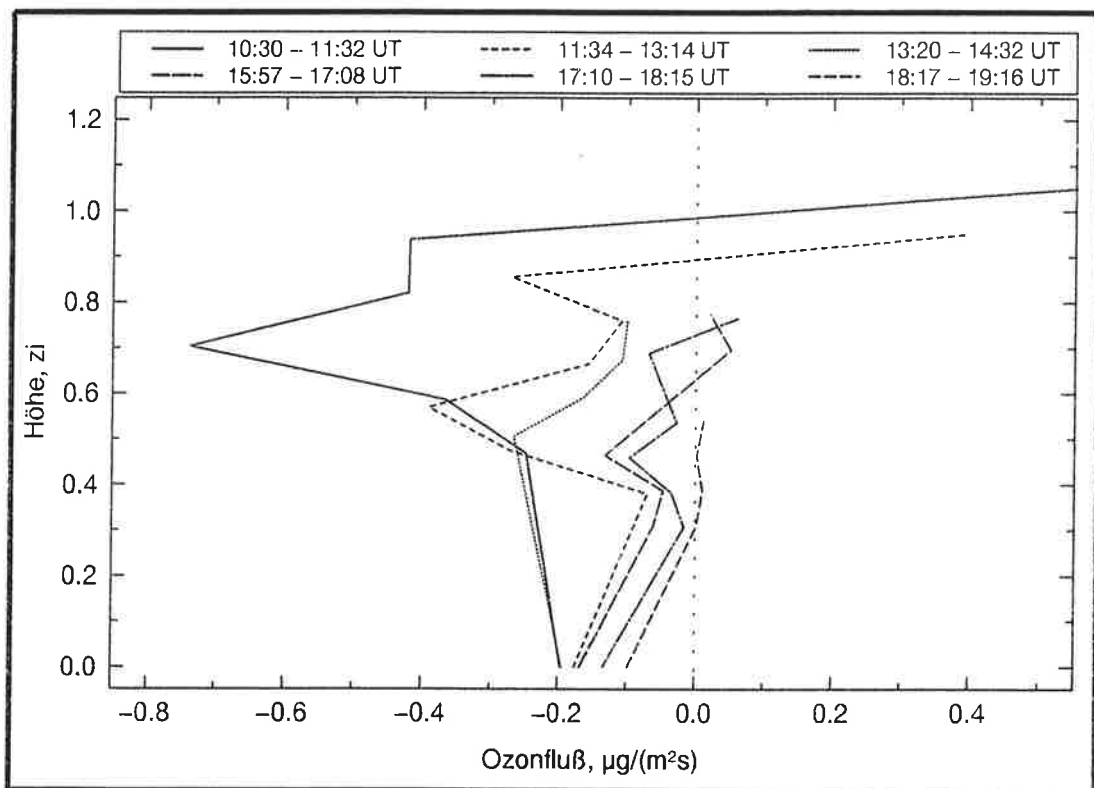




# Max-Planck-Institut für Meteorologie

## EXAMENSARBEIT Nr. 30



MESSUNG DES OZONFLUSSES IN DER  
UNTEREN TROPOSPHÄRE MIT EINEM NEUEN  
OZON-DIAL-SYSTEM UND EINEM RADAR-RASS

VON  
THORSTEN SCHABERL

HAMBURG, Juli 1995

Dissertation im Rahmen des Promotionsverfahrens

Autor:

Thorsten Schaberl

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

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

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

vorgelegt von  
Thorsten Schaberl  
aus  
Hamburg

Hamburg  
1995

ISSN 0938-5177

Als Dissertation angenommen vom Fachbereich Geowissenschaften  
der Universität Hamburg

aufgrund der Gutachten von Herrn Prof. Dr. H. Graßl  
und Herrn Dr. J. Bösenberg

Hamburg, den 28.06.1995

Prof. Dr. M. Dunst  
Sprecher des Fachbereiches Geowissenschaften

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird ein neues Ozon-DIAL-System vorgestellt, das für Messungen in der unteren Troposphäre eingesetzt wurde. Das Ozon-DIAL-System basiert auf einem Krypton-Fluorid-Excimerlaser (248 nm) und nachfolgender Ramanstreuung in Deuterium (268/292 nm) oder Wasserstoff (277/313 nm). Zum Empfang der aus der Atmosphäre rückgestreuten Strahlung werden zwei Teleskope eingesetzt. Die geometrische Anordnung ließ dabei Ozonmessungen zwischen 300 und 750 m bzw. 900 und 2100 m zu. Bei einer typischen Höhenauflösung von 75 m und einer Zeitauflösung von 60 s ist der statistische Fehler der Ozon-DIAL-Messung für alle Höhenstufen kleiner als  $4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

Es wurde eine ausführliche Fehlerdiskussion durchgeführt und die Genauigkeit der Ozon-DIAL-Messungen durch Vergleich mit konventionellen in-situ-Instrumenten überprüft. Die durchschnittliche Abweichung der Ozondichten bei einer Horizontalmessung des DIAL-Systems im Vergleich zu einem UV-Photometer betrug  $2.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

Den Schwerpunkt dieser Arbeit bilden Ozonflußmessungen in der konvektiven planetarischen Grenzschicht. Dazu wurde das Ozon-DIAL mit einem Radar-RASS-Fernmeßsystem kombiniert, das den dreidimensionalen Windvektor mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung mißt. Mit der Kombination von DIAL und Radar-RASS kann somit die Ozondichte und der Vertikalwind im gleichen Meßvolumen mit hoher Auflösung bestimmt werden. Somit kann der turbulente Ozonfluß in verschiedenen Höhen mittels der Eddy-Korrelations-Methode berechnet werden. Die Flußprofile wurden durch Ozonflußmessungen in Oberflächennähe mittels einer schnellen Ozonsonde und einem Windsensor ergänzt. Es wird gezeigt, daß die Höhen- und Zeitauflösung des kombinierten DIAL-RASS-Systems von 75 m und 60 s ausreicht, die wesentlichen Beiträge zum turbulenten Ozonfluß zu erfassen. Der vom DIAL-RASS-System erfaßte Höhenbereich erstreckt sich von 300 bis 750 m über Grund.

Die Ozonflußmessungen wurden an vier aufeinanderfolgenden Tagen während einer Schönwetterperiode im Sommer 1993 über ebenem, landwirtschaftlich genutztem Gebiet in Norddeutschland durchgeführt. An jedem Meßtag fanden durchschnittlich fünf, jeweils ein- bis zweistündige Messungen statt, so daß sich die gemessenen Ozonflußprofile über den ganzen Tag erstrecken und Zeiträume mit unterschiedlich starker Konvektion erfaßt werden.

Am Vormittag ergaben sich kräftige negative Ozonflüsse in der oberen Grenzschicht, bedingt durch das Einmischen einer ozonreichen Restschicht. Im weiteren Verlauf des Tages wurden positive Flußdivergenzen mit einem Nulldurchgang der Ozonflüsse etwa in der Mitte der Grenzschicht beobachtet. Gegen Abend strebten die Ozonflüsse in der Grenzschicht gegen Null.

Zusätzlich wurden die Ozon-DIAL- und Radar-RASS-Messungen dazu benutzt, die Ozonproduktions- und -abbauraten abzuschätzen unter der Annahme, daß die Ozonadvektion vernachlässigt werden darf. Am Vormittag und frühen Nachmittag variierte die Ozonproduktionsrate in der Grenzschicht zwischen 4 und  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  und war nahezu höhenkonstant, während sie am späten Nachmittag und Abend auf Werte nahe Null abnahm.

## Abstract

In this work a new ozone DIAL system is presented, that has been used for measurements in the lower troposphere. The ozone DIAL system is based on a Krypton-Fluorid excimer laser (248 nm) with subsequent Raman scattering in Deuterium (268/292 nm) or Hydrogen (277/313 nm). Two telescopes are used for receiving the backscattered radiation from the atmosphere. Due to the geometrical arrangement ozone measurements were possible between 300 and 750 m or 900 and 2100 m. For a typical height resolution of 75 m and a time resolution 60 s the statistical error of the ozone DIAL measurements is less than  $4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  for all heights.

A detailed error analysis has been accomplished and the accuracy of the ozone DIAL measurements has been verified by comparison with conventional in-situ instruments. The average deviation of the ozone densities during a horizontal measurement with the DIAL system in comparison with a UV-photometer was  $2.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

The focus of this work are ozone flux measurements in the convective planetary boundary layer. Therefore the ozone DIAL was combined with a Radar-RASS remote sensing system, that retrieves the three dimensional wind vector with high spatial and temporal resolution. Hence ozone density and vertical wind speed can be determined in the same measurement volume with the combination of DIAL and Radar-RASS with high resolution. Consequently the turbulent ozone flux can be calculated in different heights by using the eddy correlation technique. The ozone flux profiles were complemented by ozone flux measurements near the ground, performed with a fast ozone sonde and a wind sensor. It is shown, that the height and time resolution of the combined DIAL-RASS system of 75 m and 60 s, respectively, is sufficient to resolve the major contribution to the turbulent ozone flux. The height range covered by the combined DIAL-RASS system extends from 300 to 750 m above the ground.

The ozone flux measurements were carried out on four consecutive days during a fair weather period in the summer 1993 over flat farmland in Northern Germany. An average of five measurements per day, each lasting one to two hours, were performed, so that the ozone flux profiles cover the whole day including periods with different convection.

During late morning, pronounced negative ozone fluxes were found in the upper boundary layer associated with the downward mixing of an ozone-rich residual layer. Later in the day, positive flux divergences and ozone fluxes reaching zero in the middle of the boundary layer were observed. In the late afternoon the ozone fluxes in the boundary layer tends to zero.

In addition, the ozone DIAL and Radar-RASS measurements were used to estimate the ozone production and destruction rate under the assumption, that ozone advection can be neglected. During late morning and early afternoon, the ozone production rate in the boundary layer ranged from 4 to  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  and was fairly constant with height, while in the late afternoon and evening the production rate dropped to nearly zero.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Ozon . . . . .	2
1.2	Ozonchemie in der Troposphäre . . . . .	3
1.3	Ozonnmessungen . . . . .	4
1.4	Lidar und DIAL . . . . .	5
1.5	Aufbau der Arbeit . . . . .	7
<b>2</b>	<b>DIAL-Theorie</b>	<b>9</b>
2.1	Lidar-Meßverfahren . . . . .	9
2.2	DIAL-Meßverfahren . . . . .	12
2.3	Ozonnmessung mit DIAL . . . . .	14
2.4	Korrekturen . . . . .	16
<b>3</b>	<b>Systembeschreibung</b>	<b>19</b>
3.1	Sendeoptik . . . . .	20
3.1.1	Laser . . . . .	22
3.1.2	Stimulierte Ramanstreuung . . . . .	23
3.2	Empfangsoptik und -elektronik . . . . .	28
3.2.1	Teleskope . . . . .	30
3.2.2	Spektrometer . . . . .	30
3.2.3	Detektoren und Datenerfassung . . . . .	31
3.3	Systemübersicht . . . . .	32
<b>4</b>	<b>Auswertung</b>	<b>35</b>
4.1	Allgemeine Signalbehandlung . . . . .	35
4.2	Bestimmung der Ozondichte . . . . .	36
4.2.1	Bestimmung der Korrekturterme . . . . .	38
4.2.2	Querempfindlichkeiten . . . . .	41
4.2.3	Resultat . . . . .	42
<b>5</b>	<b>Fehlerdiskussion</b>	<b>43</b>
5.1	Systematische Fehler . . . . .	43

5.1.1	Aerosolkorrektur . . . . .	43
5.1.2	Signalfehler . . . . .	46
5.1.3	Ozonabsorptionsquerschnitte . . . . .	48
5.1.4	Querempfindlichkeit zu anderen Gasen . . . . .	50
5.1.5	Sonstige . . . . .	51
5.2	Statistische Fehler . . . . .	52
<b>6</b>	<b>Vergleichsmessungen</b>	<b>55</b>
6.1	Vergleich mit UV-Photometer . . . . .	55
6.2	Vergleich mit ECC-Sonde . . . . .	56
<b>7</b>	<b>Ozonflußmessungen in der Grenzschicht</b>	<b>59</b>
7.1	Einführung . . . . .	59
7.2	Theorie . . . . .	60
7.2.1	Aufbau der Grenzschicht . . . . .	60
7.2.2	Turbulenz . . . . .	63
7.2.2.1	Taylorsche Hypothese . . . . .	63
7.2.2.2	Spektrale Darstellung der Turbulenz . . . . .	64
7.2.3	Eddy-Korrelations-Methode . . . . .	66
7.2.4	Webb-Korrektur . . . . .	67
7.2.5	Ozonhaushalt . . . . .	68
7.3	Experimentaufbau und -durchführung . . . . .	69
7.3.1	Beschreibung des Radar-RASS-Systems . . . . .	69
7.3.2	Durchführung . . . . .	71
7.3.3	Bodenstation . . . . .	73
7.4	Auswertung . . . . .	75
7.4.1	Bestimmung des Ozonflusses in der Grenzschicht . . . . .	75
7.4.1.1	Aufbereitung der Radar-RASS-Daten . . . . .	75
7.4.1.2	Hochpaßfilterung und Flußbestimmung . . . . .	78
7.4.1.3	Vertikalwindselektion . . . . .	80
7.4.1.4	Flußkorrektur . . . . .	81
7.4.1.5	Zeitreihenanalyse . . . . .	83
7.4.2	Bestimmung des Ozonflusses in Oberflächennähe . . . . .	86
7.4.2.1	Eichung . . . . .	87
7.4.2.2	Zeitreihenanalyse und Flußbestimmung . . . . .	87
7.4.3	Ozonhaushalt . . . . .	89
7.5	Fehlerdiskussion . . . . .	90
7.5.1	Systematische Fehler . . . . .	90
7.5.1.1	Fehler durch nicht aufgelöste Wirbel . . . . .	90
7.5.1.2	Systematische Fehler eines Meßgeräts . . . . .	92



7.5.1.3	Webbkorrektur . . . . .	94
7.5.2	Statistische Fehler . . . . .	94
7.5.3	Stichprobenfehler . . . . .	96
7.5.4	Zusammenfassung der Ozonflußfehler . . . . .	98
7.5.5	Fehler der Ozonproduktionsrate . . . . .	99
7.6	Ergebnisse . . . . .	101
7.6.1	Wetterlage . . . . .	101
7.6.1.1	29.06.1993 . . . . .	102
7.6.1.2	30.06.1993 . . . . .	104
7.6.1.3	01.07.1993 . . . . .	106
7.6.1.4	02.07.1993 . . . . .	108
7.6.2	Schichtung der Atmosphäre und Ozonverteilungen . . . . .	110
7.6.2.1	29.06.1993 . . . . .	110
7.6.2.2	30.06.1993 . . . . .	114
7.6.2.3	01.07.1993 . . . . .	116
7.6.2.4	02.07.1993 . . . . .	116
7.6.2.5	Zusammenfassung . . . . .	119
7.6.3	Ozonflüsse . . . . .	119
7.6.3.1	Theoretische Überlegungen . . . . .	119
7.6.3.2	29.06.1993 . . . . .	121
7.6.3.3	Problematik der Eddy-Korrelations-Methode in der Entrainmentzone . . . . .	123
7.6.3.4	30.06.1993 . . . . .	125
7.6.3.5	01.07.1993 . . . . .	128
7.6.3.6	02.07.1993 . . . . .	128
7.6.3.7	Zusammenfassung . . . . .	130
7.6.4	Abschätzung der Ozonproduktionsraten . . . . .	132
7.6.4.1	29.06.1993 . . . . .	132
7.6.4.2	30.06.1993 . . . . .	134
7.6.4.3	01.07.1993 . . . . .	134
7.6.4.4	02.07.1993 . . . . .	137
7.6.4.5	Zusammenfassung . . . . .	138
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>139</b>
8.1	Das Ozon-DIAL-System . . . . .	139
8.2	Ozonflußmessungen . . . . .	140
8.3	Ausblick . . . . .	142

<b>A Umrechnung der Ozoneinheiten</b>	<b>143</b>
A.1 Massendichte $\leftrightarrow$ Teilchendichte . . . . .	143
A.2 Massendichte $\leftrightarrow$ Volumenmischungsverhältnis . . . . .	143
A.3 Standardatmosphäre . . . . .	143
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>147</b>
<b>Symbolverzeichnis</b>	<b>149</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>153</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Unsere Atmosphäre ist das Ergebnis einer Milliarden Jahre dauernden Wechselwirkung mit der Erdkruste und dem Leben auf der Erde. Neben den Hauptbestandteilen Stickstoff (78,09%, bezogen auf trockene Luft), Sauerstoff (20,95 %) und Argon (0,93 %) bilden viele Spurengase und Aerosolteilchen die Luft, in der wir leben. Die häufigsten und für das Klima wichtigsten Beimengungen sind Wasserdampf ( $\text{H}_2\text{O}$ ) und Kohlendioxid ( $\text{CO}_2$ ). Aber auch Ozon ( $\text{O}_3$ ), Methan ( $\text{CH}_4$ ), Kohlenmonoxid ( $\text{CO}$ ), Stickoxide ( $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$ ), Fluorchlorkohlenwassertoffe (FCKW) und Aerosolteilchen spielen eine wesentliche Rolle.

Spätestens seit Beginn der Industrialisierung verändern die Menschen durch die Emission gasförmiger Substanzen die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre wesentlich. Da die Mischungsverhältnisse der drei Hauptkomponenten Stickstoff, Sauerstoff und Argon dadurch jedoch kaum verändert werden, wurde noch vor einigen Jahrzehnten allgemein — auch unter Wissenschaftlern — angenommen, daß menschliche Aktivitäten die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre nur lokal oder regional nennenswert beeinflussen könnten, nicht jedoch auf kontinentalen und globalen Skalen (Crutzen, 1994). Der saure Regen, der anthropogene Treibhauseffekt, der Abbau der stratosphärischen Ozonschicht über der Antarktis („Ozonloch“) und der Photosmog in der planetarischen Grenzschicht bei stabilen Hochdruckwetterlagen im Sommer haben dagegen einer breiten Öffentlichkeit vor Augen geführt, daß die Spurengase für die Eigenschaften der Atmosphäre eine entscheidende Bedeutung haben. Die Spurengase bestimmen den Strahlungshaushalt und beeinflussen damit die Temperaturverteilung und Dynamik der Atmosphäre, also auch das Klima. Zudem sind sie entscheidend für die Chemie der Atmosphäre. Trotz ihrer geringen Konzentration haben daher die Spurengase eine entscheidende Bedeutung für die Lebensbedingungen auf unserem Planeten, die heutzutage durch menschliche Aktivitäten gefährdet werden. Die Erforschung der physikalischen und chemischen Eigenschaften und Veränderungen der Atmosphäre haben deshalb im Rahmen einer vorsorgenden Umweltpolitik einen hohen Stellenwert erhalten.

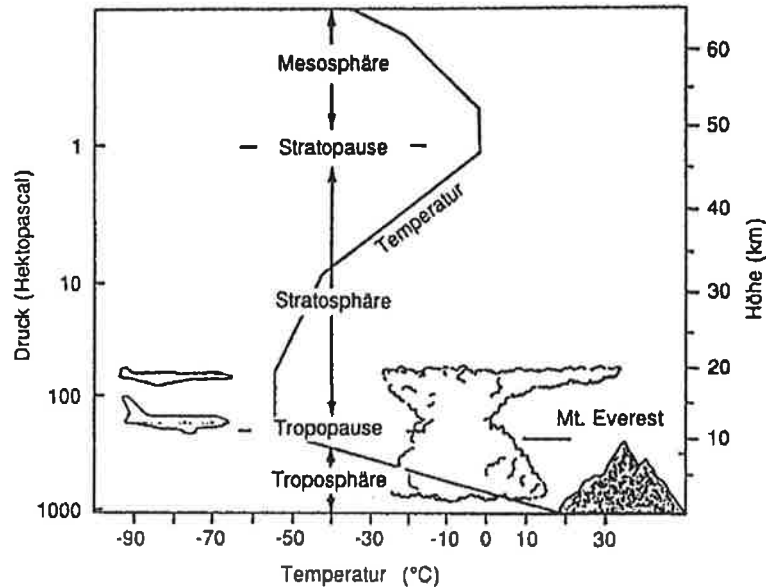


Abbildung 1.1: Die vertikale Struktur der Atmosphäre (aus Vockenhuber, 1994).

## 1.1 Ozon

Eines der wichtigsten atmosphärischen Spurengase ist Ozon, ein Molekül bestehend aus drei Sauerstoffatomen. Da Ozon sehr reaktionsfähig ist, tritt es in den verschiedenen Höhen der Atmosphäre unterschiedlich konzentriert auf. Es ist in mehrfacher Hinsicht von Bedeutung für das Leben auf der Erde.

In der Stratosphäre, die sich von etwa 10 bis 50 km Höhe erstreckt (s. Abb. 1.1), befinden sich ca. 90% des atmosphärischen Ozons. Es wirkt dort als „Schutzfilter“, indem es die lebensbedrohende kurzwellige UV-Strahlung der Sonne absorbiert. Dadurch erwärmt es zugleich die Schichten besonders stark, in denen es hoch konzentriert ist. Somit ist Ozon für die vertikale Temperaturverteilung und die stabile Schichtung der Stratosphäre verantwortlich.

Der in jüngerer Zeit in mittleren bis hohen Breiten beider Erdhälften beobachtete Ozonschwund in der Stratosphäre einschließlich des Ozonlochs über der Antarktis ist daher mit einer Zunahme der UV-Strahlung in der Troposphäre und oft auch an der Erdoberfläche verbunden. Dies kann zu reduziertem Wachstum von Pflanzen und somit Ernteschäden führen. Aber auch der Mensch selbst ist direkt gefährdet, wenngleich unklar ist, inwieweit die heute bereits in vielen Ländern beobachtete Zunahme von Hautkrebs und grauem Star schon durch den Ozonschwund oder durch ein verändertes Verhalten gegenüber Sonnenstrahlung verursacht wird. Der Abbau des stratosphärischen Ozons verschiebt darüberhinaus die Temperaturverteilung in der Stratosphäre mit bisher nicht absehbaren Folgen für das globale Klima.

Die Troposphäre erstreckt sich vom Erdboden bis in etwa 10 km Höhe, enthält etwa 80% der Gesamtmasse der Atmosphäre und wird durch die Tropopause — oft eine Temperaturinversion, zumindest aber der Beginn sehr stabiler Schichtung — von der Stratosphäre abgegrenzt.

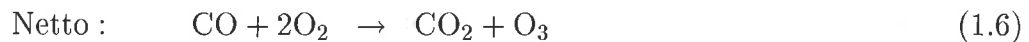
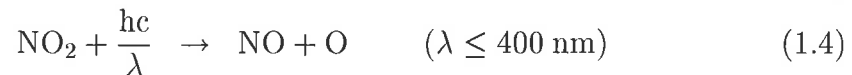
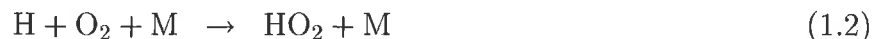
In der nördlichen Hemisphäre wurde in den letzten Jahrzehnten ein beträchtlicher Anstieg der troposphärischen Ozonkonzentration beobachtet (Bojkov, 1979, 1988; Angell und Korshover, 1980; Bojkov und Reinsel, 1984; Tiao et al., 1986), der sich weiter fortzusetzen scheint (Fabian, 1992). Aufgrund seiner stark oxidierenden Wirkung führt Ozon bei direktem Kontakt zu Schädigungen von Pflanzen, Tieren und Menschen. Nachgewiesen werden konnte, daß erhöhte Ozonkonzentrationen zu einem Rückgang der Ernteerträge (Reich und Amundson, 1985; Reich et al., 1986; Prinz, 1988) und Waldschäden (Paremter und Miller, 1968; Yang et al., 1983; Guderian et al., 1985; Prinz et al., 1985) führen. Auch auf das Wohlbefinden und die Gesundheit des Menschen hat Ozon direkten Einfluß. So führt Ozon abhängig von der Konzentration zu Kopfschmerzen, Schleimhautreizungen, Augenreizungen und einer Zunahme von Asthmaanfällen bis hin zu Lungenfunktionsstörungen und bleibenden Gesundheitsschäden. Ferner ist Ozon das dritt wichtigste Treibhausgas, so daß die Zunahme der Ozonkonzentration in der oberen Troposphäre zu einem verstärkten Treibhauseffekt führt.

Aus den genannten Gründen ist das atmosphärische Ozon ein wichtiger Untersuchungsgegenstand in internationalen Forschungsprogrammen, an denen eine Vielzahl von Wissenschaftlern beteiligt sind und in denen sich Feldmessungen, Laboruntersuchungen und Modellrechnungen ergänzen. Im Rahmen des Projekts EUROTRAC werden der Transport und die Transformation von Luftschadstoffen über Europa untersucht. EUROTRAC steht für European Experiment on Transport and Transformation of Environmentally Relevant Trace Constituents in the Troposphere over Europe. In diesem Rahmen zielt das Unterprojekt TOR (Tropospheric Ozone Research), zu dem die vorliegende Arbeit beiträgt, auf die Untersuchung des troposphärischen Ozons ab (Penkett et al., 1988). Anlaß zu TOR war die auch über Europa beobachtete Zunahme der Ozonkonzentration.

