben. Ursachen, die starke horizontale Gradienten hervorrufen, wie z.B. Frontdurchgänge, sind begleitet von starker Bewölkung, so daß eine Lidarmessung unmöglich ist. Deshalb ist ein Verdriften des Ballones um möglicherweise einige Kilometer, wie es am oberen Rand des Vergleichsbereiches auftreten kann, nicht kritisch.

Im folgenden wird nach einer kurzen Beschreibung des Meßortes die Funktionsweise und die Vorbereitung der ECC-Sonde für die Messung dargestellt. Anschließend werden die Vergleichsmessungen detailliert analysiert.

5.1 Ozonmessungen mit ECC-Sonden und Lidar

5.1.1 Der Meßort

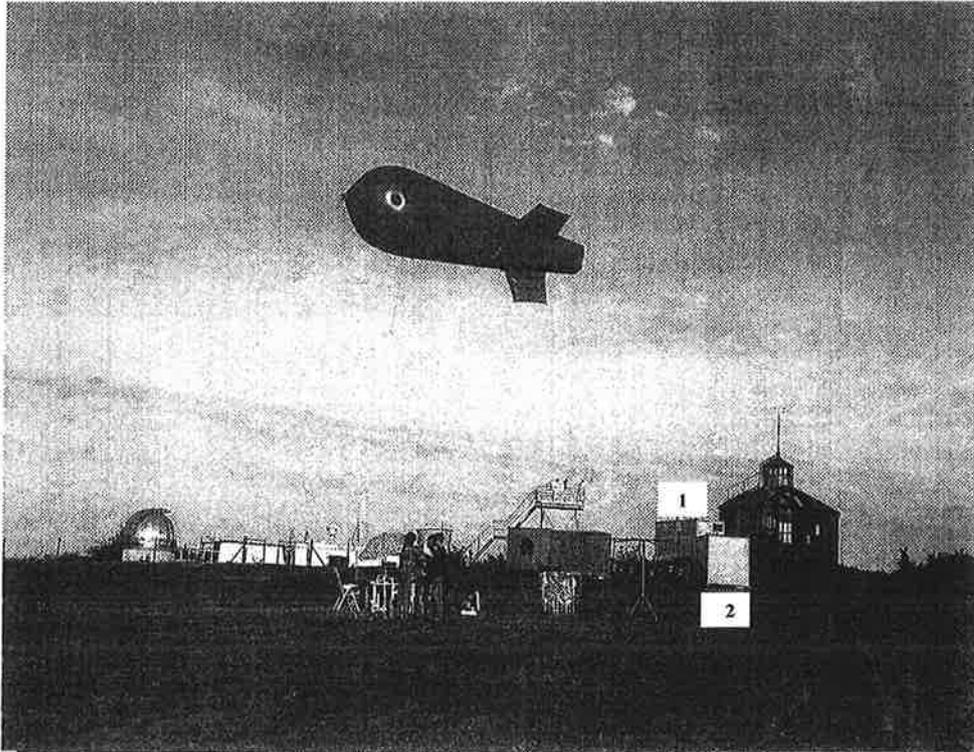


Abbildung 5.1: Vergleichsmessung in Lindenberg: Startplatz der Fesselsonde im Vordergrund. Meßcontainer des Lidars (1) und des Ozonmonitors (2) im Hintergrund.

Die Vergleichsmessungen zwischen DIAL und ECC-Sonde sind auf dem Gelände des MOL (Meteorologisches Observatorium Lindenberg) durchgeführt worden. Die ECC-Sondenmessungen und alle damit in Verbindung stehenden Arbeiten sind von Mitarbeitern des MOL erbracht worden.

Das Observatorium befindet sich im Bundesland Brandenburg, 60 Kilometer südöstlich von Berlin und 30 Kilometer westlich von Frankfurt/Oder. Die geographischen Koordinaten sind $52^{\circ}12'34''$ nördlicher Breite und $14^{\circ}7'24''$ östlicher Länge. Das Umland wird hauptsächlich landwirtschaftlich genutzt, ähnlich wie das Umland des für Routinemessungen gewählten Standortes in Schleswig-Holstein. Im 50 Kilometer südlich gelegenen Landkreis Cottbus, im 30 Kilometer östlich des MOL gelegenen Eisenhüttenstadt und auch im Bundesland Berlin ist Industrie angesiedelt.

Das Lidar war auf dem Lindenberger Kalkberg (120 m über NN), welcher sich auf dem Gelände des MOL befindet, positioniert. In weniger als 10 Metern Horizontaldistanz befand sich der Ozonmonitor des MPI.

Am Fuße des Berges, ca. 100 Meter südlich des Lidars, wurden die freifliegenden Sonden gestartet (98 m über NN). Der Startplatz der Fesselsonde lag ungefähr 60 Meter südöstlich des Lidars auf dem Berg. Abbildung (5.1) zeigt im Vordergrund den Startplatz der Fesselsonde und im Hintergrund sowohl den Lidarcontainer als auch den benachbarten Datencontainer, in dessen Nähe die Messungen des Ozonmonitors durchgeführt wurden.

5.1.2 Das Meßprinzip der Sonde

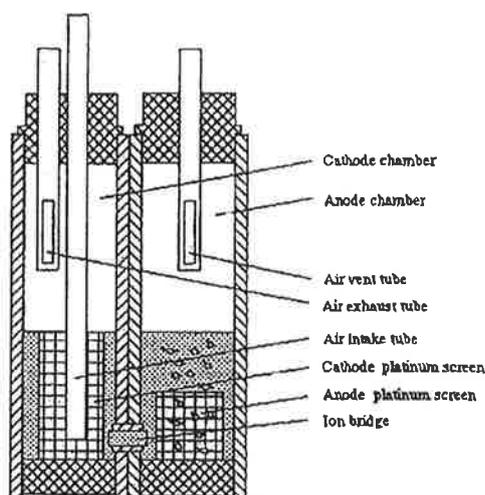


Abbildung 5.2: ECC-Sonde Typ 'Vaisala ECC5A', nach Vaisala (1994 b)

Bei den hier für die Vergleichsmessungen benutzten Sonden handelt es sich um die auf dem idiometrischen Meßprinzip basierenden ECC-Sonde vom Typ 'Vaisala ECC5A', welche in Vaisala (1994a) beschrieben und in Abbildung (5.2) dargestellt ist.

Der Sondensensor besteht aus einer Kathoden- und einer Anodenkammer mit verschiedenen elektrolytischen Lösungen. Die 3 ml der Kathodenlösung bestehen aus KJ, KBr, NaH_2PO_4 und NaHPO_4 , die 1.5 ml der Anodenflüssigkeit aus reiner KJ-Lösung. Zur Messung wird Umgebungsluft in die Kathode mittels Förderpumpe, deren Pumpleistung direkt vor der Messung bestimmt wird, gepumpt. Die ozonhaltige Umgebungsluft ruft chemische Reaktionen hervor, deren Vorgang von Komhyr (1969), Vaisala (1994b) und

Beekmann et al. (1994a) eingehend beschrieben worden sind. Sie lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

In der Kathodenlösung findet eine Umwandlung von Jodid zu Jod durch Ozon statt. Dieses Jod wird an der platinbeschichteten Kathode wieder zu Jodid reduziert. Die Anode ist ebenfalls mit Platin beschichtet. Kathode und Anode sind durch eine Ionenbrücke miteinander verbunden, die eine Mischung beider Lösungen unterbindet. Der Partialdruck des Ozons ergibt sich nach Komhyr et. al (1995):

$$p_{O_3} = 4.307 \cdot 10^{-3} \cdot i \cdot T_p \cdot t_p. \quad (5.1)$$

Dabei trägt p_{O_3} die Einheit *nbar*. Der Strom i zwischen den beiden platinbeschichteten Elektroden wird dabei in μA gemessen. Die Pumpentemperatur T_p wird in Kelvin angegeben. Die Zeit t_p ergibt sich aus der Dauer, die benötigt wird, um 100 ml Luft in die Kathode zu pumpen.

Die ECC-Sonde besitzt eine Zeitkonstante von 20-30 Sekunden, in denen eine stufenartig geänderte Ozondichte bis auf den Faktor 1/e nachgewiesen wird Komhyr (1969). Die Querempfindlichkeit zu SO_2 ist -0.93 ppbV O_3 pro 1 ppbV SO_2 , während die Querempfindlichkeit zu NO_2 +0.057ppbV O_3 pro 1 ppbV NO_2 ist. Nennenswerte Querempfindlichkeiten zu CO und NO konnten von Schenkel und Broder (1982) nicht nachgewiesen werden.

5.1.3 Vorbereitung der Messungen

Planung

Hauptkriterium für die Planung der Vergleichsexperimente ist die Wetterlage. Für die Vergleiche mit Fesselballonen bedarf es einer windschwachen Wetterlage, da hohe Windgeschwindigkeiten eine starke horizontale Verdriftung des Fesselballons und damit nur geringe Aufstiegshöhen zur Folge haben (Görsdorf und Beyrich (1995)). Die Bewölkung spielt bei Fesselballonaufstiegen nur eine Rolle, falls die Wolkenunterkante die maximal erreichte Flughöhe des Ballons unterschreitet; zum einen ist das Lidar außer Stande zu messen, zum anderen muß die Sichtbarkeit des Ballons aus Gründen der Flugsicherheit gewährleistet sein. Da der Meßbereich des Lidars nach oben durch die Wolkenunterkante begrenzt ist, ist bei Auftreten dieser Wolkenschichten für die Vergleiche mit freifliegenden Sonden eine zumindest durchbrochene Bewölkung von tiefen und mittelhohen Wolken nötig.

Sondeneichung

Die Vorbereitung für die Vergleiche erfordert zunächst eine Eichung der Ozonsonden. Als Referenzgerät dient dazu ein vom MOL betriebener Ozonmonitor, der baugleich mit dem vom MPI betriebenen Monitor ist, welcher in Kapitel (3.2) beschrieben wurde. Ferner bedarf es vor jeder Messung einer Bestimmung der Förderleistung der Pumpe, da diese den durch die Kathode gepumpten Luftstrom bestimmt und somit wichtig für die Messung des Ozonanteils in der Luft ist (siehe oben). Die Eichung der Sonden erfolgte in einem speziell der Ozonsondenvorbereitung dienendem Labor, nahe dem Startplatz der Ballone.

Aufbau der Ballonsysteme

Das Meßsystem der Fesselsonden besteht aus einem mit 5 m^3 Helium gefüllten Ballon. An einem Halteseil werden die ECC-Sonden über ein Interface, welches die Daten des ECC-Sensors aufnimmt und an die Empfangsstation liefert, an die RS80-Radiosonde gekoppelt. Darüberhinaus können bis zu sechs freibewegliche Fesselsonden des Typs TS-4A-SP angebracht werden. Diese dienen zur Messung von Druck, Temperatur, Feuchte, Windrichtung und -geschwindigkeit. Vor jeder Ozonsondierung wurde mit den Fesselsonden eine Windsondierung durchgeführt, um die maximal mögliche Höhe für eine Ozonsondierung zu ermitteln. Mittels einer Winde ist es möglich, den an einem Seil befestigten Ballon vertikal zu bewegen. Details zu Aufbau und Messungen mit dem Fesselballonsystem sind in Görzdorf und Beyrich (1995) zu finden.

Der Aufbau der freifliegenden Sonden besteht aus einem Ballon, an dem die ECC-Sonde mit der Radiosonde des Typs RS80 befestigt ist.

5.1.4 Erfassung und Aufbereitung der Sondendaten

Der von der Ozonsonde gemessene Wert wird mit einer zeitlichen Auflösung von 1.56 Sekunden über die Radiosonde an die von der Fa. Vaisala entwickelten Bodenempfangsstation PC – CORA übertragen. Somit liegen sowohl Ozonwerte als auch meteorologische Standardparameter bis in Höhen von 32 bis 37 km für die freifliegenden Sonden vor. Die Daten der ECC- und RS-80 Sonden am Fesselballon werden, wie die der freifliegenden Sonden, mit dem Vaisala-Empfangssystem aufgenommen. Zusätzlich erfolgt mit den Fesselsondenmessungen eine Registrierung des Windes. Diese Winddaten waren während der Messung direkt auf dem PC erhältlich. So konnte bei auflebenden Winden in der Meßhöhe schnell reagiert werden, indem der Ballon in tiefere Höhen gebracht oder ganz eingeholt wurde.

Die Umrechnung bzw. Korrektur der von der *PC - CORA* erhaltenen Rohdaten erfolgt entsprechend der Gleichung (5.1) mit einem von Fa. Vaisala entwickelten Programm. Dieses Auswerteprogramm ermöglicht eine zeitliche Mittelung der Ozonwerte und der meteorologischen Daten. Die Daten der freifliegenden Sonden wurden über 10 Sekunden gemittelt, was einer Datendichte von 50 - 60 Metern bei einer typischen Steiggeschwindigkeit von 5-6 Metern pro Sekunde entspricht. Aufgrund der Zeitkonstante der Sonde von 20-30 Sekunden, ergibt sich mit der Steiggeschwindigkeit eine Höhenauflösung von 100 bis 180 Metern.

Zur Reduzierung des Systemrauschens des Lidars wurde eine zeitliche Mittelung der Lidardaten durchgeführt. Die Lidardaten der Vergleichsmessungen an freifliegenden Ballonen wurden, wenn möglich, über mehrere Minuten, die Daten der Vergleichsmessungen an Fesselballonen wurden über eine Minute gemittelt. Die Daten der am Fesselballon befestigten Sonden wurden zur Vergleichbarkeit ebenso über eine Minute gemittelt. Lagen aufgrund von Schwierigkeiten in der Datenübertragung bei den Fesselsondenmessungen über einen Zeitraum von mehr als einer Minute keine Daten vor, so wurden diese Minutenmittel auch in den Lidardaten nicht für Vergleiche berücksichtigt, um eine gemeinsame Datengrundlage zu gewährleisten. In drei von vier Fällen lagen die Datenausfälle der Sonde unterhalb von 5 %; im Falle der Vergleichsmessung vom 8.6.94 lagen in den 58 Minuten zwischen 14:04 und 15:01 UT während 36 Minuten Daten vor. Aufgrund der Datenerfassung an Bord der Sonde, welche eine Auflösung des Ozonwertes von 0.1 *nbar* erlaubte, ergab sich nach Konvertierung der Ozondaten in die Einheit $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nach der Formel von Feister (1983):

$$\rho_{O_3} = 5.772893 \cdot 10^2 \cdot p_{O_3} / T \quad (5.2)$$

eine Auflösung von ca. $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, wobei ρ_{O_3} die Ozondichte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, p_{O_3} den Partialdruck des Ozon in *nbar* und T die absolute Temperatur in Kelvin darstellt.

5.2 Definition der statistischen Variablen

Für die vergleichende Statistik beider Meßsysteme wurde zunächst die mittlere Abweichung der Messungen δx in dem gemeinsam gemessenen Höhenintervall nach folgender

Gleichung bestimmt:

$$\delta x \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n (x_{L_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] - x_{S_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right]), \quad (5.3)$$

wobei n die Anzahl der gebildeten Minutenmittel und x_L bzw. x_S den jeweiligen Minutenmittelwert der Lidar- bzw. Sondenmessung darstellt. Zur Berechnung der mittleren relativen Abweichung Δx

$$\Delta x [\%] = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n \left(\frac{x_{L_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] - x_{S_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right]}{x_{S_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right]} \right) \cdot 100, \quad (5.4)$$

der beiden Meßmethoden voneinander, wurde als Referenzwert der Sondenwert genommen, da ein wahrer Ozonwert nicht zur Verfügung steht.

Für die länger andauernden Vergleichsmessungen wurde zusätzlich die Standardabweichung der Differenzen $\sigma_{\delta x}$ der beiden Messungen zueinander bestimmt:

$$\sigma_{\delta x} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n [(x_{L_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] - x_{S_i} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right]) - \delta x]^2}{n - 1}}. \quad (5.5)$$

Ferner erfolgte für die längeren Vergleichsmessungen mit dem Fesselballonsystem eine Berechnung der Standardabweichung in der Ozonmessung beider Systeme σ_{O_3} (DIAL) und σ_{O_3} (ECC). Um eine Standardabweichung, bedingt durch die reale zeitliche Entwicklung der Ozondichte, zu vermeiden, wurde bei dieser Berechnung zunächst von jeder Meßzeitreihe ein linearer Trend mit der Methode der kleinsten Quadrate der Messung abgezogen.

5.3 Meßergebnisse

5.3.1 Vergleich Fesselballonsonde / Lidar

Während der Meßkampagne wurden 7 Starts des Fesselballons unternommen, wobei sechs erfolgreich mit Lidarmessungen verglichen werden konnten. Beim siebten Start wurde der Ballon in eine Höhe von 800 bis 900 Metern gebracht. Stark ausgeprägte Aerosolschichten

Tag im Juni '94	Zeit (UT)	verglicher Höhen- bereich (m)	Lidar- wellen- längen (nm)	Mittlere Abweichung ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Relative Abweichung (%)	Standard- abweichung der Differenzen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	$\sigma_{\text{O}_3\text{DIAP}}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	$\sigma_{\text{O}_3\text{ECC}}$ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
8.	03:32-04:21	270-330	268/292	< -0.1	< 0.2	5.6	4.63	1.86
8.	08:34-10:10	270-330	268/292	2.3	3.8	2.6	2.72	1.50
8.	14:04-15:01	410-500	268/292	1.9	1.7	2.7	1.17	1.51
14.	14:44-15:19	310-400	277/313	5.8	6.0	2.1	1.26	0.82
14.	19:22-19:45	200-260	277/313	-6.7	-5.6	-	-	-
20.	15:47-15:52	210-300	268/292	-4.4	-3.6	-	-	-

Tabelle 5.1: Vergleichende Statistik zwischen Lidardaten und Fesselsondendaten: mittlere Abweichung, mittlere relative Abweichung, Standardabweichung der Differenzen der länger andauernden verglichenen aerosolkorrigierten Lidardatenzeitreihe von der Sonden-datenzeitreihe. Die beiden rechten Spalten geben die Standardabweichung der länger an-dauernden aerosolkorrigierten Lidarmessungen bzw. die der Sondenmessungen im Ver-gleichszeitraum wieder.

im Höhenbereich unterhalb von 900 Metern machten eine Lidarauswertung unmöglich. Somit wurde diese Messung für einen Vergleich verworfen. Während der sechs vergleich-baren Fälle war es bei den vier ersten Vergleichen möglich, den Ballon mehr als 30 Minuten in einer quasi-konstanten Höhe innerhalb 50 m zu halten, wodurch nicht nur Minuten-mittel, sondern auch Standardabweichungen im Ozon bei beiden Meßsystemen miteinan-der verglichen werden konnten. Während der letzten beiden Vergleichsmessungen, er-schwerten Windgeschwindigkeiten von bis zu 10 m/s die Fesselballonmessung. Dadurch schwankte die ECC-Sondenhöhe um teilweise mehr als 100 m. Somit waren hier nur die wenigen Minutenmittel miteinander vergleichbar, zu denen der Ballon die Höhe von 200 bzw. 210 Metern überschritten hatte, was jeweils den aktuellen untersten Auswertebereich des Lidars darstellt. Überwiegend war es während dieser Vergleichsmessungen aufgrund der starken Winde nur möglich, den Ballon bis in eine Höhe von 150 Metern zu bringen. Da in diesem Höhenbereich keine Aussage über den Ozongehalt aus der Lidarmessung zu erhalten ist, wurden diese Teile der Messung nicht mit in Betracht gezogen.

Die Ergebnisse der Statistik werden in Tabelle (5.1) zusammengefaßt; die Messun-gen sind in Abbildungen (5.4), (5.6), (5.8), (5.11), (5.13) und (5.16) dargestellt. Da die mittleren Abweichungen mit einer Ausnahme in der gleichen Größenordnung sind wie die Standardabweichungen der Differenzen, liegt der Schluß nahe, daß die beiden Meßgeräte nicht systematisch voneinander abweichen. Die mittleren Abweichungen über alle Mes-sungen betragen $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, entsprechend 3.5%. Zwischen 3:32 und 4:21 UT am 8. Juni

1994 bewirken große zeitliche Schwankungen in der Lidarmessung zwar eine sehr geringe mittlere Abweichung zwischen Sonden- und Lidarmessung, aber die Standardabweichung der Differenzen ist dadurch am höchsten von allen vier Vergleichen. Wie es zu diesem Ergebnis kam, wird im folgenden beschrieben.

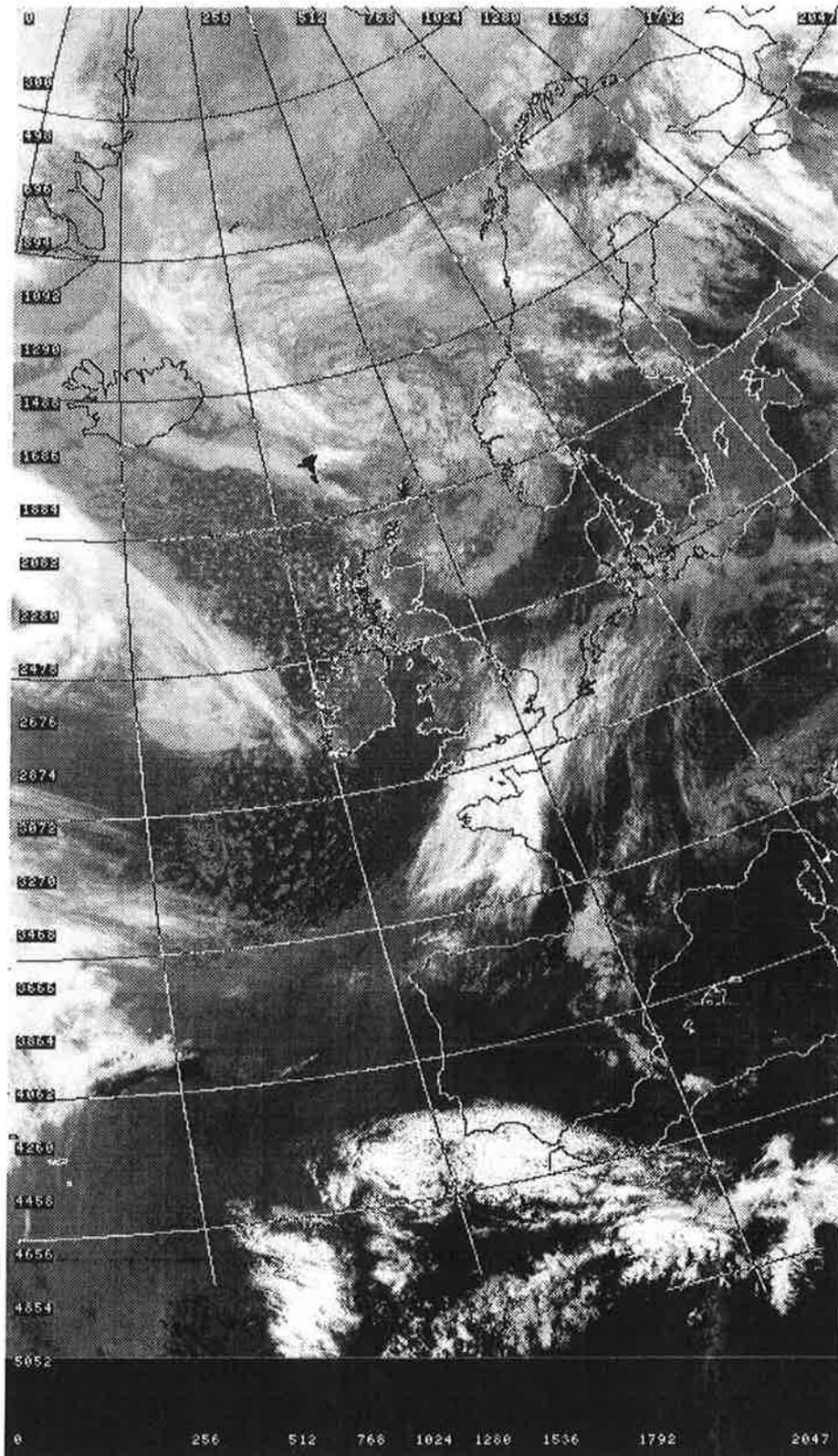
5.3.1.1 Vergleiche am 8.6.94

Die Wetterlage am 8.6.94

Drei Vergleichsmessungen stammen vom 8.6.1994. An diesem Tag lag der Meßort auf der Vorderseite einer Kaltfront. Um 00:00 UT war in der Bodenkarte noch eine schwache Warmfront auszumachen, die rasch nach Osten abzog. In den frühen Morgenstunden herrschten dunstige Verhältnisse. Im Tagesverlauf kam es zu Aufheiterungen, wobei es schwül-warm wurde, mit Tageshöchsttemperaturen von 23 ° C. Der lokale bodennahe Wind war schwach (um 2 m/s). Das Satellitenbild von 5:51 UT (Abbildung (5.3)) stammt, wie die folgenden Satellitenbilder, von der NERC Satellite Station in Dundee, Schottland. Es zeigt die herannahende Kaltfront noch über dem Ärmelkanal. Im Laufe der Abendstunden hatte diese Front den Meßort erreicht.

Vergleichsmessung am 8.6.94, 3:32-4:21 UT

An diesem Tag wurde für die Lidarmessung Deuterium verwendet, so daß das Wellenlängenpaar 268/292 nm zur Auswertung benutzt wurde. Der erste Vergleich, dargestellt in Abbildung (5.4), fand zwischen 3:32 (ca. 45 Minuten nach Sonnenaufgang) und 4:21 UT statt. Das verglichene Höhenintervall liegt zwischen 270 und 330 Meter über Grund. In der Eichhöhe von 600-650 m wurden 25 % Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung angenommen, da in dieser Höhe aufgrund der mäßigen Steigung des nach der Höhe abgeleiteten höhenkorrigierten Lidarsignals, welches ein Maß für die Aerosolkonzentration ist (siehe Kap. 4), von nur mäßiger Aerosolkonzentration ausgegangen werden kann. Dieses Signal ist in Abbildung (5.5) dargestellt. Durchgezogen eingezeichnet in Abbildung (5.4) sind die aerosolkorrigierten Lidarwerte. Die nicht bezüglich der Aerosolparameter korrigierten Ozonwerte sind strichpunktiert, die Sondenwerte sind gepunktet eingezeichnet. In allen drei Meßzeitreihen ist der abnehmende Trend von anfänglich 55 bis 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf ca. 35 bis 45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ersichtlich. Teilweise werden Übereinstimmungen zwischen korrigierten Lidarwerten und korrigierten Sondenwerten erzielt, die innerhalb der Auflösung der Sonde von 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen. Über den gesamten Meßzeitraum zeigt die Lidarmessung zum Teil nicht unerhebliche Schwankungen innerhalb weniger Minuten von bis zu 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ um ca. 4:00 UT und gegen Ende der Messung 14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, während die Sonde gleichmäßigere Werte erzielt. Die unkorrigierte Lidarzeitreihe zeigt über den ge-



samten Zeitraum niedrigere Werte. Die Standardabweichungen im Ozon in der korrigierten Lidarzeitreihe betragen $4.63 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die der Sondenmessung liegen mit $1.86 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um einen Faktor 2.5 niedriger, wie aus Tabelle (5.1) zu entnehmen. Die unkorrigierte Lidar-datenzeitreihe hat mit $4.92 \mu\text{g}/\text{m}^3$ eine um den Faktor 2.6 erhöhte Standardabweichung im Vergleich zur Sondenmessung. Da bei einer Lidardatenauswertung grundsätzlich eine Aerosolkorrektur vorgenommen wird, werden in der vergleichenden Statistik von Tabelle (5.1) nur die korrigierten Werte angegeben.

Der Vergleichshöhenbereich liegt am oberen Ende der sich neu aufbauenden PBL. Dieses ist erkennbar an dem stark negativen Wert des nach der Höhe abgeleiteten höhenkorrigierten Signals im Vergleichshöhenbereich, der dort, ähnlich wie in Abbildung (4.1) in der Höhe von 1800 m, einen starken Gradienten des höhenkorrigierten Signals hervorruft. In der Nähe der Schichtgrenzen können zusätzlich aber auch kleinskalige Variationen in der Ozondichte auftreten. Diese würden zur Folge haben, daß man nicht mehr in dem gleichen Luftvolumen mißt. Obwohl nicht klar getrennt werden kann, ob die starken Abweichungen der Minutenmittel voneinander durch Aerosoleinflüsse in der Lidarmessung oder durch Messung in verschiedenen Luftvolumina hervorgerufen wurde, so bleibt dennoch festzuhalten, daß eine fehlerhafte Aerosolkorrektur in der Lidarmessung einen signifikanten Beitrag liefern kann.

Vergleichsmessung am 8.6.94, 8:34-10:10 UT

In den Vormittagsstunden, zwischen 8:34 und 10:10 UT, fand die zweite Vergleichsmessung statt, deren Ergebnisse in Abbildung (5.6) dargestellt sind. Wieder ist der Trend der Messungen beider Meßsysteme gleich. Die anfänglich gemessene Ozondichte von $55 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erhöht sich im Laufe der über 90 minütigen Vergleichsmessung auf mehr als $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die zu Beginn der Vergleichsmessung auftretenden Abweichungen zwischen aerosolkorrigierter Lidarmessung und Sondendaten von ungefähr $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$, entsprechend 20 %, sind zum einen auf die große Abweichung zwischen Lidar- und Sondenmessung als auch wieder auf die größeren Schwankungen der Lidarmessung zurückzuführen. Die unkorrigierten Lidardaten zeigen in der ersten Hälfte der Messung geringere Schwankungen in den Minutenmitteln als die korrigierten Lidardaten. Die Standardabweichungen sind mit $2.72 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die aerosolkorrigierte Lidarmessung im Vergleich zu $1.50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ der Sondenmessung um den Faktor 1.8 erhöht, während die Standardabweichung für die unkorrigierte Lidarmessung mit $2.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nur um den Faktor 1.4 im Vergleich zur Sondenmessung erhöht ist. Der höhere Wert der korrigierten Lidarmessung ist bedingt durch starke zeitliche und vertikale Gradienten in der Ableitung des höhenkorrigierten

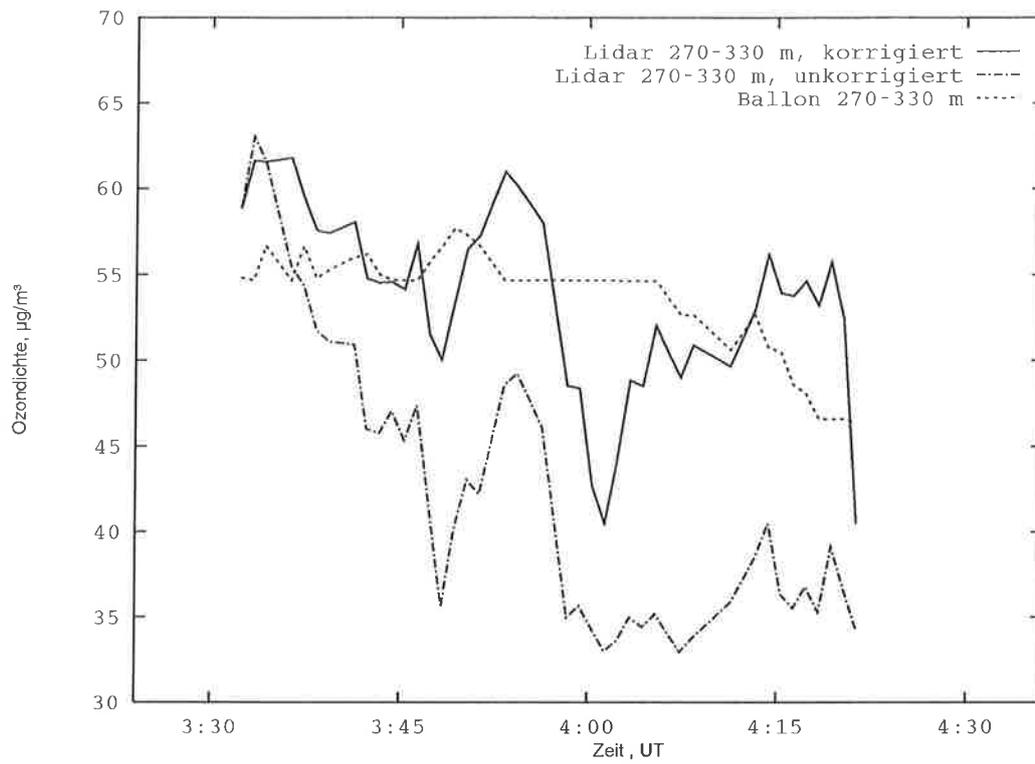


Abbildung 5.4: Vergleich Lidar / Fesselsonde 8.Juni 1994, 3:32 - 4:21 UT

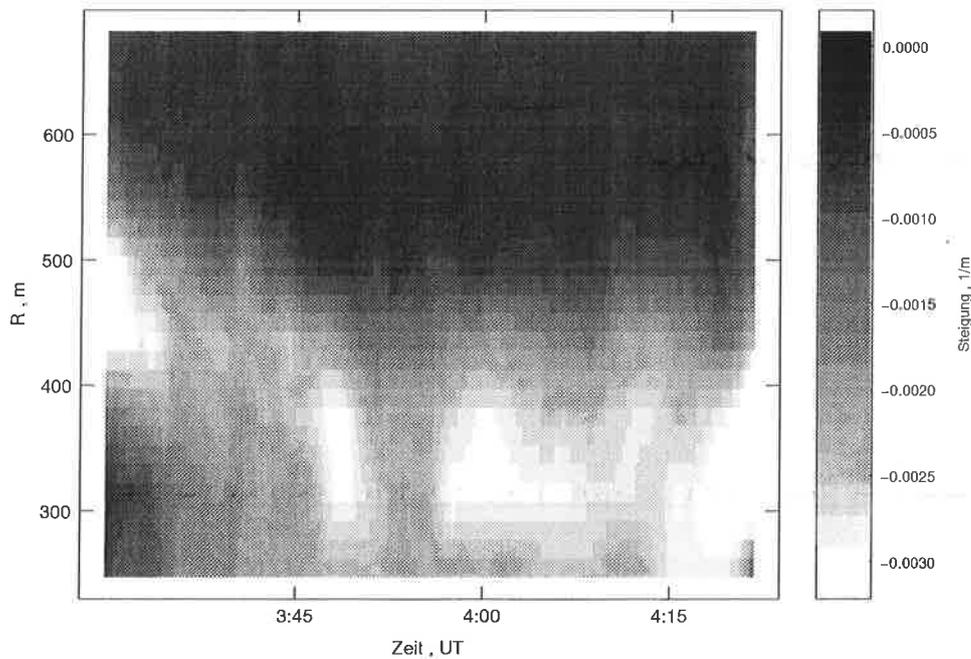


Abbildung 5.5: Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 8.Juni 1994, 3:32 - 4:21 UT.

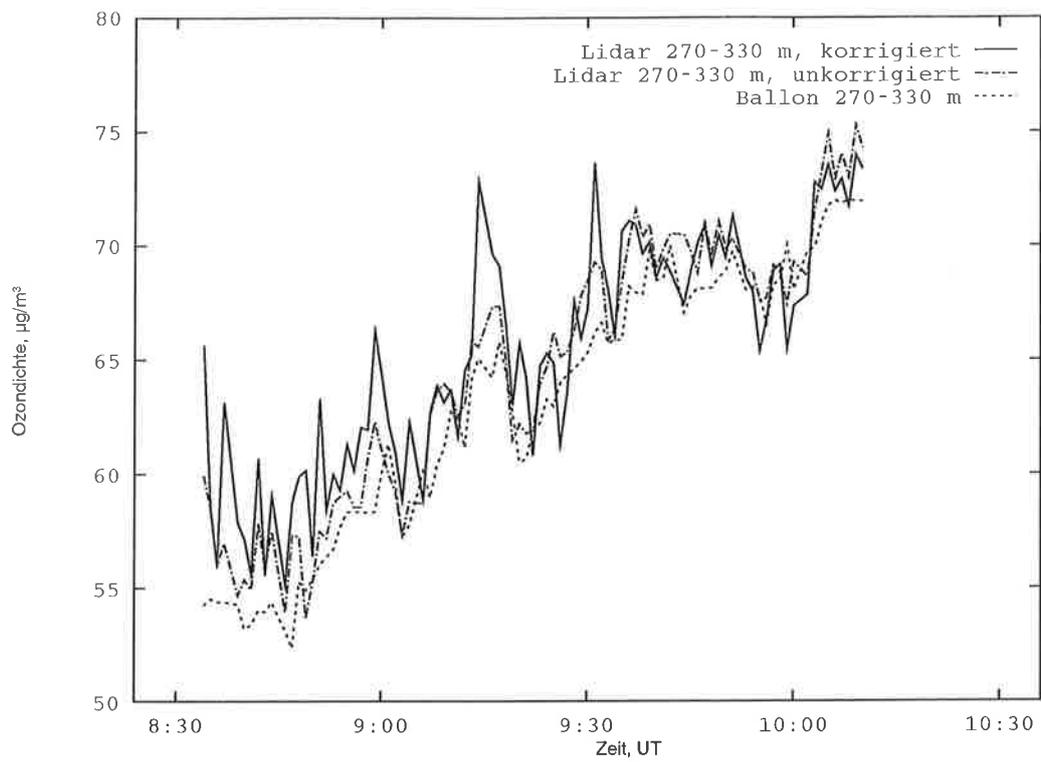


Abbildung 5.6: Vergleich Lidar / Fesselsonde 8. Juni 1994, 8:34 - 10:10 UT

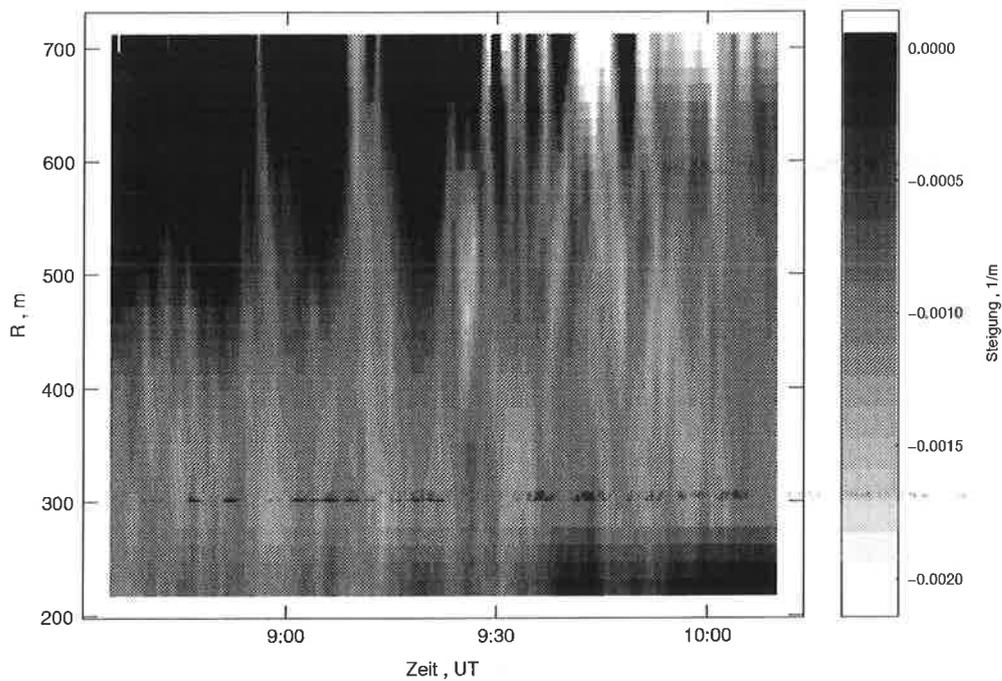


Abbildung 5.7: Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Messung vom 8. Juni 1994, 8:34 - 10:10 UT.