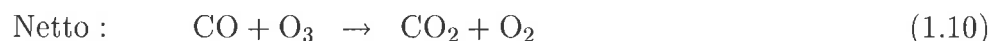
## 1.2 Ozonchemie in der Troposphäre

Eine photolytische Spaltung des molekularen Sauerstoffs in atomaren ist in der Troposphäre nicht möglich, da dazu Strahlung mit einer Wellenlänge kleiner als 242 nm notwendig ist. Deshalb kann Ozon in der Troposphäre im Gegensatz zur Stratosphäre nicht direkt gebildet werden. Noch bis vor wenigen Jahrzehnten wurde daher allgemein angenommen, daß das troposphärische Ozon größtenteils aus der Stratosphäre stammen würde, von wo es z.B. durch Tropopausenfaltung in die Troposphäre gelangt, und nur zu einem kleinen Teil durch elektrische Entladungen bei Gewittern produziert werden würde. Mittlerweile ist nachgewiesen, daß Ozon auch in der Troposphäre auf photochemischem Weg produziert werden kann. Wenngleich die Zusammenhänge sehr komplex sind, konnten dennoch bereits wichtige Reaktionsmechanismen identifiziert werden. Ein Beispiel ist der Kohlenmonoxid-Zyklus, in dem Ozon sowohl produziert als auch abgebaut wird. Die Stickstoffmonoxidkonzentration bestimmt dabei die Gleichgewichtskonzentration des Ozons.

Nach Crutzen (1973) läßt sich die Ozonproduktion beschreiben durch:



Der Ozonabbau läßt sich durch folgende Reaktionsgleichungen beschreiben:



Reaktion (1.3) läuft ungefähr viertausendmal schneller als Reaktion (1.9) ab. Deshalb ist die Gesamtwirkung abhängig von der Stickstoffmonoxidkonzentration. Bei Konzentrationen unterhalb von 10 ppt (parts per trillion  $\equiv 10^{-12}$ ) überwiegt Reaktion (1.9), so daß es zu einem Ozonabbau kommt, während bei höheren Konzentrationen Reaktion (1.3) überwiegt, so daß Ozon produziert wird. Mehr Details und weitere Reaktionsmechanismen z.B. von gasförmigen Kohlenwasserstoffen sind bei Seinfeld (1986), Crutzen (1988) und Cox (1988) zu finden.

### 1.3 Ozonmessungen

Bei der Erforschung der komplexen Transport- und Transformationsprozesse, der Quellen und Senken des Ozons, ist die Wissenschaft auf zeitlich und räumlich hochaufgelöste Messungen von Ozondichten und Ozonflüssen angewiesen.

Die Ozonmeßverfahren werden grob nach der Art der Probenentnahme unterschieden in:

- in-situ-Meßverfahren
- Fernmeßverfahren:
  - passiv
  - aktiv

Konventionelle Ozonmessungen beruhen auf dem Einsatz von in-situ-Meßinstrumenten, deren Gemeinsamkeit eine direkte Probenentnahme am Meßort ist. Vorteile von in-situ-Meßgeräten sind ein meist geringer apparativer Aufwand und eine prinzipiell mögliche hohe

räumliche oder zeitliche Auflösung. Nachteilig bei Messungen in der Atmosphäre ist, daß in-situ-Meßgeräte an den Meßort gebracht werden müssen. Trägerplattformen dafür sind meteorologische Türme im unteren Teil der Grenzschicht oder Sonden und Flugzeuge für Messungen in größeren Höhen.

Im Gegensatz dazu sind bei den Fernmeßverfahren, die in aktive und passive Verfahren unterteilt werden, Meßsystem und Probenvolumen räumlich getrennt und die gesuchte Information, d.h. hier die Ozondichte, wird z.B. auf optischem Weg erhalten. Da Fernmeßverfahren somit berührungsfrei arbeiten, ist eine unerwünschte Verfälschung des Meßwertes durch die Meßapparatur in der Regel auszuschließen. Passive Verfahren nutzen das Sonnenlicht oder die Wärmestrahlung der Erde. Eingesetzt werden sie sowohl am Boden („Umkehrverfahren“) als auch von Satelliten. Diese Verfahren sind gut geeignet, um die Gesamtozonsäule zu bestimmen, allerdings ist ihre vertikale Auflösung sehr schlecht. Diesen Nachteil haben aktive Fernmeßverfahren, z.B. Lidar (Light Detecting and Ranging) oder DIAL (Differential Absorption Lidar) nicht. Durch die Verwendung energiereicher und gepulster Laser wird eine hohe räumliche und zeitliche Auflösung erzielt (Melfi, 1976). Ferner können diese Geräte vom Erdboden aus betrieben werden und sind somit für Langzeitmessungen geeignet. Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist der Aufbau eines Ozon-DIAL-Systems, das erfolgreich zur Messung von Ozonflüssen in der konvektiven Grenzschicht eingesetzt wurde.

## 1.4 Lidar und DIAL

Fernmessungen von atmosphärischen Parametern mit gepulsten Lichtquellen wurden bereits in der ersten Hälfte dieses Jahrhunderts durchgeführt. Hauptsächlich wurde damit die Höhe der Wolkenunterkante bestimmt (Bureau, 1946). Middleton und Spilhaus (1953) schlugen hierfür den Begriff „Lidar“ vor. Eine größere Verbreitung des Verfahrens kam hingegen erst mit der Entwicklung von gepulsten Lasern (Collis, 1966): *„The advent of the laser ... has made it possible to probe the atmosphere with hitherto unknown sensitivity and resolution“*. Dies ist auf die große Energie pro Puls, geringe Strahldivergenz und hohe spektrale Reinheit eines Lasers zurückzuführen.

Die Messung von Spurengaskonzentrationen mittels differentieller Absorption ist schon sehr lange bekannt. Die Kombination von Lidar und differentieller Absorption ergibt das DIAL-Verfahren, das z.B. von Schotland (1964, 1966) und Zaromb (1969) bereits in den sechziger Jahren diskutiert wurde.

Das DIAL-Verfahren wurde erstmals in den siebziger Jahren zur Messung von atmosphärischem Ozon eingesetzt. Da es keine Laser gab, die direkt im UV (ultravioletter Spektralbereich) emittierten (vgl. Kap. 2.3), wurden für die ersten Messungen Farbstofflaser im sichtbaren Spektralbereich verwendet (Gibson und Thomas, 1975; Megie et al., 1977), deren Frequenz verdoppelt wurde. Die Situation änderte sich mit der Entdeckung der Excimerlaser, die zuerst von Uchino et al. (1978) für stratosphärische Ozon-DIAL-Messungen einge-

setzt wurden. Ferner wurden Ozonmessungen mit DIAL im IR (infraroter Spektralbereich) durchgeführt (Bufton et al., 1979; Megie und Menzies, 1980). Da diese Messungen allerdings hauptsächlich auf Gebiete mit hohen Ozon- und Aerosolkonzentrationen beschränkt sind (Megie, 1994), arbeitet die Mehrzahl der bis heute entwickelten Ozon-DIAL-Systeme im UV. Unterschieden werden muß zwischen Systemen für Messungen in der Stratosphäre und solchen für Messungen in der Troposphäre, da die Troposphäre erheblich niedrigere Ozonkonzentrationen und häufig hohe Aerosolgehalte aufweist. Hieraus folgt, daß ein troposphärisches Ozon-DIAL-System eine größere Meßgenauigkeit besitzen muß, um auch geringe Ozonkonzentrationen nachweisen zu können. Hinzu kommt die Forderung nach einer hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung eines troposphärischen Ozon-DIAL-Systems, um die kleinskaligen Prozesse in der Troposphäre untersuchen zu können.

Für Messungen in der Troposphäre werden bislang Farbstofflaser mit Frequenzvervielfachung (Browell et al., 1983; Edner et al., 1987; Profitt und Langford, 1991; Weitkamp et al., 1991; Milton et al., 1992), Nd-YAG-Laser (1064 nm) mit Frequenzvervierfachung (266 nm) und nachfolgender Ramanverschiebung in Deuterium (289 nm) und/oder Wasserstoff (299 nm) (Ancellet et al., 1989; Sunesson und Apituley, 1991) sowie Krypton-Fluorid-Excimerlaser (248 nm) mit Ramanstreuung in Deuterium (266, 292, 319 nm) und/oder Wasserstoff (277, 313 nm) (Carnuth et al., 1990) verwendet.

Im Laufe einer Diplomarbeit (Schaberl, 1990) wurden erste Vorbereitungen für das hier beschriebene Ozon-DIAL-System getroffen und erste Studien veröffentlicht. Die vorliegende Arbeit umfaßt die Vervollständigung des Systems, so daß Messungen von Ozonprofilen in der unteren Troposphäre durchgeführt werden konnten. Im Rahmen des EUROTRAC-Unterprogramms TESLAS (Tropospheric Environmental Studies by Laser Sounding) fand Mitte 1991 der Vergleich mit anderen Systemen während TROLIX (Tropospheric Ozone Lidar Intercomparison Experiment) statt (Bösenberg et al., 1993). Zu einem weiteren Meßeinsatz kam das System 1992 im Schwarzwald bei der TRACT-Feldmeßkampagne (Transport of Air Pollutions over Complex Terrain). In der übrigen Zeit befand sich das Ozon-DIAL-System an der Außenstation des Max-Planck-Instituts für Meteorologie in der Nähe von Itzehoe und wird dort seit Mitte 1991 für routinemäßige Ozonprofilmessungen verwendet, die zum Teil mit in die TOR-Datenbank aufgenommen wurden.



## 1.5 Aufbau der Arbeit

Zunächst werden im folgenden Kapitel die theoretischen Grundlagen des DIAL-Meßverfahrens beschrieben und die Möglichkeiten einer Anwendung für troposphärische Ozonmessungen diskutiert. Danach wird in Kap. 3 der technische Aufbau vorgestellt. In Kap. 4 wird die Auswertung der aufgenommenen Rohdaten bis zur Bestimmung der Ozondichten einschließlich der angebrachten Korrekturen beschrieben. Es folgt eine ausführliche Fehlerdiskussion in Kap. 5 und danach eine kurze Beschreibung von Vergleichsmessungen, die zur Validierung der Meßergebnisse durchgeführt wurden. Den Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit bilden Ozonflußmessungen in der konvektiven Grenzschicht, die in Kap. 7 vorgestellt werden. Dazu wurde das DIAL-System mit einem Radar-RASS (Radio Acoustic Sounding System) kombiniert, das die Windgeschwindigkeit mit hoher vertikaler und zeitlicher Auflösung mißt. Somit kann mit der Kombination von DIAL und Radar-RASS der turbulente Ozonfluß nach der Eddy-Korrelations-Methode bestimmt werden. Abschließend folgt in Kap. 8 eine Zusammenfassung der wesentlichen Resultate und ein Ausblick auf mögliche Verbesserungen.



# Kapitel 2

## DIAL-Theorie

Im folgenden werden die theoretischen Grundlagen des DIAL-Verfahrens vorgestellt. Dazu wird zunächst das Lidar-Prinzip erläutert. Es folgt eine Diskussion der Möglichkeiten, troposphärisches Ozon mit DIAL zu messen. Zuletzt werden die notwendigen Korrekturen beschrieben.

### 2.1 Lidar-Meßverfahren

Beim Lidarverfahren wird ein kurzer Laserpuls in die Atmosphäre emittiert. Auf dem Weg durch die Atmosphäre tritt dieser ständig mit Luftbestandteilen in Wechselwirkung. Die wesentlichen beteiligten Prozesse sind:

- elastische Streuung
  - Rayleighstreuung (Streuung an Atomen und Molekülen)
  - Streuung an Aerosolteilchen und Wolkenelementen
- inelastische Streuung
  - Ramanstreuung
  - Fluoreszenz
- Absorption

Die Photonen werden in alle Raumwinkel und somit auch in Rückwärtsrichtung gestreut. Dieser Anteil kann mit einem Empfänger, bestehend aus Teleskop und nachgeschalteter Empfangsoptik und -elektronik, detektiert werden. Die Intensität enthält Informationen über den Zustand der Atmosphäre zwischen Rückstreuort und Sender. Die Entfernung  $R$  zwischen Meßapparatur und Rückstrevolumen ergibt sich aus der Laufzeit  $\Delta t$  des Lichtpulses:

$$R = \frac{c \Delta t}{2} \quad (2.1)$$

Mit den Annahmen:

1. Einfachstreuung (gilt für optisch dünne Medien)
2. Stationäre Atmosphäre für Hin- und Rückweg (durch die sehr kurze Laufzeit des Laserpulses selbst bei schnellen Bewegungen der Atmosphäre gewährleistet)
3. Laserpulslänge vernachlässigbar gegen Ortsauflösung des Detektors (bei der hier verwendeten kurzen Pulsdauer ebenfalls gewährleistet)

wird die am Detektor pro ausgesandtem Laserpuls mit der Wellenlänge  $\lambda$  empfangene, elastisch gestreute Lichtleistung  $P_\lambda(R)$  durch die Lidargleichung beschrieben (Collis und Russell, 1976):

$$P_\lambda(R) = k_\lambda \cdot P_{\lambda,0} \cdot \frac{c\tau}{2} \cdot \frac{A}{R^2} \cdot O_\lambda(R) \cdot \beta_\lambda(R) \cdot T_\lambda^2(R) \quad (2.2)$$

$$\text{mit: } T_\lambda(R) = \exp\left(-\int_0^R \alpha_\lambda(r) dr\right) \quad (2.3)$$

wobei  $k_\lambda$  eine Systemkonstante,  $P_{\lambda,0}$  die Ausgangsleistung des Laserpulses,  $\tau$  die Laserpulsdauer,  $A$  die Teleskopempfangsfläche,  $\beta_\lambda(R)$  der Rückstreukoeffizient,  $T_\lambda(R)$  die Transmission der Atmosphäre und  $\alpha_\lambda(R)$  der Extinktionskoeffizient ist.  $O_\lambda(R)$  beschreibt die Überlappung zwischen Teleskopgesichtsfeld und Laserstrahl. Da die Streuung des Lichtpulses in der Entfernung  $R$  in den vollen Raumwinkel erfolgt, nimmt die am Teleskop ankommende Signalintensität proportional zu  $1/R^2$  ab. Hieraus folgt andererseits, daß die aus dem Nahbereich empfangenen Signalintensitäten prinzipiell sehr groß werden. Da jeder Detektor jedoch nur einen begrenzten Dynamikbereich besitzt, und eine Übersteuerung des Detektors aufgrund von störenden Nachwirkungen (Lee et al., 1990; Gast, 1991) nicht zulässig ist, muß der Nahbereich unterdrückt werden. Eine der praktischen Möglichkeiten dazu ist ein biaxialer Aufbau von Teleskop und Sendestrahle. Daraus resultiert, daß sich der Laserstrahl erst ab einer gewissen Höhe im Gesichtsfeld des Teleskops befindet. Der höhenabhängige, relative Anteil des Laserstrahls, der sich im Teleskopgesichtsfeld befindet, wird in Gl. 2.2 durch die Funktion  $O_\lambda(R)$  beschrieben.

Der Rückstreukoeffizient  $\beta_\lambda$  ist die Summe aus Rayleigh- und Aerosolstreukoeffizient in Rückwärtsrichtung:

$$\beta_\lambda(R) = \beta_{\text{Ray},\lambda}(R) + \beta_{\text{Aer},\lambda}(R) \quad (2.4)$$

$$= n_{\text{Ray}}(R) \cdot \left. \frac{d\sigma_{\text{Ray},\lambda}}{d\Omega} \right|_\pi + n_{\text{Aer}}(R) \cdot \left. \frac{d\sigma_{\text{Aer},\lambda}}{d\Omega} \right|_\pi \quad (2.5)$$

wobei  $d\sigma/d\Omega$  den differentiellen Streuquerschnitt und  $n$  die Teilchenzahldichte bezeichnet. Während der Rayleighrückstreukoeffizient gemäß dem ersten Summanden von Gl. 2.5 in einen entfernungs- und wellenlängenabhängigen Anteil separiert werden kann, ist dieses für den Aerosolrückstreukoeffizienten nicht möglich, da der differentielle Streuquerschnitt ( $\frac{d\sigma_{\text{Aer},\lambda}}{d\Omega}$ ) vom Aerosoltyp abhängt (Völger, 1993).

Ebenso setzt sich die Extinktion  $\alpha_\lambda$  aus Streuung und Absorption der einzelnen Bestandteile der Luft zusammen:

$$\alpha_\lambda(R) = \alpha_{\text{Ray},\lambda}(R) + \alpha_{\text{Aer},\lambda}(R) + \sum_{i=1} \alpha_{i,\lambda}(R) \quad (2.6)$$

$$= n_{\text{Ray}}(R) \cdot \sigma_{\text{Ray},\lambda} + n_{\text{Aer}}(R) \cdot \sigma_{\text{Aer},\lambda}(R) + \sum_{i=1} n_i(R) \cdot \sigma_{i,\lambda} \quad (2.7)$$

wobei  $\sigma_{\text{Ray},\lambda}$  bzw.  $\sigma_{\text{Aer},\lambda}$  den totalen Streuquerschnitt für Rayleigh- bzw. Aerosolstreuung bezeichnet. Der Index  $i$  steht für die in der Atmosphäre vorkommenden Gase und  $\sigma_i$  für ihre Absorptionsquerschnitte bei der Wellenlänge  $\lambda$ . Für die totalen Streuquerschnitte gilt:

$$\sigma_{i,\lambda} = \int_0^{4\pi} \frac{d\sigma_{i,\lambda}}{d\Omega} d\Omega \quad (2.8)$$

wobei der Index  $i$  für Rayleigh- oder Aerosolstreuung steht. Der differentielle Streuquerschnitt für Rayleighstreuung kann berechnet werden (Elterman, 1968) und damit gemäß Gl. 2.8 auch der totale Streuquerschnitt. Da die Luftdichte in Abhängigkeit von der Höhe hinreichend genau bekannt ist, können somit Extinktions- und Rückstreukoeffizient für Rayleighstreuung bestimmt werden.

Wenn Strahlungsenergie bei der Wellenlänge  $\lambda$  nicht durch atmosphärische Gase absorbiert wird, verbleiben als einzige Unbekannte in Gl. 2.2 die Aerosolextinktion  $\alpha_{\text{Aer},\lambda}(R)$  und -rückstreuung  $\beta_{\text{Aer},\lambda}(R)$ . Eine Berechnung beider Größen ohne Annahmen ist nicht möglich, da sie vom aktuellen Aerosoltyp abhängen (Völger, 1993). Somit stehen einem Satz von Messungen zwei Sätze von Unbekannten gegenüber. Deshalb ist zur Lösung des Gleichungssystems eine weitere Annahme notwendig. Da differentieller und totaler Streuquerschnitt gemäß Gl. 2.8 eng miteinander verknüpft sind, besteht für einen Aerosoltyp unter identischen Randbedingungen ein linearer Zusammenhang zwischen Extinktion und Rückstreuung (Klett, 1985). Die Proportionalitätskonstante  $S$  wird als Lidarverhältnis bezeichnet:

$$S(R) = \frac{\alpha_\lambda(R)}{\beta_\lambda(R)} \quad (2.9)$$

$S$  ist entfernungsabhängig, da Aerosoltyp und Feuchte, wie bereits diskutiert, in der Atmosphäre im allgemeinen stark variabel sind. Für Aerosolstreuung werden in Abhängigkeit vom Aerosoltyp und der Wellenlänge Werte von  $S$  zwischen 10 und 100 angegeben (Collis und Russell, 1976). Das entsprechende Verhältnis für Rayleighstreuung beträgt  $8\pi/3$ . Wenn das (höhenabhängige) Lidarverhältnis  $S$  vorgegeben werden kann, reduzieren sich die zwei Sätze von Unbekannten auf einen Satz, so daß das Gleichungssystem lösbar wird.

Unbekannt sind ferner die höhenunabhängigen Systemkonstanten  $k$ ,  $A$ ,  $\tau$  und  $P_{\lambda,0}$ . Wenn der Aerosolrückstreukoeffizient in einer beliebigen Entfernung bekannt ist oder hinreichend genau geschätzt werden kann, z.B. in aerosolarmen Regionen, so kann das Produkt der Systemkonstanten bestimmt werden. Dieses Verfahren wird als Eichung bezeichnet.

Aerosolextinktions- und -rückstreuprofil können somit aus einer Lidarmessung bei einer Wellenlänge bestimmt werden, wenn keine bzw. eine bekannte Absorption durch Gase vorliegt, eine Eichung möglich ist und das Lidarverhältnis vorgegeben werden kann (Fernald, 1984; Klett, 1985; Sasano et al., 1985).

## 2.2 DIAL-Meßverfahren

Aufgrund des variierenden Aerosolgehalts der Atmosphäre ist die Messung einer Spurengaskonzentration mit einem einfachen Rückstreulidar nicht möglich. Deshalb ist eine Erweiterung bzw. Abwandlung des klassischen Rückstreulidars notwendig. Eine Möglichkeit ist das Ramanlidar. Bei diesem wird eine durch Ramanstreuung verschobene Wellenlänge registriert. Die Wellenlängenverschiebung ist charakteristisch für das zu messende Gas. Die Signalintensität gibt Aufschluß über die Gaskonzentration. Eine Diskussion des Ramanlidars ist z.B. bei Inaba und Kobayasi (1969) und Kildal und Byer (1971) zu finden. Atmosphärische Ramanrückstreusignale wurden z.B. von Stickstoff (Cooney, 1968), Wasserdampf (Melfi et al., 1969), Kohlendioxid und Schwefeldioxid (Kobayasi und Inaba, 1970) gemessen. Ein Vorteil eines Ramanlidars ist, daß eine einzige Laserquelle ausreicht. Nachteilig wirkt sich aus, daß die Signalintensitäten sehr klein sind, bedingt durch die wesentlich kleineren Streuquerschnitte im Vergleich zur elastischen Streuung. Dadurch sind zum einen lange Mittelungszeiten notwendig und zum anderen Messungen überwiegend nur nachts möglich, da tagsüber der Tageslichthintergrund zu groß ist.

Eine Alternative zur Messung von atmosphärischen Spurengasen stellt das DIAL-Verfahren dar. Da das DIAL-Verfahren bereits ausgiebig in der Literatur diskutiert worden ist (z.B. Schotland, 1964, 1966, 1974; Zaromb, 1969; Kobayasi und Inaba, 1971; Measures und Pilon, 1972; Byer und Garbuny, 1973), folgt hier nur eine kurze Zusammenfassung. In Abb. 2.1 ist das Meßprinzip des DIAL-Verfahrens skizziert: Zwei Lichtpulse mit unterschiedlicher Wellenlänge werden gleichzeitig oder in sehr kurzem Zeitabstand emittiert. Die Wellenlängen werden so gewählt, daß die eine Wellenlänge ( $\lambda_{\text{on}}$ ) durch das zu messende Spurengas absorbiert wird, während die andere ( $\lambda_{\text{off}}$ ) eine möglichst kleine Absorption erfährt. Diese werden im folgenden als Online- bzw. Offline-Wellenlänge bezeichnet. Aus dem Verhältnis der relativen Signalintensitäten aus zwei Entfernungen  $R_1$  und  $R_2$  kann die Spurengasdichte im Bereich zwischen  $R_1$  und  $R_2$  berechnet werden.

Zur Beschreibung werden somit insgesamt vier Lidargleichungen benötigt, die zur DIAL-Gleichung umgeformt werden können (ausführliche Beschreibung z.B. bei Rösler, 1991):

$$n_S \left( R + \frac{\Delta R}{2} \right) = \frac{1}{2\Delta\sigma_S\Delta R} \cdot \ln \left( \frac{P_{\text{on}}(R) \cdot P_{\text{off}}(R + \Delta R)}{P_{\text{off}}(R) \cdot P_{\text{on}}(R + \Delta R)} \right) + B + T + Q \quad (2.10)$$

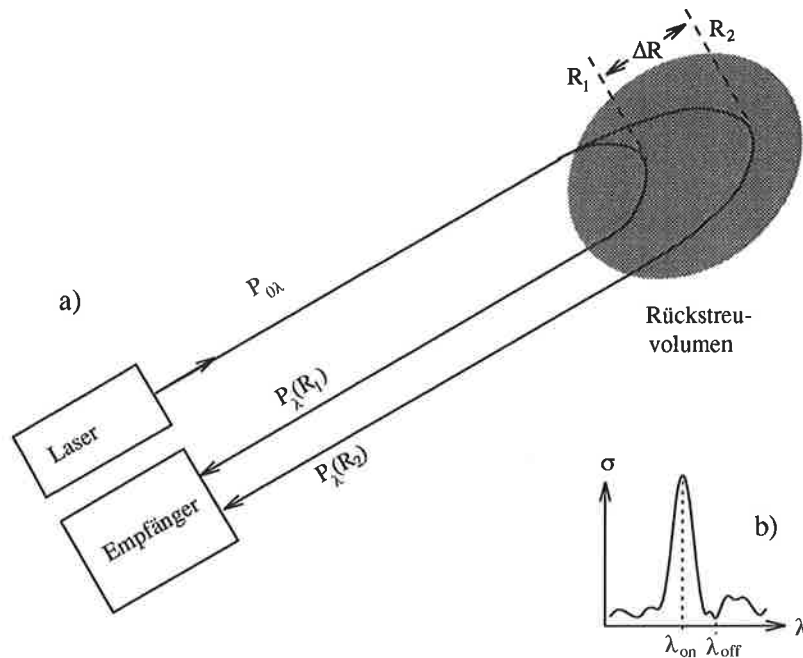


Abbildung 2.1: Das DIAL-Meßprinzip (nach Collis und Russell, 1976).

a) Zwei Wellenlängen ( $\lambda_{on}$  und  $\lambda_{off}$ ) werden (nahezu) gleichzeitig in die Atmosphäre emittiert und die Rückstreusignale beider Wellenlängen in einem Empfänger registriert. Aus dem Verhältnis der Signalintensitäten aus zwei Entfernungen  $R_1$  und  $R_2$  kann die Spurengasdicke im Bereich zwischen  $R_1$  und  $R_2$  berechnet werden.

b) Schematisch dargestellt ist die Abhängigkeit des Absorptionsquerschnitts  $\sigma$  von der Wellenlänge  $\lambda$  und die Lage zweier geeigneter Meßwellenlängen.

mit den Korrekturtermen:

$$B = -\frac{1}{2\Delta\sigma_S\Delta R} \cdot \ln \left( \frac{\beta_{on}(R) \cdot \beta_{off}(R + \Delta R)}{\beta_{off}(R) \cdot \beta_{on}(R + \Delta R)} \right) \quad (2.11)$$

$$T = -\frac{1}{\Delta\sigma_S} \cdot (\Delta\alpha_{Ray} + \Delta\alpha_{Aer}) \quad (2.12)$$

$$Q = -n_Q \cdot \frac{\Delta\sigma_Q}{\Delta\sigma_S} \quad (2.13)$$

wobei  $n$  die Teilchenzahldichte ist, der Index  $S$  für das zu messende Spurengas und der Index  $Q$  für andere atmosphärische Gase steht.  $B$  bezeichnet den differentiellen Rückstreuterm,  $T$  den differentiellen Transmissionsterm und  $Q$  eine Querempfindlichkeit zu anderen Gasen.  $\Delta\sigma (= \sigma_{\lambda_{on}} - \sigma_{\lambda_{off}})$  ist die Differenz der Absorptionsquerschnitte.

Die gesuchte Spurengasdicke kann nach Gl. 2.10 aus den höhenaufgelösten Signalen zweier Wellenlängen bestimmt werden. Liegen die beiden Wellenlängen hinreichend dicht beieinander — z.B. ist bei Wasserdampfmessungen der Frequenzabstand typischerweise kleiner gleich  $0.3 \text{ cm}^{-1}$  —, ist der Fehler durch Nichtberücksichtigung der Korrekturterme  $B$  und  $T$  vernachlässigbar (Schotland, 1974). Die Anwendung des DIAL-Verfahrens für Ozonmessungen, d.h. insbesondere die Wellenlängenauswahl, wird im folgenden Abschnitt diskutiert.

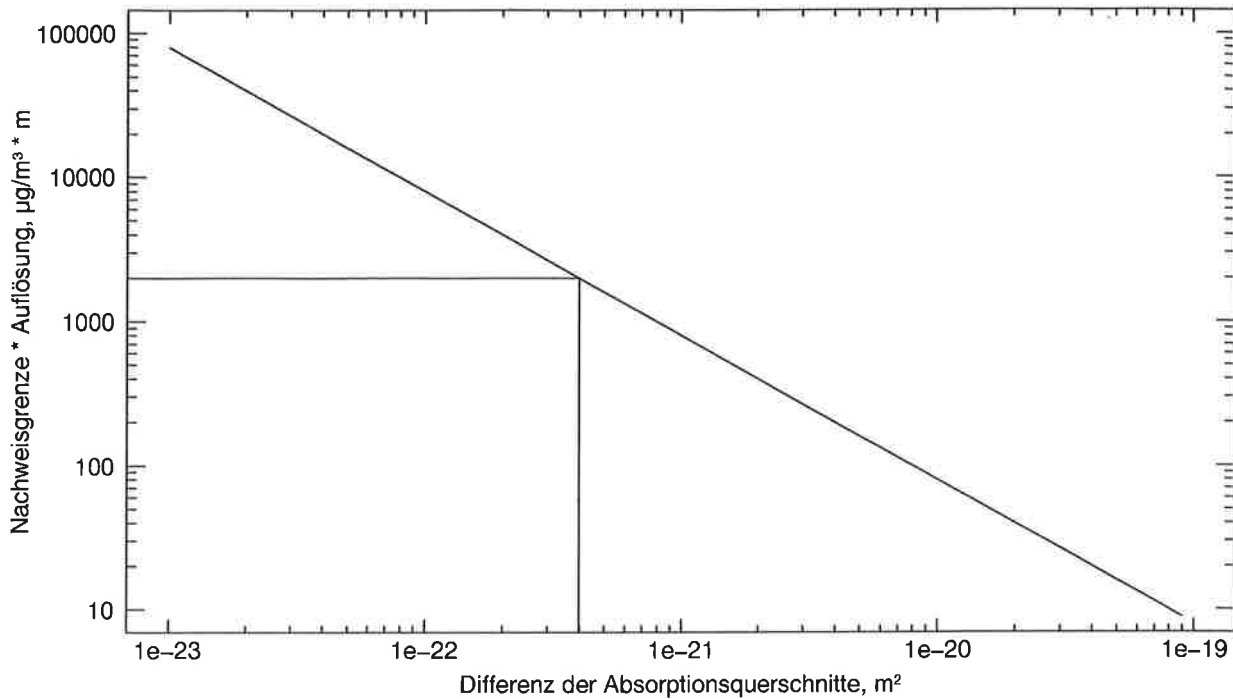


Abbildung 2.2: Nachweisgrenze, berechnet nach Gl. 2.14 mit  $\ln_{\min} = 0.02$ . Eingezeichnet ist die erforderliche Absorptionsquerschnittsdifferenz bei einer Nachweisgrenze von  $20 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  und  $100 \text{ m}$  Höhenauflösung.

## 2.3 Ozonmessung mit DIAL

Wesentlich für die Auswahl einer geeigneten Wellenlänge für Ozon-DIAL-Messungen ist die untere Nachweisgrenze, d.h. die minimale Ozonkonzentration, die noch eindeutig nachzuweisen ist. Unter Vernachlässigung der Korrekturterme folgt aus Gl. 2.10:

$$n_{\min} = \frac{\ln_{\min}}{2\Delta\sigma\Delta R} \quad (2.14)$$

wobei  $\ln_{\min}$  den kleinsten, genau meßbaren Wert des logarithmischen Terms von Gl. 2.10 bezeichnet. Ein typischer Wert für  $\ln_{\min}$  ist 0.02 (Collis und Russell, 1976). Das Produkt aus unterer Nachweisgrenze und räumlicher Auflösung ist in Abb. 2.2 in Abhängigkeit von der Differenz der Absorptionsquerschnitte dargestellt. Typische Ozondichten in der Troposphäre betragen  $20\text{--}200 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ , d.h. es ist eine untere Nachweisgrenze von  $20 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  oder weniger notwendig. Die dadurch minimal erforderliche Absorptionsquerschnittsdifferenz bei einer Höhenauflösung von  $100 \text{ m}$  beträgt  $4 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$  (s. Abb. 2.2).

Für Ozon-DIAL-Messungen kommen prinzipiell drei Spektralbereiche in Frage:

1. der infrarote (IR)
2. der sichtbare
3. der ultraviolette (UV)



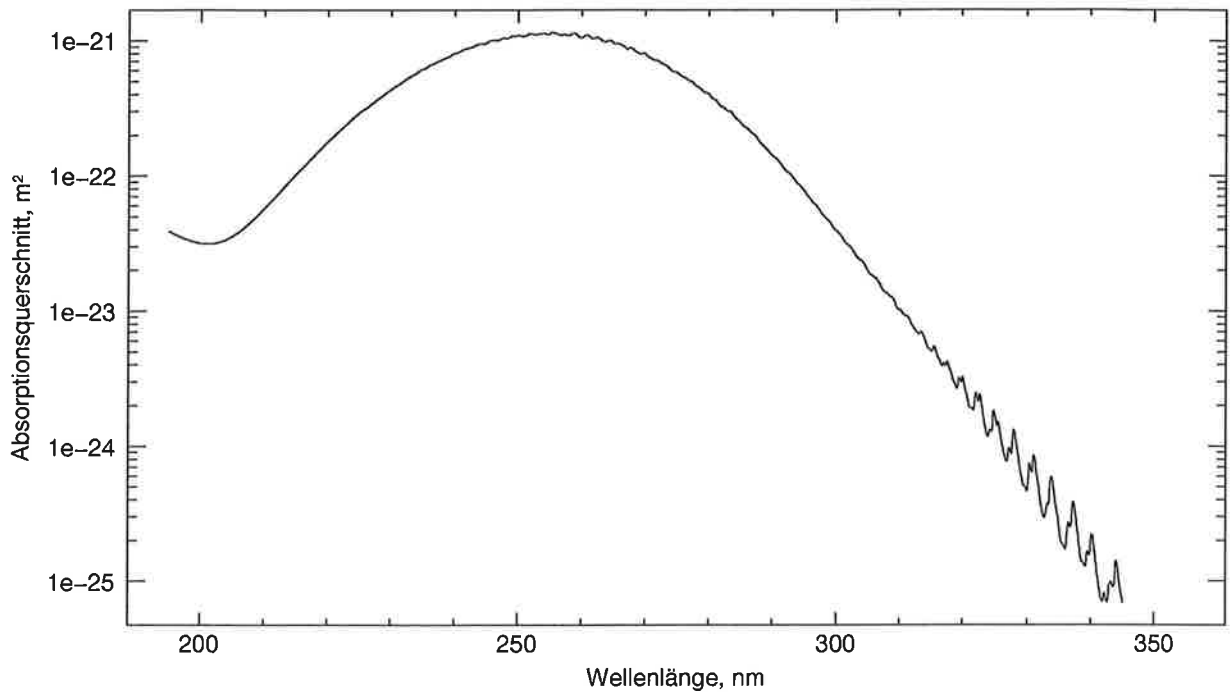


Abbildung 2.3: Ozonabsorptionsquerschnitte im UV. Temperatur: 22 °C, Wellenlängenauflösung: 0.01 nm (nach Daumont et al., 1992).

Im IR gibt es Ozonabsorptionslinien bei 2.7, 3.28, 3.57, 4.75, 5.75, 9.1, 9.6, 14.1  $\mu\text{m}$  (Kondratyev, 1969). Die stärkste Ozonabsorption liegt im Bereich um 9.6  $\mu\text{m}$  mit einem maximalen Absorptionsquerschnitt von ca.  $1 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$ . Dieses ist einen Faktor 4 kleiner als der erforderliche Absorptionsquerschnitt wie oben ermittelt. Dieses bedeutet, daß sich entweder die Nachweisgrenze deutlich erhöht oder bei gleicher Nachweisgrenze die Höhenauflösung reduziert werden muß. Deshalb ist dieser Spektralbereich nur für Messungen in stark belasteten Gebieten mit sehr hohen Ozonkonzentrationen oder in der freien Troposphäre geeignet, wo die Höhenauflösung reduziert werden kann. Dort kommen jedoch, besonders in der oberen Troposphäre, häufig sehr niedrige Aerosolkonzentrationen vor, so daß das Rückstreusignal hauptsächlich von der Rayleighstreuung dominiert wird. Da die Rayleighstreuung proportional zu  $\lambda^{-4}$  ist, sind die Rückstreuintensitäten im IR sehr klein, was zu einem schlechten Signal-zu-Rausch-Verhältnis führt. Somit ist der IR nicht gut für troposphärische Ozon-DIAL-Messungen geeignet.

Im sichtbaren Spektralbereich liegt die Chappuis-Bande. Sie erstreckt sich von 450–750 nm mit einem maximalen Absorptionsquerschnitt von ca.  $6 \cdot 10^{-25} \text{ m}^2$  bei 600 nm. Dieses ist um 3 Zehnerpotenzen kleiner als der geforderte minimale Absorptionsquerschnitt. Somit scheidet der sichtbare Spektralbereich für troposphärische Ozonmessungen aus.

Im UV gibt es die Hartley- (200–320 nm) und die Huggins-Bande (320–360 nm), die in Abb. 2.3 mit einer Auflösung von 0.01 nm dargestellt sind. Zu erkennen ist, daß die Absorptionsquerschnitte über einen breiten Wellenlängenbereich, zwischen 230 und 280 nm,

größer sind als der geforderte Absorptionsquerschnitt von  $4 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$ . Also ist der UV prinzipiell für hochaufgelöste troposphärische Ozon-DIAL-Messungen geeignet. Ein Vorteil bei der Wahl einer Emissionswellenlänge im UV sind große Signalintensitäten, da der Rayleigh-Rückstreuquerschnitt proportional zu  $\lambda^{-4}$  ist. Ferner gibt es bei Wellenlängen unterhalb von 300 nm keinen störenden Tageslichthintergrund. Ein weiterer Vorteil von DIAL-Messungen im UV ist, daß es keine ausgeprägten Absorptionslinien, sondern ein Quasi-Kontinuum gibt (s. Abb. 2.3), da die Energieniveaus des Ozonmoleküls überlappen. Dadurch sind die Anforderungen an das Lasersystem relativ gering. Andererseits hat die Absorptionsbande den Nachteil, daß ein relativ großer Wellenlängenabstand zwischen  $\lambda_{\text{on}}$  und  $\lambda_{\text{off}}$  notwendig ist, um eine hinreichend große Differenz der Absorptionsquerschnitte zu erhalten. Insgesamt muß somit ein Kompromiß gefunden werden: Wenn die zwei Wellenlängen relativ dicht beieinander liegend gewählt werden, so ist die Differenz der Absorptionsquerschnitte klein, so daß die Auflösung gering ist. Wenn ein großer Wellenlängenabstand gewählt wird, so bedeutet das zwar eine hohe Auflösung, dafür aber werden die Korrekturterme in Gl. 2.10 groß. Zusätzlich ist bei der Auswahl der Wellenlängen zu beachten, daß starke Absorption eine gute räumliche Auflösung, gleichzeitig aber nur eine geringe Reichweite ermöglicht, während geringere Absorption eine größere Reichweite, aber eine schlechtere räumliche Auflösung bewirkt.

Festzuhalten bleibt, daß die verwendeten Wellenlängen für troposphärische Ozon-DIAL-Messungen einige Nanometer auseinanderliegen müssen. Die Korrekturterme in Gl. 2.10 dürfen deshalb nicht vernachlässigt werden, da sonst große systematische Fehler auftreten können (Pelon und Mégie, 1982; Browell et al., 1985; Papayannis et al., 1990). Aus diesem Grund werden die Korrekturterme im nächsten Abschnitt gesondert diskutiert.

## 2.4 Korrekturen

In der DIAL-Gleichung 2.10 gibt es drei Korrekturterme: Erstens den differentiellen Rückstreuterm  $B$ :

$$B = -\frac{1}{2\Delta\sigma_S\Delta R} \cdot \ln\left(\frac{\beta_{\text{on}}(R) \cdot \beta_{\text{off}}(R + \Delta R)}{\beta_{\text{off}}(R) \cdot \beta_{\text{on}}(R + \Delta R)}\right)$$

mit:

$$\beta_i = \beta_{\text{Aer}} + \beta_{\text{Ray}}$$

zweitens den differentiellen Transmissionsterm  $T$ :

$$T = -\frac{1}{\Delta\sigma_S} \cdot (\Delta\alpha_{\text{Ray}} + \Delta\alpha_{\text{Aer}})$$

und drittens den Querempfindlichkeitsterm  $Q$ :

$$Q = -n_Q \cdot \frac{\Delta\sigma_Q}{\Delta\sigma_S}$$

Die ersten beiden Korrekturterme werden durch die Rayleigh- und Aerosolstreuung bestimmt. Die Rayleighextinktion und -rückstreuung kann nach Elterman (1968) berechnet werden. Damit ist die Korrektur durch den 1. Summanden von  $T$  bekannt. Wenn für eine Messung die Aerosolkonzentration vernachlässigbar klein ist, wird der differentielle Rückstreuungsterm  $B$  identisch Null, da die Abnahme des Rayleigh-Rückstreukoeffizienten mit der Entfernung unabhängig von der Wellenlänge ist und nur von der Luftdichte abhängt (Gl. 2.5). Nur wenn Aerosolpartikel vorhanden sind, ist der Korrekturterm ungleich Null. Er kann sehr groß werden (Browell et al., 1985), wenn starke Aerosolgradienten vorliegen. Um diesen berechnen zu können, muß im Prinzip das Aerosolrückstreu- und Extinktionsprofil beider Wellenlängen bestimmt werden. Da die Online-Wellenlänge vom zu messenden Spurengas absorbiert wird, dessen Konzentration unbekannt ist, ist eine Bestimmung des Aerosolprofils mit dieser Wellenlänge nicht möglich. Deshalb muß das Aerosolprofil aus der Offline-Wellenlänge bestimmt und die Wellenlängenabhängigkeiten der Aerosolextinktion und -rückstreuung vorgegeben werden.

Es gibt verschiedene Verfahren, um aus dem Lidarsignal einer einzelnen Wellenlänge das Aerosolrückstreu- und -extinktionsprofil zu bestimmen (z.B. Klett, 1981; Ferguson und Stephens, 1983; Klett, 1983; Fernald, 1984; Sasano et al., 1985). Allen Verfahren gemeinsam ist, daß das Verhältnis von Aerosol- zu Rayleighrückstreuung in einer bestimmten Höhe, dem Eichniveau, und das Lidarverhältnis vorgegeben werden müssen. Während die ersten Verfahren die Rayleigh- und Aerosolstreuung noch nicht getrennt behandelten, ist die separate Behandlung das erste Mal von Fernald (1984) eingeführt worden. Für weitere Details sei auf die angegebenen Literaturquellen verwiesen.

Zusätzlich muß zur Bestimmung der Korrekturterme  $B$  und  $T$  noch die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion und -rückstreuung vorgegeben werden. Es wird allgemein angenommen, daß die Extinktion ( $\alpha_{\text{Aer}}$ ) bzw. Rückstreuung ( $\beta_{\text{Aer}}$ ) über eine Potenzfunktion von der Wellenlänge abhängen (Papayannis et al., 1990):

$$\begin{aligned}\alpha_{\text{Aer}} &\sim \lambda^{k_\alpha} \\ \beta_{\text{Aer}} &\sim \lambda^{k_\beta}\end{aligned}$$

wobei  $k_\alpha$  und  $k_\beta$  konstant sind. Auf die Größe dieser beiden Konstanten wird in Kap. 4.2.1 näher eingegangen.

Die Querempfindlichkeit zu anderen Gasen wird durch die verwendeten Wellenlängen bestimmt. Bei der Auswahl der Wellenlängen spielen auch technische Aspekte eine wichtige Rolle. Deshalb werden diese zu Beginn des folgenden Kapitels behandelt und daran anschließend die Wahl der Wellenlängen vorgestellt.



# Kapitel 3

## Systembeschreibung

Das DIAL-System muß nach Kap. 1 folgenden Anforderungen genügen:

1. Möglichkeit zu Routinemessungen
2. Hochaufgelöste Vertikalprofile in der unteren Troposphäre

Die erste Forderung impliziert einfache Bedienung und zuverlässigen Betrieb über lange Zeiträume, die zweite die Notwendigkeit hoher Laserausgangsenergie und hoher Repetitionsrate. Die grundlegenden Alternativen für ein troposphärisches Ozon-DIAL-System im UV sind:

- Farbstofflaser mit Frequenzvervielfachung
- Nd:YAG-Laser (1064 nm) mit Frequenzvervielfachung (266 nm) und nachfolgender Ramanverschiebung in Deuterium (289 nm) und/oder Wasserstoff (299 nm)
- Krypton-Fluorid-Excimerlaser (248 nm) und nachfolgende Ramanverschiebung in Deuterium (268, 292, 319 nm) und/oder Wasserstoff (277, 313 nm)

DIAL-Systeme, die auf Farbstofflasern basieren, besitzen den Vorteil, daß verschiedene Spurengase gemessen werden können, da die Wellenlängen frei wählbar sind. Ein gravierender Nachteil ist jedoch der große Bedienungsaufwand, so daß Farbstofflasersysteme nicht für Routinemessungen geeignet sind (Papayannis et al., 1990; Megie, 1994). Die beiden anderen Varianten sind Festfrequenzlasersysteme, die den Vorteil eines geringen Justieraufwands besitzen und somit für Routinemessungen geeignet sind. Da ein Excimerlaser im Vergleich zum Nd:YAG-Laser sowohl eine größere mittlere Leistung als auch eine höhere Pulsleistung besitzt (Papayannis et al., 1990), wurde ein Krypton-Fluorid-Excimerlaser als Strahlungsquelle gewählt.

Neben den Routinemessungen sollte mit demselben DIAL-System ein möglichst breites Anwendungsspektrum abgedeckt werden. Unter Berücksichtigung der Vielfalt an meteorologischen Prozessen ist dafür Mobilität eine der unabdingbaren Voraussetzungen. Diese wurde verwirklicht durch den Einbau des DIAL-Systems in einen transportablen Standard-20-Fuß-Container (äußere Abmessungen: 6.06 x 2.44 x 2.59 m<sup>3</sup>).

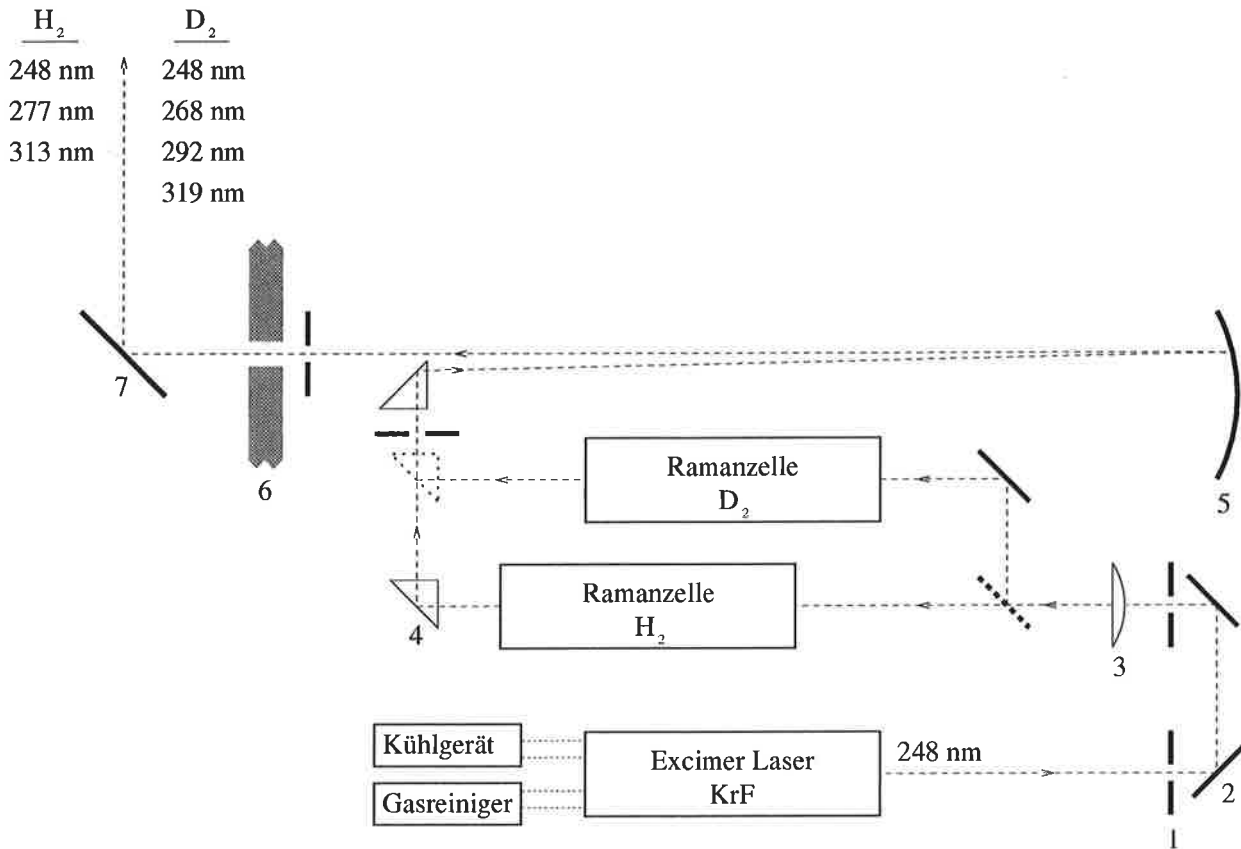


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau der Sendeoptik. 1: Blenden, 2: Umlenkspiegel, 3: Linse ( $f = 1$  m), 4:  $90^\circ$ -Prismen ( $30 \times 30$  mm<sup>2</sup>), 5: Parabolspiegel ( $f = 3$  m,  $\varnothing = 150$  mm), 6: Containerwand, 7:  $90^\circ$ -Umlenkspiegel ( $\varnothing = 100$  mm). Die gepunktet gezeichneten Optiken werden bei Betrieb der hinteren Ramanzelle (mit Deuterium) mittels Repositionierplatten eingesetzt.