Signals, wie in Abbildung (5.7) zu sehen ist. Diese hohe Variabilität verhindert, eine einheitliche geeignete Eichhöhe mit relativ konstantem Aerosolrückstreuoeffizienten für die gesamte Vergleichsmessung zu finden, die weit genug von der Vergleichsmeshöhe entfernt ist, um nicht den Eichwert als wahre Korrektur, sondern einen mehrfach iterierten Wert in die Datenauswertung eingehen zu lassen. Diese für die gesamte Messung einheitliche Eichhöhe ist Voraussetzung für vergleichbare Lidarergebnisse. Die für die gesamte Messung angenommene Eichhöhe war in 600 bis 650 Meter angesiedelt. Dort wurden aufgrund der überwiegend starken Gradienten in der Ableitung des höhenkorrigierten Signals ein 50 prozentiger Anteil der Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung angenommen. Die zeitlich variable Steigung des höhenkorrigierten Signals, welche zu variablen Aerosolrückstreuoeffizienten führt, resultiert auch in niedrigen Höhen wie der Meßhöhe in fehlerhafter Aerosolkorrektur.

Auch wenn die Aerosolkorrektur über den gesamten Zeitraum betrachtet zu befriedigenden Ergebnissen hinsichtlich der Abweichungen zwischen Lidarmessung und Sondenmessung führt, so sind dennoch einzelne Minutenmittel negativ von der Korrektur beeinflusst, was sich in den starken Schwankungen der Minutenmittel bemerkbar macht. Die mittlere Abweichung von $2.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ mit einer Standardabweichung von $2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über die gesamte Messung der aerosolkorrigierten Lidardaten von den Sondendaten kann in Anbetracht dieser meteorologisch ungünstigen Situation als sehr gut gewertet werden.

Vergleichsmessung am 8.6.94, 14:04-15:01 UT

Am Nachmittag, zwischen 14:04 und 15:01 UT, fand die dritte Vergleichsmessung dieses Tages statt. Die Abweichungen der aerosolkorrigierten Lidardaten von den Sondendaten während der ersten halben Stunde befinden sich innerhalb der Auflösung der Sonde von $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (siehe Abbildung 5.8). Die unkorrigierte Lidardatenzeitreihe liegt um ca. 2 bis $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ unterhalb der korrigierten Zeitreihe. Die Messung fand innerhalb der PBL statt, in der keine großen Änderungen der vertikalen Gradienten im höhenkorrigierten Signal vorlagen (siehe Abbildung (5.9)), so daß eine gleichmäßige Aerosolkorrektur resultiert. Aufgrund der Lage innerhalb der PBL, welche eine relativ große negative Steigung des Signals verursacht, wurde bei dieser Messung ebenfalls in 600 bis 650 m ein Anteil der Aerosolrückstreuung von 50 % angenommen. Dadurch, daß die Messung nicht an Schichtgrenzen der Atmosphäre stattfand, wo entweder natürliche oder durch die Aerosolkorrektur bedingte Variabilität in der Zeitreihe der korrigierten Lidardaten eine große Standardabweichung der Ozonwerte hervorgerufen werden, resultiert eine geringere Standardabweichung des Ozons von $1.17 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die Lidarmessung, während die

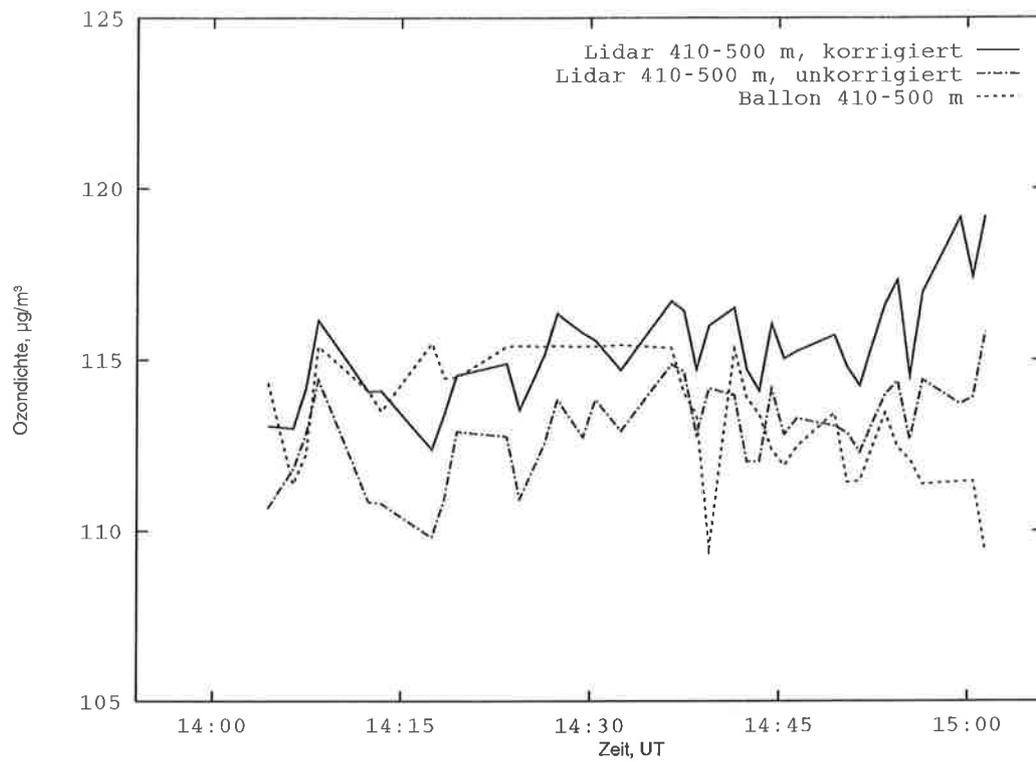


Abbildung 5.8: Vergleich Lidar / Fesselsonde 8.Juni 1994, 14:04 - 15:01 UT

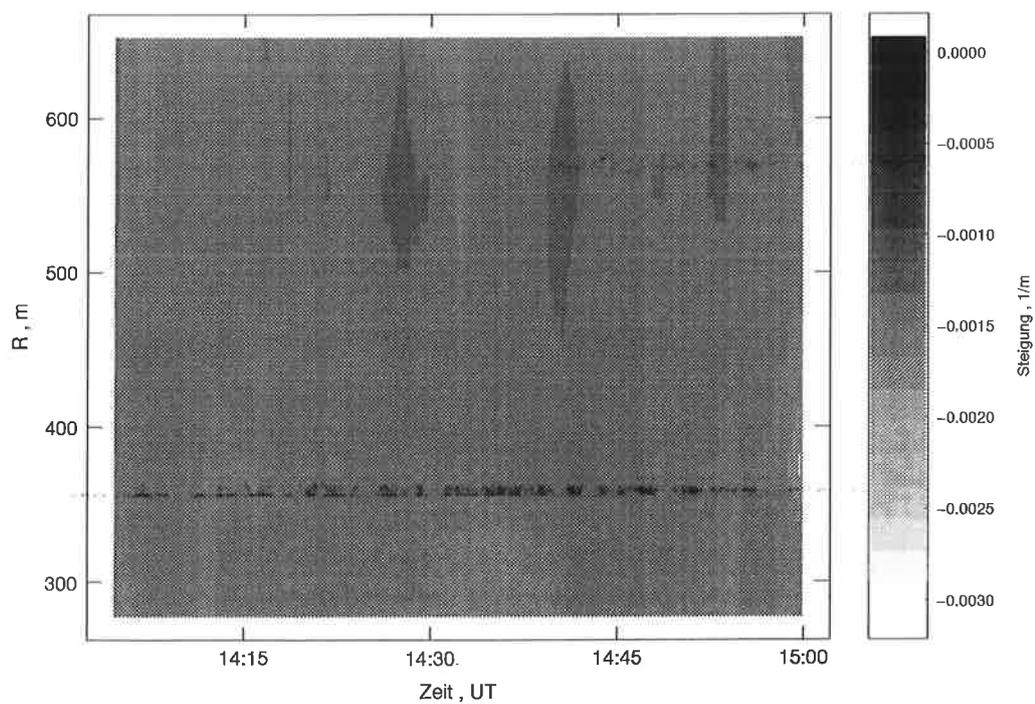


Abbildung 5.9: Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 8.Juni 1994, 14:04 - 15:01 UT.

Standardabweichung der Sondenmessung in diesem Fall mit $1.51 \mu\text{g}/\text{m}^3$ größer ist. Aber auch hier verringert die Aerosolkorrektur die Standardabweichung in der Lidarmessung nicht. Sie beträgt für die unkorrigierte Lidarmessung $1.12 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was im korrigierten Fall dem 0.8-fachen und im unkorrigierten Fall dem 0.7-fachen der Standardabweichung der Sondenmessung entspricht.

Aus der Sondenmessung resultiert ab ca. 14:40 UT ein abnehmender Trend. Ein umgekehrter Trend ergibt sich aus beiden Resultaten der Lidarmessung. Die Untersuchung der Ursachen dieser verschiedenen Trends ergab, daß die Innentemperatur der Sonde um 15:00 UT fast 50°C erreichte. Nach 15:00 UT wurde kein Vergleich der Meßergebnisse mehr durchgeführt, denn bei diesen Temperaturen verdampft die in der ECC-Zelle befindliche Lösung zum Nachweis des Ozons schnell. Es liegt der Schluß nahe, daß der Trend in der Sondenmessung durch eine Abnahme der Nachweisflüssigkeit in der Sonde und so durch kleinere Nachweisströme (vgl. Kapitel (5.1.2)) verursacht wird. Am Ende der Sondenmessung wurde ein rascher Abfall auf eine Ozondichte von nur noch $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ festgestellt. Da die Fesselsonde zu diesem Zeitpunkt gleichzeitig bis zu einer Höhe von 800 Metern gebracht wurde, wurde das Sondenergebnis zusätzlich mit der anschließenden Messung des großen Teleskops ab 15:45 UT verglichen. Diese Messungen ergaben in einem Höhenbereich von 1000 bis 1600 Metern einen Wert von 110 bis $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was in guter Übereinstimmung zur vorangegangenen und hier verglichenen Lidarmessung mit dem kleinen Teleskop steht. Somit erscheint der ab 14:40 UT einsetzende abnehmende Trend der Sondenmessung fragwürdig.

5.3.1.2 Vergleiche am 14.6.94

Die Wetterlage

An diesem Tag lag Mitteleuropa an der Ostflanke eines umfangreichen Hochdruckgebietes. Am Vormittag herrschte im Osten Deutschlands noch wolkenreiche Meeresluft vor, aber im Tagesverlauf setzte sich sonniges Wetter mit Höchsttemperaturen von 20°C durch. Allerdings erreichte eine schwache Kaltfront eines Zentraltiefs über dem nördlichen Nordmeer nachmittags das Küstengebiet Deutschlands und drang bis zum späten Abend bis zum Mittelgebirgsraum vor. Im Satellitenbild von 14:32 UT (Abbildung 5.10) ist diese Front durch ein dünnes Wolkenband über der mecklenburgischen Ostseeküste auszumachen. Der Wind wehte am Tage schwach bis mäßig aus west- bis nordwestlichen Richtungen, frischte aber mit herannahen der Front auf. Die Konsequenzen für die Vergleichsmessungen werden beim zweiten Vergleich an diesem Tag geschildert.

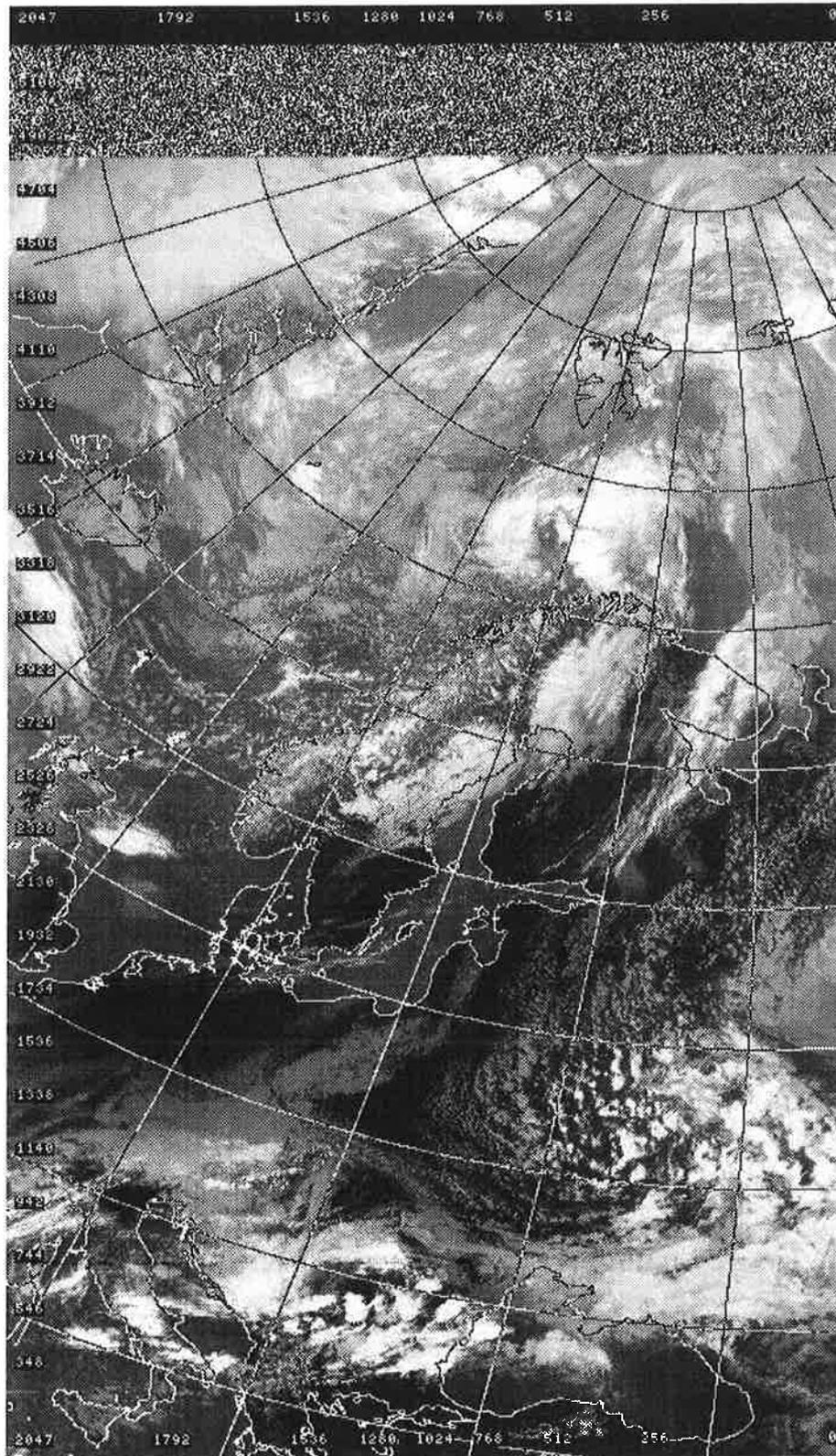


Abbildung 5.10: Satellitenbild 14. Juni 94, 14:32 UT

Vergleichsmessung am 14.6.94, 14:44-15:19 UT

Durch den Einsatz von Wasserstoff bei der Lidarmessung an diesem Tag, steht für diese Messungen das Wellenlängenpaar 277/313 nm zur Verfügung. Während der Vergleichsmessungen zwischen 14:44 und 15:19 UT war es zwischen 15:02 und 15:14 und zwischen 15:17 und 15:20 UT nicht möglich, den Ballon in der gewünschten Meßhöhe von 310 bis 400 Metern zu halten. Kurzzeitig wurde der Ballon zwischen 15:02 und 15:14 UT bis in eine Höhe von 550 Metern angehoben. Zwischen 15:17 und 15:20 UT fiel der Ballon in eine Höhe von bis zu knapp 240 Metern ab. Da die mit dem Lidar gemessenen Ozonprofile keine nennenswerten vertikalen Gradienten aufweisen, wurden die Sondenergebnisse mit in diesen Vergleich aufgenommen.

Zu Beginn der Vergleichsmessung lagen die aerosolkorrigierten Lidarwerte noch 5 - 7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ höher als die Sondenwerte, näherten sich zum Ende aber auf weniger als 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an, wie aus Abbildung (5.11) ersichtlich. Die unkorrigierten Lidarwerte lagen leicht unter den korrigierten und somit noch dichter an der Sondenmessung. Wieder lagen die Standardabweichungen im Ozon in der aerosolkorrigierten Lidarmessung mit 1.26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ um einen Faktor von 1.5 höher als die der Sondenmessung mit 0.82 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Standardabweichung der unkorrigierten Lidardaten lag mit 1.74 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ um den Faktor 2.1 höher als die der Sondenmessung. In diesem Fall wirkt sich die Aerosolkorrektur mit einer Eichung in 800-850 m mit einem dort angenommenen Anteil der Aerosolrückstreuung von 50 % also positiv auf die Standardabweichung der Lidarmessung aus. Der Wert von 50 % wurde angenommen, da die Messung in der PBL stattfand. Die höhere Standardabweichung der Lidarmessungen im Vergleich zur Sondenmessungen ist dadurch erklärbar, daß die Messung zwar voll in der PBL, aber in der Nähe des Oberrandes einer schwachen internen Grenzschicht lag, wie aus der in Abbildung (5.12) dargestellten Ableitung des höhenkorrigierten Signals, durch die Abwechslung von helleren und dunkleren Bereichen in der Vergleichshöhe, ersichtlich ist.

Insgesamt ergibt sich für diese Messung die größte mittlere Abweichung von 5.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, was 6.0 % entspricht. Dieses kann dennoch als ein gutes Ergebnis gewertet werden, wenn man einerseits die Auflösung der Sonde von 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und andererseits die vorhandenen Systemfehler beider Meßsysteme berücksichtigt.

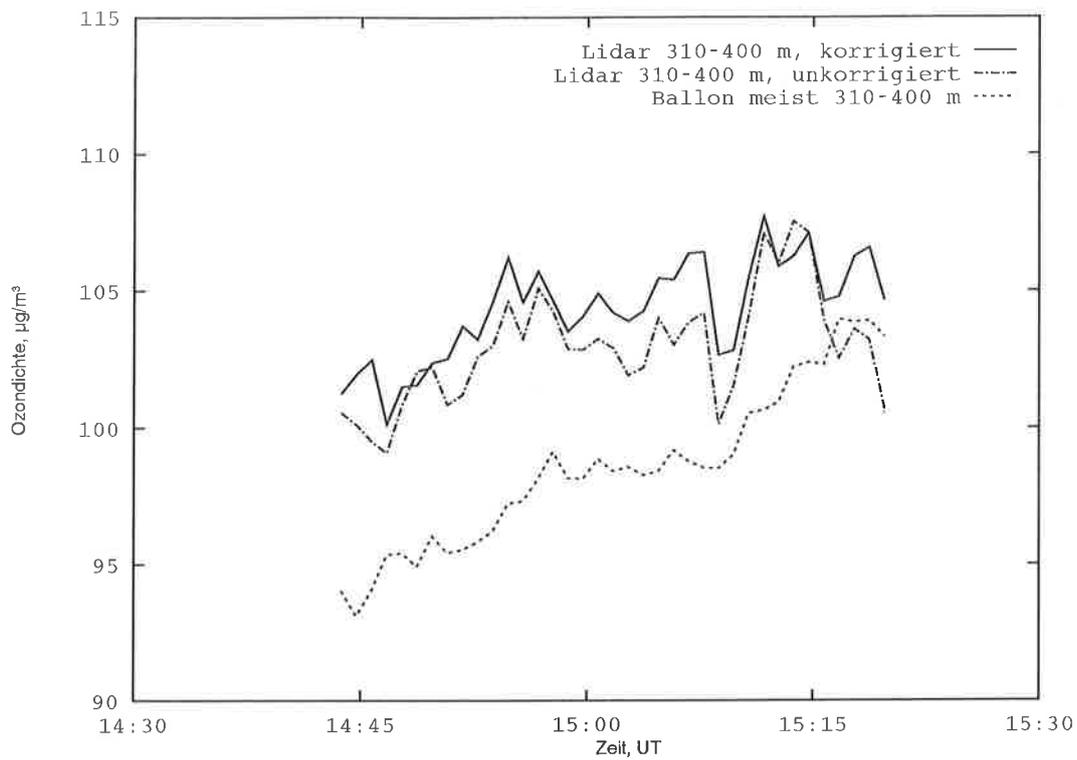


Abbildung 5.11: Vergleich Lidar / Fesselsonde 14. Juni 1994, 14:44 - 15:19 UT

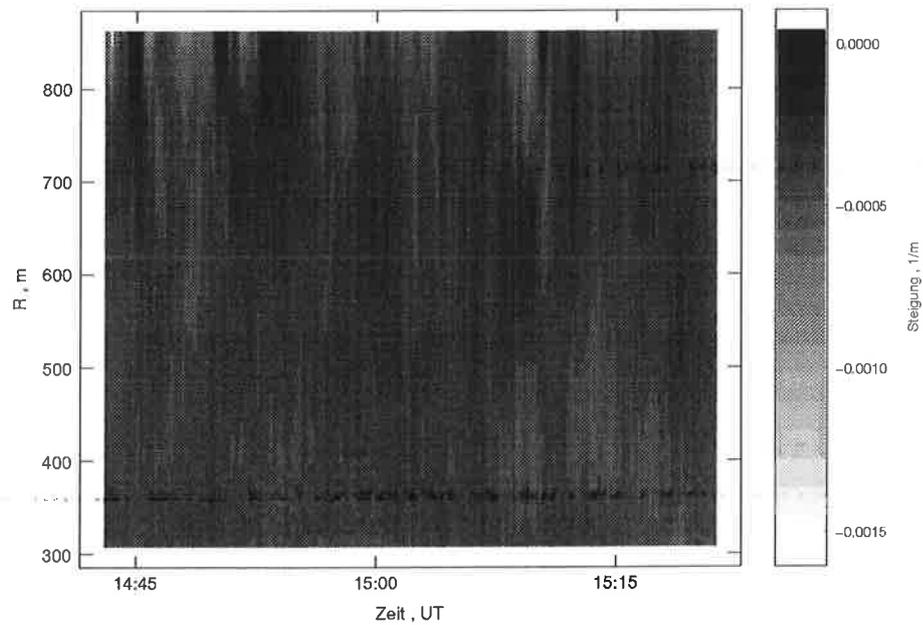


Abbildung 5.12: Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 14. Juni 1994, 14:44 - 15:19 UT.

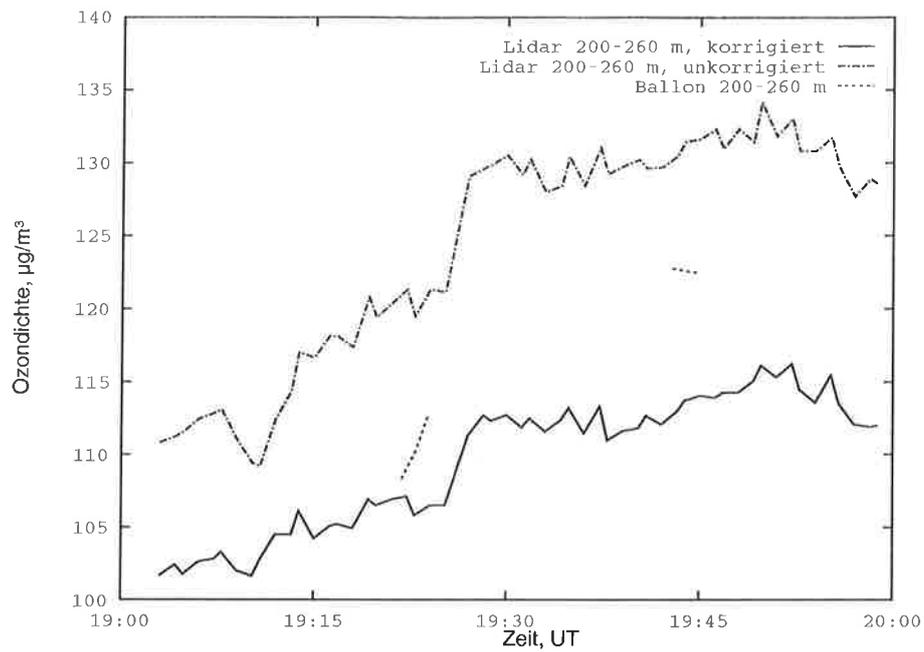


Abbildung 5.13: Vergleich Lidar / Fesselsonde 14. Juni 1994, 19:22 - 19:45 UT

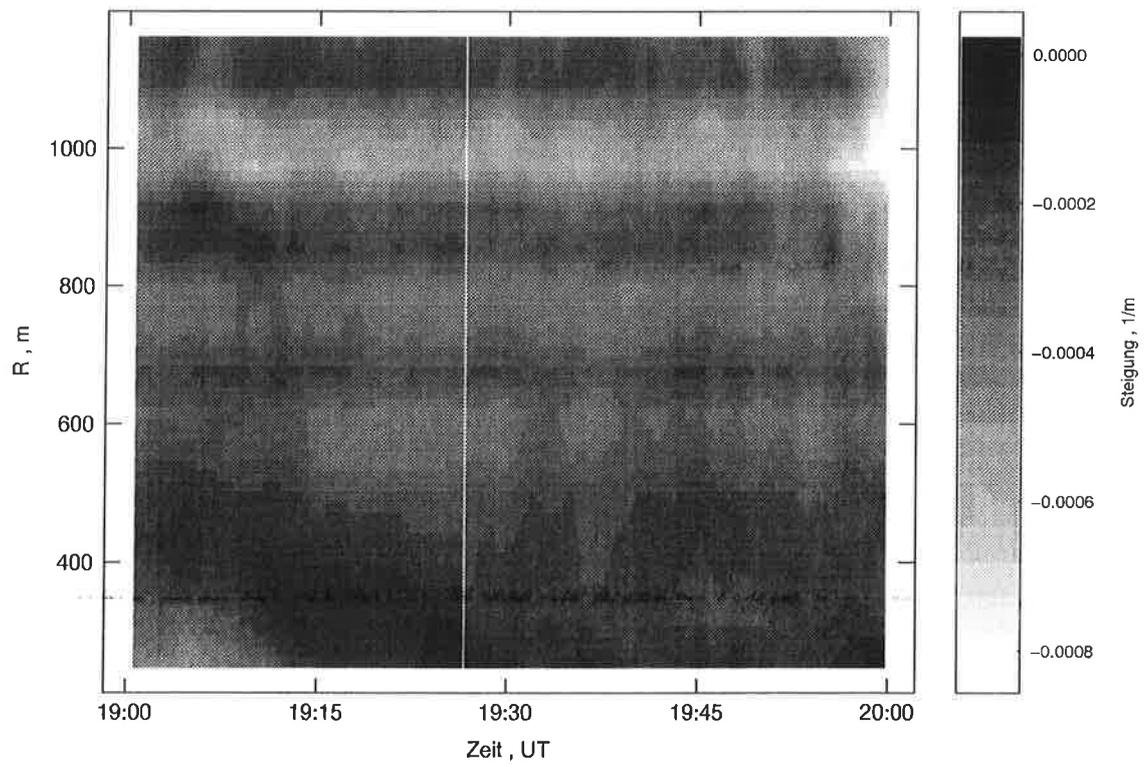


Abbildung 5.14: Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 14. Juni 1994, 19:00 - 20:00 UT. Der Vergleichszeitraum ist 19:22 - 19:45 UT.

Vergleichsmessung am 14.6.94, 19:22-19:45 UT

Die zweite Messung an diesem Tag wurde von starken Winden mit einer Geschwindigkeit von mehr als 9 m/s in der Höhe von 200 Metern begleitet. Hier machte sich die von der See heranziehende Kaltfront bemerkbar. Wie oben beschrieben, ist bei so hohen Windgeschwindigkeiten eine Messung mit dem Fesselballonsystem kaum noch möglich. Dieses führte auch dazu, daß der Ballon nur zweimal über wenige Minuten hinweg die minimale Auswertehöhe der Lidarmessung von 200 Metern erreichte, wie aus Abbildung (5.13) hervorgeht.

Die Eichung der Messung erfolgte in 1000 - 1060 m Höhe, unter der Annahme einer 50 prozentigen Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung. Die Ableitung des höhenkorrigierten Signals ist in Abbildung (5.14) dargestellt. Die über die Höhe abwechselnd dunklen und hellen Bereiche dieses Signals belegen, daß die Messung in der wenig turbulent durchmischten Restschicht stattgefunden hat und sich deshalb Höhenbereiche mit unterschiedlichen Aerosolgehalten ausgebildet haben. Die mittlere Differenz zwischen Lidar- und Sondenergebnis von $-6.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5.6 %) ist relativ gering hinsichtlich der hohen Windgeschwindigkeiten. Durch das Verdriften des Ballones bei hohen Windgeschwindigkeiten stellt sich die Frage, ob die gleichen Luftvolumina zur Messung gedient haben. Die nordwestlichen Winde führten dazu, daß Lidar und Fesselsonde in einer Linie parallel zur Windrichtung standen. Unter der Annahme, daß der Ballon durch die Windgeschwindigkeit um 300 Meter horizontal verdriftet wurde, ergibt sich eine Zeit von 33 Sekunden, die ein Luftpaket braucht, um diese Distanz zu überwinden. Dieses liegt in der Nähe der zeitlichen Auflösung der Sonde, so daß diese Daten diesbezüglich nicht korrigiert werden mußten.

In Anbetracht der kurzen Vergleichszeiträume ist eine Berechnung der Standardabweichungen nicht sinnvoll.

5.3.1.3 Vergleich am 20.6.94

Die Wetterlage

Am Nachmittag des 20. Juni fand ein weiterer Fesselballonaufstieg statt. Dabei lag Ostdeutschland auf der Vorderseite einer sich rasch von Westen nähernden Warmfront. Auf dem Satellitenbild (Abbildung (5.15)) liegt die Frontalzone noch über Thüringen/Sachsen-Anhalt. Die Vergleichsmessung dieses Tages fand knapp eine Stunde später statt, so daß der Meßort von den präfrontal auflebenden Winden beeinflusst wurde.

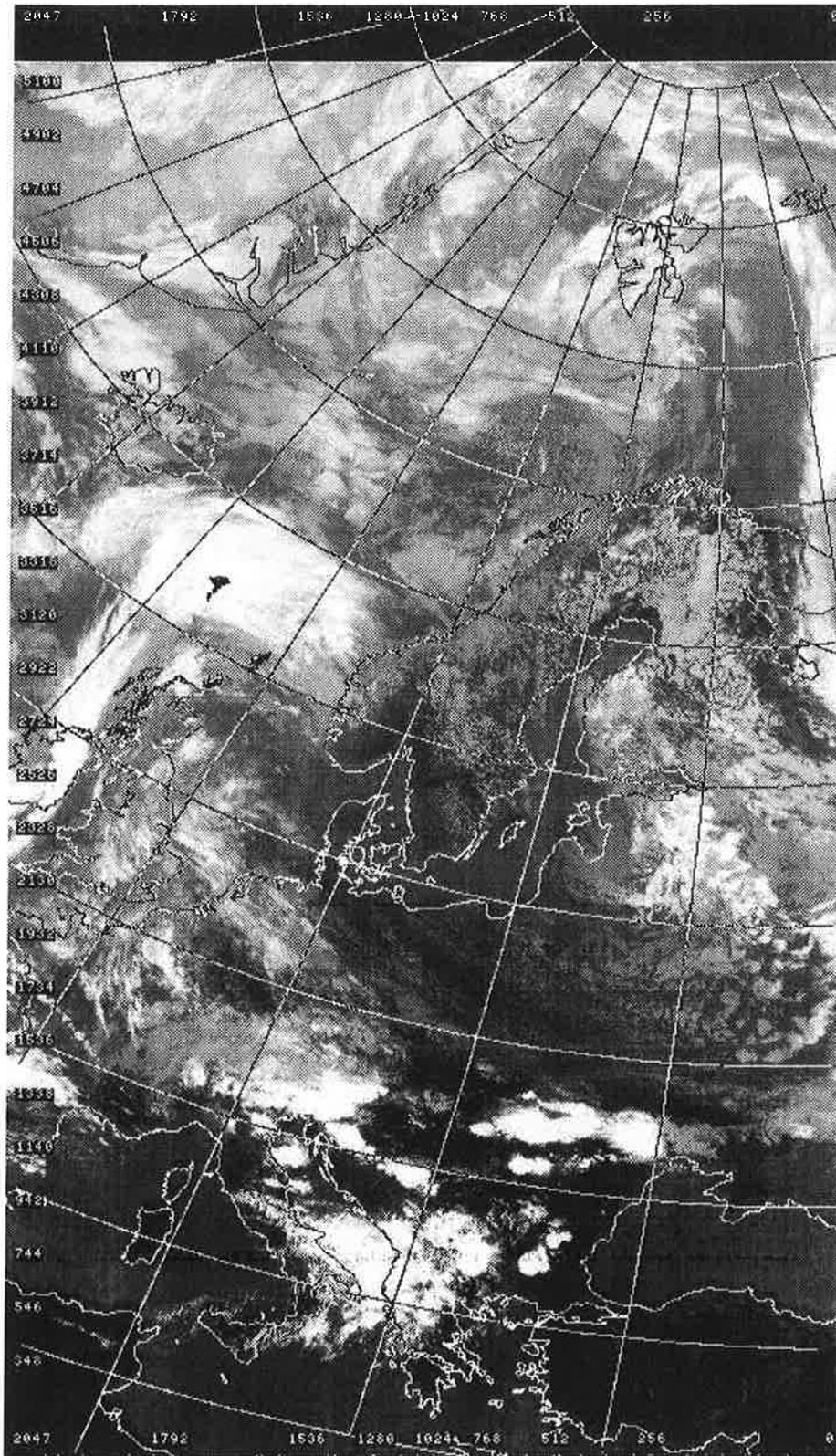


Abbildung 5.15: Satellitenbild 20.Juni 94, 14:58 UT

Vergleichsmessung am 20.6.94, 15:47-15:52 UT

Die auflebenden Winde erreichten während der Vergleichsmessung Geschwindigkeiten von mehr als 7 m/s in der Höhe von 200 Metern, was einen längeren Vergleichszeitraum verhinderte. Nur zwischen 15:47 und 15:52 UT war es möglich, die für die Lidarauswertung minimale Höhe von 210 Metern zu überschreiten, wie in Abbildung (5.16) gezeigt.

In einer Höhe von 600 - 650 m wurde ein Anteil von 50 Prozent der Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung angenommen. Die westnordwestlichen Winde sorgten wieder für einen horizontalen Versatz der Meßvolumina, aber wieder waren die Systeme in einer Linie parallel zum Wind ausgerichtet. Die mittlere Abweichung von $-4.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, bzw. -3.6% , stellt auch bei dieser unter schwierigen meteorologischen Bedingungen durchgeführten Messung ein sehr gutes Ergebnis dar.

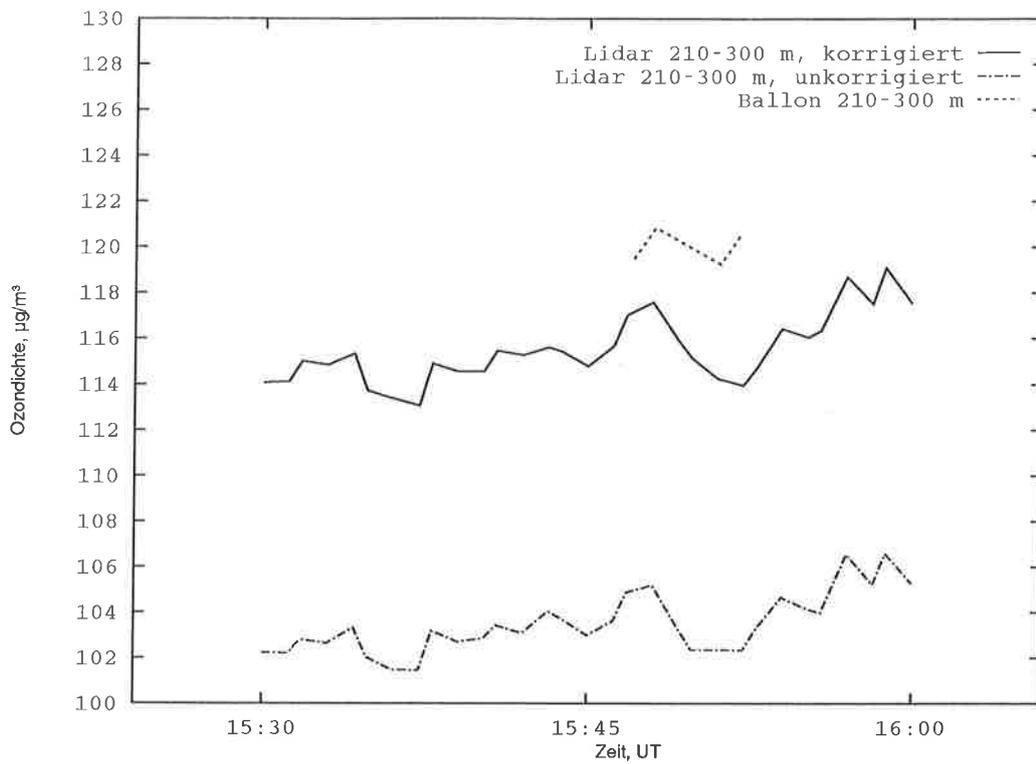


Abbildung 5.16: Vergleich Lidar / Fesselsonde 20.Juni 1994, 15:30 - 16:00 UT

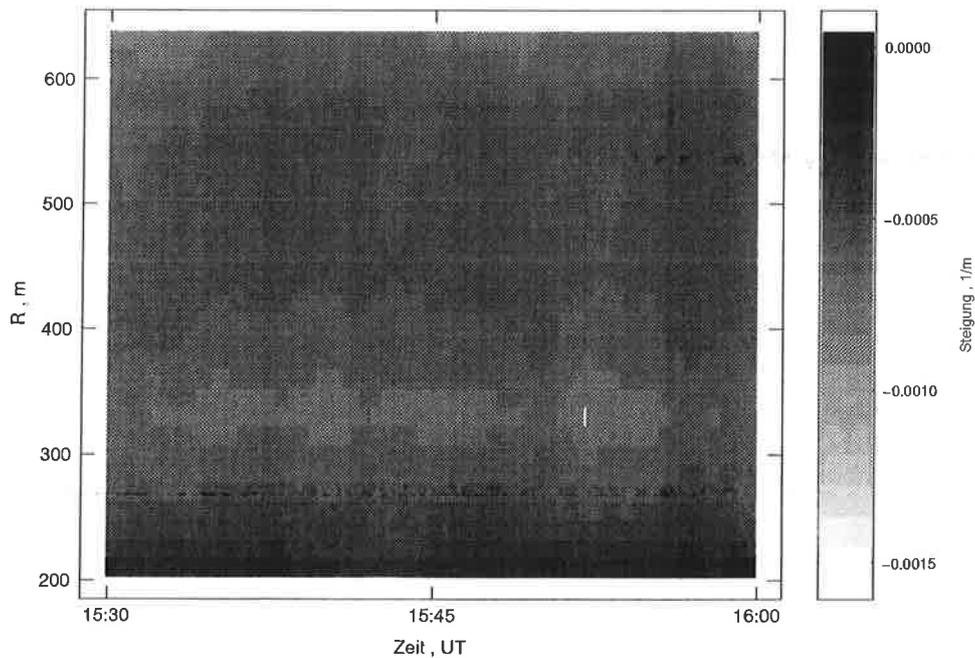


Abbildung 5.17: Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 20.Juni 1994, 15:30 - 16:00 UT. Der Vergleichszeitraum ist 15:47 - 15:52 UT.

5.3.2 Vergleich freifliegende Sonde / Lidar

Der Vergleich der ECC-Sondenmessungen in Verbindung mit freifliegenden Ballonen sollte durchgeführt werden, um die Lidardaten der freien Troposphäre zu überprüfen. Während für die Messungen innerhalb der Grenzschicht das kleine Teleskop wegen seines Meßhöhenbereiches für Ozonuntersuchungen besonders geeignet ist, ist für die freie Troposphäre das große Teleskop prädestiniert. Daher wurde während der Starts freifliegender Sonden grundsätzlich das große Teleskop für Lidarmessungen aktiviert. Weniger die Windgeschwindigkeiten, sondern eine zumindest durchbrochene Decke von niedrigen und mittelhohen Wolken sind für einen solchen Vergleich entscheidend. Starke Windgeschwindigkeiten verursachen lediglich ein stärkeres Verdriften des Ballones. Wie aber oben beschrieben, ist dieses in der freien Troposphäre nicht so kritisch wie in der Grenzschicht.