### 3.1 Sendeoptik

Der schematische Aufbau der Sendeoptik ist in Abb. 3.1 dargestellt und die wesentlichen technischen Daten sind in Tab. 3.1 zusammengefaßt. Als Lichtquelle dient ein Krypton-Fluorid-Excimerlaser, der mit einem Gasreiniger und einem Kühlgerät verbunden ist. Das emittierte Laserlicht wird mittels zweier Spiegel umgelenkt und durch eine plan-konvexe Linse mit einer Brennweite von 1 m in eine der beiden Ramanzellen fokussiert. Zwischen den beiden Ramanzellen kann mittels einfachen Austauschs eines Spiegels und Prismas umgeschaltet werden. Dieses ist in Abb. 3.1 durch die gepunktet eingezeichneten Optiken angedeutet. Eine Neu- oder Nachjustierung des Strahlenganges innerhalb des Containers ist nicht erforderlich, da die Optiken auf Repositionierplatten (Fa. Newport, Modell M-BK-3) montiert sind, deren Positioniergenauigkeit besser als  $5 \mu\text{rad}$  ist.

Hinter der Ramanzelle wird der Strahl mittels Breitband-Antireflex (BBAR) beschichteter  $90^\circ$ -Prismen umgelenkt. Ein Einsatz von Spiegeln unter  $45^\circ$  ist aufgrund der hohen

<b>Laser</b>	
Hersteller	Lambda Physik
Typ	EMG 150 MSC-T
Wellenlänge	248.5 nm
Pulsenergie	250 mJ
Durchstimmbereich, schmalbandig	0.8 nm
Kopplungsgrad Osz./Verst.	90 %
Polarisation	Horizontal, typ. 70:30
Linienbreite (FWHM), schmalbandig	0.001 nm
Linienbreite (FWHM), breitbandig	0.8 nm
Wiederholungsrate	typ. 10 Hz, max. 80 Hz
Pulsdauer (FWHM)	22 ns
Divergenz (voller Winkel)	< 0.2 mrad
Strahlquerschnitt (vert. x horiz.)	21 x 5 mm <sup>2</sup>
Fenstermaterial	Calcium-Fluorid
Gehäuseabmessungen	200 x 84 x 95 cm <sup>3</sup>
<b>Gasreiniger</b>	
Hersteller	Applied Photonics Inc.
Typ	LPA 70
Betriebstemperatur	-168°C
<b>Kühlgerät</b>	
Hersteller	Etscheid
Typ	AQUACooly, IK-V 5
Kühlleistung	6 kW
Vorlauftemperatur	15°C
<b>Ramanzellen</b>	
Hersteller	LaVison / Eigenbau
Gase	H <sub>2</sub> oder D <sub>2</sub> , evtl. He als Puffergas
Druck	max. 40 bar
Länge	1 m
Fenstermaterial	Suprasil 1, unbeschichtet
Fenstereinbauwinkel	bis Mitte 1993: 56.5° (Brewster-Winkel) ab Mitte 1993: 1°
Einkoppellinse	Plan-konvex, f = 1 m
Kollimator	Parabolspiegel, f = 3 m
Strahlaufweitung	3-fach
Typische Füllung	40 bar H <sub>2</sub> / 40 bar D <sub>2</sub>
Typ. Ausgangsenergie	62/19/19 mJ für 248/277/313 nm (H <sub>2</sub> ) 60/23/13/4 mJ für 248/268/292/319 nm (D <sub>2</sub> )
Strahldivergenz (voller Winkel)	< 0.3 mrad für 248-319 nm

Tabelle 3.1: Senderdaten

Energiedichten und großen Wellenlängenabstände nicht möglich. Zur Kollimation wird ein Parabolspiegel mit dielektrischer Beschichtung und einer Brennweite von 3 m benutzt, wodurch gleichzeitig eine dreifache Strahlaufweitung bewirkt wird. Bis Anfang 1993 wurde zur Kollimation eine plan-konvexe Linse mit der Brennweite 1 m eingesetzt. Aufgrund der chromatischen Aberration der Linse ergab sich eine Differenz von 1.1 mrad zwischen den Strahldivergenzen von 248 und 313 nm. Die stark unterschiedlichen und großen Strahldivergenzen erschwerten die Justierung der Überlappung zwischen Laserstrahl und Gesichtsfeld des Teleskops erheblich. Mit dem derzeitigen Aufbau wurden Strahldivergenzen bis zu 0.3 mrad für die Wellenlängen 248–319 nm festgestellt (Matthias und Senff, 1994).

Der rekollimierte Strahl trifft durch ein Loch in der Containerwand auf einen planen Spiegel, der eine vertikale Umlenkung bewirkt, da das DIAL-System im Routinebetrieb ausschließlich in vertikaler Ausrichtung betrieben wird. Der Umlenkspiegel kann mittels Motor-mikrometerschrauben der Fa. LOT verstellt werden, so daß gleichzeitig die Strahleinstellung und Kontrolle auf einem Monitor vom Bedienungsplatz aus erfolgen kann.

Zusätzlich sind im Strahlengang an verschiedenen Stellen Blenden installiert, die den Streulichtanteil reduzieren.

### 3.1.1 Laser

Verwendet wird ein Krypton-Fluorid-Excimerlaser in Oszillator-Verstärker-Anordnung. Diese Konfiguration ermöglicht einen schmalbandigen, polarisierten und durchstimmbaren Betriebsmodus. Die Wellenlängenselektion erfolgt durch ein Gitter, das über eine Motormikrometerschraube verstellt werden kann. Der Laser ist mit Fenstern aus Calcium-Fluorid ausgestattet, die im Gegensatz zu Magnesium-Fluorid die Polarisationssebene nicht drehen.

Im Dauerbetrieb des Lasers wurde festgestellt, daß sich Beläge auf den Fensterinnenseiten der Oszillator- und Verstärkerröhre niederschlagen. Ursache dafür sind chemische Verunreinigungen, die hauptsächlich durch elektrische Entladungen in den Laserröhren entstehen. Die Laserausgangsenergie sinkt aufgrund dieser Beläge um ca. 50% nach ungefähr  $10^6$  Laserpulsen. Zur Instandsetzung des Lasers ist es dann notwendig die Fenster auszubauen und zu polieren, wonach die Laserjustierung überprüft werden muß. Da  $10^6$  Laserpulse lediglich 28 h Betriebsdauer bei 10 Hz Schußrate (ein typischer Betriebszustand) entsprechen, ist der Laser so nicht für Routinemessungen geeignet. Deshalb wurde Anfang 1993 ein Gasreiniger in Betrieb genommen, der bei  $-168^\circ\text{C}$  die chemischen Verunreinigungen ausfriert, die sich sonst als Belag auf den Fensterinnenflächen niederschlagen würden.

Da die Ausgangsenergie des Lasers im wesentlichen von der Fensterqualität des Verstärkers abhängt, wurde der Gasreiniger an den Verstärker angeschlossen. Der Anschluß beider Laserröhren an denselben Gasreiniger ist nicht möglich, da Oszillator und Verstärker mit verschiedenen Gasdrücken betrieben werden, wodurch eine zeitliche Verzögerung der Zündzeitpunkte erreicht wird. Der Gasreiniger erhöht die Laserpulsanzahl bis zum Fensterwechsel mindestens um einen Faktor 10.



	Wasserstoff $k' = 4155 \text{ cm}^{-1}$	Deuterium $k' = 2991 \text{ cm}^{-1}$
Ausgangswellenlänge	248.5 nm	
1. Stokes	277.1 nm	268.5 nm
2. Stokes	313.2 nm	291.9 nm
3. Stokes	—	319.8 nm

Tabelle 3.2: Für troposphärische DIAL-Messungen zur Verfügung stehende Wellenlängen.

Für einen routinemäßigen, schmalbandigen Betrieb des Lasers wäre somit ein zweiter Gasreiniger notwendig. Es stellte sich jedoch heraus, daß auch ein breitbandiger Betrieb ohne Oszillator möglich ist (s. nächsten Abschnitt), so daß seit Juni '93 der Oszillator im Routinebetrieb abgeschaltet wird.

### 3.1.2 Stimulierte Ramanstreuung

Zur Erzeugung der für DIAL-Messungen notwendigen Wellenlängen wird der Effekt der stimulierten Ramanstreuung (SRS) genutzt. Eine Zusammenstellung der Wellenlängen, die durch SRS in Wasserstoff oder Deuterium erzeugt werden und für troposphärische Ozonmessungen zur Verfügung stehen, findet sich in Tab. 3.2. Eine ausführliche Beschreibung des Effekts sowie die Ergebnisse einer Untersuchung diverser Betriebsparameter sind in Schaberl (1990) veröffentlicht.

Bei Betrieb der ersten Ramanzelle stellte sich heraus, daß eine dielektrische BBAR-Beschichtung der Fenster auf der Zelleninnenseite, im Gegensatz zur Außenseite, den Belastungen eines Langzeitbetriebes nicht standhielt. Deshalb wurde versucht, die Reflexionsverluste durch Einbau der Fenster unter Brewsterwinkel ( $56.5^\circ$ )<sup>1</sup> zu minimieren. Dabei ergaben sich folgende Probleme:

1. Das größte Problem war das Auftreten von stimulierter Rotations-Ramanstreuung (SRRS). Dieses ist daran zu erkennen, daß jede Vibrationslinie zusätzlich von einer oder mehreren Linien umgeben ist, die durch Übergänge zwischen den Rotationsniveaus der Moleküle entstehen. Aufgrund der kleineren Energieabstände ist die Frequenzverschiebung im Vergleich zu Vibrationsanregungen deutlich geringer und beträgt bei Wasserstoff ca.  $600 \text{ cm}^{-1}$  sowie bei Deuterium ca.  $400 \text{ cm}^{-1}$ . Ein Beispiel für ein Emissionsspektrum mit Rotationslinien ist in Abb. 3.2 dargestellt. Das Spektrum wurde mit einem Spektrometer ausgestattet mit einem Diodenarray aufgezeichnet.

Da die Rotationslinien im Empfänger nicht hinreichend von den Vibrationslinien getrennt werden, die Ozonabsorptionskoeffizienten jedoch erheblich differieren, verursacht

<sup>1</sup>Winkel zwischen der Fensterflächennormalen und der optischen Achse

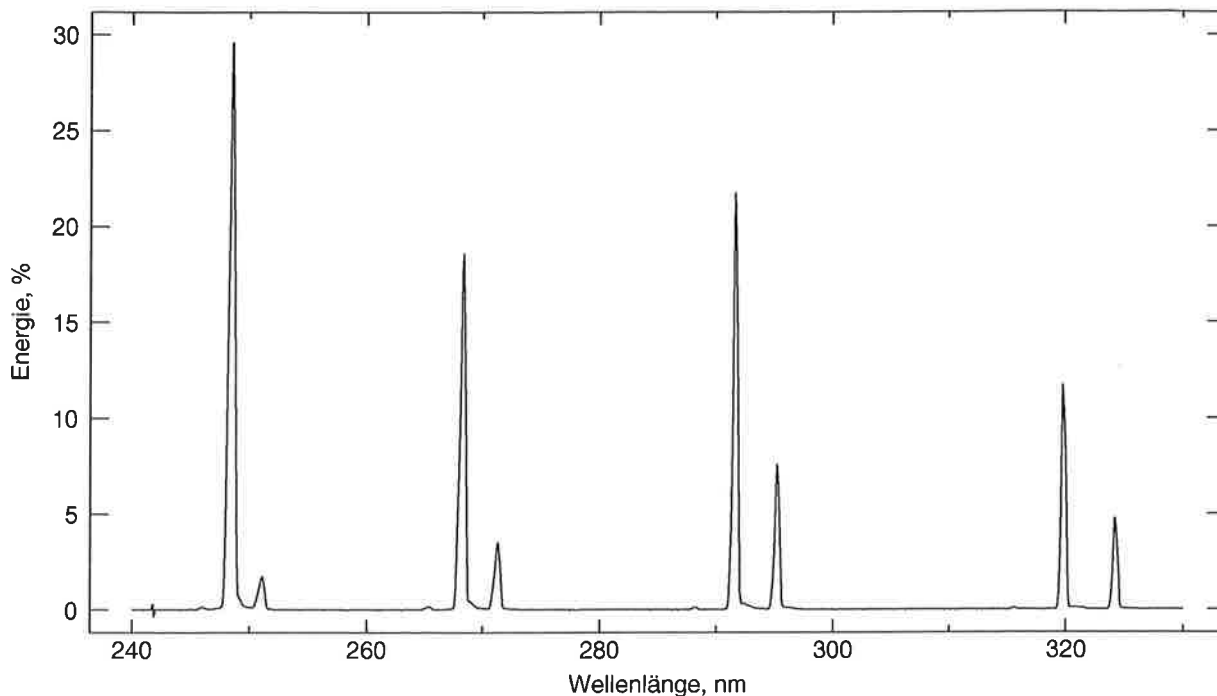


Abbildung 3.2: *Emissionsspektrum mit Rotationslinien. Neben den durch SRS erzeugten Wellenlängen gibt es weitere mit kleinerer Energie, die durch SRRS entstanden sind. Gasfüllung: 40 bar Deuterium.*

das Auftreten zusätzlicher Rotationslinien systematische Fehler. Eine Korrektur wäre sehr aufwendig, so daß das Auftreten dieses Effekts vermieden werden sollte.

Es wurde festgestellt, daß höhere Gasdrücke die Effizienz der SRRS reduzieren, d.h. daß die Energie in den Rotationslinien bei höheren Gasdrücken niedriger ist. Dieses gilt für SRS in Wasserstoff und Deuterium. Dennoch wurde mit den verwendeten Ramanzellen sogar in 40 bar Deuterium trotz eines nahezu 100% linear polarisierten Laserstrahls SRRS beobachtet (vgl. Abb. 3.2). Hingegen genügten Krause (1990) in 2 bar Deuterium bereits 75% lineare Polarisation, um den Anteil der SRRS unter die Nachweisgrenze zu drücken. Carnuth und Trickl (1992), die ebenfalls den gleichen Lasertyp aber andere Ramanzellen verwendeten, haben niemals SRRS beobachten können. Wenngleich somit einige Indizien dafür sprechen, daß ein Zusammenhang zwischen dem Kippwinkel der Fenster und dem vermehrten Auftreten von SRRS besteht, konnte dieser nicht eindeutig nachgewiesen werden.

Wenn der Laser schmalbandig betrieben wurde, war der einzige rotationslinienfreie Betriebszustand eine Füllung der Ramanzelle mit 40 bar Wasserstoff (Nachweisgrenze ca. 0.1 mJ). Bei Füllung mit Deuterium wurde selbst bei 40 bar Gasdruck SRRS beobachtet (vgl. Abb. 3.2). Nur wenn der Oszillator abgeschaltet wurde, so daß der Laser breitbandig emittierte, wurde auch in Deuterium keine SRRS registriert, da die verbreiterte Laserlinie zu einer Reduktion des Verstärkungsfaktors führte. Aufgrund

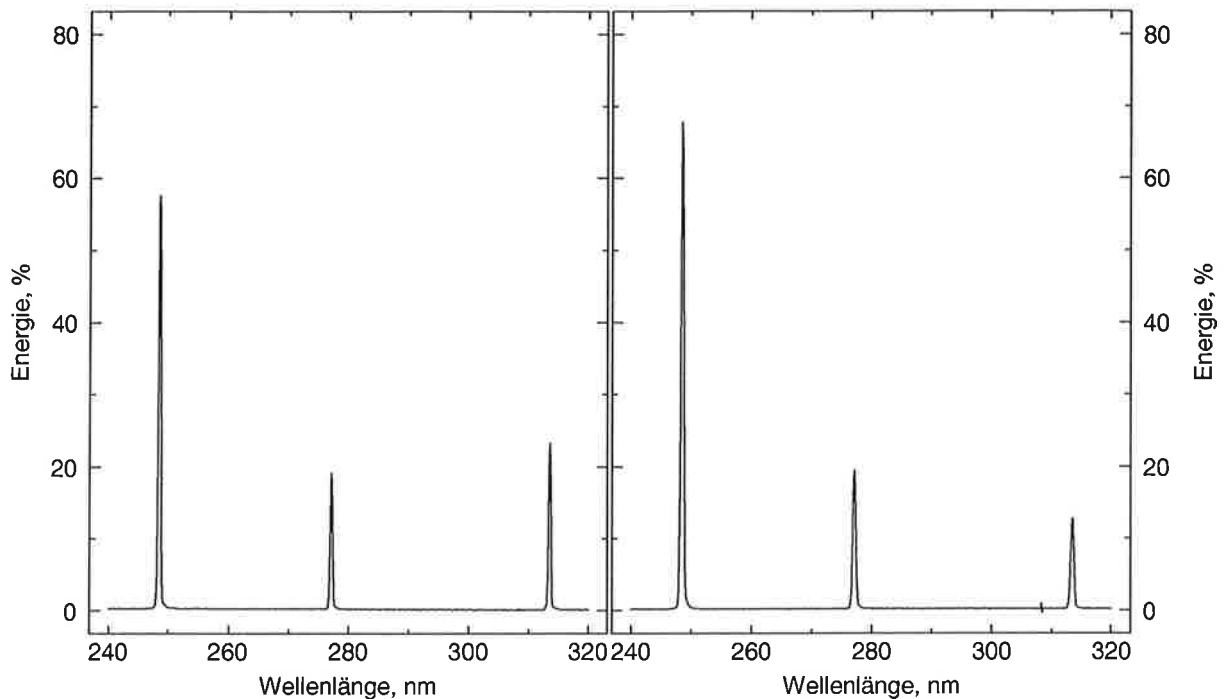


Abbildung 3.3: Vergleich der Emissionsspektren bei schmal-/breitbandigem Laserbetrieb. links: schmalbandiger, rechts: breitbandiger Laserbetrieb. Gasfüllung: 20 bar Wasserstoff + 20 bar Helium.

des großen Kippwinkels der Fenster sind jedoch die Reflexionsverluste dieses Betriebszustands sehr groß.

2. Ein weiteres Problem gab es mit der Strahljustierung. Bedingt durch den großen Kippwinkel des Fensters relativ zum Strahlengang, bewirkten bereits kleine Brechungsindexänderungen eine merkliche Änderung des Strahlenganges, z.B. machte eine Temperaturerhöhung im Container um wenige Grad eine Nachjustierung erforderlich. Ferner war ein Wechsel des Gases oder Druckes erheblich erschwert, da danach der optische Strahlengang neu justiert werden mußte.

Aus diesen Gründen wird der Oszillator seit Juni 1993 im Meßbetrieb abgeschaltet, so daß der Laser breitbandig und unpolarisiert emittiert. Außerdem werden seitdem Ramanzellen mit Fenstern unter  $1^\circ$ -Kippwinkel verwendet. Dieser Winkel ist ausreichend, um zu verhindern, daß Reflexe von den Fenstern in den Laser zurückgelangen, wo sie Schäden an der Optik verursachen würden. Die Vor- und Nachteile dieser beiden Maßnahmen sind:

#### Vorteile

- nur ein Gasreiniger notwendig
- keine SRRS
- hohe Zuverlässigkeit

#### Nachteile

- Geringere Effizienz für SRS
- Querempfindlichkeit zu  $\text{SO}_2$  kann nicht minimiert werden
- Geringere Ausgangsenergie

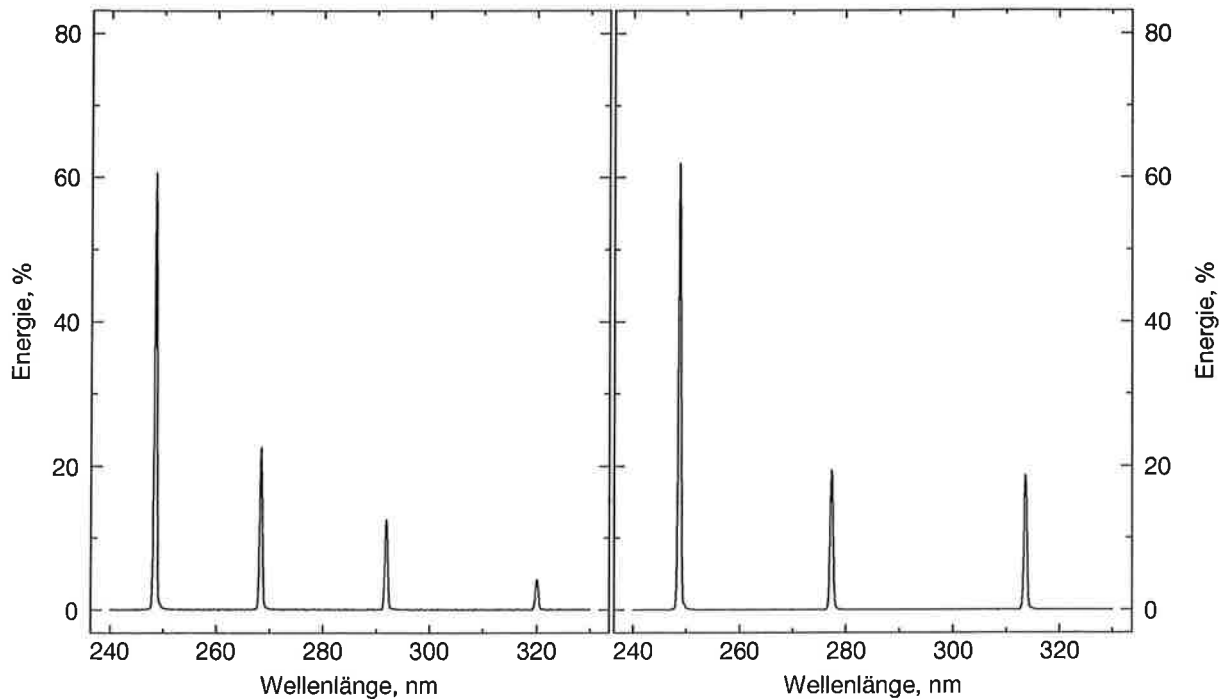


Abbildung 3.4: *Typische Emissionsspektren bei Laserbreitbandbetrieb. Gasfüllung: links: 40 bar Deuterium, rechts: 40 bar Wasserstoff.*

Die Vorteile sind oben bereits ausreichend erörtert. Nachteilig ist, daß die Effizienz der SRS durch die größere Laserlinienbreite sinkt. Als Beispiel ist in Abb. 3.3 das durch SRS erzeugte Emissionsspektrum in 20 bar Wasserstoff plus 20 bar Helium gezeigt. Das linke Spektrum wurde bei schmalbandigem Laserbetrieb aufgenommen. Die Energie, die unmittelbar vor der Ramanzelle gemessen wurde, betrug 188 mJ. Beim rechten Spektrum wurde der Oszillator abgeschaltet. Dadurch ging die Energie vor der Ramanzelle auf 175 mJ zurück. Beide Spektren sind so normiert, daß die Summe der Energien der dargestellten Wellenlängen 100 beträgt. Im Breitbandbetrieb ist in der 2. Stokes-Ordnung (313 nm) ein deutlicher Energierückgang zu erkennen, während die Energie der Ausgangswellenlänge (248 nm) zunimmt. Aufgrund der geringeren Effizienz ist der Betrieb mit 40 bar Raman-aktivem Gas, d.h. ohne Verwendung eines Puffergases, am günstigsten. Die aktuellen Emissionsspektren, erzeugt durch SRS in 40 bar Deuterium bzw. Wasserstoff bei breitbandigem Laserbetrieb sind in Abb. 3.4 dargestellt.

Da die Wellenlänge im Breitband-Betrieb nicht abstimmbare ist, kann die Querempfindlichkeit zu Schwefeldioxid nicht minimiert werden. Auf die Auswirkungen wird in Kapitel 5.1.4 noch näher eingegangen. Ferner nimmt im breitbandigem Betrieb die Laserausgangsenergie ab. Da diese Abnahme jedoch kleiner als 10% ist und noch ausreichend Energie in den Raman-verschobenen Linien zur Verfügung steht, hat dieser Effekt in der Praxis kaum Bedeutung.

Krause (1990) hat für verschiedene Ordnungen der SRS in 40 bar Wasserstoff Strahldivergenzen bis zu 2.0 mrad festgestellt. Hingegen wurden mit dem vorgestellten Aufbau lediglich Strahldivergenzen bis zu 0.3 mrad bei 10 Hz Repititionsrate beobachtet. Dieses ist auf mehrere Ursachen zurückzuführen:

- Verwendung eines Parabolspiegels anstelle einer Linse zur Strahlkollimation
- Dreifache Strahlaufweitung
- Strahlformung durch Blenden vor und hinter der Ramanzelle
- Niedrigere Pulsrate

Insbesondere bei Erhöhung der Pulsrate (ab 15–20 Hz) wurde eine wesentliche Vergrößerung der Strahldivergenzen beobachtet. Dieses ist wahrscheinlich auf thermische Effekte in der Ramanzelle zurückzuführen.

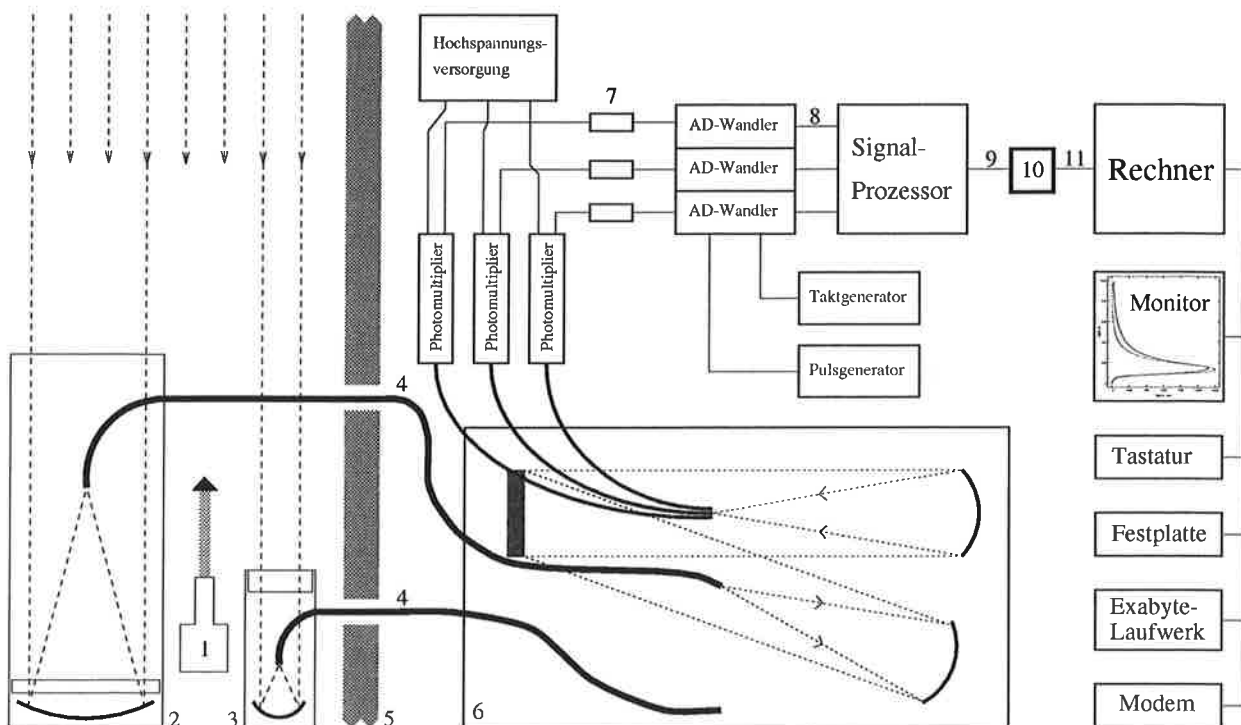


Abbildung 3.5: Schematischer Aufbau der Empfangsoptik und -elektronik. 1: Strahlaustritt, 2: Großes Teleskop, 3: Kleines Teleskop, 4: Glasfaser, 5: Containerwand, 6: Spektrometer, 7: Vorverstärker, 8: Mix-Bus, 9: VME-Bus, 10: Schnittstellenwandler, 11: S-Bus

## 3.2 Empfangsoptik und -elektronik

Der Aufbau der Empfangsoptik und -elektronik ist in Abb. 3.5 skizziert. Die wichtigsten technischen Daten sind in Tab. 3.3 zusammengefaßt. Bei dem hier vorgestellten DIAL-System wird der Nahbereich durch einen bistatischen Aufbau, d.h. eine räumliche Trennung von Teleskop und Sendestrahle, geometrisch unterdrückt. Die rückgestreuten Signale können wahlweise mit einem von zwei Teleskopen empfangen werden. Da alle erzeugten Wellenlängen gleichzeitig in die Atmosphäre emittiert werden, müssen sie durch die Empfangsoptik getrennt werden. Dieses geschieht in einem Spektrometer, das die gleichzeitige Messung von bis zu sieben Wellenlängen ermöglicht. Die optische Kopplung zwischen den Teleskopen und dem Spektrometer erfolgt mittels Glasfasern. Ebenso sind die Ausgänge des Spektrometers mit Glasfasern ausgestattet, die die Ausgangssignale an Photomultiplier (PMT) weiterleiten. Die Ausgangssignale der PMT werden nach Verstärkung durch Strom-Spannungs-Verstärker mittels AD-Wandler digitalisiert. Nach Mittelung werden die Signale an eine Sun-Workstation übermittelt. Dort können die Signale graphisch dargestellt und auf Festplatte gespeichert werden. Die einzelnen Komponenten werden im folgenden Abschnitt näher vorgestellt.

Zur zeitlichen Abstimmung des Lasers und der Aufzeichnungselektronik dient ein Puls- und Verzögerungsgenerator der Firma Stanford Research, Modell DG 535, mit einer maximalen Auflösung von 50 ps, bei einer Laserpulsdauer von 22 ns.

Teleskope		
	Teleskop 1 (groß)	Teleskop 2 (klein)
Konfiguration	Primärer Fokus	
Spiegelform	parabolisch	
Brennweite	1200 mm	450 mm
Durchmesser	400 mm	150 mm
Öffnungsverhältnis	f:3	
Beschichtung	Aluminium-Reflexschicht mit Quarzschicht	
Ausgang	Quarzfaser, $\varnothing_{Kern} = 1.2 \text{ mm}$ , $NA = 0.2$	
Gesichtsfeld (voller Winkel)	1.0 mrad	2.7 mrad
Typ. Abstand der optischen Achsen	370 mm	175 mm
Teleskop – Sendestrahl		
Typ. Signalnutzbereich für DIAL-Messungen	800–2200 m	200–800 m
Schutzplatte		
Material	Suprasil 1	
Beschichtung	dielektrische BBAR	
Dicke	21 mm	10 mm
Spektrometer		
Typ	modifizierter Czerny-Turner	
Eingang	1.2 mm Quarzfaser	
Ausgang	7 Quarzfasern mit 1.5 mm Kerndurchmesser	
Öffnungsverhältnis	f:2.5	
Lineare Dispersion	0.36 mm/nm	
Transmission	ca. 50%	
Gitter	plan, geritzt, geblazed, 1200 Striche/mm	
Kollimatorspiegel	parabolisch, $f = 280 \text{ mm}$ , $\varnothing = 130 \text{ mm}$	
Fernrohrspiegel	sphärisch, $f = 280 \text{ mm}$ , $\varnothing = 150 \text{ mm}$	
Datenerfassung		
Photomultiplier	Thorn EMI, 9883 QB	
Vorverstärker	Analog Modules 310-3, 10 Hz – 10 MHz, $25 \frac{\text{V}}{\text{mA}}$	
AD-Wandler	Pentek, 12 Bit, 10 MHz	
Rechner	Sun-Workstation	
Typische Auflösung		
	Zeitlich	Räumlich
Datenaufzeichnung	10 s	15 m
Ozонаuswertung	60 s	75 m

Tabelle 3.3: Empfängerdaten

### 3.2.1 Teleskope

Beide Teleskope sind als Primärer-Fokus-Typ aufgebaut. Jedes besteht aus einem Parabolspiegel mit Aluminium-Beschichtung, der durch eine BBAR-beschichtete Planparallelplatte gegen Umwelteinflüsse abgeschirmt ist. Im Brennpunkt jedes Spiegels befindet sich eine Halterung für das Ende einer Glasfaser. Beide Fasern, bestehend aus Quarzglas, werden durch kleine, verschließbare Öffnungen in den Container hineingeführt. Da beide Teleskope außerhalb des Containers montiert sind, sind die optischen Teile zum Schutz vor mechanischen und atmosphärischen Einflüssen in je einem Aluminium-Gehäuse untergebracht. Um Feuchtigkeit aus dem Teleskopinnern zu entfernen und so ein Beschlagen der Optiken zu verhindern, können beide Teleskope mit trockener und vorgewärmter Luft durchspült werden.

Um die Überlappung zwischen Sendestrahle und Gesichtsfeld des größeren Teleskops einstellen zu können, kann der Sendestrahle über den äußeren Umlenkspiegel, der mit Motormikrometerschrauben ausgerüstet ist, verkippt werden. Damit die Überlappungseinstellungen zwischen Sendestrahle und kleinerem bzw. größerem Teleskop unabhängig voneinander vorgenommen werden können, ist das kleinere Teleskop ebenfalls mit Motormikrometerschrauben ausgestattet.

Bedingt durch die unterschiedlichen Abstände Strahlaustritt – Teleskop werden verschiedene Höhenbereiche abgedeckt. Bislang konzentrierten sich die Messungen auf die Grenzschicht und untere freie Troposphäre, so daß die Abstände minimiert wurden, um in möglichst geringer Entfernung mit der Auswertung beginnen zu können. Das kleinere Teleskop mit einem Durchmesser von 15 cm deckt derzeit einen Höhenbereich von ca. 200–800 m ab und wird damit vorwiegend für Messungen in der Grenzschicht eingesetzt. Das größere Teleskop mit einem Durchmesser von 40 cm deckt derzeit einen Höhenbereich von ca. 800–2200 m ab und ist damit für Messungen in der oberen Grenzschicht und/oder unteren freien Troposphäre geeignet. Durch eine Veränderung des Abstands sind auch andere Höhenmeßbereiche möglich.

### 3.2.2 Spektrometer

Die spektrale Aufspaltung der empfangenen Strahlung erfolgt mit einem selbstkonstruierten Spektrometer, das in Schaberl (1990) detailliert beschrieben ist. Es handelt sich um einen modifizierten Czerny-Turner-Typ, bestehend aus einer Glasfaser als Eingang, einem Parabolspiegel mit dielektrischer Beschichtung als Kollimatorspiegel, einem ebenen, geritzten Gitter als wellenlängenselektivem Element und einem sphärischen Hohlspiegel als Fernrohrspiegel. Als Ausgänge können gleichzeitig bis zu sieben Glasfasern, jeweils mit einem Kerndurchmesser von 1.5 mm, installiert werden. Die Abstände der Fasern untereinander sind fixiert, jedoch sind alle gemeinsam in x,y,z-Richtung justierbar.

Eine Untersuchung der Abbildungseigenschaften des Spektrometers hat ergeben, daß der Durchmesser des Brennpunktes am Ausgang bei Verwendung einer Eingangsfaser mit 1 mm Kerndurchmesser ca. 1.2 mm betrug, was besser ist als der theoretisch berechnete Wert von ca. 1.4 mm (Schaberl, 1990, S. 40). Dieses kann dadurch erklärt werden, daß ein Öffnungs-



verhältnis von  $f:2.5$  bei der Berechnung der Abbildungsfehler vorausgesetzt wurde, währenddessen in die Glasfasern jedoch nur mit  $f:3$  eingekoppelt wird. Dieses Öffnungsverhältnis bleibt bei 2–3 m Faserlänge weitestgehend erhalten. Aufgrund des geringeren Abbildungsfehlers ist der Einsatz einer etwas weiteren Eingangsfaser mit 1.2 mm Kerndurchmesser möglich, was Anfang 1993 realisiert wurde. Sie vergrößert das Gesichtsfeld der Teleskope und bringt damit den Vorteil einer einfacheren und stabileren Strahleinstellung. Ein Einsatz von Faserbündeln hat sich aufgrund der vielen blinden Flecke, die Faserbündel besitzen, als ungeeignet erwiesen.

Das Spektrometer war zunächst nur für den Betrieb eines Teleskops ausgelegt (Änderung im Mai 1994). Somit mußte zwischen den beiden Teleskopen umgeschaltet werden, was durch Austausch der Glasfaser am Spektrometereingang geschah. Ein Umschalten dauerte ca. 5–10 min, da zusätzlich die Überlappung von Laserstrahl und Teleskopgesichtsfeld kontrolliert und gegebenenfalls korrigiert werden mußte.

### 3.2.3 Detektoren und Datenerfassung

Als Detektoren für alle Kanäle, typischerweise drei, werden Photomultiplier (PMT) im Analog-Modus betrieben, d.h. das Meßsignal ist ein Strom, dessen Stärke proportional zur einfallenden Strahlungsenergie ist. Zur Kopplung eines PMT mit einer Ausgangsfaser des Spektrometers dient eine eigens angefertigte Halterung, in die gleichzeitig ein Solar-Blind-Filter der Fa. Corion integriert ist. Dieser absorbiert eventuell in die Faser gelangtes Streulicht des sichtbaren Spektrums. Ein Wechsel der Wellenlängen ist somit ebenfalls einfach durch ein Umstecken der Glasfasern möglich. Die Stromsignale der PMT werden durch Strom-Spannungs-Verstärker in Spannungssignale gewandelt und dann mittels AD-Wandler mit 12 Bit und 10 MHz ( $\equiv 15$  m) Auflösung digitalisiert. Die digitalisierten Signale werden an einen Signalprozessor weitergeleitet, der für jeden Kanal getrennt Mittelwert und Standardabweichung sowie den prozentualen Anteil an Übersteuerungen berechnet. Diese Daten werden an einen Computer der Fa. Sun übermittelt. Neben einer Speicherung der Datensätze auf Festplatte ist gleichzeitig eine graphische Darstellung der Signale möglich. Auf einem Monitor werden neben den Signalen auch der prozentuale Anteil an Übersteuerungen sowie die Logarithmen der entfernungskorrigierten Signale dargestellt. Diese Informationen sind zum einen notwendig, um die richtige Strahleinstellung, d.h. die korrekte Überlappung zwischen Sendestrahl und Gesichtsfeld des Teleskops finden zu können und zum anderen, um bei den Messungen Aufschluß über die meteorologische Situation und den Zustand des Systems zu geben. Die Anzahl der Laserpulse, über die gemittelt werden soll, ist mittels Computerprogramm frei einstellbar. Sie beträgt typischerweise 100 Schuß ( $\equiv 10$  s Zeitauflösung bei 10 Hz Schußrate). Die auf Festplatte gespeicherten Meßdaten werden auf eine Exabyte-Kassette ausgelesen, um sie auf anderen Rechnern sichern und auswerten zu können.

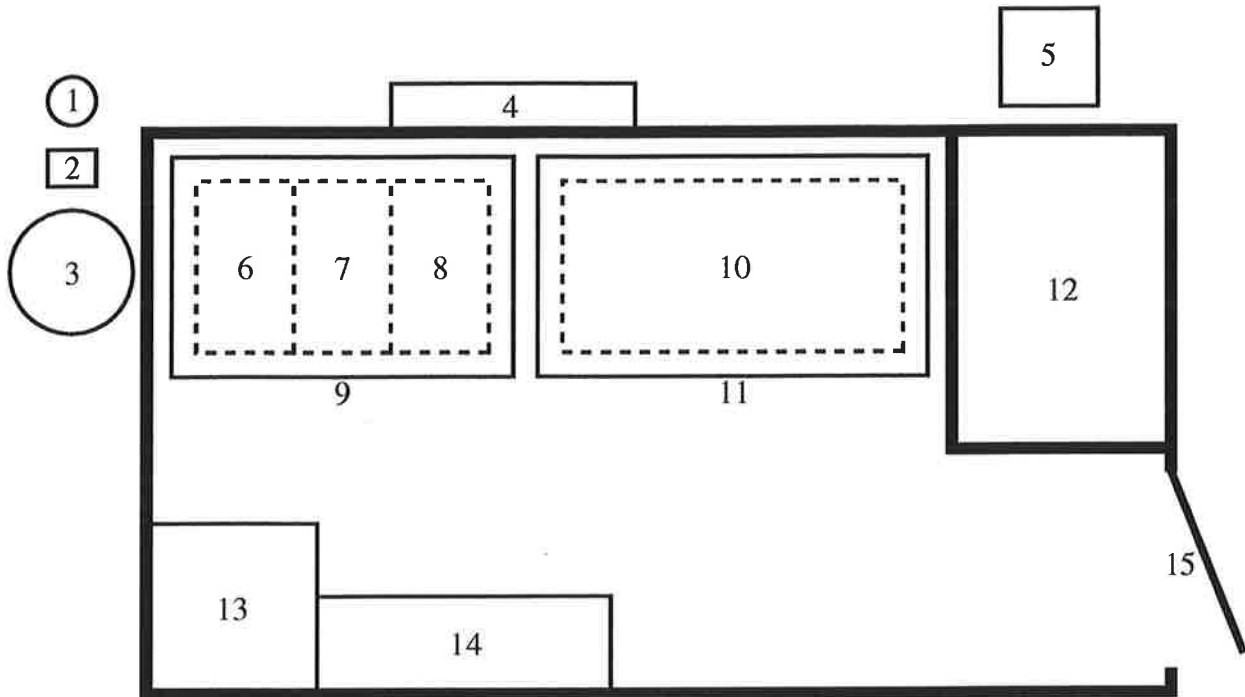


Abbildung 3.6: Schematische Übersicht des Gesamtaufbaus. 1: kleines Teleskop, 2: Strahlaustritt, 3: großes Teleskop, 4: Gasversorgung, 5: Kühlgerät, 6: 19''-Gestell mit Elektronik, 7: Gasreiniger, 8: Laser-Netzgerät, 9: optischer Tisch mit Empfangsoptik, 10: Excimerlaser, 11: optischer Tisch mit Sendeoptik, 12: Abstellraum, 13: Abgeschirmtes 19''-Gestell, 14: Bedienungsplatz, 15: Tür

### 3.3 Systemübersicht

Eine Übersicht des Systemaufbaus ist in Abb. 3.6 gezeigt. Der Container besitzt isolierte Wände, Fenster und eine Klimaanlage, um ein Arbeiten auch unter widrigen meteorologischen Bedingungen zu ermöglichen, sowie die Funktion der empfindlichen Instrumente sicherzustellen.

Im Container befinden sich zwei große optische Tische. Diese bestehen aus einem Gestell aus X95-Profilen der Fa. Spindler & Hoyer und Tischplatten der Fa. Newport, Serie M-LS. Während eines Containertransports werden die Tische stoßdämpfend gelagert, um die darauf befindliche Optik zu schützen. Im Meßbetrieb sind die Tische starr mit zwei massiven Stahl-T-Trägern verbunden, die im Boden des Containers fest mit dem Rahmen verschweißt sind. Dieser Aufbau gewährleistet die für ein Lidarsystem notwendige Strahlstabilität. Auf dem größeren optischen Tisch ist der Hauptteil der Sendeoptik montiert. Unter dem Tisch ist der Laser plaziert, der ebenfalls während eines Transports stoßdämpfend gelagert und während des Betriebes fest mit den T-Trägern verbunden wird. Auf dem zweiten Tisch ist der Hauptteil der Empfangsoptik sowie ein Diodenarray-Spektrometer zur Kontrolle des Emissionsspektrums montiert. Unterhalb des Tisches befindet sich ein 19''-Gestell mit einem Teil der Steuer- und Aufzeichnungselektronik sowie ein Gasreiniger und das Netzgerät für

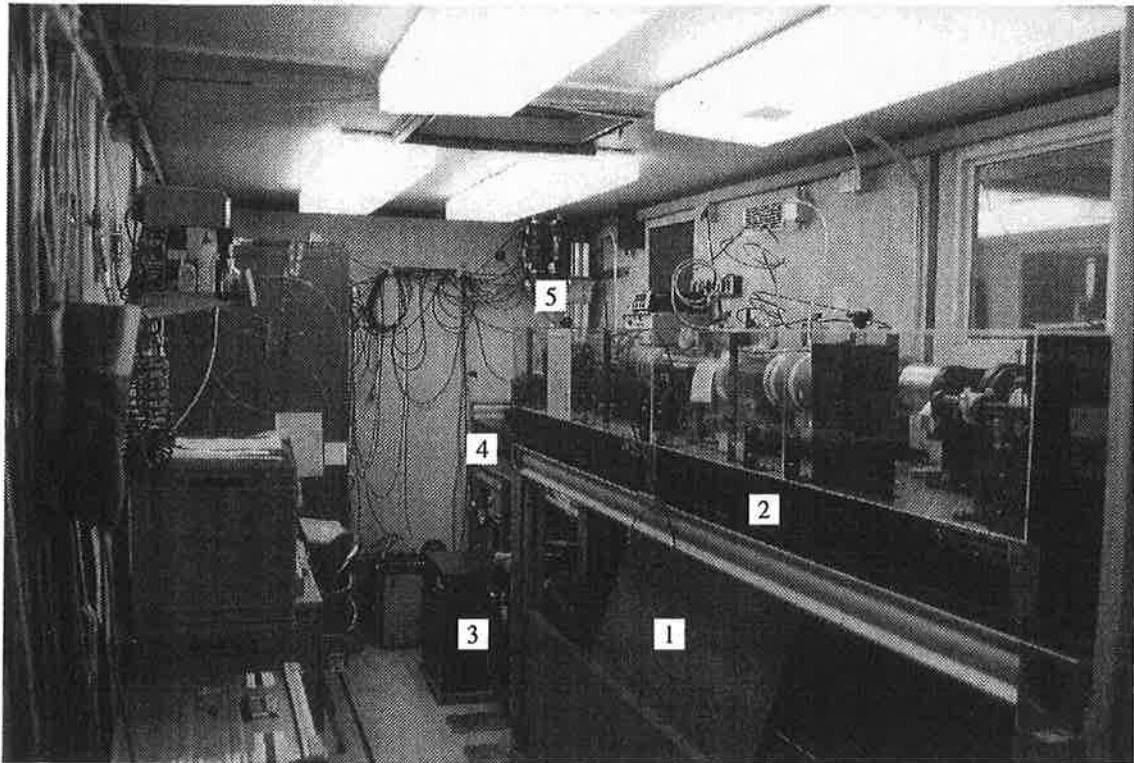


Abbildung 3.7: Innenaufnahme des Ozon-DIAL-Systems: Rechts unten ist der Laser (1) zu erkennen. Darüber befindet sich ein optischer Tisch mit Teilen der Sendeoptik (2). Im Hintergrund sind der Gasreiniger (3), ein kleiner Teil des zweiten optischen Tisches (4) und die Photomultiplier (5) zu sehen.

den Laser. Der Rest der Empfangselektronik und Teile des Aufzeichnungsrechners befinden sich in einem weiteren, abgeschirmten 19"-Gestell. Eine Fotografie des Innenraumes ist in Abb. 3.7 zu sehen.

Außerhalb des Containers sind die beiden Teleskope und der Strahlaustritt, die fest mit dem Containerrahmen verbunden sind, sowie das Kühlgerät und die Gasversorgung für den Laser untergebracht. Eine Außenaufnahme des Containers ist in Abb. 3.8 dargestellt.

Bei einem Transport des Containers ist es notwendig, alle außen angebrachten Teile zu demontieren. Zusätzlich sind Innenarbeiten notwendig, so daß die Vorbereitungszeit für einen Transport ca. 1-2 Tage beträgt. Die Aufbauzeit verlängert sich durch die notwendigen optischen Justierungen auf ca. 3-4 Tage.