Trotz dieser Einschränkung gelang eine Vergleichsmessung bei 10 von 12 durchgeführten Aufstiegen. Während der Aufstiege vom 8. Juni 5:17 UT und 15. Juni 10:45 UT verhinderten Wolken in wenigen hundert Metern einen erfolgreichen Vergleich mit freifliegenden Sonden. Da aber, wie schon oben beschrieben und aus dem Satellitenbild ersichtlich, die Wolkendecke im Laufe des 8. Junis zunehmend aufriß, konnten an diesem Tag zwei weitere Aufstiege freifliegender Sonden mit Lidarmessungen verglichen werden.

Unter der Verwendung von Deuterium zur Lidarmessung, wurde zusätzlich zum Wellenlängenpaar 268/292 nm auch das Paar 292/319 nm zur Ozonauswertung benutzt, so daß ein Höhenbereich von minimal 800 bis maximal 3500 Metern für Vergleiche zur Verfügung steht. Allerdings ist eine nur wenig Aerosole beinhaltende Atmosphäre bei der Auswertung der Paare 292/319 nm nötig, wie in Abschnitt (4.2.1) beschrieben. Da dies nicht bei jedem Vergleich der Fall war, konnten nicht immer beide Wellenlängenpaare für die DIAL-Auswertung benutzt werden, sondern zuweilen nur 268/292 nm. In diesem Fall ist eine maximale Auswertehöhe von ca. 1800 Metern gegeben. Da diese Höhe häufig noch innerhalb der Grenzschicht oder zumindest in Bereichen stärkerer Gradienten in der Aerosolkonzentration lag, ergaben sich keine überlappenden Auswertebereiche zwischen diesen beiden Wellenlängenpaaren. Bei Lidarmessungen, die mit Wasserstoff durchgeführt wurden, war ein Vergleich bis zur Höhe von ca. 2500 Metern möglich.

Die Vergleichsergebnisse sind in Abbildung (5.18) - (5.22) graphisch dargestellt. Die vertikale Mittelung der Lidardaten beträgt 90 Meter für die Paare 277/313 und 268/292 nm und 270 Meter für das Paar 292/319. Dieses erschien als ein guter Kompromiß zwischen akzeptablem Rauschen aufgrund von Aerosoleinfluß und Systemrauschen einerseits

und einer hinreichenden Höhenauflösung andererseits.

Die zeitliche Mittelung mußte aufgrund von Wolken variabler erfolgen. In der Regel sind die Lidarprofile über 5 bis 10 Minuten gemittelt. Falls Bewölkung zur Startzeit auftrat, mußte aber die Mittelungszeit auf bis zu 30 Sekunden verringert und teilweise der Meßzeitraum des Lidars verschoben werden.

Somit ist es möglich, daß wie am 22. Juni 10:48 UT Startzeit der Sonde der Fall, die Mittelungszeiten des Lidars zu den Startzeiten der Sonde um bis zu 34 Minuten verschoben sind und dann über 30 Sekunden gemittelt wurde.

Zusätzlich ist in Abbildung (5.18) - (5.22) die Grenzschichthöhe markiert und mit 'zi' für Grenzschichthöhe und 'rl' für Höhe der Restschicht versehen. Die Höhen der Grenzschichten und die der Restschichten wurden sowohl aus der Lidarmessung als auch durch den Ballonaufstieg ermittelt. Um diese Höhe aus den Lidardaten zu ermitteln, wurden die entfernungskorrigierten Signale auf starke vertikale Gradienten untersucht. Die PBL-Höhe wurde dann, wie in Kapitel (4.2.1) beschrieben, ermittelt. Die aus den Lidardaten erhaltenen Höhen wurden mit den Höhen verglichen, in denen eine Temperaturinversion oder ein Sprung in der relativen Feuchte aus den Radiosondenaufstiegen hervorging. Diskrepanzen der so ermittelten PBL-Höhen traten nur an sehr starken Inversionen über mehrere 100 Meter auf. Ein Beispiel dafür ist der Vergleich am 20.6 um 10:49 UT. Aus den Lidardaten ging eine niedrigere Grenzschichthöhe als aus den Radiosondendaten hervor. Hier wurde die aus den Lidardaten ermittelte Höhe als wahre Höhe angenommen, da ein aufsteigendes Luftpaket rasch an einer starken Temperaturinversion gebremst und zur Umkehr gezwungen wird. Somit scheint ein Aufstieg dieses Luftpaketes um einige hundert Meter unrealistisch, zumal keine Bewölkung von Cumulonimben vorlag, welche extrem große Vertikalgeschwindigkeiten von bis zu 10 m/s aufweisen können und somit in der Lage sind, ein Luftpaket auch unter stabilen Verhältnissen noch über weite Strecken aufsteigen zu lassen.

Die Darstellung der Ergebnisse in (5.18) - (5.22) ist einheitlich bis 4400 Metern über Lidarhöhe und zwischen 10 und 150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ hinsichtlich der Ozondichte. Die Sonderegebnisse sind durch eine Linie dargestellt, während die Lidarergebnisse mit Markierungspunkten, um die die Lidardaten vertikal gemittelt wurden, eingezeichnet sind. Die den Profilen zugehörigen Bodenwerte sind im Falle des Lidars mit dem sich in unmittelbarer Nähe zum Lidar befindlichen Ozonmonitor gemessen und mit dem Lidarprofil verbunden, während der Bodenwert der Sondenmessung von der Sonde stammt. Die statistischen Variablen

sind in Tabelle (5.2) zusammengefaßt. Mit nur zwei Ausnahmen ist die mittlere Abweichung zwischen Lidarmessung und Sondenmessung kleiner als $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Standardabweichungen der Differenzen ist bis auf den Vergleich am 8.6. um 16:44 UT wieder in der gleichen Größenordnung, was zeigt, daß auch diese Messungen keinen systematischen Fehler zwischen den Meßgeräten beinhalten. Die Standardabweichung der Messungen beider Meßgeräte können hier durch den Vergleich der Vertikalprofile nicht verglichen werden. Neben den verglichenen Höhenbereichen und den zur Lidarauswertung benutzten Wellenlängen sind analog zur vergleichenden Statistik mit den Fesselsonden in dieser Tabelle auch die relativen mittleren Abweichungen zwischen Lidar und Sonde angegeben.

5.3.2.1 Vergleich der Bodenwerte

Die Sonde wurde kurz vor dem Start mit einem Ozonmonitor des MOL kalibriert, der gleichen Typs wie der Ozonmonitor des MPI ist, so daß aufgrund des Kalibrierungsgerätes der Sonde keine Unterschiede auftreten. Obwohl der Startplatz der Sonde in nur ungefähr 100 Metern Horizontalentfernung gelegen ist, unterscheiden sich die Bodenwerte teilweise erheblich. Dies ist darin begründet, daß die Ozondichte sehr stark von kleinskaligen Prozessen abhängig ist. Während der Standort des Lidars auf dem Lindenberger Kalkberg nur von zwei Gebäuden auf einer Wiese umgeben war, ist der Startplatz der Sonde durch mehrere Gebäude, Bäume und andere Hindernisse in der Nähe des Startplatzes stark gegliedert. Hier macht sich bemerkbar, daß Ozon schnell an Oberflächen abgebaut wird. Dieses unterstreicht die Wichtigkeit von Profilmessungen, denn in höheren Schichten nimmt der Horizontalgradient rasch ab, obwohl dieser aufgrund der Wechselwirkung der Wirbel mit dem Boden in der Grenzschicht eine nicht zu unterschätzende Rolle spielt.

Die drastische Zunahme der Sondenwerte kurz nach dem Start zeigt, daß der Abbau an Oberflächen für die niedrigeren Bodenwerte am Sondenstartplatz verantwortlich ist. Wäre die Sonde verantwortlich für dieses Phänomen (z.B. durch falsche Eichung), würden die Sondenprofile konstant niedrigere Ozonwerte als die Lidarprofile aufweisen. Das ist aber nicht der Fall. Da die mit der Lidarmessung verbundenen Bodenwerte nicht vom Lidar gemessen wurden, wurden diese Werte nicht in den Vergleich einbezogen.

Tag im Juni '94	Zeit (UT)	vergl. Höhen- bereich (Meter)	Lidar- wellen- längen (nm)	Mittlere Abweichung ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Relative Abweichung (%)	Standard- abweichung der Differenzen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
8.	10:49	955-2305	268/292,292/319	5.6	7.1	3.2
8.	16:44	1185-1545	268/292	13.9	14.1	3.2
12.	11:01	1225-1855	277/313	3.1	2.9	3.5
14.	16:45	1155-2505	277/313	1.0	1.3	4.4
18.	04:54	305-1535	268/292	-1.5	-5.1	5.0
20.	10:49	1035-3165	268/292,292/319	-1.5	-1.7	3.6
20.	16:50	1095-3525	268/292,292/319	0.1	1.2	9.5
21.	04:52	995-3085	268/292,292/319	4.7	5.3	10.5
21.	10:45	835-1555	268/292	-1.6	-1.6	4.7
22.	10:48	1035-2865	268/292,292/319	-0.1	-0.2	5.2

Tabelle 5.2: Vergleichende Statistik zwischen Lidardaten und Daten der freifliegenden Sonden: mittlere Abweichung, relative mittlere Abweichung, Standardabweichung der Differenzen der verglichenen aerosolkorrigierten Lidarprofile von den Sondenprofilen.

5.3.2.2 Allgemeiner Vergleich

Die zehn möglichen Vergleichsmessungen waren insgesamt sehr erfolgreich. Im Mittel resultierte eine Abweichung zwischen Lidar- und Sondenergebnis von nur $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was 4.1 % entspricht. Dabei spielt es keine Rolle, ob Wasserstoff oder Deuterium zur Messung benutzt wurde, wie aus Abbildung (5.18) hervorgeht. Ferner sind keine signifikanten Unterschiede auszumachen, ob die Vergleichshöhe in der PBL oder in der LFT liegt. Dieses zeigt, daß das Lidar in dem gesamten Höhenbereich ein zuverlässiges Meßgerät ist.

Nach dem allgemeinen Überblick soll auf Beispiele eingegangen werden, die mit größeren Abweichungen behaftet sind. Dabei werden Gründe für diese Abweichungen untersucht.

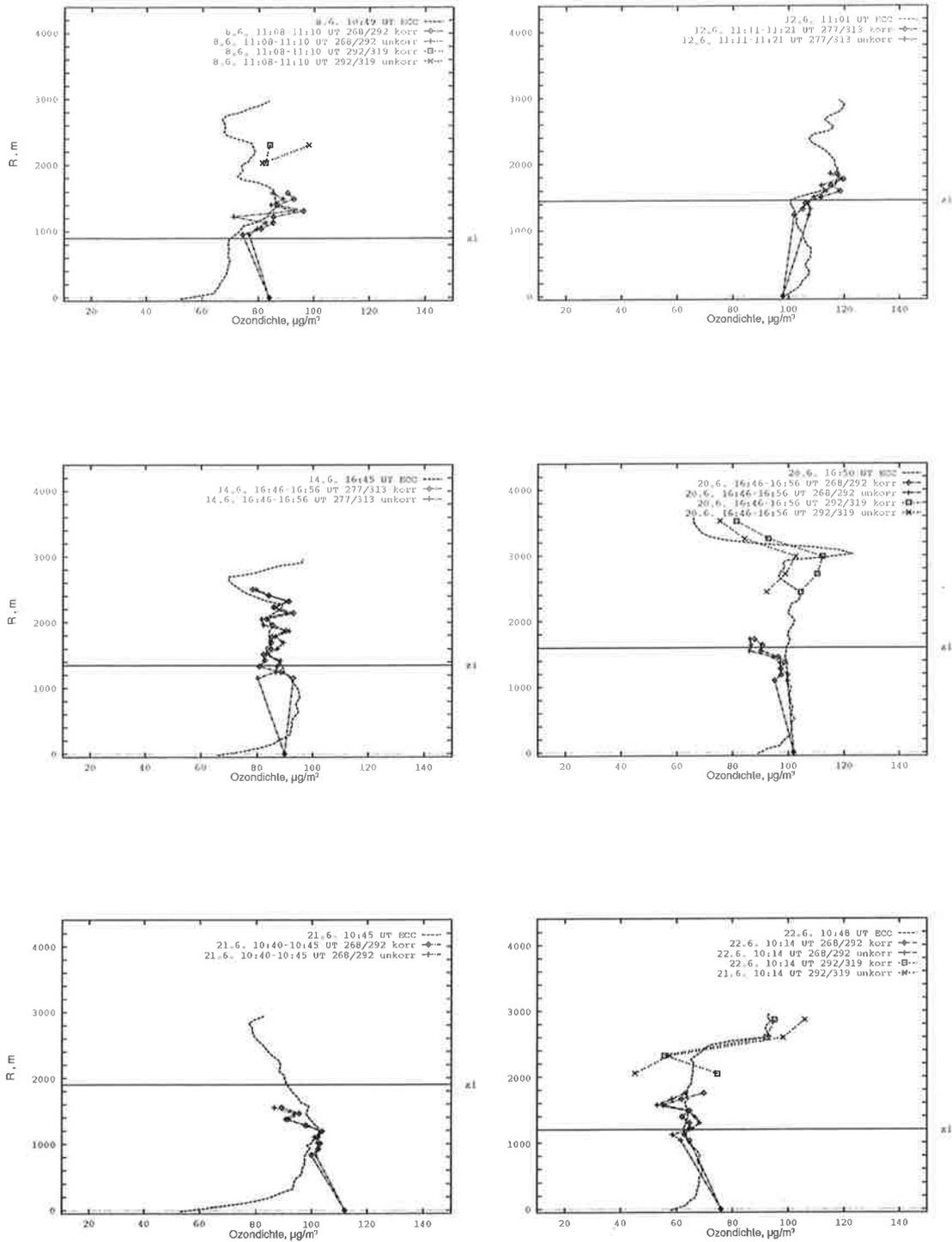


Abbildung 5.18: Vergleich Lidar / freifliegende Sonde an verschiedenen Tagen: 8.Juni 1994 (oben links) und 12. Juni 1994 (oben rechts), 14.Juni 1994 (Mitte links) und 20. Juni 1994 (Mitte rechts), 21.Juni 1994 (unten links) und 22. Juni 1994 (unten rechts).

5.3.2.3 Vergleich am 8.6.94, 16:44 UT

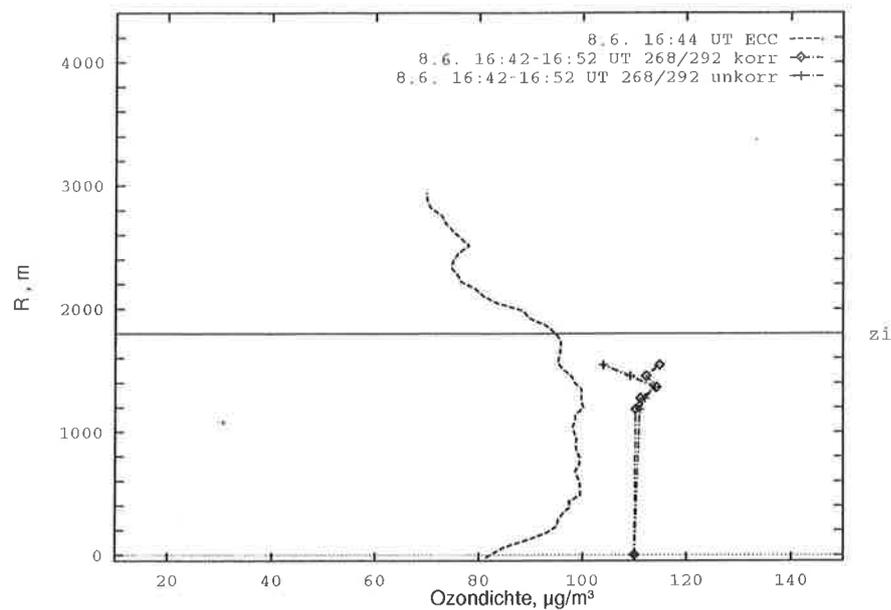


Abbildung 5.19: Vergleich Lidar / freifliegende Sonde, 8. Juni 1994 16:44 UT.

Die größte Abweichung der Profile trat am 8. Juni um 16:44 UT Sondenstartzeit auf. Diese Messung fand komplett in der Grenzschicht statt, wie aus Abbildung (5.19) zu sehen ist. Der oberste Datenpunkt des Lidars ist noch 250 Meter von der Oberkante der Grenzschicht entfernt und nicht im Entrainmentbereich angesiedelt. Ebenfalls ließ die Betrachtung der Rohdaten keinesfalls den Schluß zu, daß diese Messung unglaubwürdig sei. Somit konnte keine Erklärung für die aufgetretenen Differenzen ausgemacht werden.

Obwohl der Vergleich zwischen Lidar und Fesselsonde zwischen 14:04 und 15:01 UT gegen Ende der Messung ebenfalls ca. $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ weniger Ozon in der Sondenmessung ergab, kann ein systematischer Fehler des Lidars hier ausgeschlossen werden, zum einen dadurch, daß, wie oben beschrieben, bei dem Fesselsondenvergleich gegen Ende der Messung die Reaktionsflüssigkeit verdampfte, zum anderen, weil für den Vergleich mit der freifliegenden Sonde um 16:44 UT eine andere Sonde benutzt wurde.

5.3.2.4 Vergleich am 18.6.94, 5:00 UT

Am 18. Juni, morgens um 5:00 UT, fand ein weiterer Ballonstart statt. In den frühen Morgenstunden nahte die Aufgleitbewölkung einer Warmfront heran. Die ECC-Sonde registrierte oberhalb der stabilen nächtlichen Grenzschicht einen Wert von 85-90 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. In der Höhe von 800 Metern lieferte die Sonde einen auf die Hälfte erniedrigten Wert von 45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (vgl. Abb. (5.20)). Der markante Verlauf des Ozonprofils, beginnend in 600 und endend in 1100 Metern, trat in der durch stabile Schichtung austauscharmen RL vom Vortag auf.

Das Lidarprofil verläuft über den gesamten Höhenbereich gleichmäßig mit ca. 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei der Lidardatenauswertung um 4:55-5:04 UT wurde versucht, möglichst weit unten zu beginnen, um zu untersuchen, ob das Sondenprofil durch die Lidardaten bestätigt wird. Aufgrund einer noch nicht vollständigen Überlappung zwischen Sendestrahl und Gesichtsfeld des Teleskops, resultierten negative und somit unrealistische Aerosolrückstreuwerte unterhalb 1100 m, was eine aerosolkorrigierte Datenauswertung unmöglich macht. Aufgrund des Vergleiches der aerosolkorrigierten Lidardaten mit den Sondenwerten in Tabelle (5.2), sind die beiden unkorrigierten Werte nicht in die Statistik eingegangen.

Um die Frage zu klären, ob die Sondenmessung korrekte Ozonwerte in diesem Höhenbereich liefert, wurde auch die eine Stunde zuvor gemessene Ozondichte des kleinen Teleskops mit in die Vergleichsbetrachtungen einbezogen. Das ist zu dieser Tageszeit unkritisch, da die SBL mit dortigem Abbau des Ozons unterhalb dieser Lidarmessung liegt. Diese Schicht ist typischerweise nur einige Dekameter mächtig, und somit nicht oder nur schwer mit dem benutzten Aufbau des Lidarssystems zu erreichen. In der RL vom Vortag können bis zu diesem Zeitpunkt anhaltend hohe Ozonwerte, bedingt durch die Abschottung nach unten, auftreten. Die Lidarmessung mittels kleinen Teleskops von 4:00 UT in dieser Schicht ergab mit ca. 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ähnlich hohe Werte wie die Messung des großen Teleskops. Für den gesamten Bereich, der aus der Sondenmessung hervorgehenden erniedrigten Ozondichte, ist zwar keine Aussage bezüglich der Ozonverteilung aus den Lidardaten zu machen, aber es konnte aus Rückstreusignalen der Offlinewellenlänge geschlossen werden, daß dort keine Schichtgrenze existiert. Der zugehörige Bodenwert der Lidarmessung ist von 5:00 UT, also dem Starttermin der Sonde.

Zur Beantwortung der Frage, wie es zu diesem markanten Sondenprofil kommen kann, hilft eine Betrachtung des in der RL herrschenden Windes. Oberhalb der SBL kam der Wind mit ca. 6 m/s aus südlichen Richtungen. In ca. 50 Kilometer Entfernung in dieser

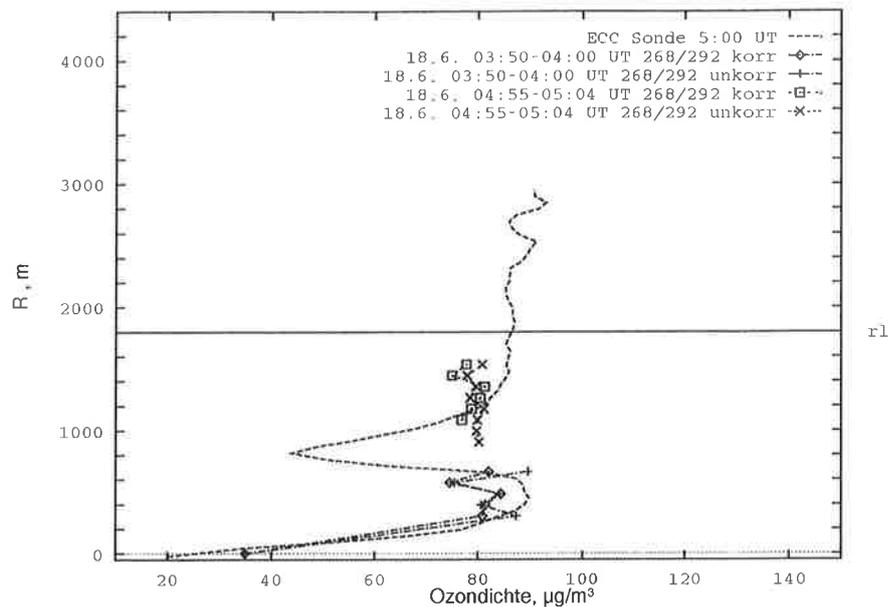


Abbildung 5.20: Vergleich Lidar / freifliegende Sonde, 18. Juni 1994 5:00 UT.

Richtung liegen diverse Braunkohlekraftwerke zwischen Cottbus und Luckau, wie z.B. in Jänschenwalde und in Vetschau. Diese Braunkohlekraftwerke sind bekannt für ihren hohen SO_2 -Ausstoß. Das emittierte SO_2 wird in der nicht turbulent durchmischten RL gehalten. Innerhalb der RL entstehen so Höhenbereiche mit hohem SO_2 -Gehalt und darüber wieder Bereiche mit niedrigem SO_2 -Gehalt. Wie in Abschnitt (5.1.2) beschrieben, reagiert die ECC-Sonde sehr empfindlich auf SO_2 . Um eine Erniedrigung der Ozondichte von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ hervorzurufen, bedarf es bei der Querempfindlichkeit der Sonde einer SO_2 -Dichteerhöhung von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dieses wäre zwar eine markante Änderung in der SO_2 -Dichte, aber bei einer typischen SO_2 -Dichte von $50\text{-}200 \mu\text{g}/\text{m}^3$, durchaus möglich. Bei der gegebenen Querempfindlichkeit des Lidars bei den benutzten Wellenlängen $268/292 \text{ nm}$, würde sich ein Fehler in der Ozondichte von ca. $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ergeben (Schaberl (1995)). Das Argument, daß in einer Abgasfahne eines Braunkohlekraftwerkes ebenfalls Stickoxide enthalten sind, welche querempfindlich auf die Lidarmessung wirken müßten, kann verworfen werden. Die Querempfindlichkeit des Lidars ist nach Schaberl (1995) eine Größenordnung kleiner. Um den Verlauf des Sondenprofils im Lidarprofil zu erhalten, müßte eine extrem hohe NO_2 -Dichte von $550 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auftreten.

Obwohl kein vollständiger Beweis für die Verantwortlichkeit von SO_2 -Emissionen aus Braunkohlekraftwerken für die Unterschiede in den Messungen durchgeführt werden kann, ist doch eine plausible Begründung gefunden worden. Begleitende SO_2 -Profilmessungen

hätten hier genaueren Aufschluß geben können. Da keine anderen Vergleichsmessungen unter ähnlichen Bedingungen hinsichtlich der Windrichtung zu dieser Tageszeit vorliegen, bleibt dieses ein einzelnes Beispiel.

5.3.2.5 Vergleich am 20.6.94, 10:49 UT

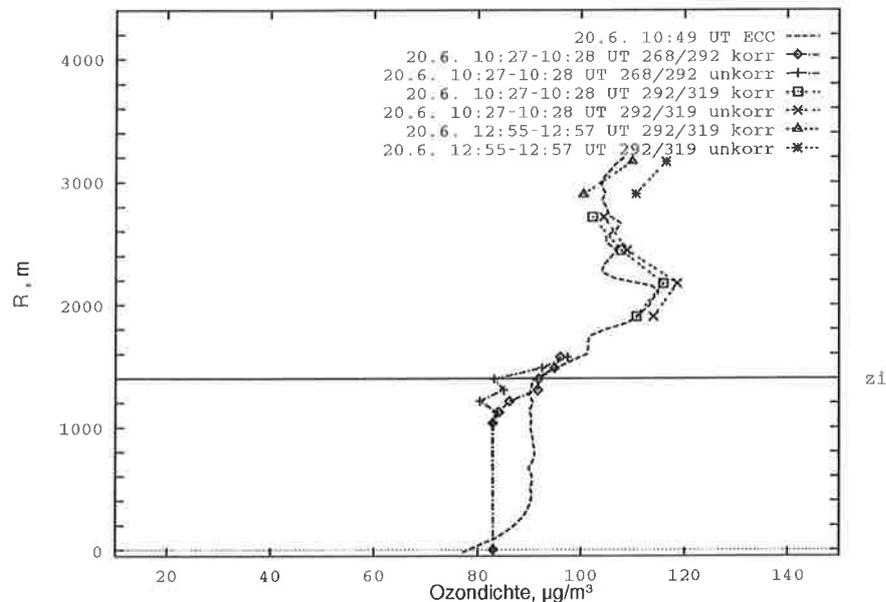


Abbildung 5.21: Vergleich Lidar / freifliegende Sonde 20. Juni 1994 10:49 UT.

Am 20. Juni wurde eine Sonde um 10:49 UT gestartet. Die Vergleichsergebnisse befinden sich in Abbildung (5.21). An diesem Tag wurde der Meßort durch den Einflußbereich eines sich weiter nordostwärts ausdehnenden Azorenhochs erfaßt. Dabei kam es in den Vormittagstunden noch zu teilweise stärkerer Bewölkung mit nur gelegentlichen Wolkenlücken. Ab Nachmittag setzte sich sonniges Wetter durch. Die starke Bewölkung am Vormittag erzwang eine zeitlich vorverlegte Lidarauswertung um ca. 20 Minuten. Trotz zusätzlicher Benutzung des Wellenlängenpaares 292/319 nm, war es aufgrund der Signalstärke nur möglich, bis in die Höhe von ca. 2800 Metern eine Datenauswertung zu betreiben. Eine um zwei Stunden später durchgeführte Messung ermöglichte eine Auswertung bis in größere Höhen. Um zu kontrollieren, ob die wolkenreichen Verhältnisse zu realistischen Ergebnissen in der Auswertung der Lidardaten führten, wurde eine später durchgeführte Messung mit in die Betrachtung einbezogen. Ob der zeitlichen Diskrepanz unterschieden sich die Profile der Datenauswertung 292/319 nm von 10:27 und 12:55 UT um weniger als $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, mit nur einer durch Aerosole beeinflussten Ausnahme. In den statistischen

Vergleich sind zusätzlich die Ergebnisse aus den Höhen der zeitlich versetzten Messung eingegangen, zu denen keine zeitgleiche Lidarauswertung stattfand. Der Vergleich der zeitversetzten Lidarmessung mit der Sondenmessung ist in der LFT unkritisch, da dort kein ausgeprägter Tagesgang vorhanden ist (Grabbe et al. (1994)). Somit ist die Einbeziehung der beiden vom Lidar später ermittelten Ozonwerte am oberen Auswertebereich sinnvoll.

5.3.2.6 Vergleich am 21.6.94, 4:52 UT

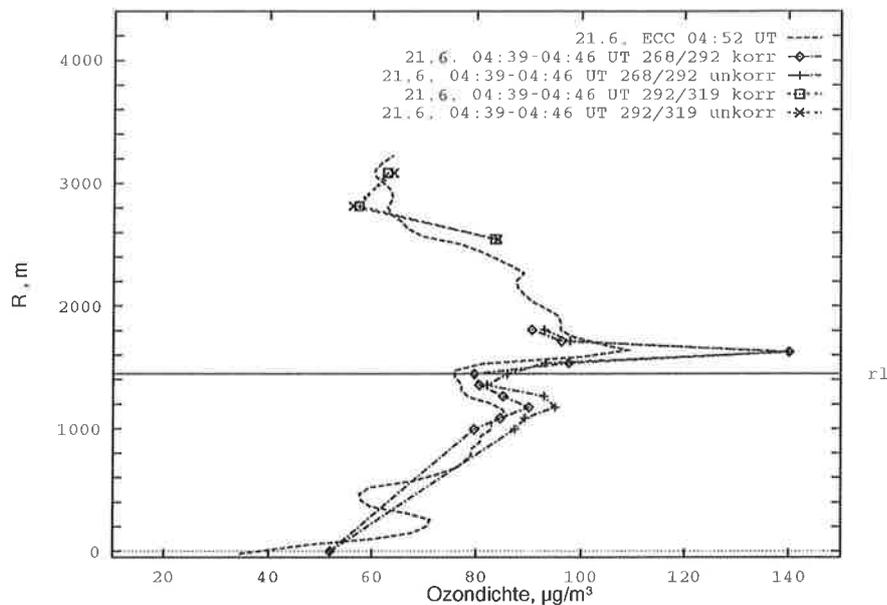


Abbildung 5.22: Vergleich Lidar / freifliegende Sonde, 21. Juni 1994 4:52 UT.

Am frühen Morgen des 21. Juni lag Brandenburg im präfrontalen Bereich einer schwachen Warmfront. Dabei war es am Meßort zu 2/8 mit mittelhohen Wolken und zu 7/8 mit Cirrus bedeckt. Oberhalb der Grenzschicht, in einer Höhe von gut 1600 Metern, zeigen beide Meßinstrumente einen scharfen Anstieg in einem Höhenbereich um 1600 m und direkt darauf einen drastischen Abfall der Ozondichte. Die Tatsache, daß beide Systeme das Maximum der Ozonwerte in der gleichen Höhe messen, kann als Hinweis gesehen werden, daß es sich um einen atmosphärischen Effekt handelt. Die sich aufwerfende Frage, wie es zu diesem Phänomen kommt, kann möglicherweise durch ein Absinken der Luftmassen im präfrontalen Bereich der Warmfront beantwortet werden. Der zwölf Stunden eher durchgeführte Vergleich, dargestellt in Abbildung (5.18), zeigt eine dünne Schicht stark erhöhter Ozondichten noch im Bereich um 3000 m.

Bei diesem Vergleich um 4:52 UT kam es in dem oben beschriebenen Höhenbereich zur größten Abweichung zwischen Lidar- und Sondenmessung (vgl. Abb. 5.22). Auf einer Strecke von nur 180 Metern zeigt das Lidar einen drastischen Anstieg um fast $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$, während die Sonde eine nur halb so große Änderung aufweist. Die Unterschiede in der Ausprägtheit des Maximums in der Ozondichte sollen anhand einer Überschlagsrechnung untersucht werden. Unter der Berücksichtigung der Zeitkonstante der Sonde und unter der Annahme die Lidarmessung sei korrekt, würde sich ein maximal von der Sonde nachzuweisender Sprung von $38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ergeben. Dieser Wert ergibt sich unter Berücksichtigung der Steiggeschwindigkeit von ca. 6 m/s und mit einer Relaxationszeit von 30 Sekunden, was 180 Meter Höhendifferenz entspricht. Innerhalb dieses Höhenintervalls wird die Änderung in der Ozondichte bis auf einen Faktor $1/e$ nachgewiesen. Die Sonde aber zeigt eine Änderung von $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Somit verbleiben nur $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Restabweichung. Ob diese verbleibende Abweichung durch die Trägheit der Sonde oder durch möglicherweise fehlerhafte Aerosolkorrektur in der Lidardatenauswertung hervorgerufen wurde, vermag hier nicht abschließend geklärt zu werden.

5.3.3 Fehlerbetrachtung

In drei von vier Fällen der länger andauernden Vergleichsmessungen zwischen Lidar und Fesselsonde waren die Standardabweichungen in der Lidarmessung größer als die der Sondenmessung. Diese erhöhten Standardabweichungen der Lidarmessung können dadurch bedingt sein, daß entweder ein durch das Meßgerät bedingter statistischer Fehler zu erhöhten Standardabweichungen in der Lidarmessung führte, oder daß eine zu große Zeitkonstante der Sonde die geringere Standardabweichung in der Ozonmessung der Sonde herbeigeführt hat.

Eine Möglichkeit, diese beiden Einflüsse zu untersuchen, ist die Betrachtung der spektralen Varianzdichte beider Messungen. In Senff et al. (1994) ist dieses Verfahren angewendet worden, um den statistischen Fehler einer Wasserdampf-DIAL-Messung zu untersuchen. Hier soll nun anhand dieses Verfahrens geklärt werden, wie die Aerosolkorrektur die spektrale Varianzdichte beeinflusst.

Dazu werden fehlende Minutenmittel aufgrund von Datenübertragungsschwierigkeiten in beiden Meßzeitreihen linear interpoliert. Anschließend wird ein linearer Trend in den Messungen abgezogen. Um das Rauschen zu reduzieren, wird das Varianzspektrum gleitend über 5 Datenpunkte gemittelt. Die Varianzspektren wurden normiert, so daß das Integral der Varianzdichte über den Frequenzbereich identisch ist mit der Varianz der Zeitreihe. Die Resultate dieser Spektralanalyse, sowohl für die unkorrigierten und korrigierten Lidardaten, als auch für die Sondendaten, sind in Abbildung (5.23) bis (5.26) wiedergegeben.

Ein Vergleich dieser Abbildungen ergibt, daß eine zu große Zeitkonstante der Sonde nicht ausschlaggebend für die niedrigen Standardabweichungen war. Dieses hätte einen steilen Abfall der spektralen Energiedichte im Frequenzraum bewirkt. Dieses Phänomen aber ist in keiner der Abbildungen auszumachen.

Ein starkes Systemrauschen des Lidars würde einen hohen konstanten Varianzlevel im gesamten Frequenzspektrum bewirken. Dieses aber würde bedeuten, daß bei den Lidarmessungen in den hohen Frequenzen ein bedeutend größerer Wert als bei den Sondenmessungen vorliegt. Das ist nicht der Fall. Die spektrale Dichte der Lidarmessungen schwankt bei den hohen Frequenzen zwischen etwa $20 (\mu\text{g}/\text{m}^3)^2\text{s}$ (am 8. Juni 14:04-15:01 UT) und ca. $400 (\mu\text{g}/\text{m}^3)^2\text{s}$ (am 8.6. 8:34-10:10 UT), für die Sondenmessungen beträgt sie weniger als $20 (\mu\text{g}/\text{m}^3)^2\text{s}$. Die Werte bei hohen Frequenzen sind bei allen Lidarmessungen immer um mindestens eine Größenordnung kleiner als bei den übrigen Frequenzen. Diese Erklärungsmöglichkeit kann somit ebenfalls verworfen werden.