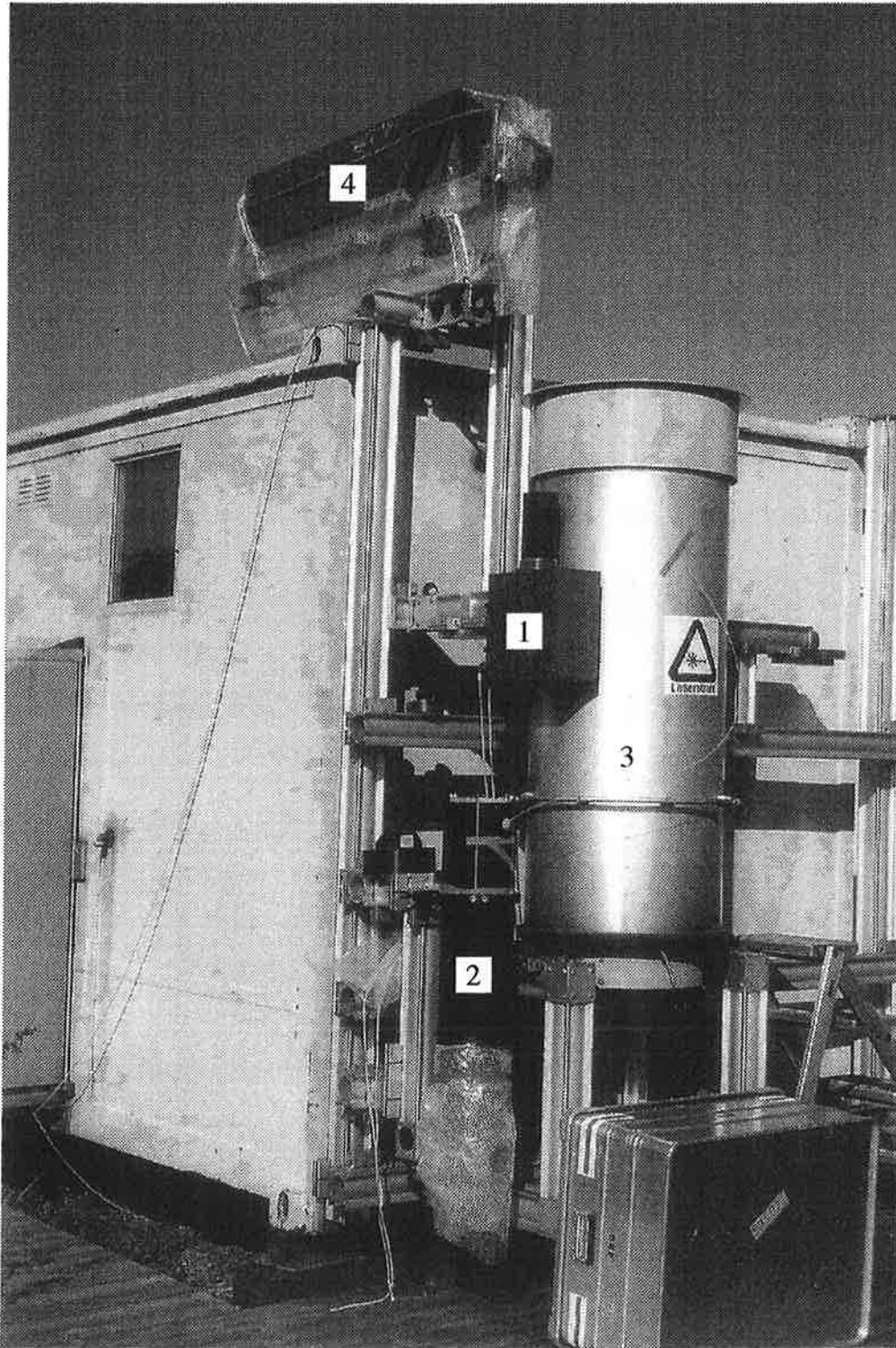


Abbildung 3.8: Außenaufnahme des Ozon-DIAL-Systems: In der Mitte sind der Strahlaustritt (1) und die zwei Teleskope (2 + 3) zu erkennen. Auf dem Dach befindet sich ein weiteres Teleskop (4), das für Horizontalmessungen verwendet wurde.

# Kapitel 4

## Auswertung

In diesem Kapitel wird die Bestimmung der Ozondichte aus den Rohdaten beschrieben. Dazu muß zunächst der Nullpunkt der Analog-Digital-Wandler (AD-Wandler) ermittelt werden. Es folgt eine Korrektur der Signale bezüglich elektromagnetischer Interferenzen bedingt durch den Laserzündpuls. Zudem muß der nutzbare Entfernungsbereich ermittelt werden. Abschließend werden die notwendigen Korrekturen vorgestellt.

### 4.1 Allgemeine Signalbehandlung

Im linken Teil der Abb. 4.1 sind die Rohdaten der Wellenlänge 268 nm einer Messung mit dem kleinen Teleskop im Höhenbereich 5500–6500 m dargestellt. Die Auflösung beträgt 15 m und 10 s, was einer Mittelung über 100 Laserpulsen entspricht. Die Einheit ist angegeben in bit — von 'basic indissoluble information unit', nicht zu verwechseln mit Bit von 'binary digit' — und bezeichnet die kleinste auflösbare Informationseinheit durch die Digitalisierung. Aufgrund der Ozonabsorption und der geometrischen Anordnung von Laserstrahl und Teleskop ist dieses ein Bereich, indem kein Signal mehr vorhanden ist, das Signal also Null sein müßte. Es ist zu erkennen, daß der Nullpunkt des AD-Wandlers verschoben ist. Da die Verschiebung ein wenig von Laserpuls zu Laserpuls schwanken kann, wird die Datenaufzeichnung immer  $5 \mu\text{s}$  (entsprechend 50 Abtastpunkten) früher als der Laser gestartet. Für jeden Datensatz wird ein Teil der Abtastpunkte, die vor dem Laserzünden aufgenommen worden sind, arithmetisch gemittelt und von den aufgenommenen Rohdaten eines Datensatzes abgezogen. Das Signal, im mittleren Teil der Abb. 4.1 gezeigt, zeigt dennoch nicht den Wert Null. Stattdessen ist der Mittelwert nicht nur gegenüber der Nulllinie verschoben sondern schwankt auch von Abtastpunkt zu Abtastpunkt. Ursache für diese Verschiebung sind elektromagnetische Interferenzen bedingt durch das Laserzünden. Um dieses korrigieren zu können, werden vor und/oder nach jeder Messung einige Datensätze mit aktivem Laser aufgezeichnet, ohne den Sendestrahl in die Atmosphäre zu emittieren. Diese werden gemittelt, so daß sich ein mittleres Profil für die elektromagnetische Interferenz ergibt. Dieses Profil wird von allen Datensätzen einer Messung abgezogen. Das Ergebnis ist im rechten Teil der Abb. 4.1 zu sehen. Die vorgestellte Signalaufbereitung wird für jeden aufgezeichneten Kanal getrennt durchgeführt.

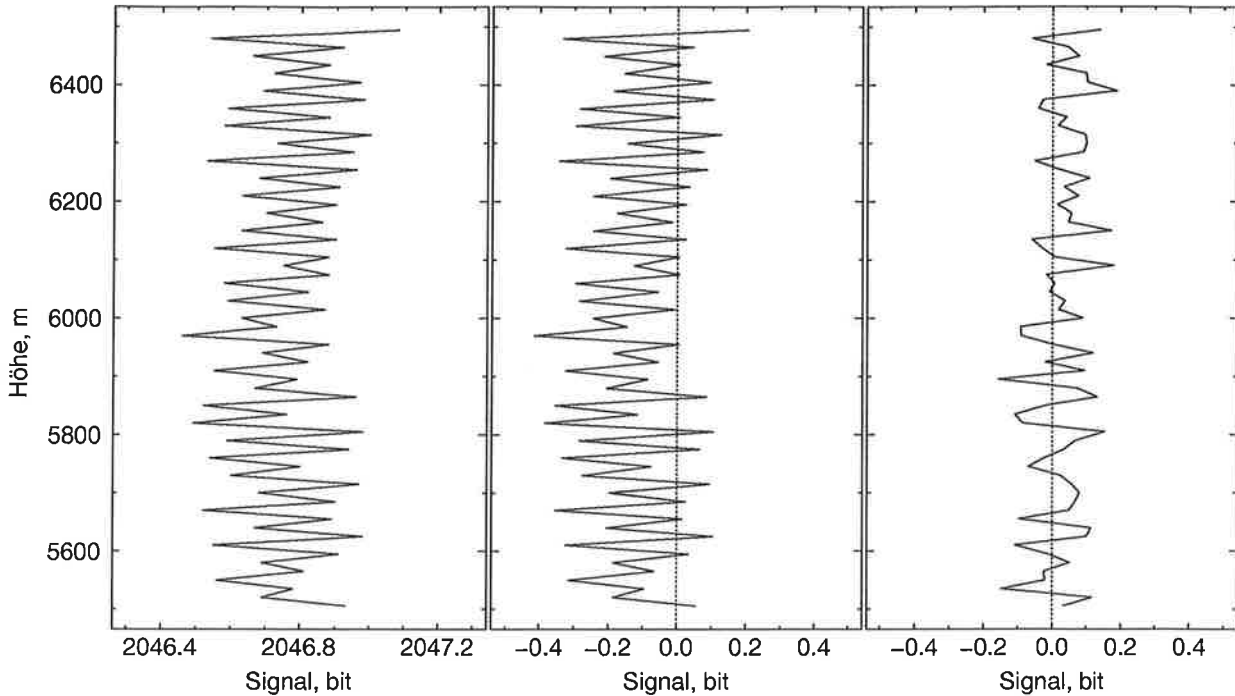


Abbildung 4.1: Von den Rohdaten zu den Signalen. Links: Rohdaten, Mitte: Nach Korrektur der 0-Punkt-Verschiebung, Rechts: Nach Abzug des mittleren „Interferenz“-Profils. Wellenlänge: 268 nm, kleines Teleskop, Auflösung: 15 m, 10 s.

## 4.2 Bestimmung der Ozondichte

Im Prinzip kann nun aus den Signalen die Ozondichte gemäß dem 1. Term von Gl. 2.10 berechnet werden. Vorher ist jedoch noch der Entfernungsbereich auszuwählen, in dem die Signale verwendbar sind. Die Signale aus dem Nahbereich werden durch den biaxialen Aufbau des DIAL-Systems (s. Kap. 3) unterdrückt. Da die Strahldivergenzen der verschiedenen Wellenlängen unterschiedlich sind, ist eine Auswertung erst dann sinnvoll, wenn die Strahlen der On- und Offline-Wellenlänge vollständig im Gesichtsfeld des Teleskops liegen. Damit ist sichergestellt, daß die differentielle Divergenz der Überlappungsfunktion Null ist, was eine Voraussetzung für die Gültigkeit von Gl. 2.10 darstellt. Zum Auffinden der Mindestentfernung sind die Signale selbst nicht gut geeignet (s. linken Teil der Abb. 4.2), da die Zunahme des Signals, bedingt durch die zunehmende Überlappung von Laserstrahl und Gesichtsfeld des Teleskops, von der geometrischen Signalabnahme proportional zu  $1/R^2$  überlagert wird. Besser geeignet sind stattdessen die entfernungskorrigierten Signale, d.h. die Signale multipliziert mit  $R^2$ . Die Logarithmen der entfernungskorrigierten Signale sind im mittleren Teil der Abb. 4.2 dargestellt. Hieraus oder noch besser aus ihrer Ableitung  $A$  nach dem Abstand  $R$  (s. rechten Teil der Abb. 4.2), läßt sich der Bereich vollständiger Überlappung hinreichend genau bestimmen (durch die Pfeile in Abb. 4.2 angedeutet).

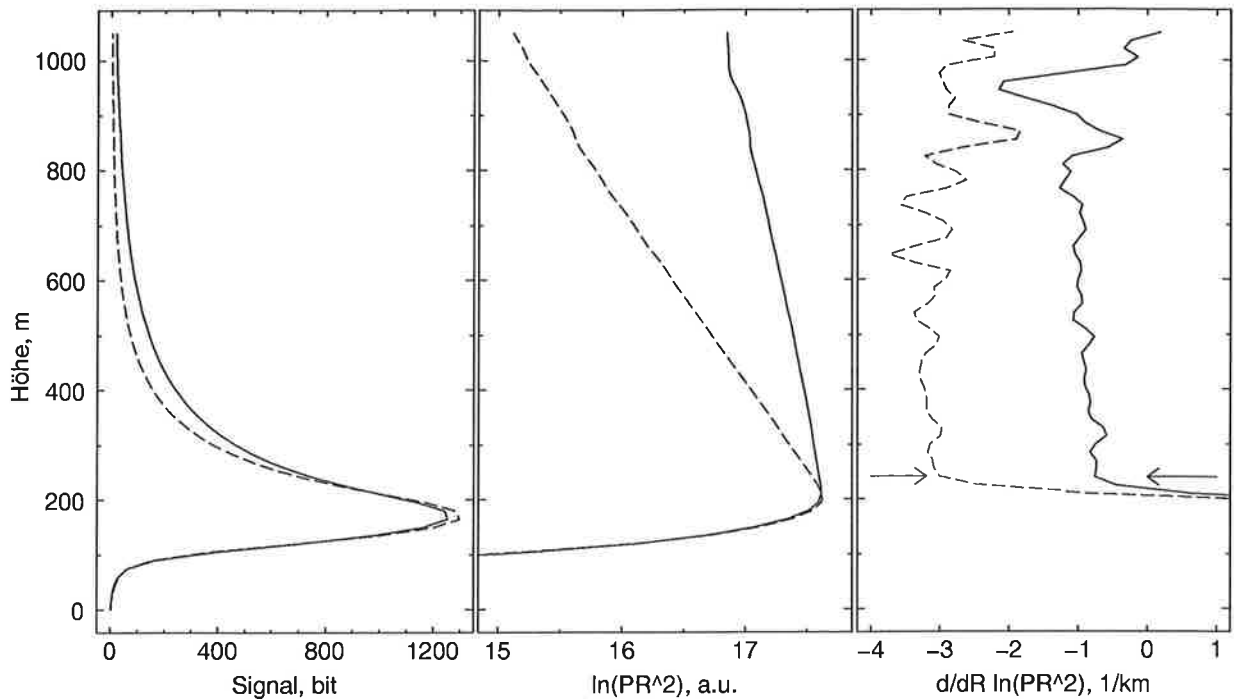


Abbildung 4.2: Links: Signale, Mitte: Entfernungskorrigierte Signale, Rechts: Ableitung der entfernungskorrigierten Signale. Die Pfeile deuten die Mindesthöhe an, ab der vollständige Überlappung von Laserstrahl und Gesichtsfeld des Teleskops vorliegen. Wellenlängen: 268 nm (---), 292 nm (—), kleines Teleskop, Auflösung: 30 m, 60 s.

Die Entfernung  $R$  wird gemäß Gl. 2.1 aus der Laufzeit des Laserpulses bestimmt. Dazu muß allerdings der genaue Zeitpunkt des Laserzündens bekannt sein. Wenngleich der Zündzeitpunkt im wesentlichen durch die Einstellung des Verzögerungsgenerators festgelegt wird, so kann es dennoch aufgrund veränderlicher interner Verzögerungen im Laser zu kleinen zeitabhängigen Verschiebungen des Zündzeitpunktes kommen. Eine Kontrolle und Fein Anpassung ist nachträglich aus den aufgezeichneten Daten möglich, da durch den Laserpuls Streulicht innerhalb des Containers entsteht, das vom Empfänger registriert wird.

Der Höhenbereich der DIAL-Auswertung wird nach oben in der Regel durch die Genauigkeit der AD-Wandler begrenzt. Damit der systematische Fehler der Ozondichte bei einer Höhenauflösung von 75 m kleiner als  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  bleibt (s. Kap. 5.1.2), dürfen die Signale minimal nur bis zu 15 bit für die DIAL-Berechnung verwendet werden. Berücksichtigt man nur die geometrisch bedingte  $1/R^2$ -Abnahme des Signals, so folgt aus dem begrenzten Dynamikbereich der AD-Wandler für die maximal nutzbare Reichweite  $R_{\text{max}}$ :

$$R_{\text{max}} = \sqrt{\frac{P_{\text{max}}}{P_{\text{min}}}} \cdot R_0 \quad (4.1)$$

$R_0$  kennzeichnet in diesem Fall die Höhe, in der das Signalmaximum  $P_{\text{max}}$  erreicht wird. Hieraus läßt sich ablesen, daß der nutzbare Entfernungsbereich stark von der geometrischen Anordnung des Teleskops relativ zum Sendestrahle abhängt. Für die verwendeten

AD-Wandler ergibt sich z.B. mit  $P_{\max} = 1500$  bit und  $P_{\min} = 15$  bit ein Faktor von 10. Insofern kann ein Signal, dessen Maximum in 150 m Höhe liegt, allerhöchstens bis 1500 m ausgewertet werden. Bei einem Signalmaximum in 500 m kann es im optimalen Fall bis 5000 m verwendet werden. Allerdings ist hierbei nur die Signalabnahme proportional zu  $1/R^2$  berücksichtigt. Hinzu kommen noch Extinktion und Absorption, so daß die tatsächlichen Reichweiten teilweise erheblich geringer sind. Als Anhaltspunkt sind in folgender Tabelle die Reichweiten der verwendeten Wellenlängen, ermittelt aus Messungen im Sommer 1993, festgehalten:

Wellenlänge	Teleskop 1 (groß)	Teleskop 2 (klein)
248 nm	1300 m	750 m
268 nm	1600 m	850 m
277 nm	2100 m	1050 m
292 nm	3300 m	1350 m
313 nm	3600 m	1600 m

Die Signalmaxima lagen für das große Teleskop bei 430–670 m und für das kleine bei ca. 190 m. Die Signalreichweite kann sich aufgrund der Wettersituation oder der Laserstrahljustierung von Messung zu Messung ändern.

Zur Reduktion von statistischen und systematischen Fehlern bei der Berechnung der Ozondichten, werden die Signale räumlich und zeitlich gemittelt, bevor die DIAL-Berechnung durchgeführt wird. Diese Reihenfolge stellt sicher, daß der systematische Fehler durch die Nichtlinearität der DIAL-Gleichung minimiert wird (Bösenberg und Theopold, 1988).

Die Berechnung der Ozondichte erfolgte mit den Wellenlängenpaaren 268/292 nm oder 277/313 nm, je nachdem ob Wasserstoff oder Deuterium als Gas für die Ramanstreuung verwendet wurde. Die Ozon-Absorptionsquerschnitte betragen (Molina und Molina, 1986):

Wellenlänge	$\sigma_{\text{O}_3}$
268.5 nm	$8.30 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$
277.2 nm	$5.02 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$
292.0 nm	$1.08 \cdot 10^{-22} \text{ m}^2$
313.2 nm	$6.30 \cdot 10^{-24} \text{ m}^2$

#### 4.2.1 Bestimmung der Korrekturterme

Wie in Kap. 2.4 beschrieben, wird das Aerosolextinktions- und -rückstreuprofil nach Fernald (1984) berechnet. Dazu muß ein Eichfaktor in einer beliebigen Höhe und das Lidarverhältnis vorgegeben werden. Zur Berechnung der Korrekturterme  $B$  und  $T$  ist ferner noch die Vorgabe der Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion und -rückstreuung notwendig. Die Rayleighextinktion und -rückstreuung werden gemäß Elterman (1968) berechnet.



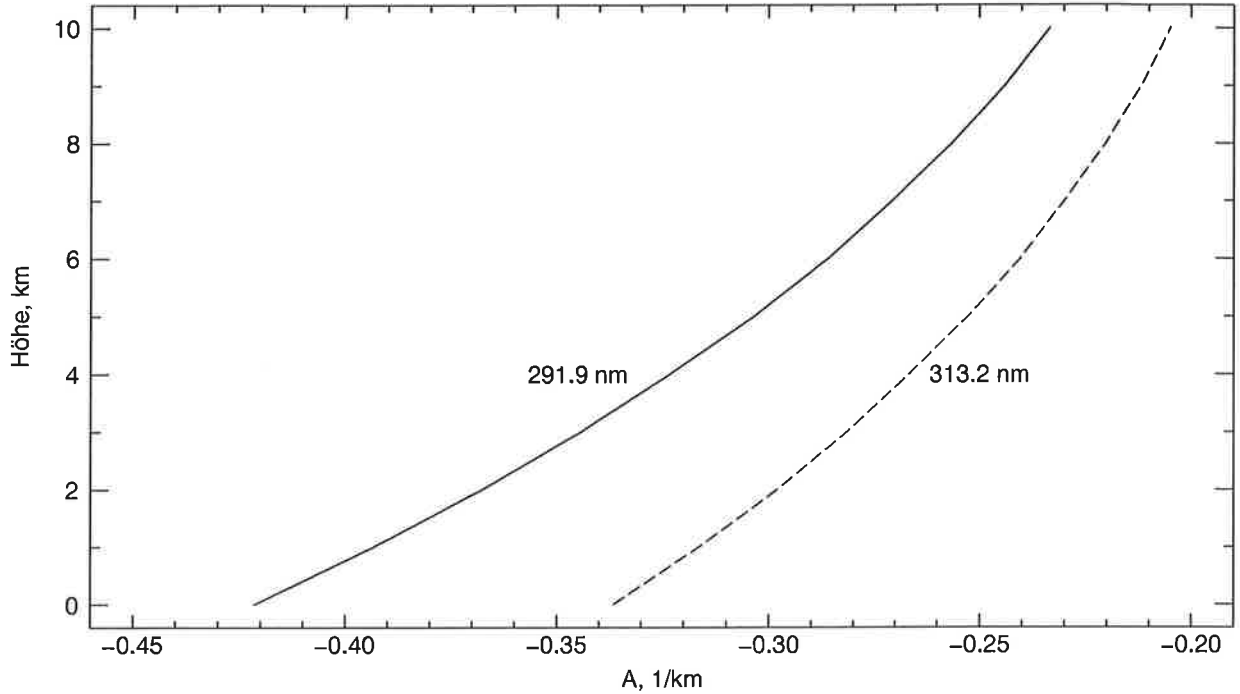


Abbildung 4.3:  $A$  ( $= \frac{d}{dz} \ln Pz^2$ ) der Offline-Signale 291.9 und 313.2 nm bei Rayleighstreuung.

Um eine geeignete Eichhöhe ausfindig zu machen und den Eichfaktor abschätzen zu können, wird die Ableitung  $A$  des Logarithmus des entfernungskorrigierten Offline-Signals nach der Entfernung betrachtet:

$$\begin{aligned}
 A &= \frac{d}{dR} \left( \ln(PR^2) \right) \\
 &= \frac{d}{dR} \left( \ln \left( K' \beta_\lambda(R) \cdot \exp \left( -2 \cdot \int_0^R \alpha_\lambda(R) dr \right) \right) \right) \\
 &= \frac{d}{dR} \{ \ln[\beta_{\text{Aer},\lambda}(R) + \beta_{\text{Ray},\lambda}(R)] \} - 2[\alpha_{\text{Aer},\lambda}(R) + \alpha_{\text{Ray},\lambda}(R)] \quad (4.2)
 \end{aligned}$$

wenn die Systemkonstanten  $K'$  höhenunabhängig, d.h.  $\frac{d}{dR}(\ln K') = 0$ , und Absorption durch Gase vernachlässigbar sind. Da das DIAL-System fast immer in vertikaler Ausrichtung betrieben wurde, wird im folgenden nur noch dieser Fall erörtert. Der einfachste Fall ist derjenige mit vernachlässigbar kleinem Aerosolanteil, so daß die Signalintensität der Offline-Wellenlänge nur durch Rayleighextinktion und -rückstreuung bestimmt wird. Da diese berechnet werden kann, läßt sich in diesem Fall  $A$  bestimmen. Für die beiden verwendeten Offline-Wellenlängen 292 und 313 nm ist  $A$  bei reiner Rayleighstreuung in Abb. 4.3 in Abhängigkeit von der Höhe  $z$  dargestellt. Zur Berechnung wurde die Standardatmosphäre mittlerer Breiten verwendet, wie in Anhang A.3 angegeben. Wie aus Gl. 4.2 ersichtlich, setzt sich  $A$  aus zwei Termen zusammen: der Extinktion durch Streuung und der Signalabnahme aufgrund abnehmender Dichte. Der Anteil bedingt durch die Dichteabnahme ist nicht vernachlässigbar, sondern beträgt für beide Wellenlängen in Bodennähe ungefähr  $-0.1 \text{ km}^{-1}$ .

$A$  ist ebenfalls ein guter Indikator für die Grenzschichthöhe und für die Schichtung der Atmosphäre. Gegenüber dem nach Fernald berechneten Aerosolprofil hat  $A$  den Vorteil, daß es direkt aus der Messung bestimmt werden kann und keinerlei Vorgaben notwendig sind. Wenn Aerosole vorhanden sind, wird  $A$  hauptsächlich von der Aerosolverteilung bestimmt, da sich Rayleighrückstreuoeffizient und -extinktion gleichmäßig mit der Höhe ändern, und zwar hauptsächlich durch vertikale Aerosolgradienten (s. Gl. 4.2). Große Aerosolgradienten gibt es in der Regel am Übergang von der Grenzschicht zur freien Troposphäre, da der Aerosolgehalt in der Grenzschicht meistens erheblich größer als in der freien Troposphäre ist. Somit ist beim Übergang von der Grenzschicht in die freie Troposphäre die vertikale Ableitung des Rückstreuoeffizienten und damit  $A$  stark negativ. Im Gegensatz dazu sind die Aerosolgradienten in der Grenzschicht aufgrund der guten Durchmischung klein. Ebenso sind die Gradienten in der freien Troposphäre normalerweise klein, da diese typischerweise nur wenig Aerosole enthält. Der Übergang von der Grenzschicht zur freien Troposphäre zeichnet sich somit dadurch aus, daß  $A$  in der entsprechenden Höhe ein Minimum besitzt.