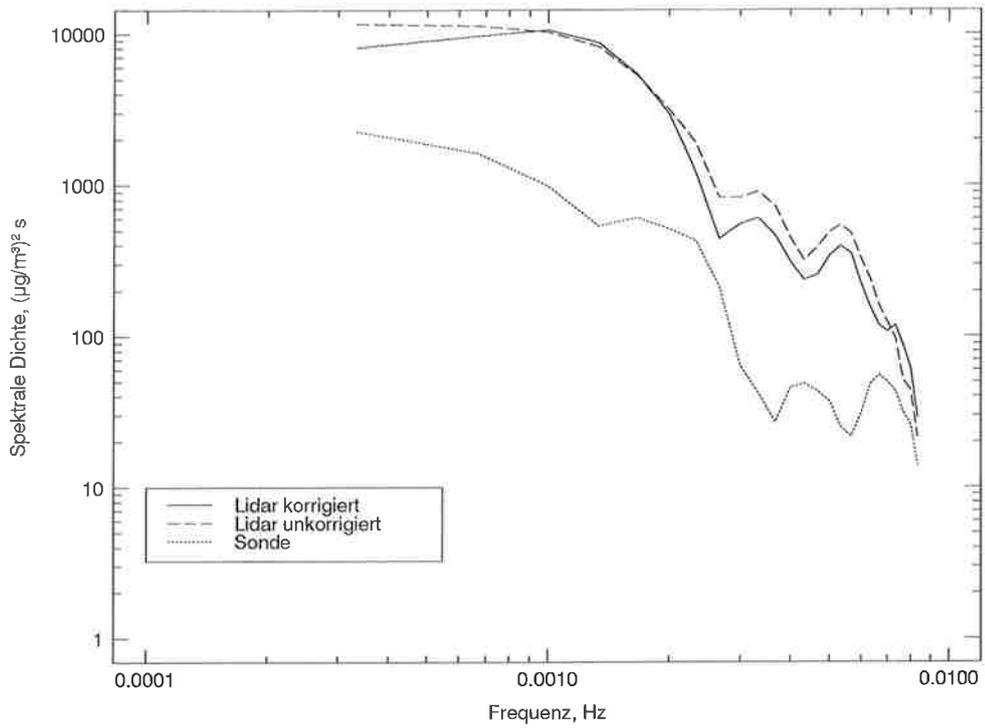


Abbildung 5.23: *Spektrale Varianzdichte der Messungen 8.Juni 1994, 3:32-4:21 UT.*

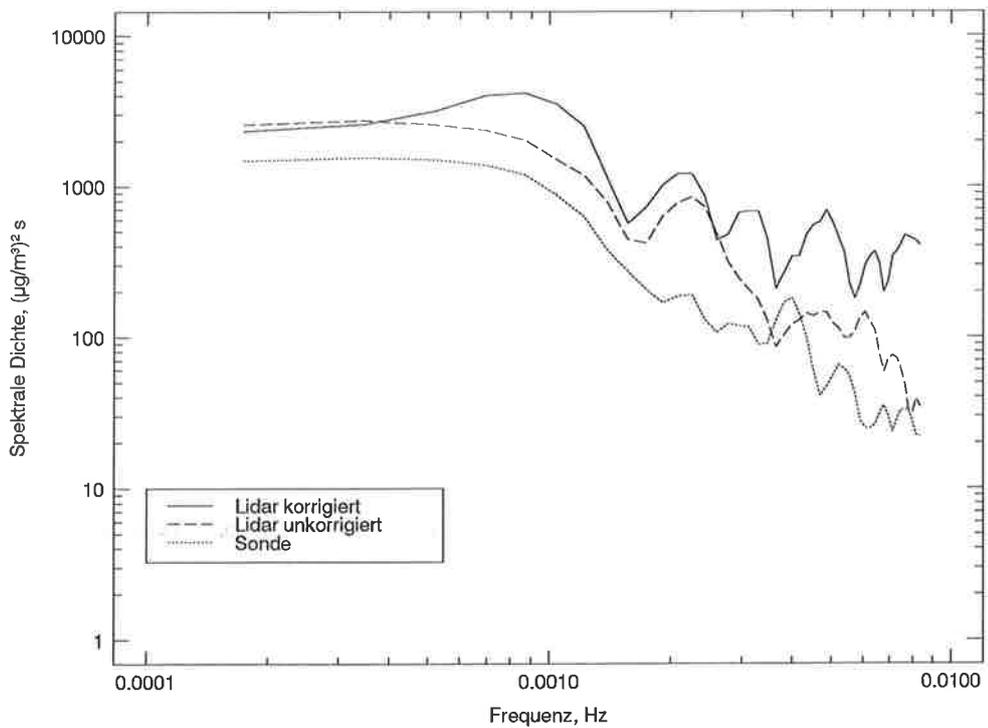


Abbildung 5.24: *Spektrale Varianzdichte der Messungen 8.Juni 1994, 8:34-10:10 UT.*

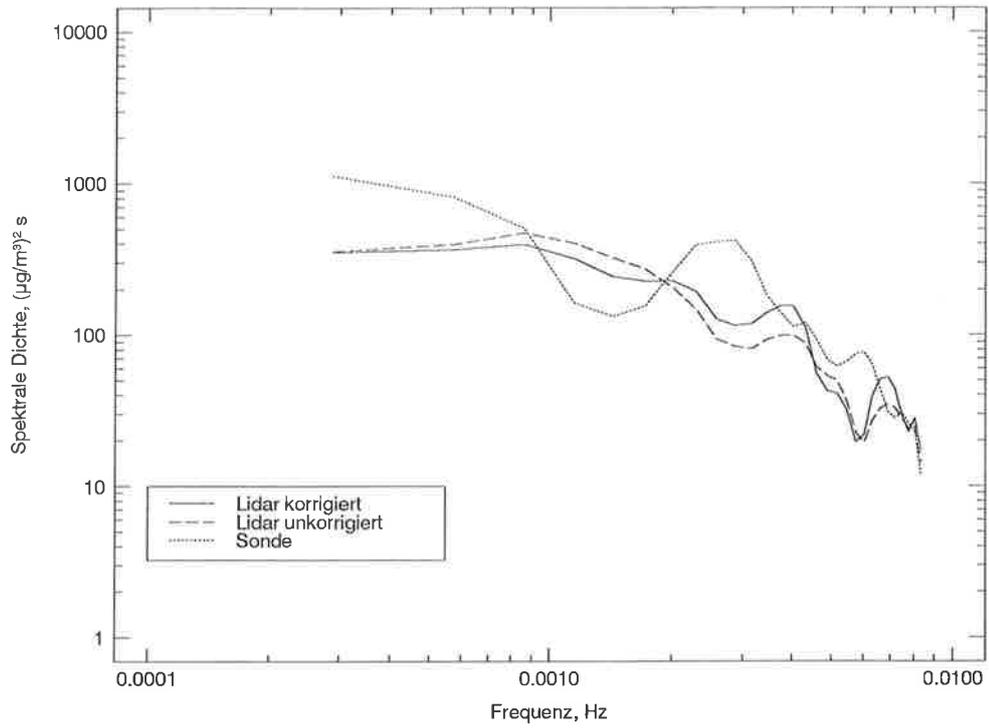


Abbildung 5.25: *Spektrale Varianzdichte der Messungen 8.Juni 1994, 14:04-15:01 UT.*

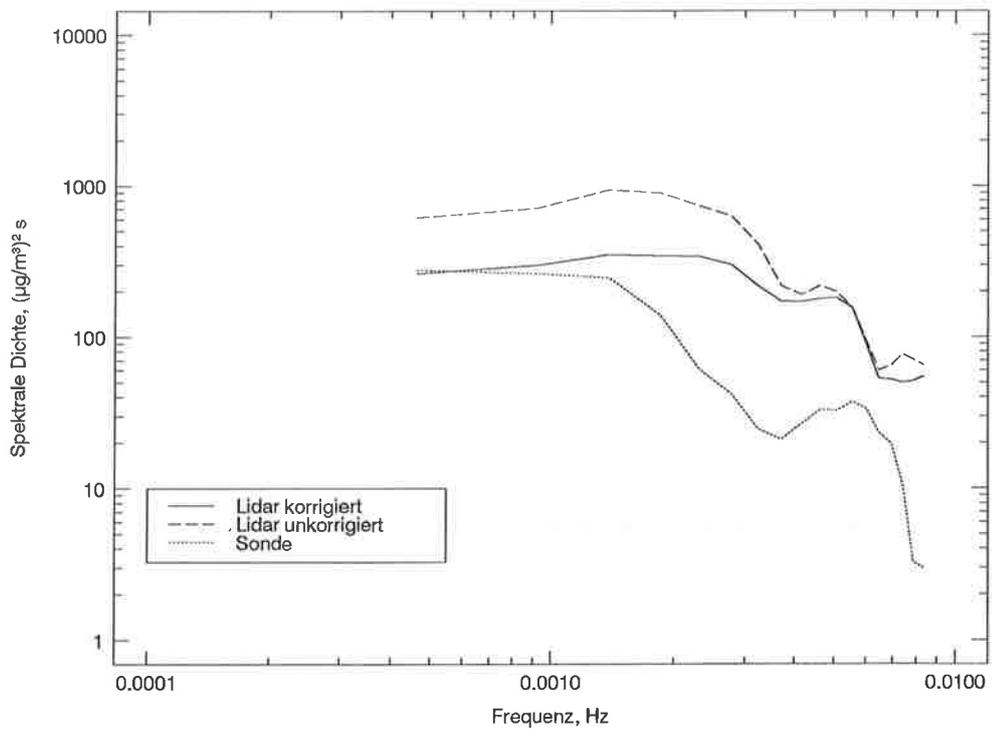


Abbildung 5.26: *Spektrale Varianzdichte der Messungen 14.Juni 1994, 14:44-15:19 UT.*

Deshalb bleibt als Erklärung, daß zumindest ein großer Teil der hohen Standardabweichungen der Lidardaten auf starke vertikale Gradienten im Aerosolrückstreuoeffizienten und somit auf eine fehlerhafte Aerosolkorrektur zurückzuführen sind.

Aus den Abbildungen (5.23) - (5.26) ist zu ersehen, daß die Varianzdichte im gesamten Spektralbereich bei der Lidarmessung größer ist, falls die in Tabelle (5.1) berechnete Standardabweichung der Lidarmessung größer ist als die der Sondenmessung. Also wirkt sich die Aerosolkorrektur nicht nur bei einzelnen Frequenzen, sondern im gesamten Frequenzraum aus. Die spektrale Varianzdichte ist durch die Aerosolkorrektur in den Abbildungen (5.23) und (5.25) nur wenig beeinflusst, während sie in Abbildung (5.24) zu einem Anstieg und in Abbildung (5.26) zu einem Abfall führte.

Bei dem Vergleich zwischen Lidar- und Sondenresultaten am 8.6. 3:32-4:21 UT wurde festgestellt, daß die Vergleichshöhe im Entrainmentbereich liegt und somit die Aerosolkorrektur fehlerbehaftet sein kann. Im Mittel verringerte sich die Standardabweichung durch die Aerosolkorrektur leicht, aber es verbleiben Restfehler für die hochaufgelösten Daten. Die Erhöhung der spektralen Varianzdichte durch die Aerosolkorrektur in Abbildung (5.24) war dadurch bedingt, daß keine geeignete Eichhöhe über den gesamten Meßzeitraum am 8.6. zwischen 8:34 und 10:10 UT existiert. Dieses führt vor allem im hochfrequenten Bereich zu einem Anstieg der spektralen Varianzdichte. Schwache Aerosolgradienten in der PBL verursachen am 8.6. 14:04-15:01 UT ähnlich hohe Standardabweichungen in der korrigierten und unkorrigierten Zeitreihe. Dieses resultiert in Abbildung (5.25) in einem ähnlichen Verlauf der Kurven. Bei diesem Vergleich war die Standardabweichung der Sondenmessung größer als die der Lidarmessung, was auch aus den erhöhten Werten über nahezu den gesamten Frequenzbereich zum Ausdruck kommt. Am 14.6. 14:44-15:19 UT hatte die Aerosolkorrektur einen positiven Effekt, was in Abbildung (5.26) in erniedrigten Werten der korrigierten gegenüber der unkorrigierten spektralen Varianzdichte in allen Frequenzen resultiert. Die Tatsache, daß der Einfluß der Aerosolkorrektur in Abbildung (5.26) geringer ist als der z.B. in Abbildung (5.24), liegt darin begründet, daß die Messung am 14.6.94 in der PBL mit schwachen vertikalen Aerosolgradienten durchgeführt wurde, was auch Abbildung (5.12) im Vergleich zu Abbildung (5.24) durch geringe Änderungen der Ableitung des höhenkorrigierten Signals impliziert.

Also existieren die erhöhten Standardabweichungen wahrscheinlich zu einem großen Teil aufgrund von starken Aerosoleinflüssen in Regionen mit starken vertikalen Inhomogenitäten in der Aerosolverteilung. Obwohl diese Standardabweichungen nur einige $\mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen, so ist dennoch der einzelne Minutenmittelwert unter Umständen stark

fehlerbehaftet, wie z.B. Abbildung (5.6) zu Beginn der Messung zeigte. Demnach ist große Vorsicht bei der Auswertung und Interpretation der Lidardaten an Schichtgrenzen der Atmosphäre geboten, vor allem, wo starke Änderungen der Aerosolkonzentrationen auftreten.

5.4 Zusammenfassung

Die Vergleiche der Messungen von Lidar und Fesselsonde sind mit einer über alle Messungen gemittelten mittleren Abweichung von $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.5%) ebenso erfolgreich verlaufen, wie die Vergleiche zwischen Lidar und freifliegenden Sonden, die mit $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (4.1%) gemittelt über alle Abweichungen nur wenig höher liegen. Für einzelne größere Abweichungen konnten plausible Begründungen gegeben werden. Ein systematischer Fehler von einem Meßgerät gegenüber dem anderen besteht nicht, wie aus den statistischen Untersuchungen hervorging.

Die neuartige Methode der Benutzung von Fesselsonden für ein Vergleichsexperiment mit einem Lidar, ermöglichte eine Untersuchung der Messungen hinsichtlich der Standardabweichungen in der Ozondichte. Diese Untersuchung ergab, daß bei ruhiger Atmosphäre hinsichtlich der Gradienten im Aerosolrückstreuoeffizienten ein niedrigerer Wert der Standardabweichung der Lidardaten im Vergleich zu den Sondendaten auftritt, während besonders an Schichtgrenzen in der Atmosphäre erhöhte Werte von diesen Daten zu erwarten sind. Die durchgeführte Aerosolkorrektur wirkte sich nicht immer positiv auf die Standardabweichungen in der Lidarmessung aus. In zwei von vier untersuchten Fällen, erhöhte sie sich sogar durch die Aerosolkorrektur. Aus der Untersuchung der spektralen Varianzdichte der Messungen folgte, daß Restfehler aufgrund ungenauer Kenntnis der Aerosolparameter verantwortlich für die erhöhten Werte der Standardabweichung in der Lidarmessung sind.

Also ist das hier benutzte DIAL sowohl in der Grenzschicht als auch in der freien Troposphäre ein zuverlässiges Meßgerät. Lediglich an Schichtgrenzen in der Atmosphäre bedarf es einiger Vorsicht der Interpretation der Ergebnisse. Die durchgeführten Vergleiche fanden in einem Zeitraum von zwei Wochen statt. Da gezeigt werden konnte, daß das Lidar über den gesamten Zeitraum zuverlässige Ergebnisse liefert, besteht nun die Möglichkeit, Lidarergebnisse von einer Ozonepisode zu analysieren. Dieses wird im folgenden Kapitel geschehen.

Kapitel 6

Untersuchung einer Ozonepisode

Im folgenden soll eine Ozonepisode analysiert werden, die im Zeitraum vom 8.6.1993 bis 11.6.1993 auftrat und mit dem Lidar am Standort nahe Itzehoe gemessen wurde. Die Rolle der Advektion von ozonreicher Luft während dieses Zeitraumes wird qualitativ anhand eines Trajektorienmodells untersucht. Anschließend wird geprüft, ob es möglich ist, gemessene Ozondichteprofile mit einem einfachen Modell nachzuvollziehen. Dabei steht die Frage im Vordergrund, welche Informationen notwendig sind, um eine Ozonepisode erfolgreich zu simulieren.

Die Wetterlage

Während der dreitägigen Ozonepisode vom 8.6.1993 bis 11.6.1993 beeinflusste ein stark ausgeprägtes Hochdruckgebiet den norddeutschen Raum.

Am 8.6. lag Norddeutschland an der Vorderseite eines Höhenhochkeils, der zum Absinken der Luftmassen führte. Die von Westen herannahende Warmfront wurde durch den Höhenhochkeil erfolgreich zurückgehalten, erreichte das Meßgebiet nicht und war sogar rückläufig. Im Tagesverlauf kam es immer wieder zu Bildung von Cumulusbewölkung. Die Tageshöchsttemperatur betrug 20°C.

Dieser Höhenhochkeil blieb im Laufe des 9.6. stationär und verstärkte sich, bewirkte dadurch einen Druckanstieg in Bodennähe, so daß ein ausgeprägtes Hochdruckgebiet über Deutschland und Polen entstand. Nach heiterem Tagesbeginn mit Schönwetterbewölkung am Vormittag löste diese sich im Tagesverlauf zum Teil auf und die Temperatur stieg bis auf 25°C an.

Auch am 10.6 bestimmte das Hochdruckgebiet das Wetter in ganz Deutschland. Seine drehte aber im Laufe des Tages in zonale Richtung und der Hochdruckrücken überquerte Deutschland im Laufe des Tages ostwärts. Somit war es im Tagesverlauf auch nur gering

mit Cumuli bewölkt. Die Tageshöchsttemperaturen erreichten den für den Meßort relativ hohen Wert von 28°C.

Zum Ende der Episode, am 11.6., lag bereits ein Höhentrog über Südeuropa. Dieses hatte in der Bretagne bereits starke Regenfälle zur Ursache, während im Meßgebiet bei schwüler Wärme zum Teil starke niedrige Bewölkung vorherrschte. Deshalb ist am 11.6. nach 04:00 UT auch keine Lidarmessung mehr möglich gewesen.

6.1 Untersuchung mit DIAL

6.1.1 DIAL - Parameter während der Episode

Erreichte Höhen

Zum Zeitpunkt dieser Episode war nur das große Teleskop installiert, so daß bei dem gegebenen Abstand der optischen Achsen zwischen Strahlaustritt und Teleskop von 37 cm nur der obere Teil der PBL bzw. der RL und teilweise auch die LFT durch die Messungen erreicht wurden. Bedingt durch die hohen Ozonwerte, wird die Onlinewellenlänge stark geschwächt, so daß die maximale Auswertehöhe von 2500 m nicht erreicht werden konnte. Da für die Messungen während dieser Episode Wasserstoff benutzt wurde, steht kein zweites Wellenlängenpaar für Untersuchungen in größeren Höhen zur Verfügung. Aufgrund starker Einstrahlung erreichte die Grenzschichtoberkante häufig Höhen, oberhalb derer eine Lidarmessung unmöglich war, so daß nur an den ersten beiden Tagen der Episode auch in der LFT gemessen werden konnte.

Datenauswertung

Die Profile wurden errechnet, indem über 2-10 Minuten zeitlich und über 90 Meter vertikal gemittelt wurde. Bei der benutzten Pulsrate des Lasers von 10 Hz entspricht dieses einer Mittelung über 1200-6000 Pulse. Bei der Datenauswertung wurde grundsätzlich eine Aerosolkorrektur vorgenommen. Eine Ausnahme ergab sich am zweiten Tag der Episode, dem 9.6.1993 um 14:15 UT in dem Höhenbereich 1205 und 1295 m. Hier wurden unkorrigierte Werte in Betracht gezogen, da aus den höhenkorrigierten Signalen hervorging, daß in diesem Bereich noch keine vollständige Überlappung zwischen Sendestrahle und Gesichtsfeld der Empfangsoptik gegeben war.

6.1.2 Meßergebnisse

6.1.2.1 Lidarergebnisse am Vor- und Nachmittag

Am 8.6. um 10:20 UT und am 9.6. um 14:15 UT war es möglich, innerhalb der freien Troposphäre oberhalb von 1800 bzw. 2000 Metern zu messen, wie aus dem oberen Teil der Abbildung (6.1) hervorgeht. Bemerkenswert ist die Tatsache, daß innerhalb dieser Zeit kein Anwachsen der Ozondichte in der freien Troposphäre festgestellt werden konnte, während in der PBL die mittlere Ozondichte von $\approx 110 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $\approx 130 \mu\text{g}/\text{m}^3$ angestiegen ist. Dieses Ergebnis ist in gutem Einklang mit einer anderen Episode, die von Grabbe et al. (1994) untersucht wurde. Am dritten Tag der Episode, dem 10.6., war es aufgrund von Grenzschichthöhen von mehr als 2000 Metern, wie sie aus den hier nicht dargestellten Rohsignalen abzulesen waren, nicht möglich, eine Datenauswertung in der freien Troposphäre zu betreiben. In der PBL wurde ein Anstieg der Ozondichte auf Werte von ca. $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen. Somit ist dort innerhalb von 48 Stunden die Ozondichte um $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ angewachsen.

Bodennahe Ozon

Die Ozonmonitordaten sind zur Interpretation der bodennahen Verhältnisse im Vergleich zu den Lidarprofilen in der Höhe in Abbildung (6.1) dargestellt. Allgemein läßt sich aus dem oberen Teil der Abbildung (6.1) ableiten, daß unter Bedingungen mit guter vertikaler Durchmischung, der Bodenwert als repräsentativ für die PBL und damit für einen größeren Höhenbereich der Atmosphäre angesehen werden kann. Die vertikale Durchmischung am Tage bewirkt über die gesamte PBL eine gleichmäßige Verteilung des Ozons. Dieses steht in guter Übereinstimmung mit anderen untersuchten Episoden. Allerdings muß berücksichtigt werden, daß der Boden als Senke für Ozon fungiert und dort somit generell niedrigere Ozonwerte als in größeren Höhen zu erwarten sind. Bis auf eine Ausnahme am 8.6. um 14:45 UT ist dieses den Meßergebnissen zu entnehmen. Zu diesem Zeitpunkt beträgt die Ozondichte unter konvektiven Bedingungen in der PBL ca. $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ weniger als in Bodennähe. Aus der Zeitreihe der Ozonmonitordaten war zu entnehmen, daß es sich dabei nicht um einen kurzzeitigen Anstieg handelt, sondern daß dieser Wert aus einem gleichmäßigen Tagesgang entstammt.

6.1.2.2 Lidarergebnisse am Abend

An allen drei Tagen wurde vor Sonnenuntergang eine Lidarmessung durchgeführt. Die Ergebnisse sind im mittleren Teil der Abbildung (6.1) dargestellt. Am 9.6. war es gegen 18:15 UT möglich, mit dem Lidar in der LFT zu messen. Dabei ist auffallend, daß die Ozondichte innerhalb von vier Stunden von $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf weniger als $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gesunken ist. Da in der PBL ein höherer Wert als in der LFT vorliegt, kann vertikaler Gradientenausgleich zwischen diesen Schichten als Begründung für den Abfall der Ozondichte in der LFT ausgeschlossen werden. Ferner lag kein Frontdurchgang vor, was zu einem veränderten Ozongehalt führen kann. Daher verbleibt die Advektion ozonarmer Luft in diesem Höhenbereich der Atmosphäre als Erklärung.

Innerhalb der PBL stieg die Ozondichte vom 8.6. auf den 9.6. nur wenig an, während vom 9.6. auf den 10.6. ein Anstieg um ca. $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu verzeichnen ist.

Bodennahes Ozon

Da die in Abbildung (6.1) gezeigten Messungen noch mindestens eine Stunde vor Sonnenuntergang unter turbulenten Bedingungen stattgefunden haben, liegt in der PBL eine ähnlich hohe Ozondichte wie in Bodennähe vor. Auch hier ist am letzten Tag der Episode ein erhöhter bodennaher Ozonwert auszumachen. In den ersten beiden Tagen betrug der Wert in 2 m Höhe noch um $130 \mu\text{g}/\text{m}^3$, am 10.6. lag der Bodenwert bei knapp $145 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die leicht erhöhte Ozondichte am 8.6. im Vergleich zum 9.6. resultiert aus der um ca. 2 Stunden früheren Messung und steht mit der oben genannten höheren Ozondichte um 14:45 UT in guter Übereinstimmung.

6.1.2.3 Lidarergebnisse unter nächtlichen Bedingungen

Die nächtlichen Ozonprofile der Restschicht sind im unteren Teil der Abbildung 6.1 für die Nächte 9.6./10.6. und 10.6./11.6. zusammengefaßt.

In der Nacht 8.6./9.6. fanden keine Messungen statt. Jeweils zwei Profile liegen von den beiden darauffolgenden Nächten im Höhenbereich von 1100 bis 1900 bzw. 1200 bis 1700 Metern vor. Ein Profil resultiert jeweils von der Zeit um kurz vor Mitternacht UT und eines aus den frühen Morgenstunden kurz nach 4:00 UT. Zusätzlich wurde noch eine Messung am 10.6. um ca. 7:00 UT durchgeführt, die bei den nächtlichen Profilen eingezeichnet ist, da eine ähnliche vertikale Struktur aus dieser Messung hervorgeht wie aus den Messungen unter nächtlichen Bedingungen. Eine um 10 bis $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erhöhte Ozondichte der RL ist aus dieser Messung im Vergleich zu Messung vier Stunden zuvor abzuleiten. Da um diese Zeit noch keine Produktion von Ozon in wesentlichem Umfang

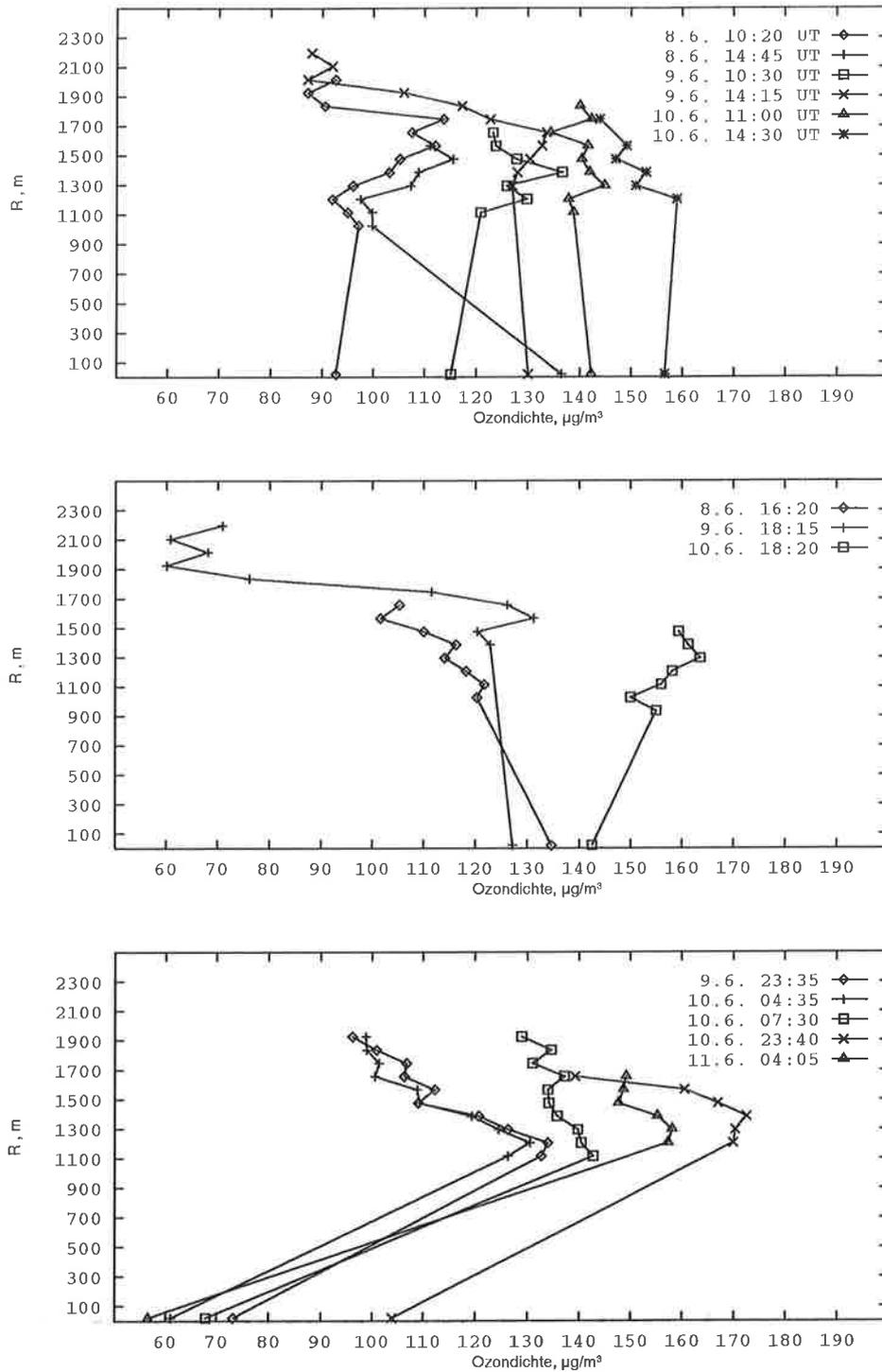


Abbildung 6.1: Ozonprofile während der Episode 8.6.1993 - 11.6.1993 am Vor- und Nachmittag (oben), am Abend (Mitte) und in der Nacht (unten)

stattgefunden haben kann, was auch der Bodenwert belegt, ist die erhöhte Zunahme in 1500 bis 1900 m nur durch Advektion erklärbar. Ob die meteorologischen Verhältnisse eine Advektion als mögliche Erklärung unterstützen, wird im nächsten Abschnitt genauer geklärt.

Während in der Nacht zuvor kein zeitlicher Trend zu verzeichnen ist, ergibt sich im Laufe der Nacht vom 10.6. auf den 11.6. eine leichte Abnahme der Ozondichte um ca. $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ von ca. $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um 23:40 UT auf $155 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um 4:05 UT. Wie schon unter Tagesbedingungen vom 9.6. auf den 10.6. in der PBL festgestellt wurde, ist auch in der Restschicht ein Anstieg der Ozonwerte während der Episode zu verzeichnen. Am späten Nachmittag und in der Nacht kann kaum photochemisch bedingte Produktion von Ozon stattfinden, jedoch ist am 10.6. ein Anstieg von $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen 14:30 UT und 23:40 UT zu verzeichnen. Daher muß Advektion am Abend und in der Nacht vom 10.6. auf den 11.6. eine Rolle gespielt haben. Diese Annahme wird gestützt durch die Lidarmessung von 18:20 UT, die ebenso wie die Messung um 14:15 UT, eine Ozondichte von $\approx 155 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der turbulent durchmischten Grenzschicht ergibt.

Bodennahes Ozon

Die nächtlichen Bodenwerte sind im Vergleich zu den Bodenwerten am Tage erheblich erniedrigt. Geringe nächtliche Bewölkung während Ozonepisoden bewirkt ein ungehindertes Abstrahlen von Energie am Boden, was eine Temperaturinversion in den untersten Dekametern hervorruft. Es liegt zwar kein begleitender Radiosondenaufstieg des Meßortes vor, aber die Radiosondenaufstiege von Kiel ergaben in der Nacht vom 9.6. auf den 10.6. eine Temperaturzunahme bis in eine Höhe von ca. 250 m über Grund, eine Nacht später begann eine Temperaturabnahme mit der Höhe ab ca. 330 Metern. Innerhalb dieser stabilen Schicht ist es möglich, daß sich Ozon nach unten mischt und am Boden abgebaut wird. Untersuchungen von Güsten et al. (1995) zeigen einen logarithmischen Verlauf während zahlreicher Messungen innerhalb der SBL. Somit ergibt sich unter nächtlichen Bedingungen ein Abbau des Ozons in der SBL, während in der RL anhaltend hohe Ozonwerte vorliegen. Deshalb kann unter nächtlichen Bedingungen während Ozonepisoden keine Information aus dem Bodenwert gewonnen werden, der Aufschluß über die Ozondichte in größeren Höhen gibt.

6.2 Untersuchungen mit einem Trajektorienmodell

Ozon ist kein primär in die Atmosphäre eingeleitete Gas, sondern es wird photochemisch aus sogenannten Vorläufergasen wie zum Beispiel NO_x , CO und flüchtige organische Substanzen (VOC) gebildet. Wenn eine Luftmasse auf dem Wege zum Meßort ein Gebiet überstreicht, in dem hohe Konzentrationen dieser Vorläufergase herrschen, hat dieses unter Bedingungen hoher Sonneneinstrahlung zur Folge, daß ein nicht unerheblicher Betrag an Ozon auf dem Wege zum Meßort produziert wird. Damit ist die Änderung des Ozongehaltes der Luftmasse mit der Zeit nicht etwa der Produktion am Meßort zuzuschreiben, sondern der Advektion. Darüberhinaus werden so auch Vorläufergase an den Meßort transportiert, die am Meßort selber für vermehrte Produktion sorgen können.

Bei einer Lebensdauer von Ozon in der LFT von ca. 10 Tagen (Chameides (1978)), kann Ozon in diesen Höhen über weite Strecken bis an den Meßort transportiert werden. Ebenso können Vorläufergase aus Entfernungen bis zu 1000 km an einen Ort herangeführt werden (Sonnemann (1992)). Daher ist es wichtig, den Weg, den die Luftmasse zum Meßort genommen hat, zu kennen. Die Berechnung von Rückwärtstrajektorien ermöglicht eine Bestimmung des zurückgelegten Weges der Luftmasse vor Erreichen des Meßortes. Obwohl so keine Quantifizierung der Advektion möglich ist, so kann dennoch die qualitative Betrachtung der Advektion zu einer Interpretation der gemessenen Ozondichten beitragen.

6.2.1 Modellparameter

Die hier vorgestellten Trajektorien sind mit einem globalen Modell des kanadischen Atmospheric Environment Service berechnet. Der Autor möchte sich an dieser Stelle hierfür bedanken und gleichzeitig Dr. R. Schmitt, der die Beschaffung der Trajektorien Daten ermöglicht hat, seinen herzlichen Dank aussprechen. Eine detaillierte Beschreibung des Trajektorienmodells findet sich in Olson et al. (1978). Dieses Modell ist dreidimensional und hat eine Gitterauflösung von 381 Kilometern horizontal. Mehrere Höhenstufen sind bei diesem Modell wählbar, so auch die des 950 und 850 hPa Niveaus. Die Rechnungen erfolgen auf Isobarenflächen. Zwischen den Gitterpunkten wird linear interpoliert. Die horizontale Auflösung dieses Modells ist gröber als die des zweidimensionalen Modells vom Meteorologischen Institut der Universität Hamburg, welches einen horizontalen Gitterabstand von 42 km besitzt. Dennoch hat das hier benutzte Modell durch die Dreidimensionalität den Vorteil, daß troposphärische Ozonvertikalprofile besser mit den Trajek-

torien verglichen werden können, da die Ozonprofile nicht nur mit bodennahem, sondern auch mit Trajektorien aus der Meßhöhe verglichen werden. Da keine speziellen Quellen von Ozonvorläufergasen untersucht werden sollen, sondern lediglich geklärt werden sollte, ob Advektion von ozonreicher Luft stattgefunden haben kann, indem mit Vorläufergasen belastete Gebiete passiert worden sind, bevor die Luftmasse den Beobachtungsort erreicht, ist dieses Modell besser für die hier durchgeführte Untersuchung geeignet. Die horizontalen Koordinaten und die Höhe über Grund werden vom Modell ausgegeben. Für die bodennahe Schicht wurden die Trajektorien im 950 hPa und für die Höhenbereiche der Lidarprofile die Trajektorien im 850 hPa Niveau für die Dauer der Episode berechnet. Alle sechs Stunden, zu den Standardzeiten 00:00, 06:00, 12:00 und 18:00 UT, wird eine Berechnung der Trajektorien begonnen. Alle drei Stunden wird die Position des Luftpaketes berechnet. Die Rechnung beinhaltet 20 Zeitstufen, so daß ein Luftpaket 60 Stunden zurückverfolgt werden kann. Die Ergebnisse der Trajektorienrechnungen sind in den Abbildungen (6.2) - (6.4) dargestellt.

6.2.2 Modellergebnisse

8.6.1993

Aus den Trajektorien in Abbildung (6.2) beider Niveaus am 8.6. ist der Weg über die Nordsee klar ersichtlich. Ohne über den europäischen Kontinent zu streichen, sondern nur die britischen Inseln passierend, gelangt die Luftmasse in beiden Niveaus an den Meßort. Hohe Windgeschwindigkeiten und kontinuierlich westliche bis südwestliche Winde machen es unmöglich, mit dem Graphikprogramm des Meteorologischen Institutes der Universität Hamburg die gesamten 60 Stunden der Trajektorie des 850 hPa Niveaus darzustellen. An dieser Stelle sei Herrn V. Reinhardt vom Meteorologischen Institut der Universität Hamburg herzlich gedankt für die graphische Darstellung der Trajektorien. Die Kontrolle der Koordinaten ergab, daß sich die Luftmasse vor Eintritt des dargestellten Gebietes ständig über dem Atlantik aufgehalten hat. Eine Untersuchung der Koordinaten der Trajektorien, 24 Stunden bevor die Luftmasse den Meßort erreichte, ergab, daß sich die Luftmasse noch über dem Atlantik befunden hat, um danach die britischen Inseln zu überqueren. In Bodennähe befand sich das Luftpaket 24 Stunden bevor es den Meßort erreichte an der Ostküste Englands im Bereich um Hull. Aufgrund des hauptsächlichlichen Aufenthaltes über der Nordsee, kann von einem moderaten Anteil an advehiertem Ozon ausgegangen werden.

9.6.1993

Die Trajektorien des 9.6. in Abbildung (6.3) zeigen einen leicht unterschiedlichen Verlauf in Bodennähe und im 850 hPa Niveau. In Bodennähe passiert die Luftmasse zunächst die britischen Inseln, streicht über die südliche Nordsee, trifft anschließend auf die Schleswig-Holsteinische Nordseeküste und erreicht nach nur kurzem Aufenthalt über dem Festland den Meßort. Die Trajektorien mit Starttermin am Meßort in der zweiten Tageshälfte des 9.6. zeigen, daß die Luftmasse mehr Zeit über Deutschland verbringt, sich aber im wesentlichen nur über ländlichen Gebieten wie Nordostniedersachsen und Mecklenburg-Vorpommern aufhält, was keinen erheblichen Anteil an Advektion von Ozon erwarten läßt.

Im 850 hPa Niveau trifft die Luftmasse an diesem Tag, nachdem sie die Nordsee passiert hat, auf die niedersächsische bzw. nordholländische Küste, zieht weiter landeinwärts über Ostfriesland hinweg bis in die Gegend von Salzgitter, um anschließend nordwärts drehend über die Lüneburger Heide den Meßort zu erreichen. Ähnlich wie am Tage zuvor war es nicht über den gesamten Zeitraum möglich, die Trajektorien graphisch darzustellen. Die dabei passierten Gebiete über Land sind teilweise industriell genutzt, jedoch überstreicht die Luftmasse keine stark belasteten Gebiete wie das Ruhrgebiet. Somit ist auch an diesem Tag mit eher moderater Advektion zu rechnen. Dennoch muß dieser Verlauf der Luftmasse eine um mehr als $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ niedrigere Ozondichte von weniger als $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Messung um ca. 18:00 UT bewirkt haben, wie im vorigen Abschnitt gefolgert wurde.

Der Aufenthaltsort des Luftpakets im 850 hPa Niveau 24 Stunden vor der Ankunft am Meßort war Mittelengland bzw. Irland, im 950 hPa Niveau war die Luftmasse über der Nordsee. Am 9.6. um 18:00 UT Startzeit hielt sich die Luftmasse in Bodennähe 24 Stunden vor Eintreffen im Hamburger Raum in dem Bereich um die Elbmündung auf. Somit wird sie um diese Zeit nicht mehr von Großbritannien oder der Nordsee beeinflusst.

10.6.1993

Am 10.6. wurde die Luftmasse stärker kontinental geprägt (s. Abb. (6.4)). Im 950 hPa Niveau strich sie weiter nördlich über die Nordsee, um anschließend über Dänemark und Mecklenburg-Vorpommern, Brandenburg, bis hinein nach Polen zu gelangen. Danach kehrte die Bewegungsrichtung um und die Luftmasse passierte den Berliner Raum, bevor der Hamburger Raum erreicht wurde. Im 850 hPa Niveau ist ein südlicherer Verlauf auszumachen. Ähnlich wie am Tage zuvor, trifft die Luftmasse in Friesland auf den Küstenbereich, bewegt sich nun aber stärker landeinwärts über Niedersachsen, Sachsen bis hinein nach Tschechien. Dort kehrt ihre Richtung ebenso wie im 950 hPa Niveau um

und passiert anschließend Gebiete wie den Raum Leipzig-Halle-Bitterfeld, der hinreichend bekannt ist für starke Emissionen. Dort befinden sich zahlreiche Energieerzeugungsanlagen, ähnlich wie in der Lausitz, wo die Luftmasse zuvor ebenso vorbeigestrichen ist. Diese Anlagen basieren auf Braunkohleverstromung und sind somit starke Emittenten auch von Stickoxiden. Sowohl im 850 hPa Niveau als auch in Bodennähe befindet sich die Luftmasse 24 Stunden vor Erreichen des Meßortes im Gebiet Ostdeutschland oder Westpolen. Also kann an diesem Tag ein erheblicher Anteil an der gemessenen Ozondichte von der Advektion herrühren. Für die Interpretation der Episode ist dieses eine entscheidende Information, die berücksichtigt werden muß.

6.2.3 Genauigkeitsabschätzung

Die Genauigkeit dieses Trajektorienmodells wird durch die horizontalen Gitterabstände von 381 km eingeschränkt. Die geringe horizontale Auflösung ist dadurch bedingt, daß es sich um ein globales Modell handelt. Mit diesem Modell ist man in der Lage, den wahren Aufenthaltsort der Luftmasse auf 190 Kilometer genau zu bestimmen. Die Trajektorieninformationen liegen alle sechs Stunden vor. Die absolute Modellgenauigkeit ist schwer abzuschätzen. Vergleiche mit Trajektorien über dem amerikanischen und europäischen Kontinent mit anderen Modellen zeigen zufriedenstellende Übereinstimmungen der Ergebnisse. Eine detaillierte Diskussion der Vergleichsergebnisse soll an dieser Stelle nicht durchgeführt werden, es sei hier auf Olson et al. (1978) verwiesen.

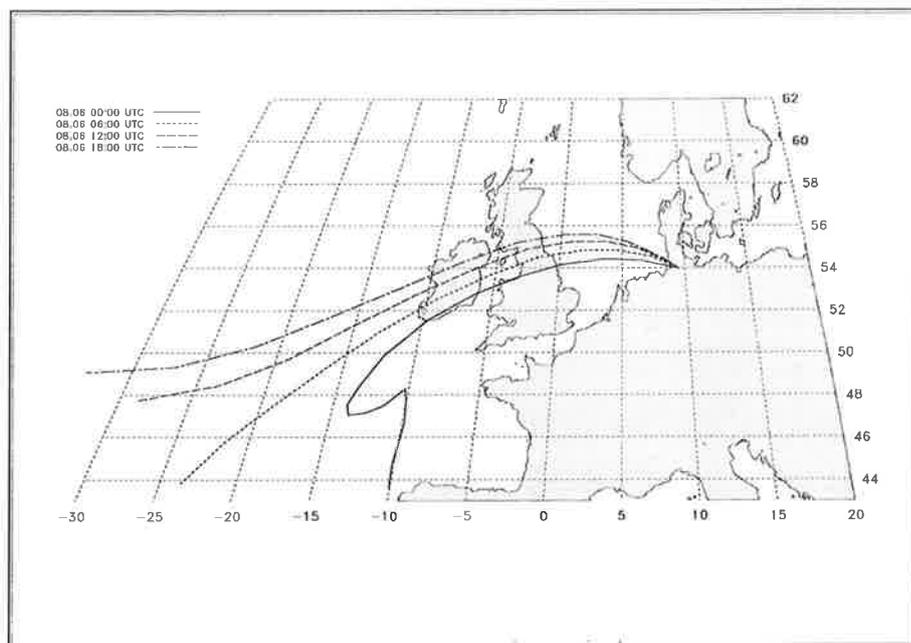
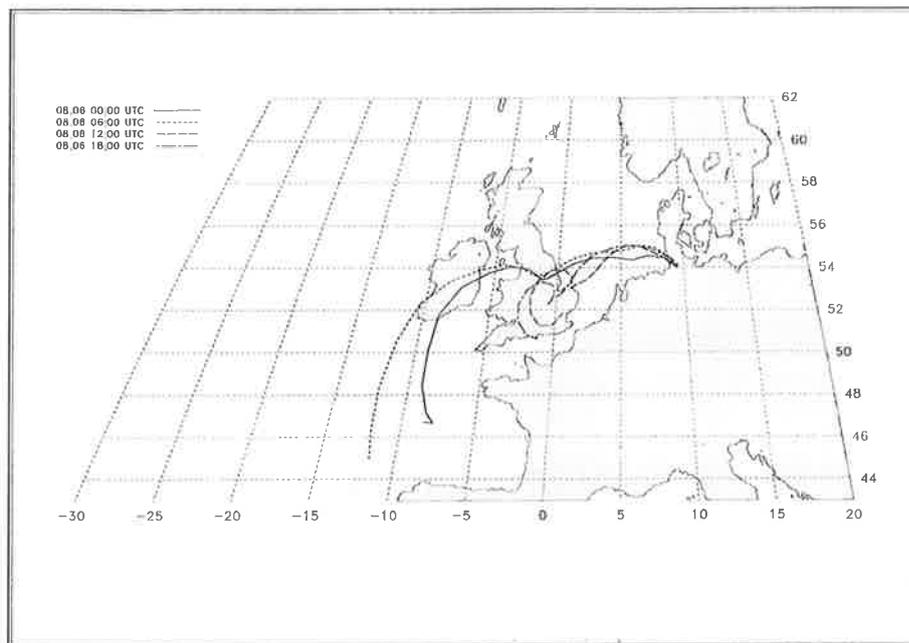


Abbildung 6.2: Rückwärtstrajektorien im 950 hPa Niveau (oben) und 850 hPa Niveau (unten) vom 8.6.93 00:00 UT bis 18:00 UT

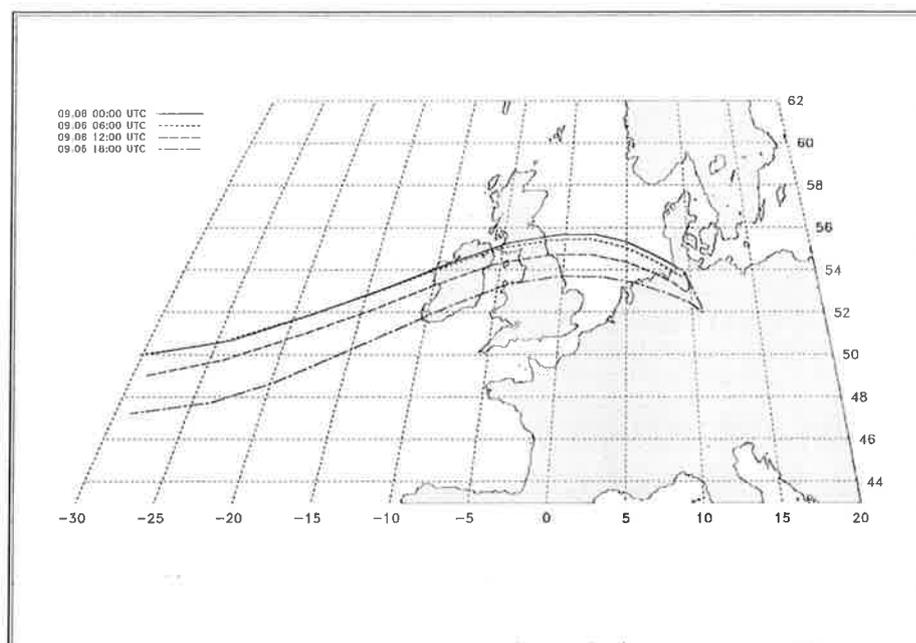
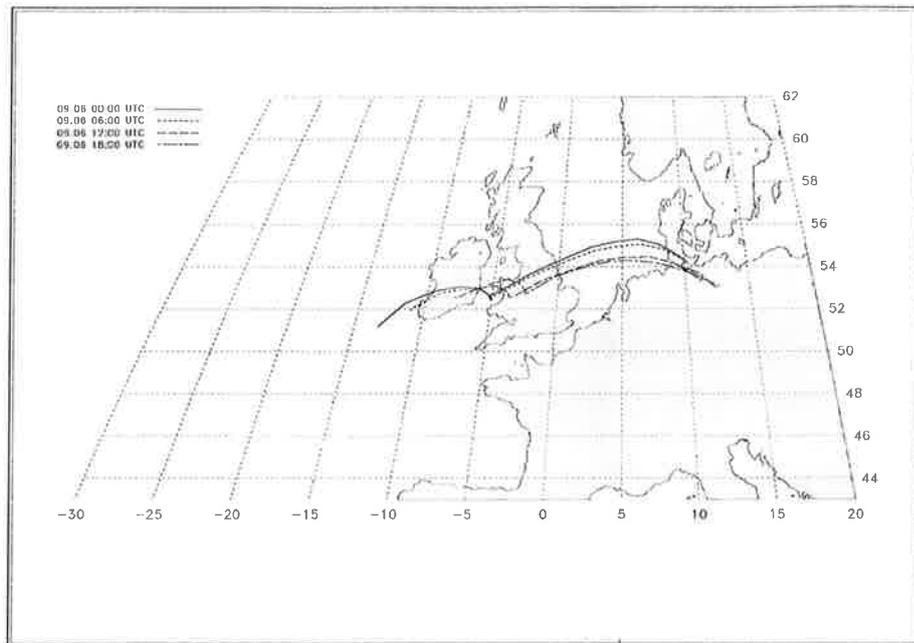


Abbildung 6.3: Rückwärtstrajektorien im 950 hPa Niveau (oben) und 850 hPa Niveau (unten) vom 9.6.93 00:00 UT bis 18:00 UT

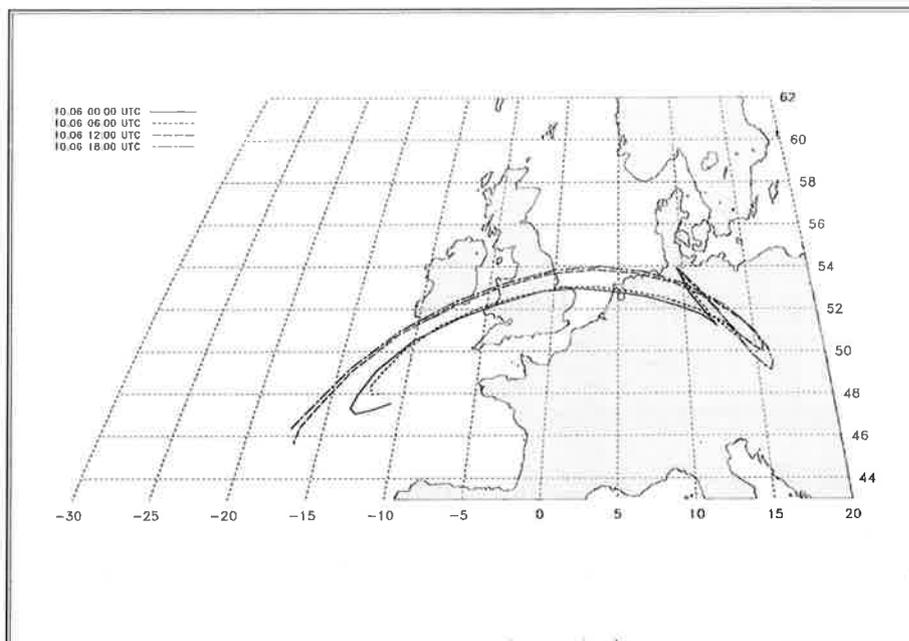
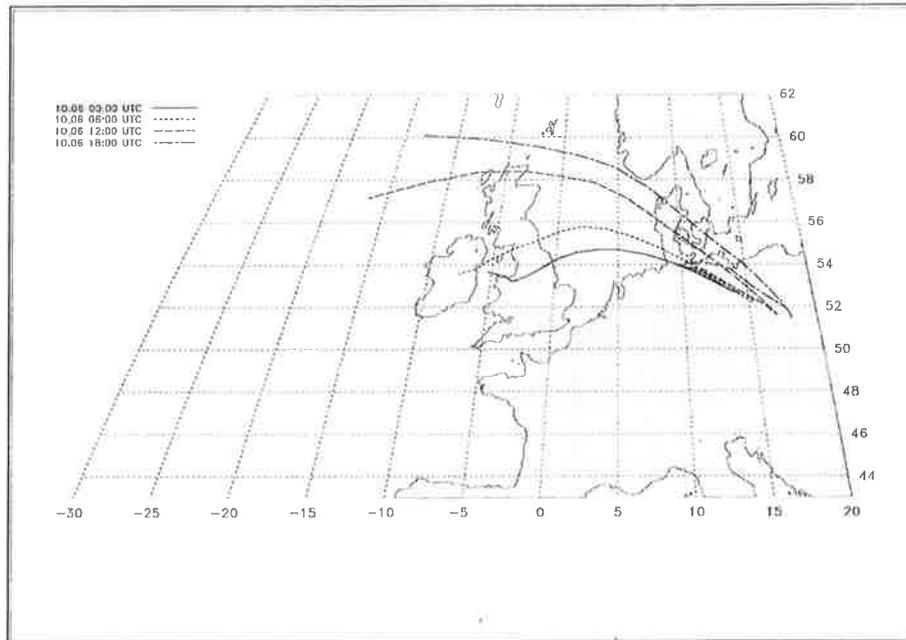


Abbildung 6.4: Rückwärtstrajektorien im 950 hPa Niveau (oben) und 850 hPa Niveau (unten) vom 10.6.93 00:00 UT bis 18:00 UT

6.3 Simulation mit einem Säulenmodell

Das Ziel des Vergleiches von modellierten und gemessenen Ozonwerten war eine Untersuchung von Parametern, die bei einer Ozonepisode eine Rolle spielen. Wie im vorigen Abschnitt anhand der Trajektorienmodellergebnisse gezeigt worden ist, spielt die Advektion von ozonbelasteter Luft am letzten Tag der Episode vermutlich eine erhebliche Rolle. Darüberhinaus sollte die Rolle der turbulenten Durchmischung untersucht werden. Ferner sollte die Möglichkeit einer hinreichend genauen Modellierung einer sich über drei Tage erstreckenden Ozonepisode durch Angabe eines Ozonvertikalprofils zu Beginn dieser Episode geprüft werden.

6.3.1 Das Säulenmodell

Bei dem hier zur Simulation der Episode benutzten Säulenmodell handelt es sich um ein eindimensionales Modell. Es stellt einen Ausschnitt aus dem dreidimensionalen Euler-Modell von EURAD (**E**uropäisches **A**usbreitungs- und **D**epositionsmodell) dar. Dieses Modell wird an der Universität zu Köln betrieben. Alle in diesem Kapitel gezeigten Modellprofile sind dort gerechnet worden. Aus dem dreidimensionalen Modell wird eine Gitterbox aus dem Gitternetz entnommen. Dieses erlaubt nur noch vertikale Austauschprozesse, während horizontale Austauschprozesse nicht mehr zugelassen sind. Eine genaue Beschreibung des dreidimensionalen Modells findet sich in Hass (1991). Die Modifikationen zum eindimensionalen Modell sind Heupel (1993) zu entnehmen. Wichtige Eigenschaften des Modells werden hier kurz beschrieben.

6.3.1.1 Feste Modellparameter

Das Modell ist vertikal in 15 Schichten eingeteilt und reicht vom Boden bis in eine Höhe von ca. 15 km. Die Schichten sind von unterschiedlicher Dicke. In Bodennähe ist die Schichtdicke gering, sie nimmt mit zunehmender Höhe zu. Der Austausch zwischen den Schichten berechnet sich nach Heupel (1993):

$$\frac{\delta C_i}{\delta t} = \frac{\delta}{\delta R} \left(K_R \frac{\delta C_i}{\delta R} \right) + f_i + E_i \quad (6.1)$$

mit

- C_i : Konzentration des Stoffes i
- K_R : Diffusionskoeffizient für die vertikalen Austauschprozesse
- f_i : Änderung der Konzentration durch chemische Prozesse
- E_i : Emissionsrate für interne Emissionen

Schicht	$\bar{\sigma}$	Schicht	$\bar{\sigma}$
1	0.995	9	0.65
2	0.985	10	0.55
3	0.97	11	0.45
4	0.945	12	0.35
5	0.91	13	0.25
6	0.865	14	0.15
7	0.81	15	0.05
8	0.74		

Tabelle 6.1: *Mittlere Höhen $\bar{\sigma}$ der Modellschichten nach Hass (1991)*

In der obersten Modellschicht gilt:

$$\frac{\delta C_i}{\delta t} = 0. \quad (6.2)$$

Dort ist das Mischungsverhältnis auf 900 ppbV Ozon konstant gehalten. Dadurch ist das Modell zwar nicht in der Lage stratosphärischen Eintrag von Ozon zu simulieren, wie dieser z.B. bei Kaltfrontdurchgängen auftreten kann, aber im hier vorgestellten Falle handelt es sich um eine Ozonepisode. Diese sind durch einen starken Anstieg der Ozonwerte in der Grenzschicht und nicht durch Tropopausenfaltungen charakterisiert.

Als Randbedingung am Boden gilt:

$$\frac{\delta C_i}{\delta t} = \frac{\delta}{\delta R} (-v_D \cdot C_i) + e_i, \quad (6.3)$$

wobei v_D die Depositionsgeschwindigkeit und e_i die Emissionsrate der Schadstoffeinträge am Boden bedeuten.

Um die Bodentopographie bei gleichzeitig ebener Modellobergrenze von 15 km zu berücksichtigen, benutzt dieses Modell als Vertikalkoordinate das σ -System der Form:

$$\bar{\sigma} = \frac{\bar{p} - p_t}{p_s - p_t}, \quad (6.4)$$

wobei \bar{p} = mittlerer Druck im σ - Niveau, p_s = Druck am Boden (auf 1013.3 hPa festgelegt) und p_t = Druck an Modellobergrenze (auf 100 hPa festgelegt) repräsentieren.

Die mittleren Höhen $\bar{\sigma}$ der Höhenniveaus sind in Tabelle (6.1) angegeben. Für sie resultiert ein mittlerer Druck in dieser Höhe. Um die Höhe R zu ermitteln, geht in der barometrischen Höhenformel die aktuelle Temperatur in Bodennähe ein. Die Temperatur der Höhe R ergibt sich unter der Annahme des trockenadiabatischen Temperaturgradienten von 6 Kelvin pro Kilometer. Über Druck und Temperatur in der Höhe R kann die mit dem Lidar ermittelte Ozondichte in Massenmischungsverhältnisse umgerechnet werden.

6.3.1.2 Freie Modellparameter

Um die Deposition so wahrheitsgetreu wie möglich zu modellieren, ist es möglich, aus zwei verschiedenen Landnutzungsarten, der urbanen und der ländlichen, auszuwählen. Diese Landnutzungsarten beeinflussen die Depositionsgeschwindigkeit v_D und sind somit wichtig für die untere Randbedingung. Die Depositionsgeschwindigkeit von Ozon hat im Modell einen ausgeprägten Tagesgang. Im Falle landwirtschaftlich genutzter Gebiete beträgt sie in der Nacht < 0.03 cm/s, steigt am Morgen bis auf einen Wert von 0.9 cm/s stark an und fällt gegen Abend rasch ab. Im urbanen Fall ist der Tagesgang nicht so stark ausgeprägt mit einer nächtlichen Depositionsgeschwindigkeit von 0.06 und einer maximalen Geschwindigkeit am Tage von gut 0.2 cm/s.

Ferner sind drei verschiedene PBL Arten wählbar: niedrige PBL mit einer maximalen Grenzschichthöhe von etwa 1 km, mittelhohe PBL mit maximal 1.5 km und hohe PBL mit maximal 2 km Grenzschichthöhe. Für den Fall einer bekannten maximalen Grenzschichthöhe, ist es möglich, diese Höhe vorzugeben. Ein Tagesgang mit anwachsender PBL am Morgen und abfallender PBL am Nachmittag wird vom Modell vorgegeben. Die Maxima der Grenzschichthöhen sind von 11:30 bis 12:30 UT erreicht. Die Intensität der Durchmischung ist ebenfalls in zwei Stufen wählbar, entweder schwach/mittelstark oder stark. Dieses variiert die K_R innerhalb der PBL entsprechend. Der Tagesgang der K_R lehnt sich dem Tagesgang der PBL-Höhen an.

In der Nacht zwischen 20:00 UT abends und 04:00 UT morgens wird standardmäßig eine konstante Höhe für die SBL von 500 Metern angenommen. Optional ist diese Höhe frei wählbar.

Um einen Kompromiß zwischen einfacher Handhabung und Realitätsnähe des Modells zu schließen, sind zwar keine horizontalen Austauschprozesse aber dennoch verschiedene Emissionsgebiete, wie sie für das dreidimensionale Modell benutzt werden, wählbar. Die frei wählbaren Emissionsgebiete besitzen eine Ausdehnung von 60 x 60 Kilometer. Somit kann Advektion - wenn auch nur in eingeschränktem Umfang - berücksichtigt werden. Die Emissionsraten der einzelnen Gebiete beziehen sich auf den Datensatz aus dem Jahr 1990 von EMEP (European Co-operative Program for Monitoring and Evaluation of the

Long-Range Transmission of Air Pollutants). Die EMEP-Datensätze werden für Modellsimulationen vieler Modelle benutzt, da nur diese Datensätze die nötige detaillierte Information über Abgase in der Atmosphäre enthalten.

6.3.2 Modellvarianten

Drei Varianten mit unterschiedlicher Genauigkeit hinsichtlich der Anpassung an die tatsächlichen Gegebenheiten werden hier im folgenden auf ihre Ergebnisse im Vergleich zu den Lidarmessungen untersucht. Zusätzlich wurde ein Modellauf (Nulllauf) durchgeführt, bei dem die meteorologischen Parameter so in die Berechnung eingehen, wie das Modell sie standardmäßig berechnet. Alle Varianten (incl. Nulllauf) sind berechnet worden, indem ländliche Oberflächeneigenschaften berücksichtigt wurde. Zur Initialisierung des Modells diente ein Vertikalprofil der Ozondichte, welches mit dem Lidar gemessen wurde, und ein Bodenwert des Ozon, gemessen mit dem Ozonmonitor. Um die von der bodennahen Temperatur abhängigen photochemische Produktion gut wiedergeben zu können, wurde außer beim Nulllauf ferner die zeitliche Entwicklung der Temperatur in 2 m Höhe am Lidarstandort beachtet. Für den Nulllauf war die Temperatur mit festem Tagesgang bei einer Tageshöchsttemperatur von 25.2°C vorgegeben.

Der Nulllauf

Bei dieser einfachsten Art der Modellierung (Null) wurde eine mittelhohe PBL mit schwacher/mittelstarker Durchmischung angenommen, da keine Aussage a priori über die Grenzschichtparameter gemacht werden kann. Bei dieser Simulation der Episode wurden nur die Emissionen des Gebietes eingebracht, in dem sich die Stadt Heide (50 Kilometer nordwestlich von Itzehoe) befindet, ohne weitere Advektion zu berücksichtigen.

Die lokale Variante

Bei dieser Variante (lokal) gingen ebenso wie bei dem Nulllauf die Emissionen des Gebietes um Heide ein. Aufgrund der mit dem Lidar festgestellten Grenzschichthöhen wurden die in dem Modell vorgesehenen Standardarten der PBL mittelhoch an den ersten beiden und hoch am letzten Tag angesetzt. Dieses führt zu guten Übereinstimmungen der modellierten maximalen PBL-Höhen mit denen durch das Lidar gemessenen maximalen PBL-Höhen von 1750 m am ersten 1800 m am zweiten und 2200 m am letzten Tag der Episode (s.oben). Die zeitliche Entwicklung der Temperatur in Bodennähe wurde als Hinweis auf die Stärke der Durchmischung in der Grenzschicht genommen. Deshalb wurden die Durchmischungen schwach/mittelstark für den ersten und zweiten Tag der Episode

und stark für den dritten Tag angenommen.

Die Variante mit Advektion

Zusätzlich zu der lokalen Simulation, berücksichtigt die zweite Variante (Adv) die Advektion von Luftmassen aus anderen Gebieten. Dieses wurde durch variierende Emissionsgebiete erzielt. Als Kriterium für die Abschätzung der Emissionen wurde die in Bodennähe vorherrschende Windrichtung am Meßort in Zusammenhang mit den Berechnungen der 950 hPa Niveau Trajektorien benutzt. So wurde für den ersten Tag das Emissionsgebiet um Heide und für den zweiten Tag das östlich an das Gebiet um Heide angrenzende Emissionsgebiet um die Stadt Kiel herum angenommen. Für den dritten Tag ergab sich das südlich an das Gebiet um Kiel angrenzende Emissionsgebiet um Hamburg.

Die Variante mit Advektion und gemessenen PBL - Parametern

Bislang sind nur Parameter in die Simulation eingegangen, die aus Wettervorhersagen entnommen werden können. Somit ist das Modell mit diesen Varianten in der Lage, auch Vorhersagen für die Ozondichten zu geben. Um zu prüfen, ob die zu erwartenden Ergebnisse weiter verbessert werden können, wurde eine zusätzliche Variante, die die Stärke der Turbulenz während der Episode besser berücksichtigt, getestet.

Zur Bestimmung der turbulenten Verhältnisse wurde der vertikale Temperaturgradient betrachtet. Ist dieser in einem Höhenbereich größer als 6 K pro Kilometer, liegt dort eine feucht-labile Atmosphäre vor. Bei kleineren Temperaturgradienten gilt die Atmosphäre in diesem Bereich als feucht-stabil. Dieses Kriterium gibt einen Hinweis auf die Turbulenz. In Abbildung (6.5) ist das Temperaturprofil für jeden der drei Tage jeweils um 15:00 UT dargestellt, das aus Radiosondenaufstiegen der Station Kiel resultierte. Der Temperaturgradient betrug am 8.6. in der untersten Schicht 18.9 K pro Kilometer und in den Schichten darüber 7.9 bzw. 7.1 K pro Kilometer. Am 9.6. war in der bodennahen Schicht ein Gradient von 23.3 K pro Kilometer auszumachen, dieser nahm aber in der Schicht darüber 7.2 K pro Kilometer und weiter oben beträgt er sogar nur 4.0 K pro Kilometer an. Am 10.6. war in der bodennahen Schicht ein im Vergleich zu den Vortagen nicht so starker Temperaturgradient von 13.1 K pro Kilometer vorhanden, darüber betrug dieser Gradient 7.7 K pro Kilometer, um weiter oben noch einmal zuzunehmen auf 9.2 K pro Kilometer.

Das bedeutet, daß nur in der Schicht zwischen ungefähr 800 und 1500 Metern am 9.6. der Temperaturgradient kleiner als der feuchtadiabatische Temperaturgradient war. Diese Erkenntnis führt zu der Annahme einer starken Durchmischung am ersten und am letzten Tag der Episode, während am zweiten Tag schwach/mittelstarke Durchmi-

schung innerhalb der Grenzschicht angenommen wird. (Bei der lokalen Variante und der Variante mit Advektion wurde für die Stärke der Turbulenz für die ersten beiden Tage schwach/mittelstark und für den letzten Tag stark angenommen.)

Als PBL-Höhen wurden bei dieser Variante die aus den Lidarmessungen ermittelten Höhen genommen.

Zusätzlich zu den Durchmischungsverhältnissen am Tage wurde bei dieser Variante auch die Durchmischung und die Höhe der SBL modifiziert. Das Anwachsen der Ozonwerte während einer Episode wird mitbestimmt von der Intensität des nächtlichen Abbaus innerhalb der SBL. Geringer Ozonabbau in der Nacht, bedingt durch den geringen Austausch in der untersten Schicht, trägt wesentlich zum Anstieg der Ozonwerte innerhalb einer Episode bei. Dadurch, daß die SBL nicht konvektiv durchmischt ist, wurde der Diffusionskoeffizient für die vertikalen Austauschprozesse $K_R = 1$ gesetzt, so daß keine Turbulenz resultiert. Der nächtliche Abbau in der SBL resultiert aus der Depositionsgeschwindigkeit am Boden. Die Höhe der SBL wurde aufgrund der nächtlichen Radiosondenaufstiege von Kiel auf 250 m in beiden Nächten festgelegt.

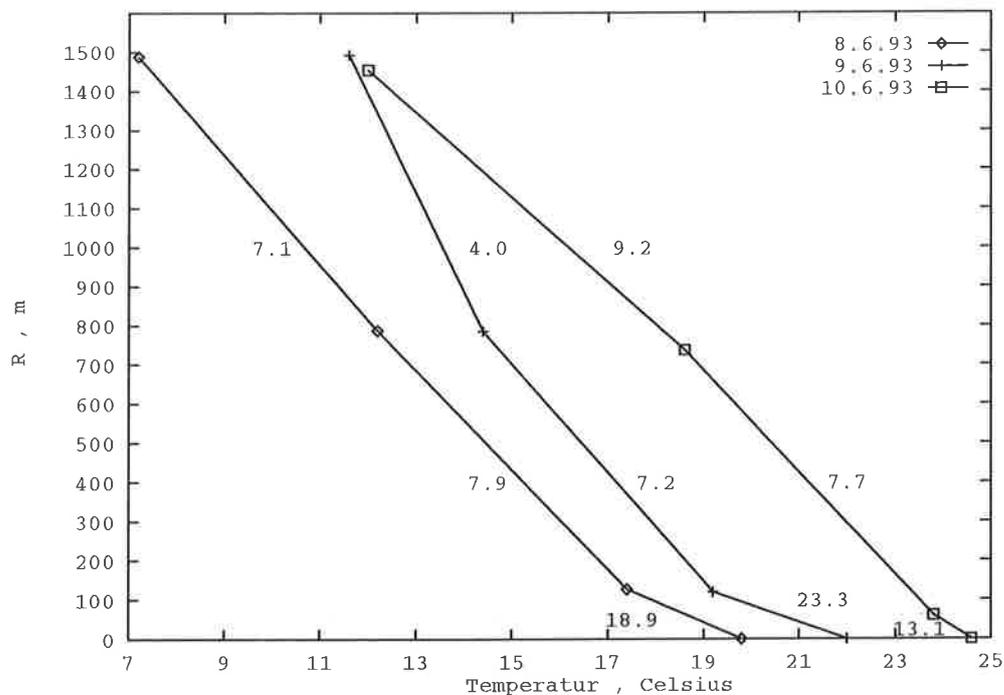


Abbildung 6.5: Temperaturprofile der Radiosondenaufstiege aus Kiel vom 8.6., 9.6. und 10.6. jeweils 15:00 UT

6.3.3 Vergleich Lidarergebnisse - Modellergebnisse

Der Vergleich von Lidar- und Modellergebnissen wird zu signifikanten Zeiten durchgeführt. Dazu gehört der Nachmittag mit dem Tagesmaximum in der Ozondichte und ferner die Nacht mit charakteristischem Abbau an Ozon in Bodennähe und mit anhaltend hohen Ozonwerten in der RL. Vergleiche aller anderen Lidarprofile dieser Episode mit Modellprofilen zeigten keine weiteren Erkenntnisse, so daß sich aus Gründen der Kompaktheit hier auf die signifikanten Zeiten beschränkt wird. Zum Vergleich des Tagesmaximums wird jeweils zwischen 14:00 und 15:00 UT am Nachmittag ein Lidarprofil mit einem modellierten Profil verglichen. Die nächtlichen Profile werden um ca. 00:00 UT verglichen.

Die Modellergebnisse wurden zum Vergleich in der untersten Schicht, in ca. 40 m ($\bar{\sigma}=0.995$), in ca. 1100 m ($\bar{\sigma}=0.865$), ca. 1600 m ($\bar{\sigma}=0.81$) und für die Fälle mit hochreichenden Lidarmessungen auch in ca. 2200 m ($\bar{\sigma}=0.74$) berechnet. Die Variabilität der Höhe R dieser Schichten ist bedingt durch die Variabilität der Temperatur in Bodennähe. Die Abweichungen von diesen Werten in den verglichenen Höhen betragen maximal 2 m in der untersten, 32 bzw. 37 m in der Schicht um 1100 bzw. 1600 m und 77 m in der Schicht um 2200 m. Im folgenden werden die oben genannten Höhen bei der Interpretation der Vergleiche angegeben. In die Abbildungen geht die aktuell ermittelte Höhe ein. Die Variante (Null) hat bei den Vergleichen eine andere Höhe als die anderen Varianten, bedingt durch die vom Modell berechneten Temperaturen dieser Variante.

Zur Berechnung der Modellergebnisse wurden die Ozondichten in Volumennmischungsverhältnisse umgerechnet. Für die hier gezeigten Vergleiche wurden diese Werte wieder rücktransformiert in Ozondichten. Bei der Initialisierung gingen zur Umrechnung von $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in Mischungsverhältnisse die aktuellen Temperaturen und Druckwerte ein. Bei der Rückrechnung in Ozondichten wurde dieses berücksichtigt, so daß die Höhen in Abbildung (6.6) gleich sind. Aus den stündlich berechneten Werten sämtlicher chemischer Substanzen wurden die Ozonwerte zum Zeitpunkt einer Lidarmessung extrahiert. Die Vergleiche beschränken sich auf Höhen, in denen eine Lidarmessung stattgefunden hat und ferner auf den durch den Ozonmonitor ermittelten Wert.

6.3.3.1 Initialisierung

Mit den obigen Annahmen und Approximationen wurde das Modell am 8.6. um 12:00 UT initialisiert und in Abbildung (6.6) dargestellt. Die Lidarmessung von 12:05 UT kann aufgrund der Rückstreusignale eindeutig der PBL zugeordnet werden. Der der Lidarmes-

sung zugehörige Bodenwert stammt von dem Ozonmonitor. Die Messung von 10:20 UT im Bereich von 1800 bis 2000 Metern entstammt der LFT, welche oberhalb von 1800 Metern beginnt. Somit ist auch aus dieser Schicht der Atmosphäre ein Anfangswert bekannt. Da die freie Troposphäre hinsichtlich ihrer zeitlichen Ozonentwicklung konservativ während Ozonepisoden ist, kann der Wert von 10:20 UT als Initialisierungswert herangezogen werden.

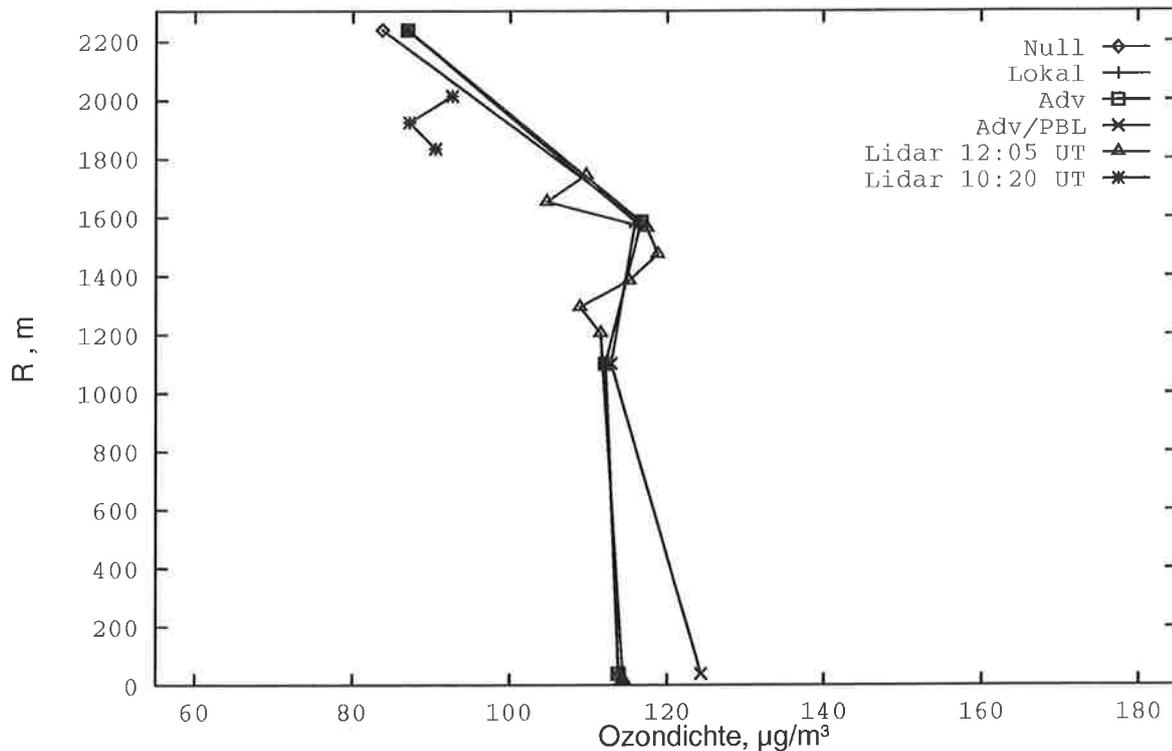


Abbildung 6.6: Ergebnisse der Initialisierung des Modells am 8.6. um 12:00 UT

Der bodennahe Modellwert des Falles (Adv/PBL) weicht trotz Angleichung von dem gemessenen Ozonmonitorwert ab, da das Modell in diesem Fall unter der Annahme starker Turbulenz initialisiert wurde. Dieses führt offensichtlich zu einem sehr raschen Ausgleich der Gradienten schon beim ersten Rechenschritt und damit zu konstanten Mischungsverhältnissen.

Für den Modellwert in 1100 Metern wurde angenommen, daß dieser identisch sei mit dem Lidarwert von 1205 Metern. Für den 1600 Meter hoch gelegenen Modellwert wurde ein Mittelwert der verfügbaren Lidarwerte von 1300 bis 1800 Metern angenommen. Eine Begründung dafür, daß der Initialisierungswert der Variante (Null) in 2200 m um ca. $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ niedriger liegt als bei den anderen Varianten in dieser Höhe, gibt es nicht, zumal

die Werte in 1100 und 1600 m übereinstimmen.

6.3.3.2 Vergleich nach 26 Stunden

Am folgenden Nachmittag, um 14:00 UT wurden die Messungen des Lidars mit den Modellergebnissen verglichen. Seit der Initialisierung des Modells sind 26 Stunden vergangen. Die Ergebnisse des Vergleiches sind in Abbildung (6.7) oben links gezeigt.

Die Bodenwerte sind in allen Fällen ca. 20% niedriger als der gemessene Bodenwert. Wenn das Lidarprofil nach unten extrapoliert wird, herrscht innerhalb der Grenzschicht, in der Höhe von 1100 Metern, in allen modellierten Profilen gute Übereinstimmung mit der Messung. Das Modell berechnet einen Anstieg in dieser Höhe von $112 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $122 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die lokale Variante, $128 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die Variante mit Advektion und $125 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für den Fall (Adv/PBL). Damit ist die Variante (Adv) in dieser Höhe am besten modelliert. Für die Version (Null) ergibt sich ein Wert von knapp $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in 1100 m.

Die Ergebnisse von Variante (lokal) zeigen in 1100 m einen etwa zwei Drittel so großen Anstieg im Vergleich zur Variante (Adv), bei der die Emissionen aufgrund der Windrichtung angepaßt worden sind. Dieses zeigt bereits jetzt die Wichtigkeit der Kenntnis realer Emissionen. Im Fall (Adv/PBL) bewirkt starke Durchmischung am ersten Tag einen geringen Gradienten zwischen Bodenwert und dem Wert in 1100 m als bei (lokal) und (Adv). Deshalb ist der Anstieg in 1100 m auch nicht so hoch ausgefallen wie in Fall (Adv). Der Nulllauf zeigt ebenfalls kleinere Gradienten, bedingt durch das geringere Anwachsen des Ozonwertes in 1100m.

Bei dem gemessenen Anstieg der Ozondichte unterhalb der Grenzschichtoberkante handelt es sich nicht um einen durch Aerosole bedingten Einfluß, da die unkorrigierten Lidarwerte innerhalb der PBL nur um wenige $\mu\text{g}/\text{m}^3$ von den korrigierten Werten abweichen. Also ist dieser Anstieg in einer erhöhten Ozondichte begründet. Dieses wird von dem Modell in keinem der Fälle nachvollzogen. Bis auf Fall (Adv/PBL) ist die Modellhöhe von 1600 Metern bereits in der Entrainmentzone und es ergibt sich für die anderen drei Fälle deshalb ein Wert, der zwischen dem PBL-Wert in 1100 m und dem Wert der freien Troposphäre in 2200 m liegt. Somit ergeben sich in 1600 m leichte Abfälle der Ozonwerte von $117 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zum Zeitpunkt der Initialisierung auf 107 bis $110 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Gute Durchmischung in der Modellhöhe von 1600 Metern im Fall (Adv/PBL) bewirkt mit $114 \mu\text{g}/\text{m}^3$ eine Modellierung mit ähnlichen Mischungsverhältnissen.

Die Ozondichte innerhalb der LFT zeigt in allen Fällen der Modellierung kaum eine

Veränderung. Die Lidarmessung zeigt hinsichtlich der Ozondichten keinen Anstieg. Da die Werte der LFT zu diesem Zeitpunkt ca. 200 m höher liegen, bedeutet das bezüglich der Mischungsverhältnisse eine Erhöhung um ca. 3 % bei konstanter Ozondichte. Dieses ist aus den Modellergebnissen nicht ersichtlich. Diese verringern sich um ca. $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Vergleich zu den Werten der Initialisierung. Für den Nullauf ergibt sich ein Anstieg um ca. $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Somit liegt nun dieser Wert genauso hoch wie bei den anderen Varianten. Absolut betrachtet handelt es sich hier aber um vernachlässigbar kleine Abweichungen.

6.3.3.3 Vergleich nach 36 Stunden

In der Nacht vom zweiten auf den dritten Tag dieser Ozonepisode wurde um 00:00 UT eine Lidarmessung durchgeführt und mit den Modellergebnissen verglichen. Die Ergebnisse sind in Abbildung (6.7) oben rechts dargestellt. Sowohl die Werte in Bodennähe als auch die Werte in der Restschicht (1100 m) stimmen in Fall (Adv) gut überein. Die anhaltend hohen Werte in diesem Höhenbereich der Atmosphäre werden gut wiedergegeben. Im Fall (Adv/PBL) ist der Ozonwert am Boden niedriger. Die flachere SBL bewirkt ein stärkeres Absinken des Ozonwertes am Boden, da das Reservoir dieser Schicht kleiner ist. Insgesamt wird aber weniger Ozon abgebaut, da der Nachschub von oben an Ozon zum Abbau am Boden fehlt. In größeren Höhen wird auch hier ein im Vergleich zur Messung gutes Ergebnis erzielt. Die bis auf maximal 1750 m hochreichende PBL im Modell bewirkt dort am Tage einen höheren Wert, der sich bis in die Nacht halten kann. Für die Fälle (lokal) und (Null) ergeben sich viel zu hohe Bodenwerte. Da für diese Varianten Gebiete mit geringeren Emissionen gewählt wurden, wurden auch weniger Vorläufergase für Ozon bei diesen Varianten modelliert. Die Stickoxide sind in der Nacht verantwortlich für einen Ozonabbau, während sie am Tage zur Produktion von Ozon beitragen. Ein Vergleich der durch das Modell ebenfalls berechneten NO_x -Konzentrationen ergab, daß im Fall (lokal) und (Null) nur etwa ein Drittel soviel NO_2 und nur ca. ein zehntel soviel NO in Bodennähe modelliert wurde wie im Fall (Adv) und (Adv/PBL). Somit ist offensichtlich der nächtliche Ozonabbau bedingt durch NO und NO_2 zumindest mitverantwortlich für den starken Abbau in Bodennähe bei den Fällen (Adv) und (Adv/PBL).

Die vorhandenen Lidarmessungen reichen nicht bis in die freie Troposphäre. Dennoch soll hier erwähnt werden, daß das Modell dort keinen signifikanten Anstieg berechnet.