Die Eichhöhe kann mit Hilfe von  $A$  aus der Offline-Wellenlänge bestimmt werden. Dabei wird ein Bereich gesucht, in dem sich  $A$  nur minimal mit der Höhe ändert und zeitlich konstant ist. Dieses ist in der Regel in der freien Troposphäre der Fall, weil dort der Aerosolgehalt und dessen zeitliche und räumliche Variabilität außerhalb von Wolken aufgrund der meist geringen Turbulenz klein sind. Ein weiterer großer Vorteil, das Eichniveau in die freie Troposphäre zu legen, ist die numerische Stabilität bei Rückwärtsintegration (Klett, 1981). Der Eichfaktor kann durch einen Vergleich von  $A$  mit dem Wert für reine Rayleighstreuung festgelegt werden, da aus dem Unterschied eine Abschätzung des Aerosolanteils möglich ist. Bei Messungen unterhalb optisch dicker Wolken kann die Eichung nicht oberhalb der Wolken durchgeführt werden. Stattdessen muß der Startwert unterhalb der Wolke abgeschätzt werden. Diese Abschätzung kann ebenfalls direkt aus  $A$  oder durch Berechnung eines Aerosolprofils in einer Wolkenlücke, sofern vorhanden, erfolgen.

Zur Berechnung des Aerosolprofils muß noch das Lidarverhältnis vorgegeben werden. Aufgrund der Nähe zur Nordsee und den vorwiegend westlichen Winden dürfte der vorherrschende Aerosoltyp in Itzehoe, wo fast alle Messungen stattfanden, maritim geprägt sein. Bei anderen Windrichtungen ist auch ein kontinentaler Einfluß möglich. Eine Studie von Völger et al. (1995), die die Aerosolextinktion und -rückstreuung für verschiedene Aerosolmischungen und Feuchten im UV untersucht haben, ergab Lidarverhältnisse  $S$  zwischen 23 und 35 für maritimes Aerosol und 40–70 für kontinentales. Da aus einer Messung keine Information über den Aerosoltyp herzuleiten ist, wurde  $S = 40$  gesetzt.

Die Untersuchung von Völger et al. (1995) hat ergeben, daß die Aerosolrückstreuung und -extinktion im UV eine andere Wellenlängenabhängigkeit als im sichtbaren Bereich besitzt. Für die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung  $k_\beta$  im UV wurden Werte zwischen  $-1$  und  $+1$  je nach Luftfeuchtigkeit und Aerosolzusammensetzung festgestellt. Als mittlerer Wert wird deshalb  $k_\beta = 0$  verwendet. Die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion  $k_\alpha$  wurde gleich  $k_\beta$  gesetzt.

Als Offline-Wellenlänge werden 292 und 313 nm verwendet. Hierbei ist zu berücksichtigen, daß die Ozonabsorption bei 292 nm nicht vernachlässigbar ist. Deshalb wird ein Iterationsverfahren verwendet: Zunächst wird die Ozondichte ohne Aerosolkorrektur berechnet. Mit dieser Ozondichte wird dann die gemessene Extinktion der Offline-Wellenlänge korrigiert. Erst danach wird das Aerosolprofil nach dem Verfahren von Fernald bestimmt. Mit diesem können die Korrekturterme bestimmt und eine korrigierte Ozondichte berechnet werden. Diese wird wiederum zur Korrektur der Extinktion verwendet. Die Iteration konvergiert sehr schnell. So ist die Änderung der Ozondichte vom 2. zum 3. Iterationsschritt bereits erheblich kleiner als 1%, so daß die Iteration nach 3 Schritten abgebrochen wird.

### 4.2.2 Querempfindlichkeiten

Der 3. Korrekturterm  $Q$  (Gl. 2.13) beschreibt die Querempfindlichkeit zu anderen atmosphärischen Gasen. Selbstverständlich brauchen nur solche Gase berücksichtigt werden, die zu einer nennenswerten Absorption führen, wenn also das Produkt aus Absorptionsquerschnitt und Teilchenzahldichte groß ist.

Das einzige Gas, zu dem stets eine Querempfindlichkeit berücksichtigt wird, ist Sauerstoff. Der Volumenabsorptionskoeffizient von Sauerstoff beträgt bei 268.5 nm ungefähr  $1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$  (Cann et al., 1984). Bei den größeren Wellenlängen wird der Absorptionsquerschnitt identisch Null angenommen, da in der Literatur keine genauen Werte zu finden sind.

Die Querempfindlichkeit zu anderen in Frage kommenden Gasen, d.h. hauptsächlich Schwefeldioxid, Wasserdampf und Stickstoffdioxid, kann nicht standardmäßig korrigiert werden, da deren Mischungsverhältnisse großen Schwankungen unterliegen. Die daraus resultierenden Fehler werden im nächsten Kapitel behandelt.

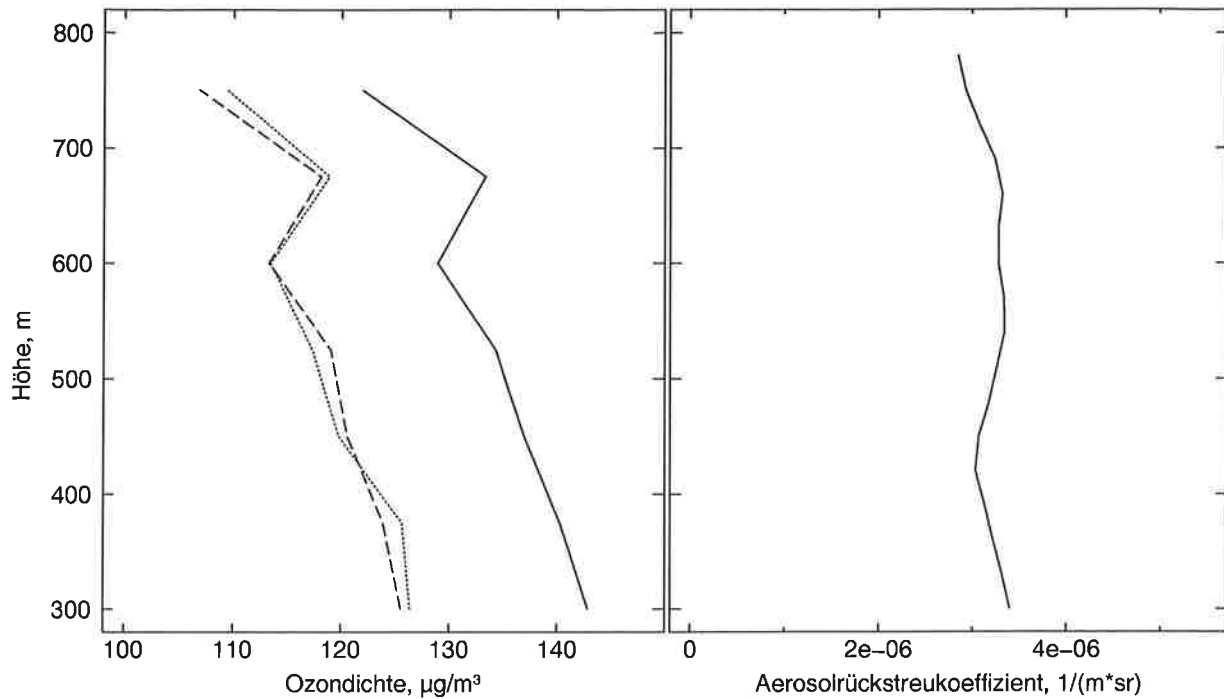


Abbildung 4.4: Ozondichte und Aerosolrückstreuoeffizient. Links: Ozondichte unkorrigiert (—), mit Korrektur bzgl. Rayleighextinktion und Sauerstoffabsorption (---) und inklusive Aerosolkorrektur (·····). Rechts: Aerosolrückstreuoeffizient. Wellenlängen: 268/292 nm, Auflösung: 75 m, 10 s.

### 4.2.3 Resultat

Im linken Teil der Abb. 4.4 ist die Ozondichte ohne Korrektur, mit Korrektur bezüglich Rayleighextinktion und Sauerstoffabsorption sowie inklusive der Aerosolkorrektur dargestellt. Das rechte Profil gibt den Aerosolrückstreuoeffizienten für die Offline-Wellenlänge berechnet nach dem Verfahren von Fernald (1984) wieder. Da die Aerosolgradienten im gezeigten Beispiel klein sind, fällt auch die Aerosolkorrektur klein aus.

# Kapitel 5

## Fehlerdiskussion

Es lassen sich zwei Arten von Fehlern unterscheiden:

1. Systematische Fehler
2. Statistische Fehler

Systematische Fehler führen zu einer Fehlbestimmung, d.h. einer Abweichung der gemessenen von der wahren Ozondichte, die nicht durch längere Mittelungszeiten, sondern nur durch Systemverbesserungen verkleinert werden können. Statistische Fehler hingegen können durch längere Mittelungszeiten reduziert werden.

### 5.1 Systematische Fehler

Folgende systematische Fehlerquellen werden betrachtet:

- Aerosolkorrektur
- Signalerfassung
- Ozonabsorptionsquerschnitte
- Querempfindlichkeit zu anderen Gasen
- Sonstige

#### 5.1.1 Aerosolkorrektur

In die Aerosolkorrektur der gemessenen Ozondichten gehen verschiedene Annahmen ein, die nicht aus der Messung zu bestimmen sind, sondern a priori vorgegeben werden müssen. Dieses ist zum einen das Lidarverhältnis  $S$  zur Bestimmung des Aerosolprofils sowie die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion ( $k_\alpha$ ) und -rückstreuung ( $k_\beta$ ).

Lidarverhältnis	$k_\beta$
23	0 bis 1
40	-1 bis +1
70	-1 bis -0.5

Tabelle 5.1: Mögliche Kombinationen der Aerosolparameter für verschiedene Aerosolmischungstypen (nach Völger et al., 1995).

Nach Browell et al. (1985) kann der differentielle Rückstreuterm  $B$  folgendermaßen angenähert werden:

$$B \approx -\frac{1}{2\Delta R} \cdot \frac{\Delta\lambda}{\Delta\sigma_S \cdot \lambda_{\text{off}}} \cdot (4 + k_\beta) \cdot \left( \frac{S_{\text{off}}(R)}{1 + S_{\text{off}}(R)} - \frac{S_{\text{off}}(R + \Delta R)}{1 + S_{\text{off}}(R + \Delta R)} \right) \quad (5.1)$$

mit den Abkürzungen:

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

$$S_{\text{off}} = \frac{\beta_{\text{Aer,off}}}{\beta_{\text{Ray,off}}}$$

In Gl. 5.1 wird der zweite Faktor  $(\Delta\lambda/(\Delta\sigma_S \cdot \lambda_{\text{off}}))$  nur durch die Wellenlängenwahl bestimmt. In den dritten Faktor geht die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung  $k_\beta$  ein und der vierte Faktor wird durch die radiale bzw. vertikale Aerosolverteilung bestimmt. Bei einer homogenen Aerosolverteilung, d.h.  $S(R) = S(R + \Delta R)$ , ist dieser Faktor und damit  $B$  identisch Null.

Durch die Wahl der Wellenlängen wird die Größe der Korrektur beeinflusst. Wie aus dem 2. Faktor von Gl. 5.1 ersichtlich, wird die Größe der Korrektur bei gleicher Offline-Wellenlänge durch das Verhältnis von  $\Delta\lambda$  zu  $\Delta\sigma_S$  bestimmt. Der Korrekturterm  $B$  und damit auch der Aerosolkorrekturfehler können somit bei Ozonmessungen nicht beliebig klein gemacht werden, da eine Verringerung des Wellenlängenabstandes durch die Reduktion von  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  kompensiert wird. Aus dem zweiten Faktor läßt sich somit die Aerosolempfindlichkeit für verschiedene Wellenlängenpaare abschätzen. Für das Paar 268/292 nm beträgt dieser  $8847 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2}$  und für 277/313 nm  $18491 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2}$ , d.h. die Aerosolkorrektur und damit auch der Korrekturfehler ist für das Paar 277/313 nm mehr als doppelt so groß. Deshalb ist das Paar 268/292 nm besser für Messungen in der Grenzschicht geeignet, wo häufig ein hoher Aerosolgehalt auftritt. Wegen der größeren Reichweite (s. Tab. S. 38), ist das Paar 277/313 nm trotzdem gut für Messungen in der freien Troposphäre zu verwenden, da dort in der Regel keine großen Aerosolgradienten auftreten.

Aus den Ergebnissen von Völger et al. (1995) kann eine Abschätzung des Lidarverhältnis  $S$  im UV erhalten werden. Für einen maritimen Aerosolmischungstyp ergibt sich ein Lidarverhältnis zwischen 23 und 35 in Abhängigkeit von der relativen Feuchte. Wenngleich der in Itzehoe anzutreffende Aerosoltyp häufig maritimen Ursprungs sein dürfte, ist dennoch

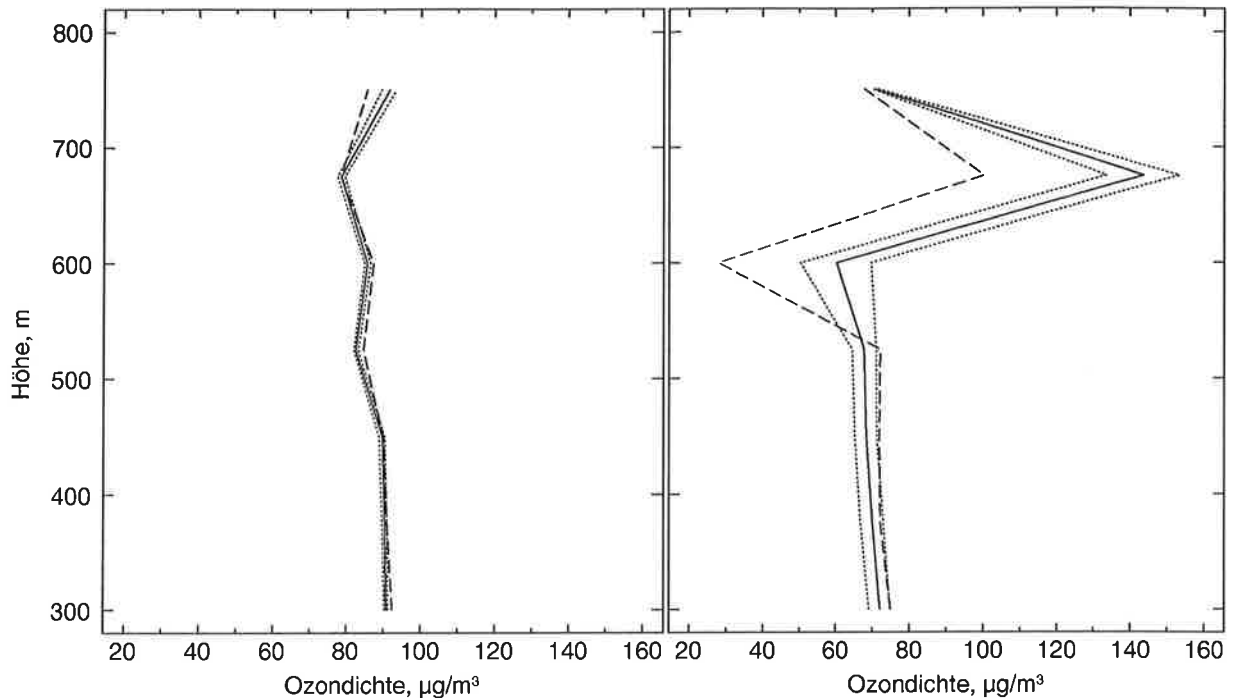


Abbildung 5.1: *Abhängigkeit der Ozondichte von der Aerosolkorrektur. Korrektur mit Standardparametern (—), Extrema (· · · · ·) und unkorrigiert (— — —).*

*Links: vom 01.07.93 in der Grenzschicht, Rechts: 29.06.93 inklusive der Entrainmentzone. Auflösung: 75 m, 60 s.*

auch mit kontinentalen Aerosolmischungen zu rechnen. Für diese ergeben sich Lidarverhältnisse zwischen 40 und 70. Bei beiden Mischungstypen nimmt mit zunehmender Feuchte gleichzeitig das Lidarverhältnis zu und die Wellenlängenabhängigkeit ab, d.h. daß beide Größen über die relative Feuchte korreliert sind. Die möglichen Kombinationen sind in Tab. 5.1 zusammengefaßt. Aus Gl. 5.1 ist ersichtlich, daß der Fehler durch die unbekannte Wellenlängenabhängigkeit ( $k_\beta = 0 \pm 1$ ) 25% der Aerosolkorrektur beträgt. Hinzu kommt jedoch noch die Unsicherheit über das unbekannte Lidarverhältnis. Da dessen Einfluß auf die Korrektur zum einen nicht einfach analytisch abzuschätzen ist, und zum anderen Lidarverhältnis und  $k_\beta$  korreliert sind, wird der Fehler der Aerosolkorrektur dadurch ermittelt, daß Ozondichte neben den Standardparametern  $S = 40$  und  $k_\beta = 0$  zusätzlich mit den in Tab. 5.1 angegebenen Grenzwerten berechnet wird. Dieses ergibt eine Schwankungsbreite für die möglichen Ozondichten.

Im linken Teil der Abb. 5.1 sind mit verschiedenen Aerosolkorrekturen berechnete Ozonprofile vom 01.07.93 dargestellt. Die Ozondichte ohne Aerosolkorrektur ist gestrichelt, die mit den Aerosolstandardparametern ( $S = 40, k_\beta = 0$ ) korrigierte ist durchgezogen und die Extrema, die sich aus den Kombinationen entsprechend Tab. 5.1 ergeben, gepunktet dargestellt. Es ist zu erkennen, daß alle Profile nahezu übereinander liegen, d.h. unabhängig von den gewählten Korrekturparametern bleibt die Korrektur sehr klein. Ursache ist, daß

keine großen Aerosolgradienten auftreten, da diese Messung komplett innerhalb der Grenzschicht liegt. Der Fehler, der sich durch die unbekanntenen Aerosolparameter ergibt, kann für diese Messung auf ca.  $1 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  abgeschätzt werden. Grundlegend anders ist die Situation, wenn große Aerosolgradienten auftreten, z.B. in der Entrainmentzone. Ein Beispiel dazu ist im rechten Teil der Abb. 5.1 abgebildet. Die Grenzschichthöhe beträgt in diesem Fall ca. 600 m. Man erkennt, daß die Ozondichte in der Grenzschicht ca.  $70 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  beträgt. Die unkorrigierten Ozondaten zeigen ein ausgeprägtes Minimum in 600 m Höhe von etwa  $30 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ . Wie aus den korrigierten Daten zu ersehen, ist die Aerosolkorrektur in 600 m relativ groß, da große Aerosolgradienten auftreten. Die Korrektur bewirkt, daß die Ozondichte in 600 m etwa mit der Ozondichte in der Grenzschicht übereinstimmt. Dieses ist plausibel, da die Ozondichte in der konvektiven Grenzschicht aufgrund der guten Durchmischung in allen Höhen etwa gleich groß sein sollte. Das Maximum der Ozondichte in 675 m, d.h. oberhalb der Grenzschichtoberkante, resultiert daraus, daß diese Höhe in der sogenannten „Restschicht“ liegt, die den Rest der Grenzschicht des Vortages darstellt. In dieser sind die hohen Ozondichten vom Vortag „isoliert“ (näheres s. Kap. 7). In diesem Fall sind die Korrekturen in der Entrainmentzone groß, da große vertikale Aerosolgradienten vorhanden sind. Wie zu erwarten, hängt die Korrektur deshalb stark von den gewählten Parametern ab (s. Abb. 5.1). Im Gegensatz dazu ist die Korrektur und die Schwankungsbreite in der Grenzschicht wieder deutlich kleiner. Der Fehler durch die unbekanntenen Aerosolparameter kann hier in der Grenzschicht mit ca.  $4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  und in der Entrainmentzone (600 m) mit ca.  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  angegeben werden.

Ebenso kann die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion  $k_\alpha$  falsch vorgegeben werden. Nach Völger et al. (1995) liegt  $k_\alpha$  zwischen  $-1$  und Null. Da jedoch  $k_\alpha$  gleich  $k_\beta$  gewählt wird, wird mit obigem Verfahren ebenfalls die mögliche Schwankungsbreite von  $k_\alpha$  voll erfaßt.

Das Eichniveau wird typischerweise in die freie Troposphäre oberhalb des Auswertebereiches gelegt. Deshalb kann der Fehler durch einen falsch gewählten Startwert in Relation zu den anderen Fehlerquellen vernachlässigt werden, da das verwendete Berechnungsverfahren nach Fernald bei Rückwärtsintegration schnell konvergiert (Klett, 1981).

### 5.1.2 Signalfehler

In diesem Abschnitt werden systematische Signalfehler untersucht. Das statistische Rauschen, z.B. der AD-Wandler, wird in Abschnitt 5.2 behandelt. Signalfehler sind am einfachsten dort zu erkennen, wo die Signalstärke bekannt ist. Dieses ist der Fall, wenn der Sendestrahle nicht in die Atmosphäre emittiert wird, denn dann sollte das Empfangssignal Null sein. Wie beschrieben (Kap. 4), werden regelmäßig am Anfang oder Ende einer Messung einige Datensätze aufgezeichnet, ohne den Sendestrahle zu emittieren. In Abb. 5.2 ist das Signal der Wellenlänge 292 nm gemittelt über 75 m und 3 min vom Ende eines dreistündigen Meßzeitraumes dargestellt. Es ist zu erkennen, daß das Signal Schwankungen bis zu 0.2 bit von Höhenstufe zu Höhenstufe aufweist. Dieses ist sehr wahrscheinlich auf den Digi-



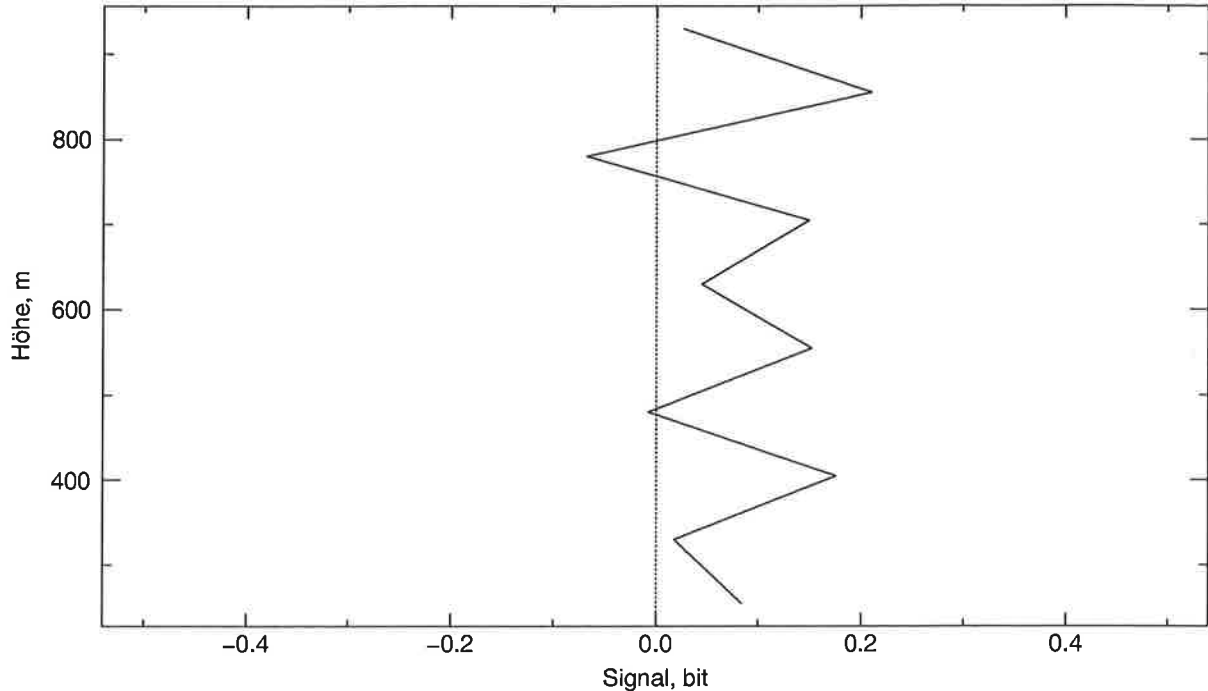


Abbildung 5.2: Nullsignal. Wellenlänge: 292 nm, kleines Teleskop, Auflösung: 75 m, 3 min.

talisierungszustand zurückzuführen. Eine Analyse bei anderen Signalpegeln ist nicht möglich. Deshalb wird angenommen, daß die typischen systematischen Abweichungen in den gemittelten Signalen ebenfalls 0.2 bit betragen. Wie der Abbildung zu entnehmen ist, sind die Fehler in verschiedenen Höhenstufen nicht miteinander korreliert.