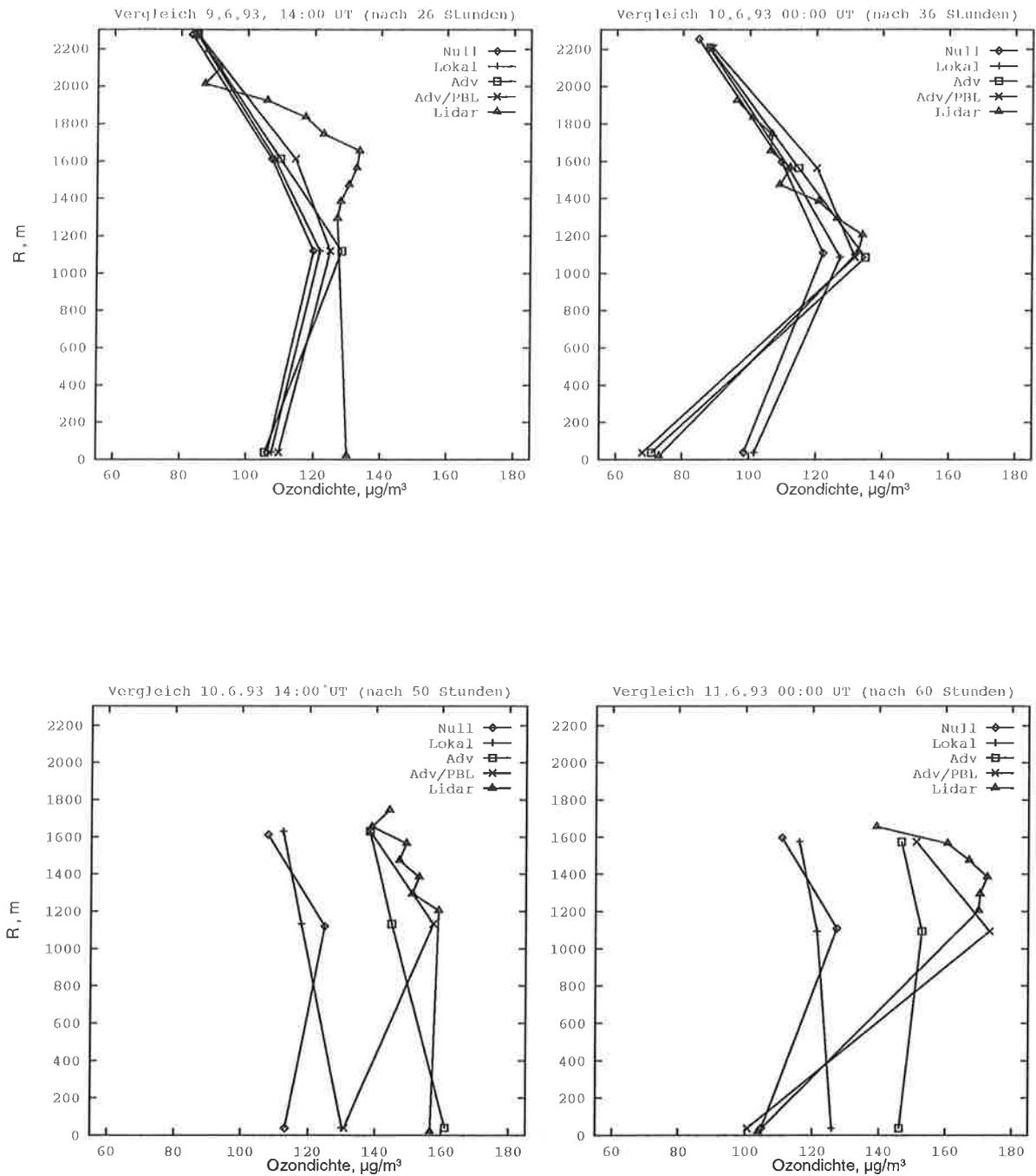


Abbildung 6.7: Vergleich zwischen Messung und Modell nach 26 (oben links), 36 (oben rechts), 50 (unten links) und 60 Stunden (unten rechts)

6.3.3.4 Vergleich nach 50 Stunden

Am dritten Vergleichstag, dem 10.6. wurden Modell- und Lidarergebnisse erneut am Nachmittag verglichen. Die Lidarmessung aus Abbildung (6.7) unten links stammt von 14:30 UT während das Modellprofil für 14:00 UT berechnet ist.

An diesem Tag liegt mit 2.2 km eine erheblich mächtigere Grenzschichthöhe vor. Die Lidarmessung reicht zu diesem Zeitpunkt nur bis ca. 1800 m. Dieses ermöglicht nur einen Vergleich bis in diese Höhen. Deshalb sind die Modellergebnisse der Schicht um ca. 2200 m nicht dargestellt.

Neben einer gemessenen Zunahme um 20-30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ der Ozondichte in der PBL wie am Boden im Vergleich zum Nachmittag zuvor ergibt sich wieder eine ähnlich hohe Ozondichte in beiden Höhenbereichen der Atmosphäre. Das führt zu geringeren Mischungsverhältnissen in der Messung am Boden. Für die Variante (Null) ergeben sich am Boden und in der PBL ca. 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ weniger Ozon als es aus den Lidarmessungen hervorgeht. Die konstant als schwach/mittelstark angenommene Durchmischung macht sich hier bemerkbar, indem der Bodenwert ein niedrigeres Mischungsverhältnis aufweist als der Wert in 1100 m. Bei der Variante (lokal) zeigen sich ebenfalls im Vergleich zur Messung erhebliche Abweichungen von 30-40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, während für den Fall (Adv) der Bodenwert fast mit der Messung übereinstimmt. Nur der Modellwert dieses Falles in der Höhe um 1100 m ist um ca. 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ unterschätzt. Das läßt den Schluß zu, daß die Advektion eine wichtige Rolle an diesem Tag spielt, wie auch schon zuvor aus den Trajektorienberechnungen hervorging. Die in beiden Fällen (lokal) und (Adv) angenommene hohe PBL mit starker Durchmischung innerhalb der PBL bewirkt, daß am Boden gleiche Mischungsverhältnisse vorliegen wie in der Höhe. Der als Senke fungierende Boden zeigt bei starker Durchmischung keinen Effekt mehr auf den Modellwert am Boden. Im Falle (Adv/PBL) liegt der bodennahe Wert unter dem Wert in 1100 m. Somit ist in diesem Fall der Boden zwar als Senke vom Modell nachvollzogen, jedoch ist dieser Senkeneffekt zu stark. Die modellierten Ozonwerte in 1100 m sind in sehr guter Übereinstimmung mit der Messung wie auch die Werte in 1600.

Die niedrigeren Bodenwerte bei (Adv/PBL) im Vergleich zu (Adv), die sich trotz starker Durchmischung ergeben, sind nicht zu erklären. Eventuell handelt es sich hierbei um einen Modellfehler.

6.3.3.5 Vergleich nach 60 Stunden

In der folgenden Nacht, zum Ende der Episode, konnte um Mitternacht UT ein Vergleich stattfinden, der in Abbildung (6.7) unten rechts dargestellt ist. Für die Variante (Null) ergibt sich zwar ein ähnlicher Bodenwert wie in der Lidarmessung, dieser resultiert aber nicht aus dem nächtlichen Abbau von Ozon in Bodennähe, sondern aus dem zu niedrig errechneten Tageshöchstwert. Innerhalb der RL ergeben sich Differenzen von ca. $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In Fall (lokal) und (Adv) sind die Bodenwerte ähnlich hoch wie die Werte der jeweiligen Restschicht. Aufgrund der zu hoch angenommenen SBL findet ein zu geringer Abbau in Bodennähe statt. Die Ozondichte der Restschicht ist von beiden Modellen zu niedrig berechnet worden, besonders von der Version (lokal). Die starke Durchmischung wirkt offensichtlich bis in die Nacht hinein und sorgt für Gradientenausgleich und somit für zu hohe Bodenwerte und zu niedrige Werte in der RL. Während im Fall (Adv) die Ozondichte in der Restschicht um ca. $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu niedrig modelliert wurde, sind es in Fall (lokal) ähnlich wie im Fall (Null) ca. $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu wenig Ozongehalt in der Restschicht. Im Fall (Adv/PBL) sind mit der Messung sehr gut übereinstimmende Werte in der Ozondichte sowohl am Boden als auch in der Restschicht modelliert worden. Hier macht sich bemerkbar, daß die SBL flacher und nicht turbulent durchmischt angenommen wird, so daß sich der Ozonwert in der RL halten kann, während am Boden ein Abbau stattfindet.

6.3.4 Bewertung und Fazit

Die Modellierung mit verschiedenen Varianten hat zu stark unterschiedlichen Ergebnissen geführt. Die Modellläufe ohne Advektion haben zu keiner der verglichenen Zeiten realistische Ergebnisse erbracht. Im Fall (lokal) hat sich wie im Fall (Null) praktisch kein Anstieg der Ozonwerte während der gesamten Episode ergeben. Dieses steht in krassem Gegensatz zu den Messungen, die einen drastischen Anstieg um über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der PBL vom Zeitpunkt der Initialisierung bis zur Messung 60 Stunden später zeigt.

Im Falle (Adv) wird dort zwar ein Anstieg um ca. $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ vorhersagt, jedoch ist die vertikale Durchmischung nicht korrekt berücksichtigt.

Im Fall (Adv/PBL) ist in der Nacht zwar ein mit der Messung übereinstimmender Bodenwert erzeugt worden, jedoch sind die Bodenwerte am letzten Tag zu niedrig modelliert. Der Anstieg innerhalb der PBL bzw. RL ist von Fall (Adv/PBL) gut wiedergegeben. Hier wird auch der drastische Anstieg der Ozondichte am letzten Tag von dem Modell gut wiedergegeben.

Die Angabe des vermuteten Emissionsgebietes war offensichtlich ein wichtiger Schritt, der zu deutlich besseren Vorhersagen führt. Da die Windrichtung aus Wettervorhersagen hervorgeht, ist man in der Lage, diese Annahmen auch für die Vorhersage von Ozonepisoden zu verwenden.

Ein hier nicht dargestellter Vergleichslauf mit Emissionen ausschließlich aus dem Raum Heide unter zusätzlicher Berücksichtigung der wahren maximalen Grenzschichthöhen und vertikaler Durchmischung wie in Fall (Adv/PBL), ergab am Ende des Vergleichszeitraumes in der Höhe von 1100 m lediglich einen Wert von $130 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Unter Betrachtung des Initialisierungswertes von $115 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ergibt sich nur ein Anstieg von $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dieses stellt die Wichtigkeit der variierenden Emissionen während der Episode heraus.

Ein hier ebenso graphisch nicht dargestellter Vergleich zwischen einer Modellversion, in der die realen Temperaturen eingingen und einer Version, die die vom Modell berechneten Temperaturen berücksichtigt, ergab, daß bis zum 10.6. 00:00 UT ein Unterschied von weniger als $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen diesen Varianten auftrat. Am letzten Tag vergrößerte sich der Unterschied auf bis ca. $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, bedingt durch die hohe gemessene Temperatur an diesem Tag. Die Temperatur spielt also bei der Simulation einer Episode eine Rolle, jedoch ist der Einfluß bei der hier verglichenen Episode nicht annähernd so stark wie die Advektion.

Um eine Vorhersage über die Ozondichte in Bodennähe und in der Grenzschicht machen zu können, bedarf es

1. einer guten Abschätzung für die Initialisierung
2. einer Windvorhersage, um die Advektion zu erfassen
3. einer Temperaturvorhersage, um die Produktion zu bestimmen
4. einer Abschätzung der PBL-Höhe und deren Stärke der Durchmischung
5. einer Abschätzung der SBL-Höhe und deren Stärke der Durchmischung

Darüberhinaus folgte, daß zu einfache Modellläufe ohne Angabe dieser wichtigen meteorologischen Parameter nicht annähernd in der Lage sind, eine Episode zu modellieren. Dieses hat der Fall (lokal) klar zum Ausdruck gebracht. Schon nach 36 Stunden kann dieser Modellauf wie auch der Nulllauf als gescheitert angesehen werden, da weder Bodenwert noch die Werte in der Grenzschicht mit den Messungen annähernd übereinstimmen. Bis zum Ende des Vergleichs zeigen diese beiden Modellläufe keinen nennenswerten Anstieg der Ozondichte innerhalb der PBL/RL.

Ferner ergab sich, daß nicht allein die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre, sondern auch die vertikalen Austauschprozesse von großer Bedeutung sind. Ein Anwachsen der Ozondichten mit der Zeit ist in beiden Fällen mit variablen Emissionen geschehen. Die Vertikalstruktur der modellierten Profile ist verbessert worden, wenn zusätzlich die turbulenten Verhältnisse richtig abgeschätzt wurden. Dennoch sind die berechneten Bodenwerte in diesem Fall am letzten Tag zu niedrig.

Es bedarf Profilmessungen in der Atmosphäre, um ein Modell eingehend zu prüfen. Bodenwerte allein hätten bei diesem Experiment zu irreführenden Aussagen verleitet. Die Modellergebnisse wären aufgrund der zu niedrigen Tageswerte am Boden im Fall (Adv/PBL) zu negativ bewertet worden. Im Gegensatz dazu wäre der Fall (Adv) zu positiv bewertet und nur in der letzten Nacht verworfen worden. Dieser Fall stimmte zwar am Boden, mit Ausnahme des letzten Vergleiches nach 60 Stunden Modellauf gut mit den Lidarergebnissen überein, jedoch wurde die Ozondichte in der PBL am letzten Tag zu niedrig errechnet. Das bedeutet, daß für eine Vorhersage der Ozonwerte in der Grenzschicht eine realistische Abschätzung der turbulenten Durchmischung vorgenommen werden muß. Dazu besteht die Möglichkeit, die vorhergesagten bodennahen Temperaturen

mit den Vorhersagen der in 850 hPa auftretenden Temperatur in Verbindung zu bringen.

Für den Ozongehalt der Atmosphäre ist das Integral über die gesamte Grenzschicht während einer Episode von großer Bedeutung, denn der nächtliche Abbau wird stark bestimmt durch die Höhe der SBL. Eine zu mächtige SBL führt zu unrealistisch hohen nächtlichen Abbauraten dort, da durch Gradientenausgleich dieser Schicht Ozon aus größeren Höhen nachgeliefert wird. Dieser Gradientenausgleich resultiert in überhöhten Bodenwerten. Ist die SBL flacher, so ist deren Reservoir kleiner und damit die gesamte am Boden abgebaute Masse an Ozon geringer. Dieses führt zu niedrigeren Bodenwerten, wobei jedoch absolut gesehen weniger Ozon abgebaut wird.

Ferner spielt die Stärke der Durchmischung am Tage eine große Rolle. Wird sie zu schwach angenommen oder wird die Höhe der Grenzschicht fehlerhaft abgeschätzt, so ergeben sich größere Abweichungen der modellierten von den gemessenen Ozonwerten in der Höhe.

Das bedeutet, daß hier weder Produktion noch Advektion quantitativ bestimmt werden können, da dafür das Integral über die gesamte Grenzschicht hätte korrekt modelliert werden müssen. Dieses ist aber bei keinem der modellierten Fälle geschehen.

Ein nächster Schritt wäre, ein dreidimensionales Modell mit möglichst vielen Profil- und Bodenmessungen zu initialisieren, um dann einen großräumigen Vergleich während einer Episode durchzuführen. Mit einem dreidimensionalen Modell läßt sich die Advektion besser überprüfen als es hier in einer groben Abschätzung durch variable Emissionen geschehen kann. Daraus würde sich dann anbieten, ein Vorhersagenetz für Ozonepisoden aufzubauen, um frühzeitig vor hohen Ozonwerten zu warnen und geeignete Maßnahmen zur Reduzierung der Vorläufergase zu treffen.

Um die Vertikalprofile für den Modellvergleich zu erhalten, bieten sich Lidarmessungen durch ihre hohe Orts- und Zeitaufösung an. Sondenmessungen, sofern sie mindestens zwei mal täglich zur Verfügung stehen, sind mit ihren begleitenden Informationen über den vertikalen Temperaturverlauf ebenso gut für dererlei Vergleiche geeignet, jedoch ist die Messung mit Sonden mehrmals täglich sowohl zeit- als auch finanzaufwendig.

6.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Möglichkeit der eingehenden Untersuchung einer mehrtägigen Ozonepisode gezeigt. Bei der hier vorgestellten dreitägigen Episode ergab sich ein Anstieg

der Ozondichte um ca. $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (30%) in der PBL, während in der LFT die Ozondichte nur um 3% innerhalb der ersten 24 Stunden angestiegen ist.

Qualitativ wurde Advektion anhand von Rückwärtstrajektorien nachgewiesen. Am dritten und letzten Tag der Episode bewirkte Advektion von Luftmassen aus industriell genutzten Gebieten in Ostdeutschland einen erheblichen Anteil an dem Anstieg der Ozondichten am Meßort.

Ferner wurde diese Ozonepisode Ergebnissen eines eindimensionalen Modells verglichen. Es wurden die bei der Modellierung einer Episode wichtigsten Parameter untersucht und bewertet. Ohne Berücksichtigung der Advektion wurde kein befriedigendes Modellergebnis erzielt. Abweichungen bis zu $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (ca. 30%) traten in den Modellvarianten ohne Berücksichtigung der Advektion auf. Ein Schwachpunkt des Modells ist die Modellierung der Bodendaten. Dieses ist bei keinem Modellauf zu allen Zeiten gelungen.

Bislang sind die Untersuchungen in einem Zeitraum von einigen Tagen durchgeführt worden. Im nächsten Kapitel soll darüberhinaus gegangen werden, indem Ergebnisse einer über mehrere Jahre andauernden Routinemessaktion analysiert werden.

Kapitel 7

Die Variation des Ozons

Im vorangegangenen Kapitel wurde der Tagesgang der Ozondichte am Boden und in der PBL während einer Ozonepisode untersucht. Das bodennahe Ozon unterliegt außerdem einem ausgeprägten Jahresgang. Wie stark der Jahresgang der Ozondichte innerhalb der LFT ist und wie stark die Ozondichte von meteorologischen Parametern oder einer Großwetterlage (GWL) abhängig ist, soll nun untersucht werden.

7.1 Allgemeine Methodik

Da die Grenzschichthöhe in dem Meßgebiet nur selten 2 km überschreitet, waren 211 Lidarmessungen in der LFT im Zeitraum von Juli 1991 bis Ende 1994 möglich. Dazu vergleichende Ozonmessungen am Boden liegen in 201 Fällen vor. Die Untersuchungen werden auf möglichst gleicher Datenbasis durchgeführt, d.h. es werden nur die Ozonmonitormessungen in Betracht gezogen, zu denen eine Lidarmessung existiert. Die zehn fehlenden Bodenmessungen während Lidarmessungen in der LFT sind bedingt durch zeitweiligen Ausfall des Ozonmonitors. Wie in Kapitel (5) deutlich geworden ist, können die Bodenwerte aufgrund von Abbau an benachbarten Oberflächen lokal stark schwanken. Deshalb werden diese Datenausfälle nicht durch andere Ozonbodenmessungen ersetzt, da eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse gewährleistet werden soll.

Die Identifikation der Grenzschichthöhe erfolgte aus den Lidarrückstreusignalen (siehe Kapitel 4). Als Kontrolle diente die durch einen Sprung in der relativen Feuchte bzw. einer Temperaturinversion gekennzeichnete Grenzschichthöhe aus den vorliegenden Radiosondendaten von Kiel vor dem 1.10.1994 (60 km nordöstlich des Meßortes), bzw. Bergen ab 1.10.1994 (100 km südlich des Meßortes), da seit Oktober 1994 der Routineaufstiegsbe-

trieb in Kiel eingestellt wurde. Alle drei bis sechs Stunden werden an diesen Stationen routinemäßig Radiosondenaufstiege durchgeführt. Für Fälle, zu denen kein Radiosondenaufstieg an einem Meßtag vorliegt, wurden Radiosondendaten der ca. 60 km nördlich von Itzehoe gelegenen Meßstation Schleswig in die Betrachtung einbezogen, die alle 12 Stunden erhältlich sind. Die relative horizontale Homogenität der freien Troposphäre hinsichtlich der meteorologischen Parameter spricht für eine Vergleichbarkeit der Meßorte. Dieses gilt nur, falls kein Frontdurchgang zu verzeichnen ist. Während Frontdurchgängen bestehen allerdings keine Meßbedingungen in der LFT, so daß dieser Fall ausgeschlossen ist.

Die Ozonwerte der LFT sind typischerweise über die Zeit von 5-10 Minuten gemittelt, sofern atmosphärische Bedingungen dieses zuließen. Ferner fand eine Mittelung über die Höhe statt, die nicht über gleiche Intervalle erfolgte, sondern variabel an die Höhe der Entrainmentzone angepaßt wurde. Eine fest vorgegebene Höhe in Metern oder ein fest vorgegebenes Druckniveau, wie z.B. das 850 hPa Niveau, kann in verschiedenen Schichten der Atmosphäre liegen und hätte so den Datensatz eingeschränkt, da Messungen aus der LFT aus größeren Höhen nicht mit in die Statistik hätten eingehen können. Oberhalb der Entrainmentzone wurde gemittelt bis zur maximalen Auswertehöhe. Typischerweise betrug das Mittelungsintervall 300 m vertikal. Starke Aerosoleinflüsse, wie sie an Schichtgrenzen auftreten, sind in der freien Troposphäre nicht zu erwarten. Traten dennoch Aerosolschichten oberhalb der Entrainmentzone auf, wurde ein anderes Höhenintervall gewählt, da Messungen aus der ungestörten freien Troposphäre miteinander verglichen werden sollten. Dieses ist ein weiterer Grund, warum die Meßergebnisse nicht immer aus einem einheitlichen Höhenbereich stammen. Durch den hier zur Untersuchung benutzten variablen Höhenbereich zwischen 1100 und 2400 Metern über Grund wurde stets sichergestellt, daß alle Messungen aus der LFT sind.

Zur Untersuchung des Jahreganges der Ozondichte wird eine einfache periodische Funktion an die Daten angepaßt. Es bietet sich ein Kosinus an, bei dem Amplitude η_1 , Phase η_2 und Verschiebung des Nullpunktes η_3 variiert wurde:

$$O_3 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] = \eta_1 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] \cdot \cos \left(\frac{2\pi}{365} \cdot D + \eta_2 \right) + \eta_3 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right], \quad (7.1)$$

Der Faktor $\frac{2\pi}{365}$ bewirkt die Normierung der Kalendertage D auf einen Vollwinkel.

Um zu prüfen, wie stark die Variation des Ozons von einem der meteorologischen Parameter Temperatur T , relativer Feuchte r , Windgeschwindigkeit ff und Windrich-

lung dd abhängt, wird zunächst entweder eine lineare Regression oder, im Falle periodischer Abhängigkeiten wie bei der Windrichtung, eine Kosinus Funktion errechnet. Die angepaßte Kosinus Funktion für die Windrichtung wurde wie folgt angesetzt:

$$O_3 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] = \eta_1 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] \cdot \cos \left(\frac{2\pi}{360} \cdot dd + \eta_2 \right) + \eta_3 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right]. \quad (7.2)$$

Da es aus theoretischen Überlegungen nicht sinnvoll erscheint, Funktionen höherer Ordnung abzuleiten, werden nur einfache Funktionen wie Geraden oder ein Kosinus zur Untersuchung gewählt. Für die Abhängigkeit der Ozondichte von der Großwetterlage (GWL) werden die Mittelwerte einer GWL mit dem Mittelwert über alle Daten verglichen. Feinere Einteilungen wurden bei den GWL nicht vorgenommen, da innerhalb jeder Unterteilung hinreichend viele Daten für eine Statistik vorliegen sollten.

Um festzustellen, wie stark durch die Parametrisierung die Beschreibung der Datenpunkte verbessert werden kann, wird die Größe Φ berechnet:

$$\Phi = 1 - \frac{\sigma_r}{\sigma_d}. \quad (7.3)$$

σ_r und σ_d repräsentieren die Standardabweichung der Residuen der angepaßten Kurve bzw. die Standardabweichung der Einzelwerte vom Mittelwert.

Ferner wird die Signifikanz der angepaßten Kurve geprüft, indem σ_r mit dem um den Wert des zugehörigen Konfidenzintervalls Δ_d verminderten σ_d des Mittelwertes verglichen wird. Als Konfidenzbereich wird hier der Bereich des 95 % Prozent Niveaus betrachtet. Liegt σ_r außerhalb des Konfidenzintervalls Δ_d von σ_d , so gilt die Parametrisierung als signifikant.

7.2 Der Jahresgang der Ozondichte

7.2.1 Methodik

Um für den Jahresgang in der Ozondichte der LFT eine gute Statistik zu erhalten, sind Messungen innerhalb der LFT möglichst gleichmäßig über das Jahr zu verteilen. Die in Norddeutschland häufig auftretenden trüben Novembertage lassen zu dieser Jahreszeit allerdings nur selten Messungen zu. Eine Lidarmessung in der LFT ist nur unter der Bedingung einer zumindest durchbrochenen Grenzschichtbewölkung möglich. Zwischen Juli 1991 und Dezember 1994 sind unter der Prämisse, zu messen, wann immer die

Bewölkungssituation dieses zuläßt, Messungen durchgeführt worden, die nicht nur zu Ozonepisoden stattfanden.

In den Sommermonaten ist es nicht immer möglich, mit dem hier benutzten Aufbau des Lidars, in der LFT zu messen. Bedingt durch starke Konvektion treten dann Grenzschichthöhen von mehr als 2 km auf. Bei der Benutzung von Wasserstoff in der Ramanzelle für eine Lidarmessung ist in dieser Höhe schon häufig mit dem hier benutzten System keine Datenauswertung mehr möglich. Anfängliche Schwierigkeiten bezüglich der Wellenlängenseparierung führten dazu, daß es erst ab Mitte 1994 für Routinemessungen gewährleistet war, verwertbare Signale aus Deuteriummessungen zu erhalten. Somit ist ein Großteil der Meßergebnisse unter Verwendung von Wasserstoff entstanden.

Zum Vergleich mit den Einzelmessungen wurden die Ozondichtemessungen der LFT und in Bodennähe über die Monate gemittelt. Dabei wurden sowohl ein arithmetisches als auch ein gewichtetes Mittel gebildet. Während beim arithmetischen Monatsmittel alle Messungen aus dem Monat mit gleichem Gewicht in die Mittelung eingehen, wurde bei dem gewichteten Monatsmittel zunächst ein Tagesmittel der Ozondichten gebildet. Dieses stellt sicher, daß während Ozonepisoden die Meßwerte im Vergleich zu den ein bis zwei mal wöchentlich durchgeführten Routinemessungen nicht zu stark gewichtet werden, denn an einigen Meßtagen war es möglich, häufiger in der LFT zu messen. Im Februar und März gelangen bis zu 13 Messungen in der LFT an einem Tag. Für die Bodendaten wurde zusätzlich zum Vergleich ein Monatsmittel über alle vom Ozonmonitor gemessenen Ozonwerte zwischen Juli 1991 und Dezember 1994 gebildet.

Um die arithmetischen Monatsmittel wurden die 95% Konfidenzintervalle gebildet. So kann geklärt werden, ob und wie oft die Kosinus Funktion bzw. der Mittelwert über alle Daten signifikant mit dem arithmetischen Monatsmittel übereinstimmt.

7.2.2 Ergebnisse

7.2.2.1 Der Jahresgang in der LFT

Abbildung (7.1) zeigt den Jahresgang des Ozons in der LFT. Jeder dargestellte Punkt repräsentiert eine Messung. Die minimal gemessene Ozondichte beträgt $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Juni. Dieser Wert ist nach dem Durchgang einer Kaltfront gemessen worden. Ebenso der sehr niedrige Wert von $57 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Februar. Der Maximalwert von $116 \mu\text{g}/\text{m}^3$ trat am 27. April 1993 auf. Mit einer östlichen Strömung floß dabei Luft aus Osteuropa ein. Dieses deutet auf Advektion von ozonbelasteter Luft hin.

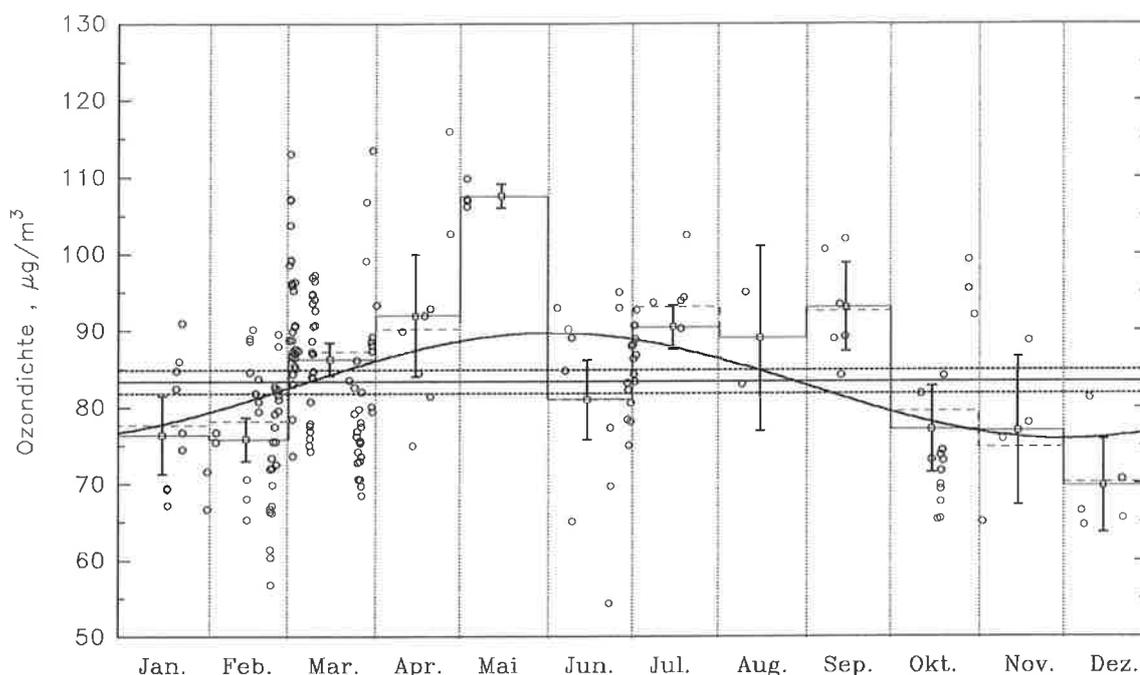


Abbildung 7.1: Jahresgang der Ozondichte in der LFT: arithmetisches Monatsmittel (durchgezogen) und gewichtetes Monatsmittel (gestrichelt). Durchgezogen ist der Verlauf der angepassten Kosinus-Funktion und der Mittelwert über alle Daten angegeben. Für das arithmetische Monatsmittel und den Mittelwert über alle Daten ist das 95% Konfidenzintervall gezeigt.

Die durchgezogene Treppenfunktion in Abbildung (7.1) stellt die arithmetischen Monatsmittel der Messungen dar. Gestrichelt dazu sind die gewichteten Monatsmittel eingezeichnet. Zwischen dem arithmetischen und dem gewichteten Monatsmittel treten nur geringe Unterschiede von maximal $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Juli auf. Darüberhinaus ist die angepasste Funktion nach Gleichung (7.1) eingezeichnet. Die Koeffizienten wie auch die anderen Parameter sind in Tabelle (7.1) sowohl für die Ergebnisse in der LFT als auch am Boden aufgelistet.

Der Korrelationskoeffizient von Ψ -0.32 wurde durch Linearisierung der Kosinus Funktion berechnet. Mit Gleichung (7.3) resultiert $\Phi=0.05$. Der Grund für diesen relativ niedrigen Wert bzw. einem geringen Unterschied der beiden Standardabweichungen liegt u.a. in der großen Streuung der Daten. Der Wert von σ_r befindet sich mit $10.86 \mu\text{g}/\text{m}^3$ innerhalb des Intervalls Δ_d um σ_d , die Verringerung ist somit nicht signifikant. Der Mittelwert über alle Daten liegt in 6 Monaten, die angepasste Kosinus Funktion in 7 Monaten

innerhalb des Intervalls Δ_d um σ_d . Dieses bedeutet keine entscheidende Verbesserung.

Auffallend ist der geringe Jahresgang mit anhaltend hohen Werten im Winter, einem leichten Anstieg im Frühjahr bis Mai. Von Juni/Juli an fallen die Werte bereits leicht ab. Insgesamt ergibt sich ein Mittelwert über alle Messungen in der LFT von $83 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das 95 % Konfidenzintervall für den Mittelwert beträgt $1.55 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Der geringe Jahresgang mit dem Frühjahrsmaximum und den hohen Monatsmittelwerten geht konform mit Ergebnissen von verschiedenen europäischen Stationen, die Beekmann et al. (1994b) verglichen haben. Dort liegen die verglichenen Monatsmittel während des Frühjahrsmaximums um 80 bis $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$, während sie im winterlichen Minimum ca. 55 bis $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im 700 hPa Niveau betragen. Bislang nicht veröffentlichte Ergebnisse des MOL zeigen aus Ozonsondierungen zwischen 1975 bis 1994 ein ähnliches Ergebnis für das 600 hPa Niveau. Das zeigt, daß es sich bei der hohen Ozongrundbelastung in der freien Troposphäre um ein großräumiges Phänomen handelt.

Parameter	$\overline{O_3}$ [$\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$]	η_1 [$\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$]	η_2	η_3 [$\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$]	ψ	Φ	σ_r [$\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$]	σ_d [$\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$]	Δ_d [$\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$]
LFT	83	-6.92	0.50	82.76	-0.32	0.05	10.86	11.45	1.55
Boden	65	-29.50	0.51	62.09	0.23	0.20	21.15	26.34	3.66

Tabelle 7.1: Statistik des Jahresganges in LFT und am Boden: Mittelwert der Ozondichte $\overline{O_3}$, Koeffizienten der Sinusfunktion η_1 , η_2 und η_3 , Korrelationskoeffizient ψ , Parameter der Reduzierung der Standardabweichung Φ , Standardabweichung der Residuen σ_r , Standardabweichung der Einzelwerte vom Mittelwert σ_d und Konfidenzintervall Δ_d .

7.2.2.2 Der Jahresgang in Bodennähe

In Abbildung (7.2) ist der Jahresgang der Ozondichte in Bodennähe dargestellt. Neben dem arithmetischen und dem gewichteten Monatsmittel ist das Monatsmittel aller mit dem Ozonmonitor gemessenen Ozonwerte eingezeichnet. Klar ersichtlich ist der stärker ausgeprägte Jahresgang im Vergleich zur LFT. An die Meßdaten ist auch hier nach Gleichung (7.1) eine Kosinus-Funktion angepaßt worden.

Der Korrelationskoeffizient beträgt hier 0.23, bedingt durch die große Streuung der Daten. Der Mittelwert über alle Daten beträgt $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$, σ_d $3.66 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Der Wert von σ_r ist mit $21.15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um 20% geringer als der Wert von σ_d mit $26.34 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In diesem Fall ist σ_d vermindert um Δ_d mit $22.68 \mu\text{g}/\text{m}^3$ größer als σ_r und somit die Verringerung

der Standardabweichung durch die Anpassung dieser Kosinus Funktion signifikant. Die angepaßte Funktion liegt mit nur einer Ausnahme innerhalb des Konfidenzbereichs der arithmetischen Monatsmittel, während der Mittelwert über alle Daten diese Bedingung nur viermal erfüllt.

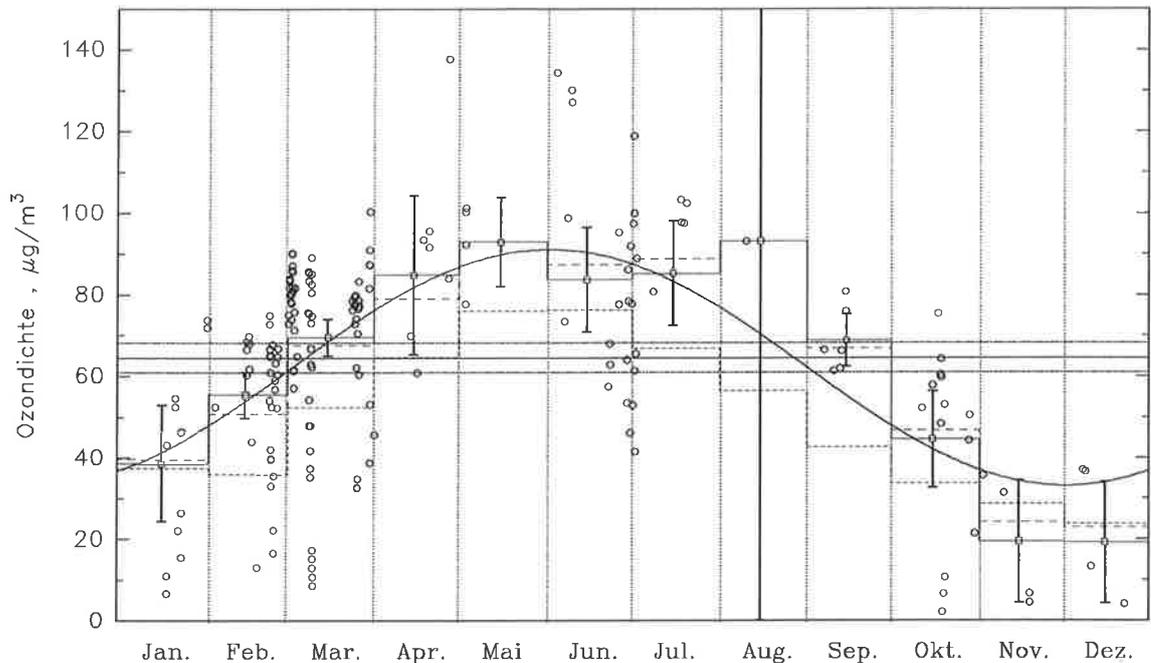


Abbildung 7.2: Jahresgang der Ozondichte in Bodennähe: arithmetisches Monatsmittel (durchgezogen), gewichtetes Monatsmittel (lang gestrichelt) und Mittel über alle gemessenen Ozonmonitordaten 1991-1994 (kurz gestrichelt). Durchgezogen ist der Verlauf der angepassten Kosinus Funktion und der Mittelwert über alle Daten angegeben. Für das arithmetische Monatsmittel und den Mittelwert über alle Daten ist das 95% Konfidenzintervall gezeigt.

Aus den verschiedenen Monatsmitteln ist abzuleiten, daß das Monatsmittel über alle Daten von 1991 bis 1994 zwischen Februar und Oktober niedriger liegt als die beiden auf 201 Daten basierenden Monatsmittelwerte. Bedingt durch hohe Ozonwerte während Schönwetterperioden, und damit auch Meßbedingungen für das Lidar, ergeben sich hohe Werte für die Bodendaten während Lidarmessungen. An trüben Regentagen, mit entsprechend niedrigen Ozonwerten, konnte nicht gemessen werden. Im Spätherbst steigen unter Schönwetterbedingungen die Ozonwerte nicht so stark an. Erhöhte Ozondichten

treten dann häufig nach Durchgang einer Kaltfront auf. Kaltfronten können Eintrag stratosphärischen Ozons bis hinunter zum Boden bewirken (Blonsky et. al (1994)). Diese Fälle sind aber nur selten mit Meßbedingungen verknüpft, wie im vorigen Abschnitt im Februar und Juni beschrieben. Somit resultieren im Sommer niedrigere und gegen Ende des Jahres höhere Ozonwerte bei Einbeziehung aller Meßwerte.

Der Vergleich zwischen arithmetischem und gewichtetem Monatsmittel der 201 Daten ist am Boden größer als in der LFT mit einer maximalen Differenz von $5.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im April. Der ausgeprägte Tagesgang des Ozon in Bodennähe führt bei nicht gleichverteilten Messungen über den Tag zu größeren Unterschieden im Tagesmittel als in der LFT, wo kein Tagesgang in der Ozondichte beobachtet wird.

7.3 Ozonvariation in Abhängigkeit meteorologischer Parameter

7.3.1 Methodik

In der Vergangenheit sind Korrelationen hinsichtlich des Ozongehaltes der Luft hauptsächlich in Bodennähe mit einem meteorologischen Parameter, der Temperatur, unternommen worden, z.B. von Bruckmann und Langensiepen (1981), Yoshikado und Mizuno (1985), Kanbour et al. (1987), Feister et. al (1989), Schmidt, (1989) und Volz et al. (1989). Die Kombination der durch das Lidar gemessenen Ozonwerte und meteorologischen Parametern aus der entsprechenden Höhe ist ein weiterer Schritt, auch um die Repräsentativität der bodennahen Korrelationen im Hinblick auf die gesamte Troposphäre zu untersuchen. Deshalb wurde die Ozondichte in der LFT mit aus Radiosondenaufstiegen gewonnenen meteorologischen Parametern der LFT korreliert. Die Radiosondendaten wurden vom DWD zur Verfügung gestellt. Verglichen wurden die Parameter Temperatur, relative Feuchte, Windrichtung und -geschwindigkeit. Die Globalstrahlung, der direkte meteorologische Parameter, der erheblich an der Ozonproduktion beteiligt ist, steht nur am Boden zur Verfügung. Somit werden hier keine direkten Vergleiche mit der Globalstrahlung durchgeführt, sondern es wird zur Korrelation die Temperatur genommen, die indirekt mit der Globalstrahlung verknüpft ist. Im Vergleich zu den Korrelationen in der freien Troposphäre wurde jeweils auch eine Korrelation zwischen bodennahem Ozon und den meteorologischen Parametern in Bodennähe auf der zur Verfügung stehenden Datenbasis von 201 Ozonmonitormessungen während Lidarmessungen in der LFT durchgeführt. Dieses ermöglicht einen Vergleich der Korrelationen der meteorologischen Parameter mit

der Ozondichte in der LFT und am Boden.

Falls zum Zeitpunkt der Lidarmessung keine Radiosondenmessung vorlag, da diese nur alle drei bis sechs Stunden durchgeführt werden, wurde zwischen den Terminen interpoliert. Für den Fall, daß keine Radiosondendaten der Meßhöhe des Lidars vorlagen, wurden ebenfalls Interpolationen vorgenommen. Im Falle von relativer Feuchte, Windrichtung und -geschwindigkeit wurde zwischen dem nächstmöglich niedriger und höher gelegenen Punkt linear auf den Mittelpunkt des Meßhöhenintervalls des Lidar interpoliert. Die Temperatur im Meßhöhenintervall des Lidars wurde aus dem niedriger gelegenen Wert unter Subtraktion des feuchtadiabatischen Temperaturgradienten von sechs Kelvin pro Kilometer bis zum Mittelpunkt der Meßhöhe des Lidars errechnet.

Da die freie Troposphäre bedingt durch die Abkopplung vom Boden keinen ausgeprägten Tagesgang der Temperatur und relativen Feuchte wie die Grenzschicht aufweist, wird durch zeitliche Interpolation kein wesentlicher Fehler gemacht. Auch der Wind wird in dieser Region der Atmosphäre mehr durch Fronten beeinflußt als durch einen Tagesgang. Bei Durchgang von Fronten bestehen aber keine Meßbedingungen für das Lidar.

Da die Bodendaten kontinuierlich aufgezeichnet werden, bedarf es keiner zeitlichen Interpolation dieser Daten. Falls durch Ausfall eines Meßgerätes keine Bodendaten vorlagen, gingen Meßwerte der ca. 2 km entfernt gelegenen Station des Geophysikalischen Beratungsdienstes der Bundeswehr ein. Durch die räumliche Nähe zum Lidarstandort entsteht hier kein wesentlicher Fehler.

Die Auflösung, mit der die Parameter bestimmt wurden, betrug für die Temperatur T 0.1°C , für die relative Feuchte r 1 %, für die Windrichtung dd 1 Grad und für die Windgeschwindigkeit ff 0.1 m/s. In Bodennähe wurde r aus der Feucht- und Trockentemperatur des Åbmannschen Aspirationspsychrometers bestimmt, da dieses Meßgerät als Standardmeßgerät angesehen ist.

Die Genauigkeit der meteorologischen Daten in Bodennähe beträgt für T 0.1°C , für dd 1.4° und für ff ca. 2%. Die Genauigkeit der Bestimmung von r ist temperaturabhängig und beträgt durch die Auflösung des Åbmannschen Aspirationspsychrometers von 0.1°C bei der Standardtemperatur von 15°C maximal 2%. Diese Werte werden von Siggelkow (1986) angegeben. Die Genauigkeit der Radiosondendaten beträgt für T 0.4°C , für r 5% bei der in Schleswig benutzten RS80-Sonde der Fa. Vaisala und 8% bei der in Kiel und Bergen benutzten RSG-Sonde der Fa. Graw. An den markanten Punkten wird dd auf 10°

genau bestimmt, ff ist auf ca. 0.5 m/s genau DWD (1983).

7.3.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse der Korrelation zwischen Ozon und T , r , ff und dd sind in den Abbildungen (7.3) bis (7.6) dargestellt. Eine statistische Übersicht für die reduzierte Standardabweichung und die Korrelationskoeffizienten, die durch Anpassen einer linearen Regression berechnet wurden, ist in Tabelle (7.2) gegeben. Die statistische Übersicht der Korrelation zwischen Windrichtung und Ozondichte mit den Koeffizienten der Kosinus Funktion beinhaltet Tabelle (7.3).

LFT							
Parameter	$\eta_1 [\frac{\mu g}{m^3}]$	η_2	ψ	Φ	$\sigma_r [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\sigma_d [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\Delta_d [\frac{\mu g}{m^3}]$
T	85.58	$0.68 [\frac{\mu g}{m^3 \cdot C}]$	0.40	0.08	10.50	11.45	1.55
r	87.62	$-0.10 [\frac{\mu g}{m^3}]$	-0.20	0.02	11.22		
ff	84.51	$-0.13 [\frac{\mu g \cdot s}{m^4}]$	-0.06	0.00	11.43		
Boden							
Parameter	$\eta_1 [\frac{\mu g}{m^3}]$	η_2	ψ	Φ	$\sigma_r [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\sigma_d [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\Delta_d [\frac{\mu g}{m^3}]$
T	54.44	$1.95 [\frac{\mu g}{m^3 \cdot C}]$	0.58	0.19	21.43	26.34	3.66
r	123.60	$-0.87 [\frac{\mu g}{m^3}]$	-0.59	0.19	21.25		
ff	49.51	$3.45 [\frac{\mu g \cdot s}{m^4}]$	0.35	0.06	24.69		

Tabelle 7.2: Statistik der linearen Regression wie Tabelle (7.1), aber mit Geradenkoeffizienten η_1 und η_2 für die LFT (oben) Boden (unten).

LFT								
Parameter	$\eta_1 [\frac{\mu g}{m^3}]$	η_2	$\eta_3 [\frac{\mu g}{m^3}]$	ψ	Φ	$\sigma_r [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\sigma_d [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\Delta_d [\frac{\mu g}{m^3}]$
dd	-7.26	0.42	83.11	-0.47	0.12	10.09	11.45	1.55
Boden								
Parameter	$\eta_1 [\frac{\mu g}{m^3}]$	η_2	$\eta_3 [\frac{\mu g}{m^3}]$	ψ	Φ	$\sigma_r [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\sigma_d [\frac{\mu g}{m^3}]$	$\Delta_d [\frac{\mu g}{m^3}]$
dd	7.23	-0.38	62.89	0.02	0.01	25.99	26.34	3.66

Tabelle 7.3: wie Tabelle (7.1) für dd , aber mit den Koeffizienten der Kosinus Funktion.

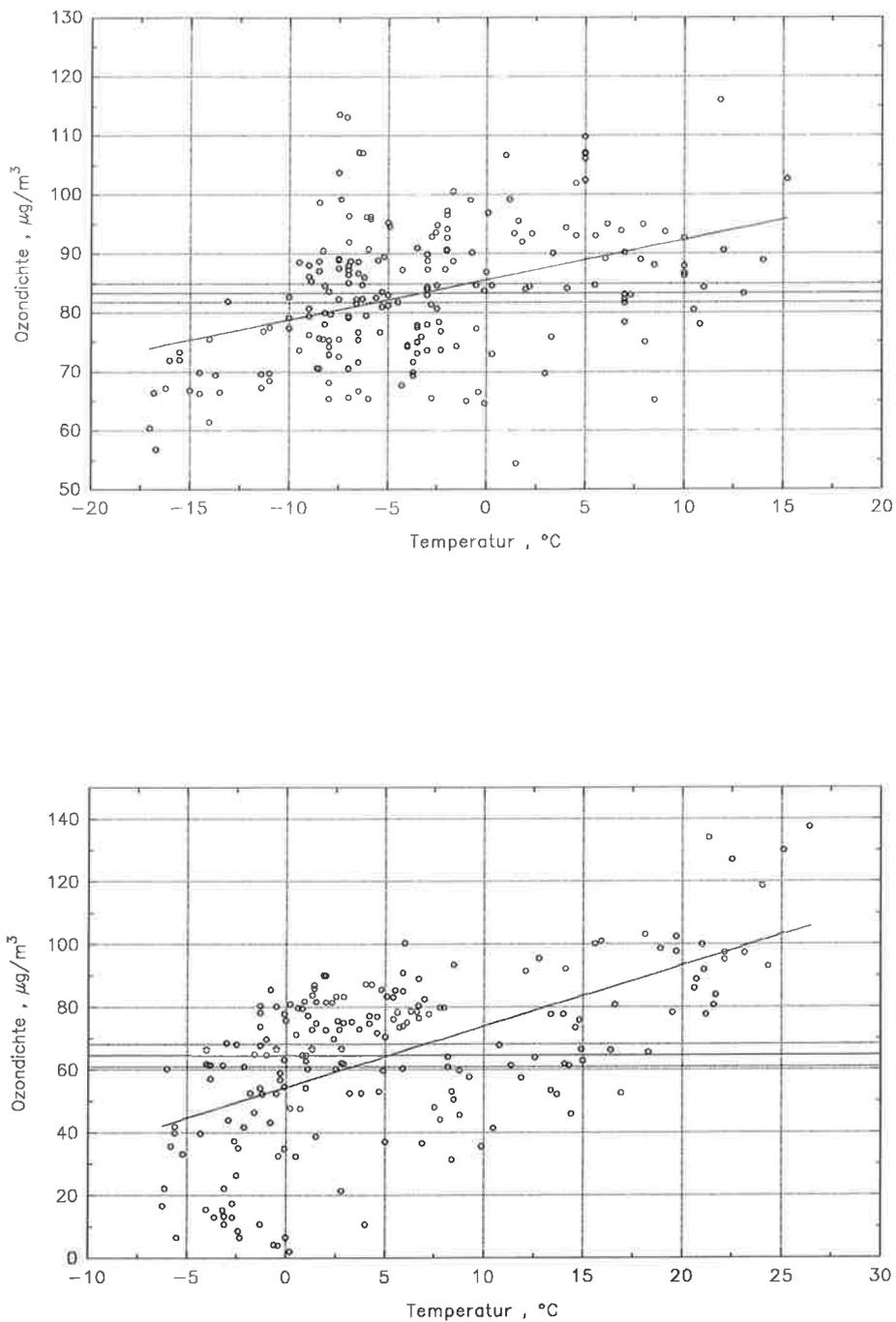


Abbildung 7.3: Abhängigkeit der Ozondichte von der Temperatur in der LFT (oben) und in Bodennähe (unten). Zusätzlich dargestellt ist die lineare Regression und der Mittelwert über alle Daten mit dem 95% Konfidenzintervall.

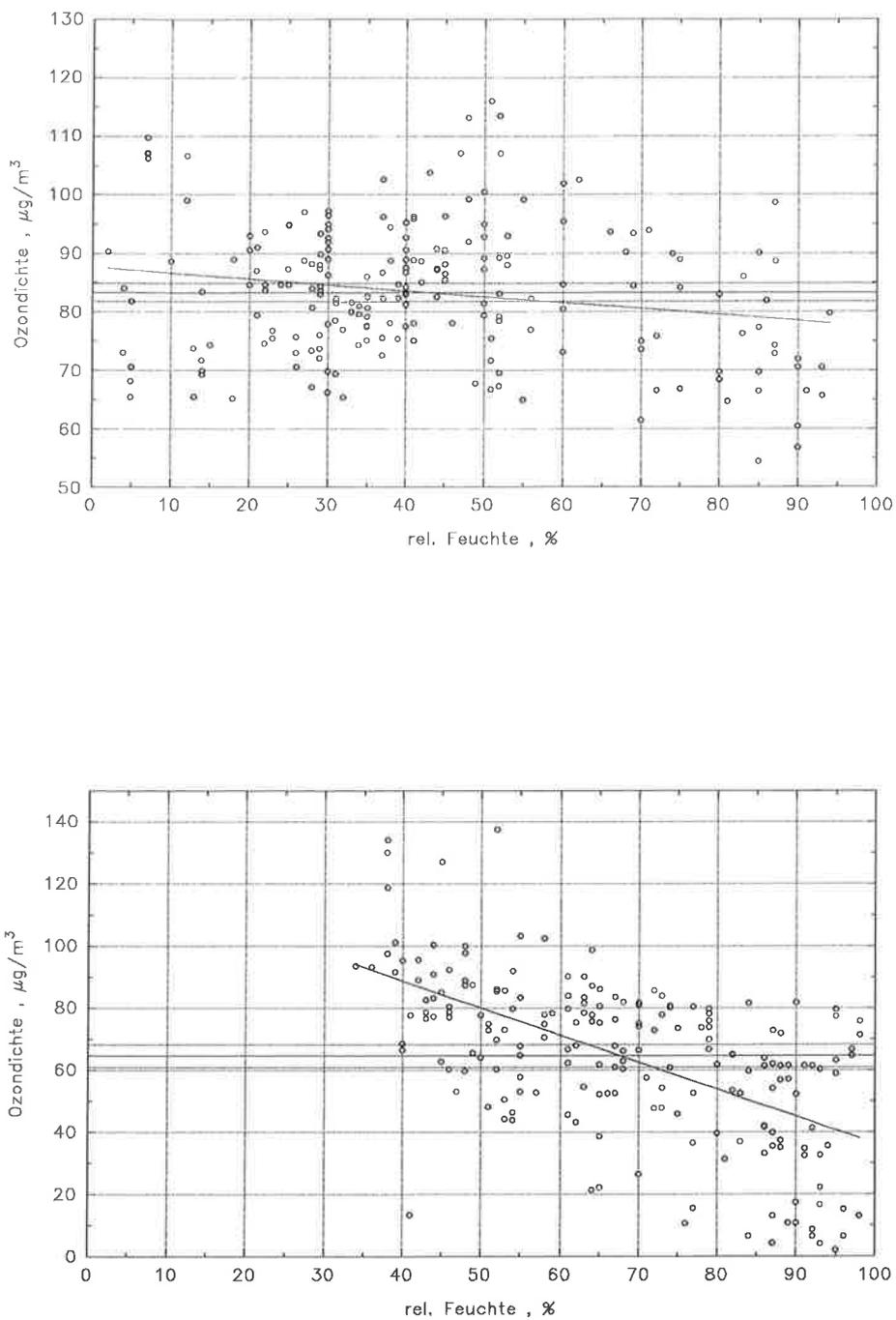


Abbildung 7.4: Abhängigkeit der Ozondichte von der relativen Feuchte in der LFT (oben) und in Bodennähe (unten). Zusätzlich dargestellt ist die lineare Regression und der Mittelwert über alle Daten mit dem 95% Konfidenzintervall.

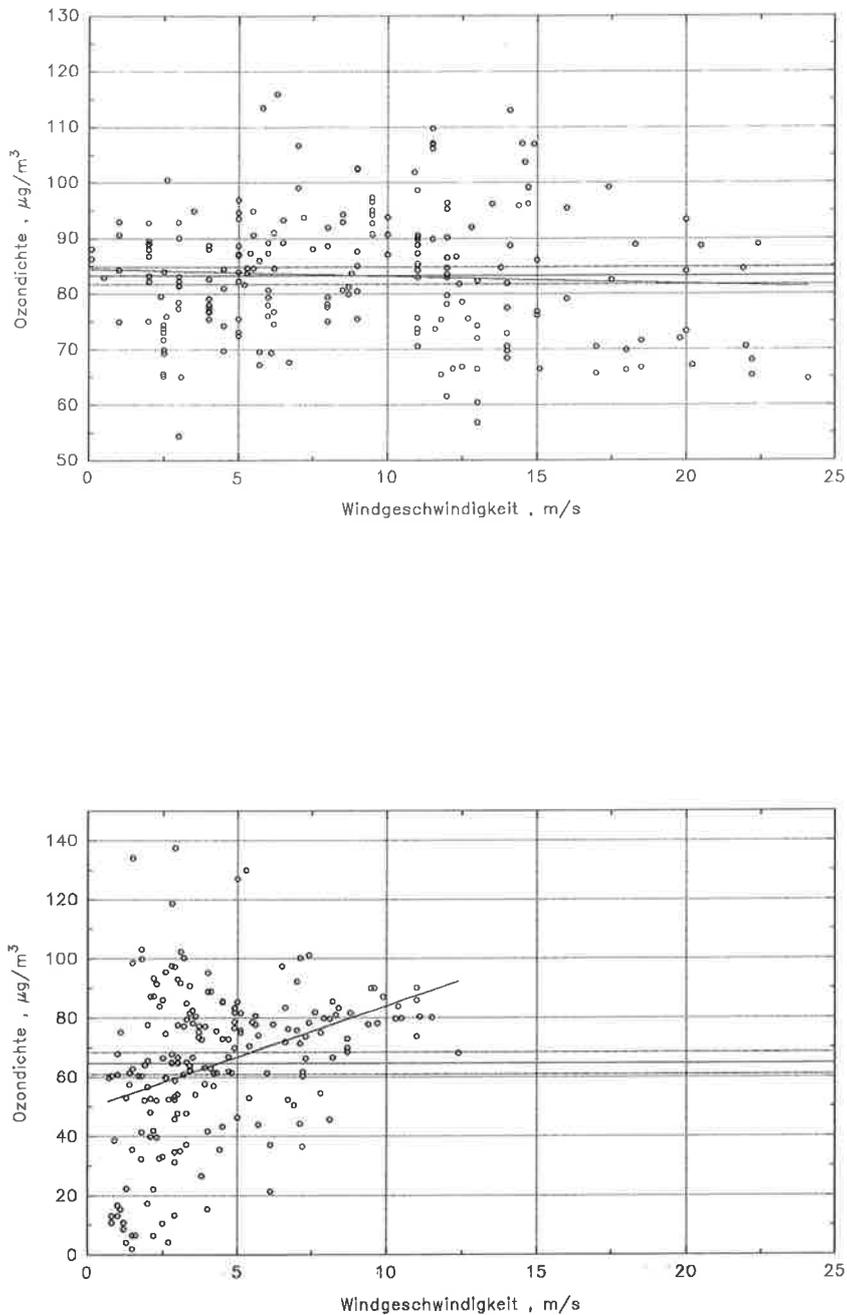


Abbildung 7.5: Abhängigkeit der Ozondichte von der Windgeschwindigkeit in der LFT (oben) und in Bodennähe (unten). Zusätzlich dargestellt ist die lineare Regression und der Mittelwert über alle Daten mit dem 95% Konfidenzintervall.

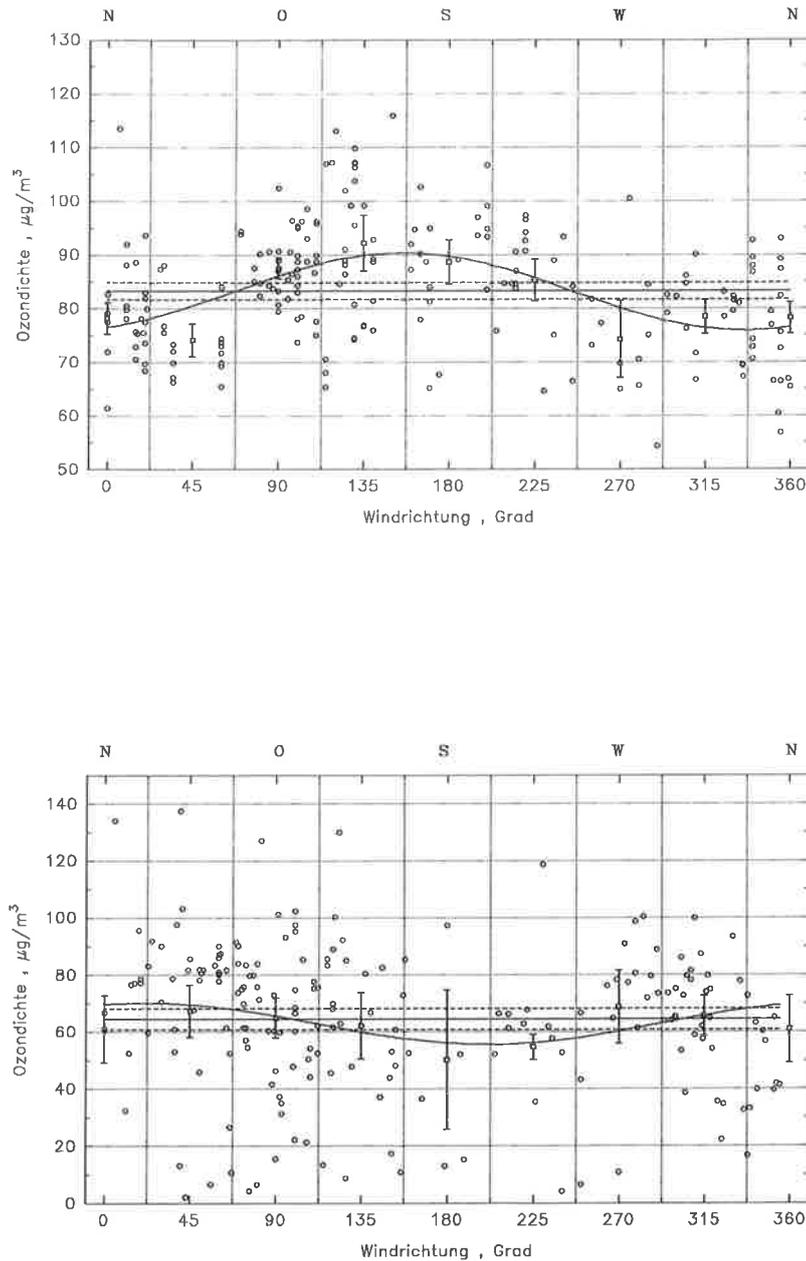


Abbildung 7.6: Abhängigkeit der Ozondichte von der Windrichtung in der LFT (oben) und in Bodennähe (unten). Zusätzlich dargestellt ist die angepaßte Kosinus Funktion und der Mittelwert über alle Daten mit dem 95% Konfidenzintervall. Darüberhinaus sind die Konfidenzintervalle um die 45 Grad Mittelwerte angegeben.

7.3.2.1 Korrelation Temperatur – Ozondichte

In Abbildung (7.3) oben ist die Abhängigkeit der Ozondichte von der Temperatur in der LFT dargestellt. Die positive Korrelation zwischen Temperatur und Ozondichte ist nur schwach ausgeprägt, was sich in dem Korrelationskoeffizienten ψ von 0.40 widerspiegelt. Die lineare Regression hat einen Offset η_1 von $85.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und eine Steigung η_2 von $0.68 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot ^\circ\text{C}$. Zusätzlich zur linearen Regression sind die Konfidenzintervalle des Mittelwertes auf dem 95% Niveau eingezeichnet. Der Wert von Φ beträgt 0.08, womit eine Reduzierung der Standardabweichung der Residuen durch lineare Regression um 8% erzielt wurde. Da σ_r innerhalb des Intervalls Δ_d um σ_d liegt, ist diese Verminderung nicht signifikant.

In Abbildung (7.3) unten sind im Vergleich zu den Ergebnissen oben die Ozonwerte in Bodennähe gegen die Temperatur in Bodennähe während einer Lidarmessung in der LFT dargestellt. Klar ersichtlich ist eine stärkere positive Korrelation zwischen Temperatur und Ozongehalt in Bodennähe als in der LFT. Dieses spiegelt sich im Korrelationskoeffizienten von $\psi = 0.58$ wider. Hier betragen η_1 $54.44 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und η_2 $1.95 \mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot ^\circ\text{C}$. Die deutlich stärkere Verminderung von σ_r um 19% ist signifikant.

Bei sommerlichen Hochdruckwetterlagen steigt die Temperatur durch starke Sonneneinstrahlung rasch an. Unter diesen Bedingungen steigt die Ozondichte in Bodennähe ebenfalls an. Im Winter, bei niedrigen Temperaturen und Strahlungswerten, liegen auch nur moderate Ozonwerte in Bodennähe vor. Die Ozonwerte in der LFT zeigen diesen Effekt in abgeschwächter Form.

7.3.2.2 Korrelation relative Feuchte – Ozondichte

Abbildung (7.4) zeigt die Abhängigkeit der Ozondichte von der relativen Feuchte. Der Korrelationskoeffizient ψ ist mit -0.20 in der LFT schwächer als am Boden mit -0.59. Die statistischen Untersuchungen sind analog zur Temperatur durchgeführt. Die Werte von η_1 betragen in der LFT 87.62 und am Boden $123.60 \mu\text{g}/\text{m}^3$, η_2 ist $-0.10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der LFT und $-0.87 \mu\text{g}/\text{m}^3$ am Boden. Die relative Feuchte wird dabei in Prozent angegeben.

Während am Boden 19% Reduzierung der Standardabweichung durch lineare Regression erreicht wird, sind es in der LFT nur 2%. Die nur geringe negative Steigung der Regressionsgeraden in der LFT indiziert zudem die schwache Abhängigkeit der Ozondichte von der relativen Feuchte in größeren Höhen. Während dort keine signifikante Ver-

ringierung der Standardabweichung erreicht wurde, ist am Boden σ_r signifikant verringert.

7.3.2.3 Korrelation Windgeschwindigkeit – Ozondichte

Die Korrelation zwischen Ozon und Windgeschwindigkeit in der LFT zeigt nur einen geringen linearen Trend, was sich in Abbildung (7.5) oben und in den Koeffizienten η_1 mit $84.51 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und η_2 von $-0.13 \mu\text{g} \cdot \text{s}/\text{m}^4$ zeigt. Der Korrelationskoeffizient beträgt -0.06 . Die Tatsache, daß die Ozondichte in der LFT kaum von der Windgeschwindigkeit abhängt, zeigt auch der Wert von Φ . Die Standardabweichung kann durch lineare Regression nicht gesenkt werden.

Anders jedoch ist das Verhältnis zwischen Ozon in Bodennähe und der dortigen Windgeschwindigkeit. Eine positive Korrelation ist in Abbildung (7.5) unten auszumachen, wiedergegeben durch die Werte von η_1 mit $49.51 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und η_2 von $3.45 \mu\text{g} \cdot \text{s}/\text{m}^4$ mit einem Korrelationskoeffizienten von $\psi = 0.35$. Die nächtlichen windschwachen Verhältnisse in Bodennähe mit gleichzeitigem Abbau des Ozons dort sind für die niedrigen Ozondichten verantwortlich. Aber auch Ozonepisoden sind durch windschwache Wetterlagen gekennzeichnet. Bis hin zu moderaten Windgeschwindigkeiten von 6 m/s streuen die Meßwerte deshalb sehr stark. Dieses macht den Hauptteil der Datenpunkte aus. Die große Streuung bewirkt, daß die Standardabweichung nur 6% und somit ebenso wie in der LFT nicht signifikant durch lineare Regression reduziert werden kann.

7.3.2.4 Korrelation Windrichtung – Ozondichte

Hinsichtlich der Windrichtung ist zu erwarten, daß stärker belastete Luft aus dem Raum Hamburg von Südost herangeführt wird, während die westlichen Winde weniger belastete Luft von der Nordsee an den Meßort transportieren. Im Bereich westlicher Winde über nördliche bis hin zu nordöstlichen Winden sind aufgrund überwiegend ruraler Landnutzung in diesem Sektor erniedrigte Werte in der Ozondichte zu erwarten.

In Abbildung (7.6) oben sind erhöhte Ozonwerte in der LFT für südöstliche Winde auszumachen. Da die Windrichtung periodisch ist, kann keine lineare Regression gebildet werden, sondern es wurde in diesem Falle - ähnlich wie beim Jahresgang der Ozondichte - eine Kosinus Funktion angepaßt. Die Windrichtung wird in rad angegeben. Am Boden streuen die Ozonwerte stark mit der Windrichtung. Die Kosinus Funktion zeigt bei südöstlichen Winden eine minimale Ozondichte im Gegensatz zur Ozondichte in der LFT bei dieser Windrichtung. Die nur kleine Amplitude der Kosinus Funktion spiegelt sich im

Wert von Φ wieder, der in der LFT 0.12 und am Boden 0.01 beträgt. Die Korrelationskoeffizienten betragen -0.47 in der LFT und 0.02 für die Korrelation zwischen Windrichtung und Ozon am Boden. Um zu prüfen, wie gut die Kosinus Funktion bzw. der Mittelwert über alle Daten bei bestimmten Windrichtungen die Ozondichte vorhersagt, wurden die arithmetischen Mittelwerte und deren Konfidenzintervalle in 45° Schritten berechnet und miteinander verglichen. Die angepaßte Kosinus Funktion überlappt in der LFT in 7 und am Boden in 8 von 8 Fällen mit den Konfidenzbereichen der 45° Grad Mittelwerte, während der Mittelwert über alle Daten dieses 3 mal in der LFT und 7 mal am Boden erfüllt. Beide Verringerungen der Standardabweichung sind nicht signifikant.

7.4 Einfluß der Großwetterlage auf die Ozondichte

Großwetterlagen charakterisieren eine Luftmasse aufgrund ihres Ursprungs und aufgrund ihres Weges, den sie zurückgelegt haben, bevor sie den Beobachtungsort erreichen. Bei der Korrelation zwischen einer GWL und der Ozondichte werden nicht nur ein, sondern mehrere Parameter in Betracht gezogen, die auf den Ozongehalt der Luftmasse einwirken.

7.4.1 Methodik

Die Einteilung der Luftmassen geschieht nach ihrem Ursprung oder nach dem zurückgelegten Weg. Die Luftmassen sind entweder polaren Ursprungs oder es handelt sich um Tropikluft. Der Weg, den die Luftmasse zurücklegt, bevor sie den Beobachtungsort erreicht, ist entweder durch kontinentalen oder durch maritimen Einfluß stärker geprägt. Es entstehen aus diesen Einteilungen in kontinentale (*c*) bzw. maritime (*m*) Luftmassen und Polar- (*P*) oder Tropikluft (*T*) auch Mischformen für kontinentale Polarluft (*cP*), kontinentale Tropikluft (*cT*), maritime Polarluft (*mP*) und maritime Tropikluft (*mT*) (nach Scherhag (1948)).

Mit Hilfe dieser acht Einteilungen wird hier untersucht, ob eine dieser Einteilungen zu besonders hohen bzw. niedrigen Ozonwerten führt. Um jedem Meßtag eine Großwetterlage zuzuordnen, wurde auf die vom Deutschen Wetterdienst veröffentlichten Routinebeobachtungen zurückgegriffen. In monatlichen Abständen erscheint eine Tabelle (Die Großwetterlagen Europas), in der die GWL jedes Tages des Monats für drei Orte in Deutschland, Bremen, Karlsruhe und Potsdam, spezifiziert ist. Aufgrund der norddeutschen und maritim beeinflussten Lage Bremens wurde dieser Ort gewählt, um die GWL für den Meßort zu bestimmen. Bremen liegt ungefähr 120 km südöstlich von Itzehoe und ist nur ca. 70 km von der Nordseeküste entfernt. Eine Gleichsetzung von Bremen

und Itzehoe bezüglich der GWL ist somit sinnvoll.

Wie schon bei dem Vergleich mit einzelnen meteorologischen Parametern sind die Vergleiche aus der LFT auf 211 Datenpunkte gestützt, die Vergleiche in Bodennähe auf 201 Fälle. Aufgrund der Vergleichbarkeit der Datensätze sind die Bodenwerte wieder nur zu den Zeiten mit GWL in Verbindung gebracht, zu denen ein Meßprofil aus der LFT vorliegt, analog zu den bisher durchgeführten Vergleichen.

Da im Abschnitt (7.2) kein ausgeprägter Jahresgang in der LFT festgestellt werden konnte, wurde der Datensatz nicht weiter unterteilt, z.B. in Jahreszeiten. Dieses hätte zudem zur Folge, daß die Kategorien der einzelnen GWL mit teilweise sehr wenig Werten besetzt wären und somit die Statistik verschlechtert würde.

Der Parameter σ_r einer GWL innerhalb der Meßreihen läßt sich in Anlehnung an Sachs (1974) berechnen durch:

$$\sigma_{r_{GWL}} \left[\frac{\mu g}{m^3} \right] = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^k \sigma_i^2 \left[\frac{\mu g}{m^3} \right]^2 \cdot (n_i - 1)}{n_{ges} - k}}, \quad (7.4)$$

wobei k für die Anzahl der jeweils betrachteten Unterscheidung in GWL steht. Die Gesamtzahl der Messungen n_{ges} ist in der LFT 211 und am Boden 201. Auhand dieses Wertes wird wie oben die Signifikanz der Verringerung der Standardabweichung geprüft. In Gleichung (7.3) wird für die Standardabweichung der Residuen $\sigma_{r_{GWL}}$ eingesetzt.

7.4.2 Ergebnisse

Mit den oben genannten Einteilungen wurden mehr als doppelt so viele Fälle mit kontinentalen als mit maritimen Luftmassen gemessen. Polarluft tritt im Vergleich zu Tropikluft fast vier mal so häufig auf, wie aus Tabelle (7.4) zu entnehmen ist. Während maritimer Tropikluft existieren nur vier Messungen in der LFT.

Stark streuende Werte, insbesondere in Bodennähe, rufen große Werte von σ_r bei allen GWL hervor. Zusätzlich zu den mittleren Ozondichten sind die Parameter σ_r , σ_d , Δ_d und Φ für jede GWL in Tabelle (7.4) eingetragen. Durch die Unterteilung in kontinentale und maritime Luftmassen erhöht sich die Standardabweichung der Residuen in Bodennähe im Vergleich zur Standardabweichung der Einzelwerte vom Mittelwert sogar leicht. Diese Erhöhung kann auftreten, wenn die Summe der Abstandsquadrate nicht verkleinert wird, sich aber die Anzahl der Freiheitsgrade k vergrößert, so daß der Nenner in Gleichung

	c	m	P	T	cP	mP	cT	mT
$n_{i,LFT}$	145	66	168	43	106	62	39	4
$n_{i,Bod}$	138	63	159	42	100	59	38	4
$\overline{O_{3,LFT}} [\frac{\mu g}{m^3}]$	86	77	82	88	86	76	88	88
$\overline{O_{3,Bod}} [\frac{\mu g}{m^3}]$	66	62	62	72	63	62	74	55
$\sigma_{r_{GWL,LFT}} [\frac{\mu g}{m^3}]$	10.56		11.18		10.43			
$\sigma_{d,LFT} [\frac{\mu g}{m^3}]$	11.45							
$\Delta_{d,LFT} [\frac{\mu g}{m^3}]$	1.55							
Φ_{LFT}	0.08		0.02		0.09			
$\sigma_{r_{GWL,Bod}} [\frac{\mu g}{m^3}]$	26.35		26.10		26.10			
$\sigma_{d,Bod} [\frac{\mu g}{m^3}]$	26.34							
$\Delta_{d,Bod} [\frac{\mu g}{m^3}]$	3.66							
Φ_{Bod}	0.00		0.01		0.01			

Tabelle 7.4: Vergleichende Statistik der Großwetterlagen mit der Ozondichte in der LFT und in Bodennähe (Bod): n_i = Anzahl der Messungen, $\overline{O_3}$ = Mittelwert der Ozondichte, $\sigma_{r_{GWL}}$ = Standardabweichung der Residuen bei einer Unterteilung in GWL, σ_d = Standardabweichung der Einzelwerte vom Mittelwert über alle Daten, Δ_d = Konfidenzintervall zu σ_d und Φ = Parameter der Reduzierung der Standardabweichung der Werte bei einer GWL zu Standardabweichung der Werte über alle Messungen.

(7.4) kleiner wird. Am stärksten reduziert wird $\sigma_{r_{GWL}}$ in der LFT bei der Unterteilung in die vier Mischformen der GWL. Hier wird eine Verringerung der Standardabweichung um 9% erreicht. Aufgrund der Tatsache, daß sowohl in der LFT als auch am Boden keiner der Werte von $\sigma_{r_{GWL}}$ kleiner ist als der entsprechende Wert von σ_d vermindert um Δ_d , ergibt sich, daß auch bei komplexeren Annahmen wie einer GWL keine signifikante Verbesserung der Standardabweichungen erreicht werden kann.

Die Einzel- und Mittelwerte der Ozondichte bei verschiedenen GWL sind in Abbildung (7.7) dargestellt. Die Mittelwerte einer GWL liegen sowohl in der LFT (Abb.(7.7) oben) als auch in Bodennähe (Abb.(7.7) unten) dicht am Mittelwert über alle Messungen. Am stärksten weichen die Mittelwerte einer GWL in der LFT mit $5 \mu g/m^3$ (6%) bei Tropikluft, cT und mT gegenüber dem Mittelwert über alle Messungen in der LFT nach oben ab. Im Falle von maritimen Luftmassen und bei mP liegen die Werte um 6 bzw. $7 \mu g/m^3$ (7 bzw. 8%) niedriger als der Mittelwert. In Bodennähe liegen die größten Abweichungen vom Mittelwert über alle Daten bei cT mit $9 \mu g/m^3$ (14%) höherer Ozondichte und bei mT mit um $10 \mu g/m^3$ (15%) niedriger als im Mittel vor.

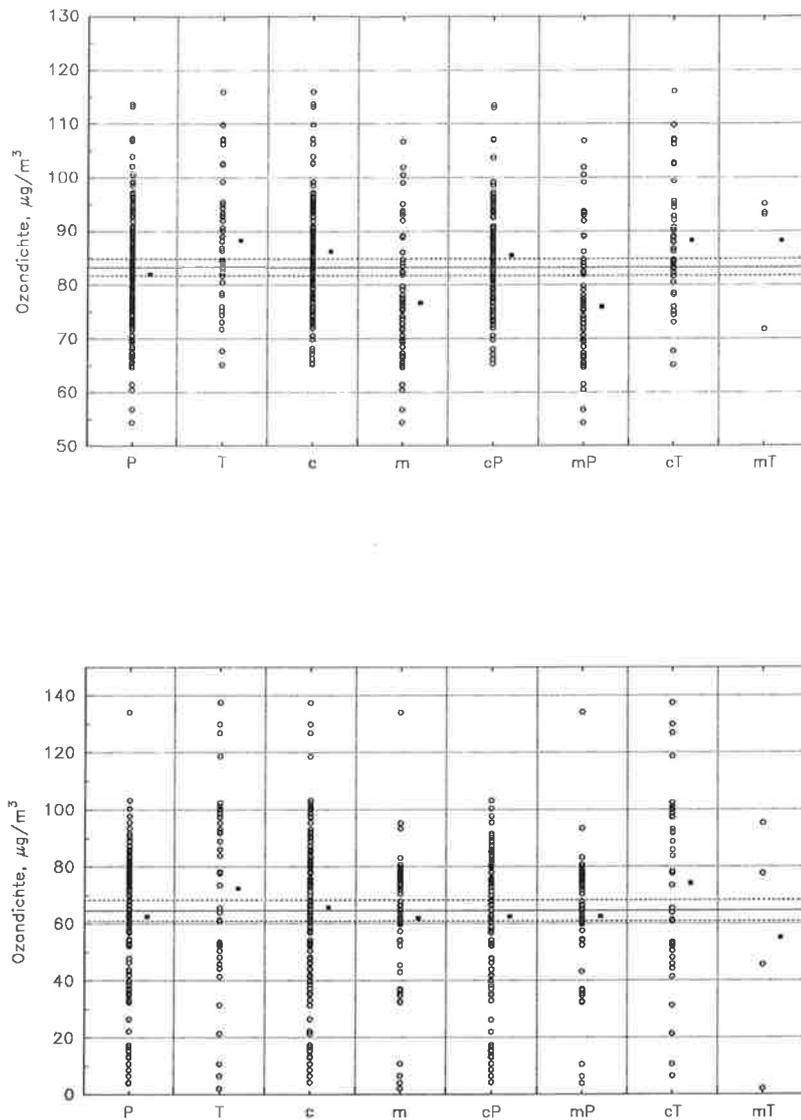


Abbildung 7.7: Ozondichten bei verschiedenen GWL in der LFT (oben) und in Bodennähe (unten). Rechts von den Einzelmessungen ist der Mittelwert über die GWL durch ein Quadrat wiedergegeben.

7.5 Fehlerdiskussion

Bedingt durch die variable Meßhöhe in der LFT von 1100 bis 2400 m, muß die Vergleichbarkeit der Ozonmeßwerte untersucht werden. Die Annahme gilt, wenn erstens keine systematische Zu- oder Abnahme der Ozondichte mit der Höhe erkennbar ist, solange in der LFT gemessen wurde und zweitens kein Jahresgang in der Meßhöhe vorliegt. Die Meßhöhen sind über das Jahr gleichverteilt, also kann nach dem bisherigen Schema verfahren werden.

Durch die freie ungestörte Lage des meteorologischen Mastes an der Meßstation sind die meteorologischen Parameter in Bodennähe repräsentativ. Für die meteorologischen Parameter in der LFT kann sich nur durch horizontale Inhomogenitäten ein möglicher Fehler ergeben. Vertikale Inhomogenitäten sind sehr gering, da der Bodeneinfluß in diesem Bereich der Atmosphäre sehr klein ist. Mögliche Temperaturinversionen in Bodennähe spielen in der LFT keine Rolle mehr. Bezüglich der relativen Feuchte können lokal begrenzte Feuchteschichten in der LFT auftreten. Diese Feuchteschichten könnten zu einem erheblichen Fehler in der Korrelation zwischen Feuchte und Ozon führen, da die gemessene Ozondichte mit einer falschen relativen Feuchte in Bezug gebracht wird. Da solche Schichten hoher relativer Feuchte durch starke Aerosolrückstreuung gekennzeichnet sind und diese Schichten ausgeschlossen bleiben, sollte diese Fehlerquelle klein sein. Windrichtung und -geschwindigkeit in der LFT sind ebenso wie alle anderen meteorologischen Parameter nur im Falle eines Frontdurchganges an den verglichenen Stationen deutlich voneinander abweichend. Da aber bei Frontdurchgängen keine Meßbedingungen für die freie Troposphäre vorliegen, kann diese Fehlerquelle ebenso vernachlässigt werden. Auch eine Messung kurz vor Frontdurchgängen, die fehlerhaft zu dieser Statistik beitragen könnte, kann ausgeschlossen werden, da die Frontensysteme sich im allgemeinen von Westen her annähern, die Radiosondenstation Kiel sich aber nordöstlich des Meßortes befindet. Somit sind Lidarmessungen in der LFT unmöglich, bevor die Front den Aufstiegsort Kiel erreicht hat. Schleswig und Bergen-Hohne werden durch ihre nördliche bzw. südliche Lage zum Lidarstandort etwa gleichzeitig wie dieser von einer von Westen herannahenden Front erreicht.

7.6 Zusammenfassung

Die Statistik der Ozondichte in der LFT zeigt keinen stark ausgeprägten Jahresgang. Dieses Ergebnis stimmt mit anderen europäischen Stationen überein, ebenso wie die

Werte der monatlichen Mittel. Demnach ist in Europa in der freien Troposphäre ein hoher Hintergrund an Ozon von im Mittel etwa $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Auch wenn das Lidar bei niedriger Bewölkung nur in der Lage ist, bei einer zumindest durchbrochenen Wolken-
decke zu messen, so stammen dennoch die Daten der freien Troposphäre nicht nur von Ozonepisoden. Auch auf der Rückseite von Kaltfronten wurden Messungen durchgeführt. Aufgelockerte Bewölkung zu diesen Zeitpunkten machten mehrere Messungen möglich. Zu diesen Zeiten ist z.B. die minimale Ozondichte von $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der freien Troposphäre gemessen worden.

Die Frage, ob ein einzelner meteorologischer Parameter für erhöhte Ozondichten in der LFT Hauptverursacher ist, kann verneint werden. Die Ergebnisse der linearen Regressionen und die Korrelationskoeffizienten zeigen keinen Hinweis darauf. Aufgrund linearer Regression mit der Temperatur in diesem Höhenbereich der Atmosphäre kann die Standardabweichung der Residuen im Vergleich zur Standardabweichung vom Mittelwert des Ozons in der LFT um nur 8 % verringert werden. Bei anderen meteorologischen Parametern, die aus Radiosondenaufstiegen hervorgehen, wie der relativen Feuchte oder der Windgeschwindigkeit, liegt die Standardabweichung der Residuen nur um 2 % niedriger oder auf gleichem Wert wie die Standardabweichung vom Mittelwert. Das bedeutet, daß diese meteorologischen Parameter keinen wesentlichen Einfluß auf die Ozondichte haben.

Hinsichtlich der Windrichtung ist in der LFT bei östlichen, südlichen und südwestlichen Winden mit erhöhten Ozonwerten zu rechnen, während bei westlichen und nördlichen Windrichtungen niedrigere Ozondichten resultieren. Hier konnte die Standardabweichung der Residuen durch das Anpassen einer Kosinus Funktion um 12 % reduziert werden. Dennoch ist keine dieser Verminderungen signifikant.

In Bodennähe ist auch keine erhöhte Ozondichte bei östlichen und südlichen Winden auszumachen, bei süd- bis südwestlichen Winden gibt es sogar leicht erniedrigte Ozonwerte. Der Einfluß der Temperatur und der relativen Feuchte ist in Bodennähe erheblich stärker als in der LFT. Die Standardabweichung der Residuen bei linearer Regression ist bei beiden Parametern 19 % niedriger als die Standardabweichung vom Mittelwert und darüberhinaus signifikant, jedoch nicht bei Windgeschwindigkeit und Windrichtung.

Durch differenziertere Annahmen, wie die Unterteilung in Großwetterlagen, ist ebenfalls keine bedeutend höhere oder niedrigere Ozondichte als im Mittel über alle Wetterlagen zu finden. Bei tropischen Luftmassen sind die Mittelwerte um 6 % in der LFT erhöht, bei maritimen Luftmassen sind sie bis zu 8 % erniedrigt. In Bodennähe ist bei

kontinentaler Tropikluft 14 % mehr, bei maritimer Tropikluft ist 15 % weniger Ozon als im Mittel über alle Messungen vorhanden. Aufgrund der starken Streuung der Daten, insbesondere in Bodennähe, ist jedoch keine Standardabweichung signifikant verringert worden.

Abschließend ist zu bemerken, daß eine höhere Datendichte diese Statistik besser absichern würde. Für den Jahresgang bedarf es weiterer Messungen hauptsächlich in den Sommermonaten, besonders bei Tropikluft. Durch den Einsatz von Deuterium bei Lidarmessungen wird in Zukunft auch bei hochreichender PBL die LFT erreicht. Aufgrund der Tatsache, daß das Lidar seit nunmehr vier Jahren am gleichen Ort ist und mittelfristig dieser Standort beibehalten werden soll, kann in Zukunft auch ein möglicher Trend in den Ozonmessungen entdeckt werden.

Kapitel 8

Schlußbetrachtung und Ausblick

Die hier durchgeführte Arbeit besteht aus drei Teilen:

- einer Genauigkeitsuntersuchung der Messungen mit dem MPI-DIAL
- einer Ozonepisodenuntersuchung
- einer statistischen Untersuchung der Variation des Ozons in LFT und in Bodennähe.

Durch zahlreiche Vergleiche von DIAL-Messungen mit ECC-Sondenmessungen an freifliegenden Ballonen und Fesselballonen wurde festgestellt, daß das MPI-DIAL ein zuverlässiges und genaues Meßinstrument für troposphärische Ozonvertikalprofile ist. Eine mittlere Abweichung der Fesselsondenergebnisse von den Lidarergebnissen von nur $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (entsprechend 3.5 %) und von nur $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (entsprechend 4.1 %) bei Vergleichen mit freifliegenden Sonden zeigt, daß das MPI-DIAL für Ozonuntersuchungen eingesetzt werden kann.

Durch den Vergleich mit ECC-Sondenmessungen an Fesselballonen ist es gelungen, neben den mittleren Abweichungen und den Standardabweichungen der Meßwerte zueinander auch die Standardabweichung der einzelnen Meßzeitreihen zu ermitteln. Darüberhinaus wurde in einem gemeinsamen Luftvolumen gemessen. Dieses ist eine weitere Bedingung für einen detaillierten Vergleich der Meßgeräte und ist ein Fortschritt für einen Systemvergleich, denn es gilt dabei, möglichst viele gemeinsame Parameter zu bestimmen.

Bisherige theoretische Überlegungen, daß Lidarmessungen durch ungenaue Kenntnis der Aerosolparameter fehlerbehaftet sein können, wurden bestätigt. Trotzdem wies z.B. eine am 8.6.94 zwischen 8:34 und 10:10 UT untersuchte Zeitreihe der aerosolkorrigierten

Lidardaten im Vergleich zu den Sondendaten eine nur ca. $1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ größere Standardabweichung auf, obwohl einzelne Minutenmittel der Lidardaten fehlerbehaftet waren.

Um das Problem der Aerosolkorrektur zu lösen, bedarf es der Kenntnis verschiedener Aerosolparameter, wie z.B. des Verhältnisses zwischen Extinktion und Rückstreuung oder der Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreuung der Aerosole. Die Aerosoleigenschaften können von Messung zu Messung lokal und temporär variieren. Durch Untersuchungen der Ozonprofile mit drei Wellenlängen kann die Unsicherheit der Kenntnis der Aerosolparameter verringert werden. Dieses Auswerteverfahren wird derzeit am MPI erprobt. Somit wären in Zukunft auch Interpretationen von Messungen an Schichtgrenzen der Atmosphäre mit deutlich reduziertem Fehler möglich.

Der Anstieg der Ozondichte während einer hier betrachteten Episode betrug $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (30 %) innerhalb von 60 Stunden in der PBL, während ein Anstieg von nur 3% innerhalb der ersten 24 Stunden in der LFT festgestellt wurde. Um den Anteil der Advektion quantifizieren zu können, bedarf es Messungen von Ozonvertikalprofilen zeitgleich an mehreren Orten. Dieses aber erfordert mindestens ein zweites Meßsystem, um gleichzeitig während Episoden messen zu können und somit mehr Aufschluß über die Advektion von Ozon zu erlangen. Hier konnte die Advektion lediglich qualitativ anhand von Rückwärts-trajektorien untersucht werden. Ozonsondenmessungen könnten bei der Untersuchung von Ozonepisoden unterstützend wirken, jedoch sind dazu Messungen mehrmals täglich notwendig und damit sowohl zeitlich als auch finanziell aufwendiger als DIAL-Messungen.

Anhand eines eindimensionalen Modells, welches Advektion aufgrund variabler Emissionen berücksichtigt, wurde gezeigt, daß Advektion ein nicht vernachlässigbarer Faktor bei einer Modellierung sein kann. Wurden variable Emissionen unberücksichtigt gelassen, ist der Vergleich bereits nach 36 Stunden gescheitert. Die Abweichungen zwischen Messung und Modell betragen dann gegen Ende der oben angegebenen dreitägigen Episode $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (ca. 30 %) und zeigen bei dieser Modellvariante keine Zunahme der Ozondichte während der Episode. Diese großen Abweichungen gingen einher mit der Advektion von Luft aus Süd bis Südost.

Im Vergleich zu Grenzschichtwerten deuten ungenau modellierte Bodenwerte auf lückenhafte Kenntnis der vertikalen Austauschkoefizienten in Bodennähe hin. Nachdem diese besser angepaßt worden sind, können komplexere Modelle, wie das dreidimensionale Modell der Universität zu Köln, in dieser Hinsicht getestet werden. Dieses Modell basiert auf dem eindimensionalen Modell. Somit sind grundsätzlich für beide Modelle die erzielten Ergebnisse wichtig. Besser modellierte Bodenwerte ermöglichen in Zukunft den

Aufbau eines Vorhersagenetzes für Ozonepisoden, um frühzeitig vor hohen Ozonwerten zu warnen und geeignete Maßnahmen zur Reduzierung der Vorläufergase zu treffen. Die feinmaschige Struktur des Meßnetzes der Bodendaten ist für eine genaue Initialisierung gut geeignet. Obwohl die Initialisierung eines Modells mit Bodendaten aufgrund kleinskaliger Variabilitäten der Ozondichte dort problematisch ist, sollte es in Zukunft Ziel sein, diese Werte möglichst genau zu modellieren, denn der Mensch atmet die Luft aus ca. 2 m Höhe und damit deren Schadstoffe ein.

Neben Tagesgängen sind auch Jahresgänge der Ozondichte mit einem Lidar meßbar, wie in der vorliegenden Arbeit gezeigt wurde. Dabei wurde festgestellt, daß kein stark ausgeprägter Jahresgang in der LFT vorhanden ist, was sich in dem minimalen Monatsmittel von ca. $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für arithmetisches und gewichtetes Monatsmittel im Dezember und dem maximalen Mittel von $108 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Mai widerspiegelt. Auch die gemessenen Spitzenwerte von minimal $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und maximal $116 \mu\text{g}/\text{m}^3$ belegen die geringe Variation der Ozondichte in der LFT. Die 211 erzielten Profile innerhalb von dreieinhalb Meßjahren zeigen, daß das Lidar auch für den Routineeinsatz geeignet ist. Obwohl eine Lidarmessung immer durch Bewölkung nach oben begrenzt ist, ist das Lidar eine gute Ergänzung für Routineuntersuchungen der Ozondichten zu den bislang standardmäßig benutzten Sonden. Hinsichtlich der Evaluierung eines Trends in den Jahresgängen, bedarf es allerdings noch mehrerer Meßjahre am gleichen Standort.

Die Korrelation zwischen Ozon und den meteorologischen Parametern Temperatur, relative Feuchte, Windrichtung und -geschwindigkeit sowohl in der LFT als auch in Bodennähe ergab, daß die Abhängigkeit von diesen Parametern in der LFT wesentlich geringer ist als in Bodennähe mit Ausnahme der Korrelation zwischen Windrichtung und Ozon. Nur am Boden konnte durch die Korrelation mit der Temperatur und der relativen Feuchte die Standardabweichung der Ozonwerte durch Anpassung einer linearen Regression signifikant verringert werden. Auch die Korrelation der Wetterlage mit der Ozondichte brachte keine signifikante Verringerung der Standardabweichung. Dieses zeigt, daß es sich hier um ein komplexes Zusammenspiel von sowohl meteorologischen als auch chemischen Prozessen handelt. Nur eine Berücksichtigung beider Prozesse kann, wie auch bei dem Modellvergleich deutlich wurde, die Variation der Ozondichte erklären.

Die Problematik der Luftbelastung durch hohe Ozonwerte ist nicht nur auf Episoden beschränkt, weil in der gesamten unteren Troposphäre eine hohe Grundbelastung an Ozon vorliegt. Die Vorläufergase für Ozon müssen deshalb weiträumig drastisch re-

duziert werden. Die Advektion kann zu einem dominierenden Faktor für die Ozonkonzentration in Bodennähe werden, so daß internationale Maßnahmen unumgänglich sind. Dieses hat ebenfalls der in der Zeit vom 23.6.-26.6.1994 durchgeführte Ozonversuch in Neckarsulm/Heilbronn gezeigt (Umweltministerium Baden-Württemberg (1995)). Selbstverständlich ist bei der wissenschaftlichen Begleitung eine interdisziplinäre Zusammenarbeit Voraussetzung. Ein wichtiges Teil des Puzzles ist in der vorliegenden Arbeit dadurch eingebracht worden, daß gemessene Vertikalprofile mit Modellergebnissen für eine Ozonepisode verglichen wurden.

Kapitel 9

Symbolverzeichnis

Lateinische Symbole

A	=	Fläche
c	=	Lichtgeschwindigkeit
c	=	kontinentale Luftmasse
cP	=	kontinentale Polarluft
cT	=	kontinentale Tropikluft
D	=	Kalendertag
dd	=	Windrichtung
e	=	Emissionsrate der Schadstoffe
E	=	Emissionsrate für interne Emissionen
f	=	Änderung der Konzentration durch chemische Prozesse
ff	=	Windgeschwindigkeit
i	=	Strom
k	=	Wellenlängenexponent
K	=	Systemkonstante
K_R	=	vertikaler Diffusionskoeffizient
m	=	Masse
m	=	maritime Luftmasse
mP	=	maritime Polarluft
mT	=	maritime Tropikluft
n	=	Anzahl

n_{LFT}	=	Anzahl der Messungen in der LFT
n_{Bod}	=	Anzahl der Messungen in Bodennähe
n_{ges}	=	Anzahl aller Messungen in der LFT (211) oder in Bodennähe (201)
N	=	Anzahldichte
O	=	Überlappung
p	=	Druck
P	=	Intensität des Lichtes
Q	=	Querempfindlichkeit von Gasen
S_r	=	Verhältnis Aerosol- zu Rayleighrückstreuung (Lidarverhältnis)
r	=	relative Feuchte
R	=	Entfernung
t	=	Zeit
T	=	Temperatur
v	=	Geschwindigkeit
V	=	Volumen

Griechische Symbole

α	=	Extinktionskoeffizient
β	=	Rückstreukoeffizient
δx	=	mittlere Abweichung
Δx	=	mittlere relative Abweichung
Δ	=	Differenz
Δ_d	=	Konfidenzintervall
η_1	=	Koeffizient
η_2	=	Koeffizient
η_3	=	Koeffizient
λ	=	Wellenlänge
σ	=	Absorptionsquerschnitt
σ_d	=	Standardabweichung der Daten

$\sigma_{\delta r}$	=	Standardabweichung der Differenzen
σ_{O_3}	=	Standardabweichung der Ozonmessung
σ_r	=	Standardabweichung der Residuen
ρ	=	Dichte
τ	=	Dauer des Laserpulses
Φ	=	Parameter der Reduzierung der Standardabweichung
ψ	=	Korrelationskoeffizient

Abkürzungen

DIAL	=	Differential Absorption Lidar
DWD	=	Deutscher Wetterdienst
ECC	=	Electrochemical Concentration Cell
EMEP	=	European Co-operative program for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants
EURAD	=	Europäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell
EUROTRAC	=	European Experiment on Transport and Transformation of Environmentally Relevant Trace Constituents in the Troposphere over Europe
LFT	=	unterer Teil der freien Troposphäre
Lidar	=	Light detecting and ranging
LSB	=	least significant Bit
MOL	=	Meteorologisches Observatorium Lindenberg
MPI	=	Max-Planck-Institut für Meteorologie Hamburg
PBL	=	Planetare Grenzschicht
PC	=	Personal Computer
PC-CORA	=	Datenmpfangs- und Aufbereitungssystem
RL	=	Restschicht
SBL	=	Stabile (nächtliche) Grenzschicht
TESLAS	=	Tropospheric Environmental Studies by Laser Sounding

TOR	=	Tropospheric Ozone Research
TRACT	=	Transport of Air Pollutants over Complex Terrain
TROLIX	=	Tropospheric Lidar Experiment
UT	=	Universal Time
VOC	=	Volatile organic compounds

Abbildungsverzeichnis

2.1	Das DIAL-Prinzip	6
2.2	Die Ozonabsorptionsquerschnitte der Hartley-Huggins-Bande	8
3.1	Schematischer Aufbau des Ozon-DIAL	15
3.2	Schichtung der Atmosphäre	18
3.3	Umland des Meßstandortes	21
4.1	Signale und logarithmierte höhenkorrigierte Signale	24
4.2	Profile des Aerosolrückstreuoeffizienten und des Rayleighrückstreuoeffizienten für 313 nm	28
4.3	Ozondichte berechnet mit dem Wellenlängenpaar 277/313 nm	30
5.1	Startplatz der Fesselsonde	34
5.2	ECC-Sonde Typ 'Vaisala ECC5A'	35
5.3	Satellitenbild 8.Juni.94, 5:51 UT	42
5.4	Vergleich Lidar / Fesselsonde 8.Juni 1994, 3:32 - 4:21 UT	44
5.5	Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 8.Juni 1994, 3:32 - 4:21 UT	44
5.6	Vergleich Lidar / Fesselsonde 8.Juni 1994, 8:34 - 10:10 UT	45
5.7	Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Messung vom 8.Juni 1994, 8:34 - 10:10 UT	45
5.8	Vergleich Lidar / Fesselsonde 8.Juni 1994, 14:04 - 15:01 UT	47
5.9	Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 8.Juni 1994, 14:04 - 15:01 UT	47
5.10	Satellitenbild 14.Juni 94, 14:32 UT	49
5.11	Vergleich Lidar / Fesselsonde 14.Juni 1994, 14:44 - 15:19 UT	51
5.12	Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 14.Juni 1994, 14:44 - 15:19 UT	51
5.13	Vergleich Lidar / Fesselsonde 14.Juni 1994, 19:22 - 19:45 UT	52

5.14	Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 14.Juni 1994, 19:00 - 20:00 UT	52
5.15	Satellitenbild 20.Juni 94, 14:58 UT	54
5.16	Vergleich Lidar / Fesselsonde 20.Juni 1994, 15:30 - 16:00 UT	56
5.17	Nach der Höhe abgeleitetes höhenkorrigiertes Signal der Lidarmessung vom 20.Juni 1994, 15:30 - 16:00 UT	56
5.18	Vergleich Lidar / freifliegende Sonde an verschiedenen Tagen	61
5.19	Vergleich Lidar / freifliegende Sonde 8.Juni 1994 16:44 UT	62
5.20	Vergleich Lidar / freifliegende Sonde 18.Juni 1994 5:00 UT	64
5.21	Vergleich Lidar / freifliegende Sonde 20.Juni 1994 10:49 UT	65
5.22	Vergleich Lidar / freifliegende Sonde 21.Juni 1994 4:52 UT	66
5.23	Spektrale Varianzdichte der Messungen 8.Juni 1994 3:32-4:21 UT	69
5.24	Spektrale Varianzdichte der Messungen 8.Juni 1994 8:34-10:10 UT	69
5.25	Spektrale Varianzdichte der Messungen 8.Juni 1994 14:04-15:01 UT	70
5.26	Spektrale Varianzdichte der Messungen 14.Juni 1994 14:44-15:19 UT	70
6.1	Ozonprofile während der Episode 8.6.1993 - 11.6.1993	77
6.2	Rückwärtstrajektorien vom 8.6.93 00:00 UT bis 18:00 UT	83
6.3	Rückwärtstrajektorien vom 9.6.93 00:00 UT bis 18:00 UT	84
6.4	Rückwärtstrajektorien vom 9.6.93 00:00 UT bis 18:00 UT	85
6.5	Temperaturprofile der Radiosondenaufstiege	91
6.6	Ergebnisse der Initialisierung des Modells	93
6.7	Vergleich zwischen Messung und Modell	96
7.1	Jahresgang der Ozondichte in der LFT	107
7.2	Jahresgang der Ozondichte in Bodennähe	109
7.3	Abhängigkeit der Ozondichte von der Temperatur	113
7.4	Abhängigkeit der Ozondichte von der relativen Feuchte	114
7.5	Abhängigkeit der Ozondichte von der Windgeschwindigkeit	115
7.6	Abhängigkeit der Ozondichte von der Windrichtung	116
7.7	Ozondichten bei verschiedenen GWL	122

Tabellenverzeichnis

3.1	Systemdaten	16
3.2	Meßspezifikationen der meteorologischen Parameter	20
4.1	Empfindlichkeit der Aerosolkorrektur	29
5.1	Vergleichende Statistik zwischen Lidardaten und Fesselsondendaten	40
5.2	Vergleichende Statistik zwischen Lidardaten und Daten der freifliegenden Sonden	60
6.1	Mittlere Höhen der Modellschichten	87
7.1	Statistik des Jahresganges in LFT und am Boden	108
7.2	Statistik der linearen Regression	112
7.3	Statistik der angepaßten Kosinus Funktion für die Windrichtung	112
7.4	Vergleichende Statistik der Großwetterlagen	121

Ansyco (1991) Ansyco GmbH:

Bedienungsanleitung Ozonanalysator Modell O₃41M Ansyco GmbH, Ostring 4, Karlsruhe.

Beekmann et al. (1994a) M. Beekmann, G. Ancellet, G. Mégie, H.G.J. Smit and D. Kley:

Intercomparison Campaign of Vertical Ozone Profiles Including Electrochemical Sondes of ECC and Brewer-Mast Type and a Ground Based UV-Differential Absorption Lidar
Journal of Atm. Chem., Vol. 19, 1994, 259 - 288

Beekmann et al. (1994b) M. Beekmann, G. Ancellet und C. Mancier:

Tropospheric Ozone Monitoring at the Observatoire de Haute Provence
Proceedings of EUROTRAC Symposium 1994, SPB Academic Publishing

Bösenberg et al. (1993) J. Bösenberg, G. Ancellet, A. Apituley, H. Bergwerff, G. v.Cossart, H. Edner, J. Fiedler, B. Galle, C. de Jonge, J. Mellqvist, V. Mitev, T. Schaberl, G. Sonnemann, J. Spakman, D. Swaart, E. Wallinder:

Tropospheric Ozone Lidar Intercomparison Experiment, TROLIX '91:

Field Phase Report

Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, Report No. 102 (1993)

Bösenberg und Theopold (1988) J. Bösenberg and F.A. Theopold:

Evaluation of DIAL measurements in the presence of signal noise

Proc. 14th Int. Laser Radar Conf., San Candido, Italy, 209 - 211

Blonsky et. al (1994) S. Blonsky, H. Kunz und P. Speth:

Tropopause Foldings over Central Europe

Proceedings of EUROTRAC Symposium 1994, SPB Academic Publishing

Browell et al. (1985) E.V. Browell, S. Ismail and S.T. Shipley:

Ultraviolet DIAL measurements of O₃ profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols

Applied Optics Vol. 24 Nr. 17, 1985, 2827 - 2836

Bruckmann und Langensiepen (1981) P. Bruckmann und E.W. Langensiepen:

Studies on the correlation between ozone concentration and meteorological parameters in the Rhine-Ruhr area

- Staub - Reinhalt. Luft (1981), 41(3), 79-85
- Cann et al. (1984)** M.W.P. Cann, J.B. Shin and R.W. Nicholls:
Oxygen Absorption in the Spectral Range 180-300 nm for Temperatures to 3000 K and Pressures to 50 atm.
Can. J. Phys., No. 62, 1738 - 1751 (1984)
- Chameides (1978)** W.L. Chameides:
The Photochemical Role of Tropospheric Nitrogen Oxides
Geophys. Research Letters, Vol.5, 1978, 17-20
- Collis und Russell (1976)** R. T. H. Collis und P. B. Russell:
Lidarmessung von Partikeln und Gasen durch elastische Backstreuung und differentielle Absorption
in: E.D. Hinkley: „Topics in applied physics 14, Laser monitoring of the atmosphere“, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg 1976
- Daumont, et al. (1992)** D. Daumont, J. Brion, J. Charbonnier und J. Malicet:
Ozone UV Spectroscopy I: Absorption cross sections at room temperature
J. Atm. Chem. 15, 145-155
- Deepak und Gerber (1983)** A. Deepak und H.E. Gerber (Eds):
Report on the experts meeting on aerosols and their climatic effects.
Williamsburg, Virginia, 28-30 March 1983, WCP-55, WMO.
- DWD (1983)** Deutscher Wetterdienst:
Betriebshandbuch des Aerologischen Dienstes im Deutschen Wetterdienst, VuB-9
- Elterman (1968)** L. Elterman:
UV, Visible and IR Attenuation for Altitudes to 50 km
Environmental Research Papers, No. 285, AFCRL-68-0153, Bedford, Mass.
- Feister (1983)** U. Feister:
Vertical Ozone Profiles determined from Satellite METEOR Spectrometer Measurements,
Zeitschrift für Meteorologie, Vol. 33, 1983, 197-217

- Feister et. al (1989)** U. Feister, K.-H. Grasnick und G. Jakobi:
Surface Ozone and Solar Radiation
Ozone in the Atmosphere
Proc. of the Quadr. Ozone Symposium 1988 and Tropospheric Ozone Workshop, S.441
- Fernald (1984)** F.G. Fernald:
Analysis of Atmospheric Lidar Observations: some Comments.
Appl Optics, Vol. 23, 1984, 652-653
- Gast (1991)** E. Gast:
Messung des Linearitätsverhaltens von Photomultipliern und Untersuchung der zeitabhängigen Nachwirkungen kurzer hoher Lichtimpulse
Diplomarbeit am Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg, 1991
- Goers (1994)** U. Goers:
Laserfernmessung von Schwefeldioxid und Ozon in der unteren Troposphäre mit Hilfe der differentiellen Absorption und Streuung unter den Bedingungen des mobilen Einsatzes und der besonderen Berücksichtigung des Einflusses von Grenzschichtaerosolen
Dissertation an der Universität Hamburg, 1994.
- Görsdorf und Beyrich (1995)** U. Görsdorf and F. Beyrich:
Fesselballonmessungen mit dem System TMT-4A der Fa. AIR.
Abteilung Forschung: Arbeitsergebnisse Nr. 26.
- Grabbe et al. (1994)** G.C. Grabbe, J. Bösenberg und T. Schaberl:
Ozone distribution in the lower troposphere investigated with the MPI Ozone DIAL
EUROTRAC Annual Report 1993, Subprojekt TOR
- Güsten et al. (1995)** H. Güsten, G. Heinrich, E. Mönnich und D. Sprung:
Vertical Profiles of Ozone in the upper Rhine Valley during TRACT'92
EUROTRAC Annual Report 1995, Subprojekt TRACT
- Hass (1991)** H. Hass:
Description of the EURAD Chemistry-Transport-Model Version 2 (CTM2)
Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln,
1991

Hessisches Landesamt für Umweltschutz (1994) Hessisches Landesamt für Umweltschutz:
Richtlinie zur Ozonsmogverordnung vom 1.5.94

Heupel (1993) M. Heupel:

Bedeutung verschiedener Kohlenwasserstoffe für die Ozonbildung im EURAD-Gasphasenmechanismus

Diplomarbeit an der Universität zu Köln, 1993

Kanbour et al. (1987) F.I. Kanbour, S.Y. Faiq, F.A. Al-Taie, A.M.N. Kitto und N. Bader:

Variation of ozone concentrations in the ambient air of Baghdad

Atmos. Environ. (1987), 21(12), 2673-9

Kempfer (1992) U. Kempfer:

Entwicklung und Anwendung eines differentiellen Absorptions-LIDAR-Systems zur Messung der troposphärischen Ozonkonzentration

Dissertation an der Universität München, 1992.

Kempfer et al. (1994) U. Kempfer, W. Carnuth, R. Lotz and T. Trickl:

A wide-range ultraviolet lidar system for tropospheric ozone measurements: Development and application

Rev.Sci.Instrum. No.65 (10), 1994, 3145 - 3164

Komhyr (1969) W.D. Komhyr:

Electrochemical Concentration Cells for Gas Analysis

Annales de Géophysique, Vol.25, 203-210 (1969)

Komhyr et. al (1995) W.D. Komhyr, B.J. Connor und J.J. Margitan:

Electrochemical concentration cell ozonesonde performance evaluation during STOIC 1989

J. of Geophysical Research, Vol. 100 Nr.5, S.9231

Malicet et al. (1992) J. Malicet, D. Daumont, J. Brion und J. Charbonnier:

Ozone UV spectroscopy I: absorption cross-sections at room temperature

Journal of Atmospheric Chemistry 15, 1992, S. 145-155

Mc Keen (1989) S. McKeen, D. Kley und A. Volz-Thomas:

The Historical Trend of Tropospheric Ozone over Western Europe: A Model Perspective
Ozone in the Atmosphere

Proc. of the Quadr. Ozone Symposium 1988 and Tropospheric Ozone Workshop, S.552

Mégie und Pelon (1985) G. Mégie und J. Pelon:

Lidarmeasurements of ozone vertical profiles

Applied Optics Vol. 24 Nr. 21, 1985, S. 3454–3463

Molina und Molina (1986) L. T. Molina und M. J. Molina:

Absolute absorption cross section of ozone in the 185- to 350-nm wavelength range

J. of Geophysical Research, Vol. 91 Nr. D13, 1986, S. 14501–14508

Möller (1973) F. Möller:

Einführung in die Meteorologie

Bd. 1, Physik der Atmosphäre, Bibliographisches Institut AG, Mannheim, 1973

Olson et al. (1978) M.P. OLSON, K.K. Oikawa und A.W. Macafee:

A Trajectory Model Applied to the Long-Range Transport of Air Pollutants

LRTAP 78-4, Atmospheric Environment Service, Downsview, Ontario, 1978.

Papayannis et al. (1990) A. Papayannis, G. Ancellet, J. Pelon and G. Mégie:

Multiwavelength LIDAR for Ozone measurements in the troposphere and the lower stratosphere

Applied Optics, Vol. 29 Nr. 4, 1990, 467–476

Pelon und Mégie (1982) J. Pelon und G. Mégie:

Ozone Monitoring in the Troposphere and the Lower Stratosphere: Evaluation and Operation of a Ground Based Lidar Station

Journal of Geophysical Research, No.87, C7, 1982, 4947 - 4955

Ramanathan und Dickinson (1979) V. Ramanathan und R.E. Dickinson:

The Role of Stratospheric Ozone in the Zonal and Seasonal Radiative Energy Balance of the Earth-Atmosphere System

J. Atm. Sci **36**, 1979, 1084ff

Russel et al. (1982) Russell, P.B., B.M. Morley, J.M. Livingston, G.W. Grams, and E.M. Patterson:

Orbiting lidar simulations. 1: Aerosol and cloud measurements by an independent-wavelength technique

Applied Optics, Vol. 21, 1541-1553, 1982

Sachs (1974) L. Sachs:

Angewandte Statistik. Planung und Auswertung, Methoden und Modelle.

Springer Verlag, 1974, S.63

Salemink et al. (1984) H.W.M. Salemink, P. Schotanus und J.B. Bergwerff:

Quantitative Lidar at 532 nm for Vertical Extinction Profiles and the Effect of Relative Humidity

Appl. Phys, B 34, 187-198, 1984

Schaberl (1995) T. Schaberl:

Messungen des Ozonflusses in der unteren Troposphäre mit einem neuen Ozon-DIAL System und einem Radar-RASS

Dissertation an der Universität Hamburg, 1995

Schenkel und Broder (1982) A. Schenkel and B. Broder:

Interference of some Trace Gases with Ozone Measurements by the KI Method

Atm.Env., Vol.16, No.9, 2187-2190 (1982)

Scherhag (1948) R. Scherhag:

Wetteranalyse und Wetterprognose

Berlin, 1948, S. 144-150

Schotland (1964) R.M. Schotland:

The determination of the vertical profile of atmospheric gases by means of a ground based optical radar

Proceedings of 3rd Symposium on Remote Sensing of Environment, Univ. of Michigan

Schmidt, (1989) M. Schmidt:

Relationships between Tropospheric Ozone and Global Solar Radiation in Germany

Ozone in The Atmosphere

Proc. of the Quadr. Ozone Symposium 1988 and Tropospheric Ozone Workshop, S.451

Senff (1993) C. Senff:

Messung des Wasserdampfes in der konvektiven Grenzschicht mit DIAL und RADAR-RASS. Dissertation an der Universität Hamburg, 1993. 61 ff.

Senff et al. (1994) C. Senff, J. Bösenberg und G. Peters:

Measurement of water vapor flux profiles in the convective boundary layer with Lidar and Radar-RASS

J. Atm. Ocean. Tech., No. 11, 85-93

Siggelkow (1986) H. Siggelkow:

Ferndaten – Computeranlage

Dokumentation

Laborgerätebau Horst Siggelkow, Hamburg

Singh et al. (1980) H.B. Singh, W. Viezee, W.B. Johnson und F.L. Ludwig:

The impact of stratospheric ozone on tropospheric air quality

J. of Air Pollut. Control. Ass, **30**, 1980, 1009-1017

Sonnemann (1992) G. Sonnemann:

Ozon: natürliche Schwankungen und anthropogene Einflüsse

Akad. Verlag, Berlin, 1992

Stull (1988) R.B. Stull: An Introduction to Boundary Layer Meteorology. Kluwer Academic Publishers

Umweltministerium Baden-Württemberg (1995) Umweltministerium Baden-Württemberg:

Ozonversuch Neckarsulm/Heilbronn, Band II: Schlußbericht zu den wissenschaftlichen Auswertungen des Ozonversuchs Neckarsulm/Heilbronn, Mai 1995

Vaisala (1994a) Vaisala oy:

Datenblatt zur Ozonsonde Typ ECC5A, Ref.-Nr.: B202en 1994-02.

Vaisala (1994b) Vaisala oy:

Technical description Ozonesonde OES, Ref.-Nr.: OES-T0574-1.1, 1993.

Völger et al. (1995) P. Völger, J. Bösenberg and I. Schuldt:

Aerosol Scattering Properties at UV-Wavelengths: Implications for DIAL Measurements of Tropospheric Ozone

eingereicht bei Contributions to Atm. Physics

Volz et al. (1989) A. Volz, H. Geiss, S. McKeen und D. Kley:

Correlation of Ozone and Solar Radiation at Montsouris and Hohenpeissenberg: Indications for Photochemical Influence

Ozone in the Atmosphere

Proc. of the Quadr. Ozone Symposium 1988 and Tropospheric Ozone Workshop, S.447

WMO (1989) World Meteorological Organization:

Scientific Assessment of Stratospheric Ozone: 1989

Volume I

Global Ozone Research and Monitoring Project - Report No.20

Yoshikado und Mizuno (1985) H. Yoshikado und T. Mizuno:

Dependence of the surface ozone concentration in the Harima district on the insolation and the wind

J. Meteorol. Soc. Jpn. (1985), 63(6), 1139-46

Zaromb (1969) S.Zaromb:

Remote sensing of invisible air pollutants by lidar spectroscopy

Proceedings of Electro-Optical Systems Design Conference

New York, 609-624

Zhao et al. (1994) Y. Zhao, J.N. Howell und R.M. Haresty:

ETL's Transportable Lower Troposphere Ozone Lidar

Proceedings to the 17th International Laser Radar Conference, S.248-250

Danksagung

Ich bedanke mich bei Herrn Prof.Dr. H. Graßl für die Anregung zu dieser Arbeit sowie für die konstruktiven Vorschläge und die fruchtbaren Diskussionen.

Ferner möchte ich mich bei Herrn Dr. J. Bösenberg für die Betreuung dieser Arbeit bedanken.

Mein Dank gilt allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Hier seien besonders Frau Margrit Scheller und Frau Monika Pfeiffer genannt, die umfangreiche Mithilfe bei Experimenten getan haben.

Für die hervorragende Unterstützung bei den Vergleichsmeßexperimenten zwischen Lidar und ECC-Sonde und die Bereitstellung der Sondendaten danke ich den Mitarbeitern des MOL, insbesondere Dr. J. Neisser, Dr. H. Steinhagen, Dr. H. Dier, Herrn Dipl.-Met. U. Görsdorf, Frau G. Peters, Frau K. Dix, Frau P. Dereszynski und Frau H. Pisch.

Herrn Dipl.-Phys. S. Lehmann und Herrn Dipl.-Phys. V. Matthias danke ich für die konstruktiven Diskussionen über diese Arbeit.

Dank gebührt auch dem Deutschen Wetterdienst, dem Geophysikalischen Beratungsdienst der Bundeswehr und dem kanadischen Wetterdienst für die Bereitstellung von Daten und ferner Herrn Dr. R. Schmitt, der die Trajektorien- und Daten des kanadischen Wetterdienstes zur Verfügung gestellt hat. Für die graphische Darstellung dieser Daten sei Herrn V. Reinhardt gedankt.

Außerdem bedanke ich mich bei Herrn Dipl.-Met. M. Heupel für die Durchführung der Berechnungen mit dem Säulenmodell.

Diese Arbeit wurde gefördert vom Bundesministerium für Bildung und Forschung unter dem Zeichen 07EU701A.