Unter der Annahme, daß die Fehler der einzelnen Signale unabhängig voneinander sind, kann der Fehler der Ozondichte nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz berechnet werden. Ausgehend von der DIAL-Gleichung 2.10, S. 12, ergibt sich der absolute Fehler  $\delta n_s$  bei der Bestimmung der Teilchenzahldichte zu:

$$\delta n_s = \frac{1}{2\Delta R\Delta\sigma} \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^4 \left(\frac{\delta P_i}{P_i}\right)^2} \quad (5.2)$$

wobei der Index  $i$  für die On- und Offline-Signale aus den Entfernungen  $R$  und  $R + \Delta R$  steht. Berücksichtigt man nur den Fehler des kleinsten Signals, da dieser gemäß Gl. 5.2 den Fehler der Ozondichte hauptsächlich bestimmt, nimmt einen Signalfehler  $\delta P$  von 0.2 bit an (s.o.), und läßt einen maximalen Fehler von  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  zu, so folgt nach Gleichung 5.2:

$$P_i = \frac{1}{2\Delta R\Delta\sigma} \cdot \frac{\delta P_i}{\delta n_s} \approx 15$$

für das Wellenlängenpaar 268/292 nm mit  $\Delta R = 75$  m. Somit darf mit diesen Vorgaben das Signal maximal bis zu 15 bit, für das Wellenlängenpaar 277/313 nm bei gleichem Fehler sogar nur bis zu 21 bit ausgewertet werden.

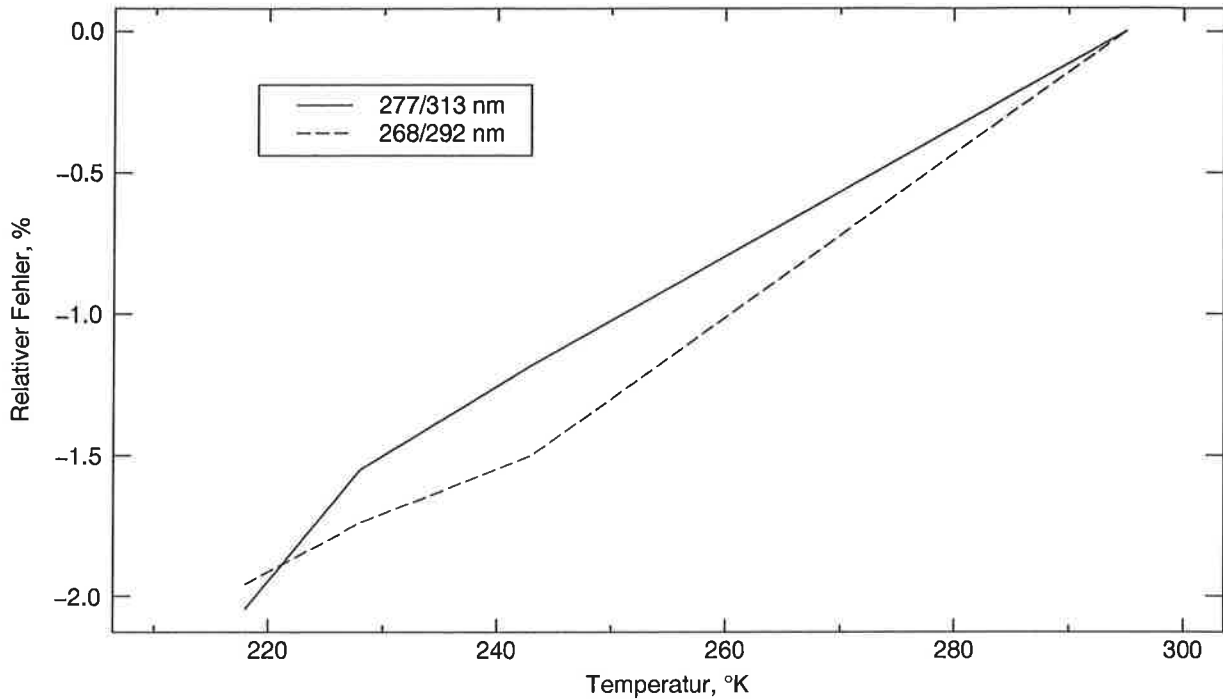


Abbildung 5.3: Relativer Fehler von  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  bedingt durch die Temperaturabhängigkeit der Ozonabsorptionsquerschnitte. Referenz: 295 °K.

### 5.1.3 Ozonabsorptionsquerschnitte

Zur Berechnung der Ozondichte werden immer die auf S. 38 angegebenen Absorptionsquerschnitte verwendet, die auf einer Laseremissionswellenlänge von 248.5 nm basieren. Systematische Fehler resultieren daraus, daß Meßfehler für die Absorptionsquerschnitte selbst existieren, die Temperaturabhängigkeit nicht berücksichtigt wird und die Laseremissionswellenlänge nicht exakt 248.5 nm betragen muß.

Für den Fehler in der Bestimmung der Spurengasdichte folgt aus Gl. 2.10:

$$\frac{\delta n_{\text{S}}}{n_{\text{S}}} = \frac{\delta(\Delta\sigma)}{\Delta\sigma} \quad (5.3)$$

wenn der Fehler der Differenz der Ozonabsorptionsquerschnitte klein ist. Gl. 5.3 besagt, daß der relative Fehler der Ozondichte gleich dem relativen Fehler der Differenz der Ozonabsorptionsquerschnitte ist. Im folgenden werden nur die Fehler für die verwendeten Wellenlängenpaare 268/292 nm und 277/313 nm betrachtet.

Die Genauigkeit der Ozonabsorptionsquerschnitte beträgt nach Molina und Molina (1986) 1–2%. Im Rahmen der Fehler ist dieses in Übereinstimmung mit den Resultaten von Daumont et al. (1992). Der Fehler von  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  beträgt somit ca. 2%.

Zur Untersuchung der Temperaturabhängigkeit wurden die Daten von Daumont et al. (1992) und Malicet et al. (1992) verwendet, die die Ozonabsorptionsquerschnitte bei 218°K, 228°K, 243°K und 295°K vermessen haben. Dazu ist in Abb. 5.3 die relative Änderung von  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  gegen die Temperatur dargestellt. Als Referenz wurden die Absorptionsquerschnitte

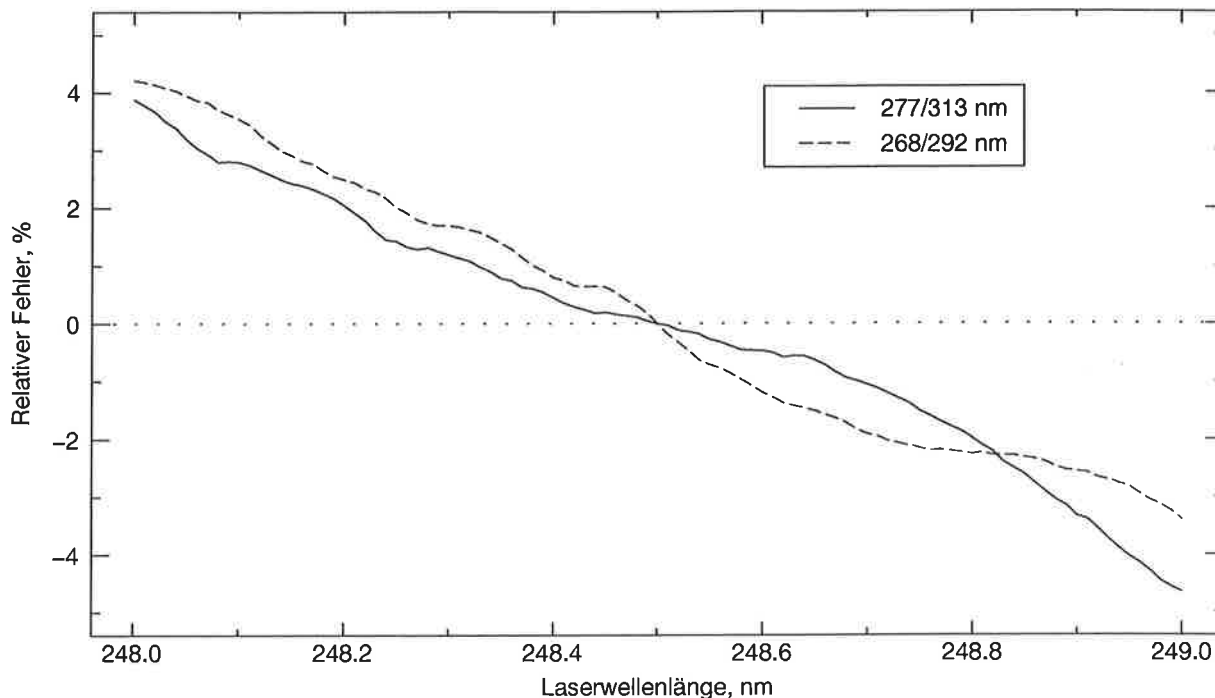


Abbildung 5.4: Relativer Fehler von  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  in Abhängigkeit von der Laseremissionswellenlänge. Referenzwellenlänge: 248.5 nm.

bei 295°K verwendet. Es ist zu erkennen, daß selbst bei Temperaturen bis zu  $-20^\circ\text{C}$  der Fehler bei Nichtberücksichtigung der Temperaturabhängigkeit kleiner als 1% ist. Lediglich bei extrem niedrigen Temperaturen unterhalb von  $-55^\circ\text{C}$ , z.B. in der oberen Troposphäre, kann der Temperaturfehler größer als 2% werden.

Wird der Laser breitbandig betrieben, so ist das emittierte Spektrum gaußförmig mit einer Schwerpunkswellenlänge von 248.374 nm und einer Linienbreite von 0.524 nm (FWHM) (Lambda Physik, 1994). Zur Untersuchung, welcher Fehler hierdurch verursacht wird, müssen die Raman-verschobenen Spektren berechnet werden. Dazu wurde das Laserspektrum zum einen proportional und zum anderen proportional zum Quadrat der spektralen Energiedichte Raman-verschoben. Die effektiven Absorptionsquerschnitte ergeben sich sodann durch Faltung des Raman-verschobenen Laserspektrums mit dem Absorptionsspektrum. Die Unterschiede sind für beide Wellenlängenpaare und Energieverteilungen kleiner als 1%. Die Änderung der spektralen Verteilung einer Emissionslinie mit der Höhe aufgrund unterschiedlich starker Absorption an den Rändern kann damit erst recht vernachlässigt werden.

Bei schmalbandigem Laserbetrieb kann die Emissionslinie in sehr guter Näherung als monochromatisch betrachtet werden, aufgrund der Linienbreite von ca. 0.001 nm und der geringen Variation des Absorptionsquerschnitts mit der Wellenlänge. Ein Fehler entsteht dadurch, daß die Laseremissionswellenlänge nicht genau gemessen wurde. Prinzipiell ist der Laser zwischen 248.0 und 249.0 nm durchstimmbar. Jedoch wurde er im schmalbandigem Betrieb so justiert, daß die Emission etwa bei 248.5 nm lag mit einer Unsicherheit von

$\pm 0.2$  nm. In Abb. 5.4 ist der relative Fehler von  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  für die verwendeten Wellenlängenpaare 268/292 nm und 277/313 nm dargestellt, wenn die Wirkungsquerschnitte von 248.5 nm anstelle der tatsächlichen Laseremissionswellenlänge verwendet werden. Es ist zu erkennen, daß der relative Fehler über den Abstimmbereich bis zu 5% beträgt. Bei einer Bestimmung der Emissionswellenlänge auf 0.2 nm genau, verbleibt ein Fehler von 2%.

Zusammenfassend ergibt sich also ein Fehler für  $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$  von 2% bedingt durch die Meßfehler der Absorptionsquerschnitte selbst, 1% durch die Nichtberücksichtigung der Temperaturabhängigkeit und 1–2% durch das breitbandige Laseremissionsspektrum oder die nicht genau bekannte Emissionswellenlänge. Da diese Fehler unabhängig voneinander sind, kann der Gesamtfehler gemäß der Gaußschen Fehlerfortpflanzung berechnet werden. Insgesamt ergibt sich ein Fehler von 2.5–3%.

#### 5.1.4 Querempfindlichkeit zu anderen Gasen

Durch die Nichtberücksichtigung einer Querempfindlichkeit zu atmosphärischen Gasen können systematische Fehler verursacht werden. Relevant können dabei neben Sauerstoff auch Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Wasserdampf sein.

Die Querempfindlichkeit zu Sauerstoff wird nur bei der Wellenlänge 268 nm berücksichtigt, da in der Literatur nur ungenaue Angaben über den Wellenlängenbereich 250–320 nm zu finden sind. Die Sauerstoffkorrektur beträgt für das Wellenlängenpaar 268/292 nm umgerechnet ca.  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ , bei Annahme eines Volumenabsorptionskoeffizienten von  $1 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$  bei 268 nm. Für einen angenommenen Fehler des Sauerstoff-Absorptionskoeffizienten von 20% beträgt damit der Korrekturfehler ungefähr  $2 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ . Der Sauerstoff-Absorptionskoeffizient bei 277 nm ist etwa zehnmal kleiner, so daß sich durch die Nichtberücksichtigung ein Fehler von ungefähr  $1 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  ergibt.

Für die verwendeten Wellenlängen sind in folgender Tabelle die Absorptionsquerschnitte von Schwefel- und Stickstoffdioxid zusammengefaßt (Brassington, 1981; Thomson, 1990; Schneider et al., 1987):

Wellenlänge	$\sigma_{\text{SO}_2}$	$\sigma_{\text{NO}_2}$
268.5 nm	$6.4 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$	$3.26 \cdot 10^{-24} \text{ m}^2$
277.1 nm	$7.8 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$	$4.66 \cdot 10^{-24} \text{ m}^2$
291.9 nm	$8.0 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$	$1.01 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$
313.2 nm	$2.5 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$	$1.99 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2$

In den Korrekturterm  $T$  (Gl. 2.12) geht das Verhältnis der Differenzen der Absorptionsquerschnitte von Schwefel- bzw. Stickstoffdioxid zu Ozon ein. Damit beträgt die Querempfindlichkeit zu Schwefeldioxid 2.2% für das Wellenlängenpaar 268/292 nm und 10.7% für 277/313 nm. Dieses bedeutet, daß bei einer Schwefeldioxidichte von  $100 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  die gemessene Ozondichte bei Messung mit 268/292 nm um  $2.2 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  bzw. bei 277/313 nm um  $10.7 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  zu groß sind. Allerdings besitzt Schwefeldioxid ein ausgeprägtes Linienspektrum, so daß der tatsächlich wirk-

same Absorptionsquerschnitt genaugenommen durch Faltung der Raman-verschobenen Laserlinie mit dem Absorptionsspektrum berechnet werden müßte. Dieses konnte nicht durchgeführt werden, da die spektrale Energieverteilung der emittierten Wellenlängen unbekannt ist. Es bleibt festzuhalten, daß die Querempfindlichkeit zu Schwefeldioxid zwar etwas größer als oben angegeben ist, jedoch für das Paar 268/292 nm noch so klein bleibt, daß sie unter normalen Bedingungen vernachlässigbar ist. Da die Wellenlängen 277/313 nm vorwiegend für Messungen in der freien Troposphäre verwendet werden, wo die Schwefeldioxidkonzentration klein ist, kann der Fehler ebenfalls vernachlässigt werden. Die Querempfindlichkeit zu Stickstoffdioxid ist noch geringer. Deshalb darf dieser Fehler ebenfalls vernachlässigt werden.

In der Literatur finden sich Angaben, daß Wasserdampf eine Absorptionsbande im UV besitzen soll (z.B. Klimkin und Fedorichev, 1989; Lukyanenko et al., 1989). Die Angaben über die Absorptionsstärke sind jedoch sehr unterschiedlich. Aufgrund der hohen Wasserdampfdichte in der Grenzschicht wären die Korrekturen auf jeden Fall erheblich. Dieses kann aus den durchgeführten Vergleichsmessungen nicht bestätigt werden (s. Kap. 6; Bösenberg et al., 1993). Ob eventuell noch eine kleine Querempfindlichkeit zu Wasserdampf vorhanden ist, kann nicht abschließend geklärt werden. Hierzu sind genauere Messungen der Wasserdampfabsorptionskoeffizienten notwendig.

### 5.1.5 Sonstige

Systematische Fehler können ferner durch PMT-Nachwirkungen verursacht werden (Gast, 1991). Es wurde festgestellt, daß keine PMT-Nachwirkungen nachzuweisen sind, wenn die Kombination aus Vorverstärker und PMT nicht übersteuert wird (Gast, 1991, S. 38). Deshalb wird die Verstärkung derart eingestellt, daß die AD-Wandler und somit auch die Vorverstärker nicht übersteuert sind. Wenn sich die Bedingungen während der Messung ändern, so daß Übersteuerungen auftreten, so werden diese von der Datenerfassung registriert und die entsprechenden Datensätze können nachträglich aussortiert werden. Deshalb ist davon auszugehen, daß der Fehler durch PMT-Nachwirkungen vernachlässigt werden kann.

Ein weiterer Fehler kann durch eine differentielle Änderung der Überlappungsfunktionen beider Wellenlängen verursacht werden. Dies ist allerdings nur in Bereichen unvollständiger Überlappung möglich, der nicht zur Auswertung herangezogen wird. Deshalb kann auch dieser Fehler vernachlässigt werden.

Durch eine falsche Entfernungszuordnung kann ebenfalls ein systematischer Fehler verursacht werden. Hauptursache dafür ist eine ungenaue Bestimmung des Laserzündzeitpunktes. Das in Kap. 4.2 beschriebene Verfahren stellt sicher, daß der Laserzündzeitpunkt genauer als 100 ns bestimmt wird. Dieses entspricht einer Genauigkeit von 15 m. Da die Entfernung nicht in der DIAL-Gleichung 2.10 auftaucht, ist nur die Höhenzuordnung der unkorrigierten Ozonwerte falsch, nicht jedoch ihr Betrag. Die Entfernung geht allerdings in das Berechnungsverfahren des Aerosolprofils ein. Der dadurch verursachte Fehler bei einer Ungenauigkeit von 15 m ist vernachlässigbar gegen die anderen Fehler.

Die Lidargleichung 2.2 und damit auch die DIAL-Gleichung 2.10 gelten nur, wenn die Mehrfachstreuung vernachlässigbar klein ist. Dieses ist in praktischen Anwendungen der Fall, wenn die optische Dicke klein ist, die Atmosphäre also als klar betrachtet werden kann, und die Laserstrahldivergenz höchstens einige Millirad beträgt (Collis und Russell, 1976). Mehrfachstreuung ist hingegen nicht vernachlässigbar bei großen optischen Dicken, also z.B. bei Nebel, Wolken und Regen. Da mit dem DIAL-System keine Ozonmessungen unter diesen Bedingungen durchgeführt wurden, kann der Fehler durch Mehrfachstreuung vernachlässigt werden.

## 5.2 Statistische Fehler

Durch elektronisches Rauschen der Photomultiplier, Vorverstärker und AD-Wandler werden statistische Schwankungen der Meßsignale verursacht, die zu einem statistischen Meßfehler führen. Dieser kann durch eine größere Mittelung reduziert werden. Im folgenden wird zunächst die Reduktion des statistischen Fehlers durch zeitliche und räumliche Mittelung bestimmt. Anschließend wird das Rauschniveau bei typischen Auswerteparametern vorgestellt.

Bei der Auswertung werden die Signale zunächst zeitlich und räumlich gemittelt, da diese Reihenfolge den kleinsten systematischen Fehler verursacht (Bösenberg und Theopold, 1988). Bei einer Mittelung der Signale über  $N_T$  Zeitschritte bzw.  $N_H$  Höhenstufen reduziert sich der Fehler des Mittelwerts der einzelnen Signale um den Faktor  $\sqrt{N_T}$  bzw.  $\sqrt{N_H}$ . Damit reduziert sich gemäß Gl. 5.2 der statistische Fehler der Teilchendichte ebenfalls um  $\sqrt{N_T}$  bei zeitlicher Mittelung. Durch eine räumliche Mittelung wird jedoch gleichzeitig  $\Delta R$  im Nenner von Gl. 5.2 proportional zu  $N_H$  vergrößert, so daß sich der statistische Fehler durch räumliche Mittelung proportional zu  $(\sqrt{N_H})^3$  mindert.

Der statistische Fehler des Ozon-DIAL-Systems kann anhand von Varianzspektren bestimmt werden (Senff et al., 1994). Ein Varianzspektrum einer Ozondichtezeitreihe ist in Abb. 5.5 dargestellt. Dieses sowie alle folgenden Varianzspektren sind derart normiert, daß das Integral der Varianzdichte über den Frequenzbereich gleich der Varianz der Zeitreihe ist. Zusätzlich ist das Varianzspektrum über 5 Datenpunkte gleitend gemittelt, um das Rauschen zu reduzieren. Die zeitliche Auflösung der Ozonserie beträgt 10 s, woraus sich eine Nyquistfrequenz von 0.05 Hz ergibt. Zu erkennen ist für Frequenzen oberhalb von etwa 0.001 Hz ein Abfall des Spektrums proportional zu  $f^{-\frac{5}{3}}$  ( $f$ : Frequenz), wie für den Inertialbereich erwartet (vgl. Kap. 7.2). Das hochfrequente Ende des Spektrums oberhalb von 0.02 Hz fällt jedoch nicht mehr proportional zu  $f^{-\frac{5}{3}}$  ab. Stattdessen ist ein Rauschen auf etwa konstantem Niveau zu erkennen, was dadurch erklärt werden kann, daß die natürliche Varianz durch das systeminterne Rauschen überdeckt wird. Das Rauschen wurde durch Mittelung der letzten 20% des Spektrums, d.h. der Frequenzen oberhalb von 0.04 Hz, und anschließender Integration über den gesamten Frequenzbereich bestimmt, da anzunehmen ist, daß das Systemrauschen frequenzunabhängig ist. Dieses ist durch das gepunktet eingezeichnete Rechteck in Abb. 5.5

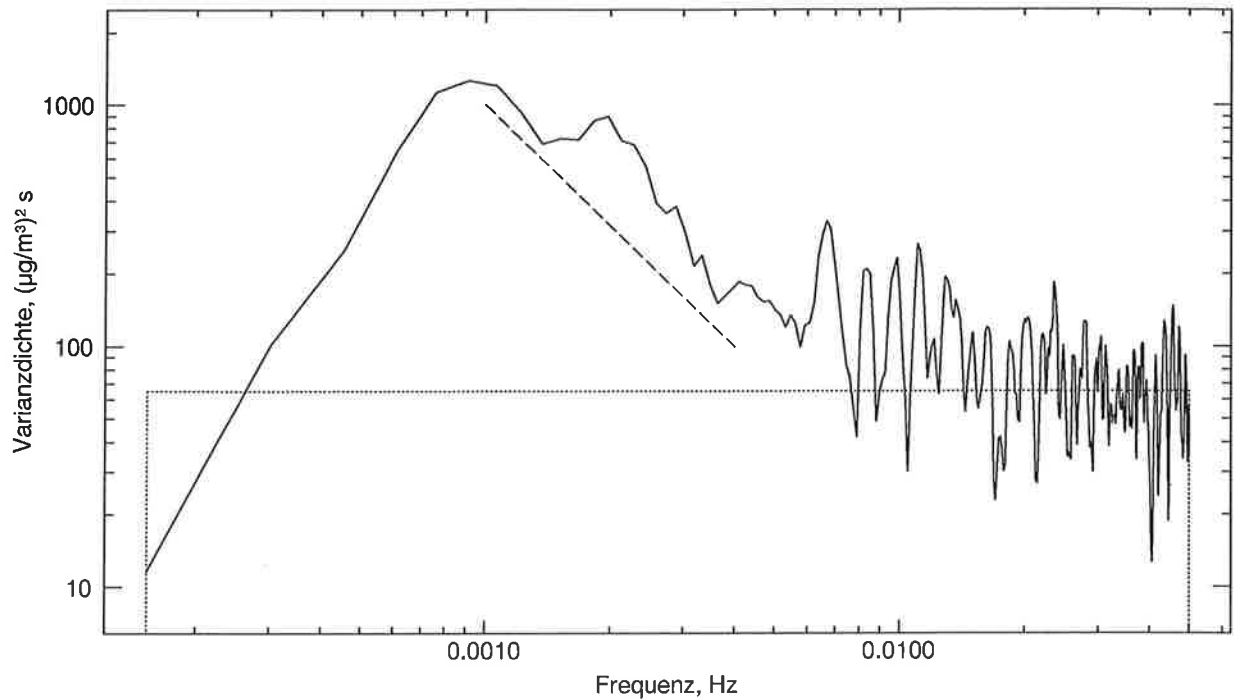


Abbildung 5.5: Varianzspektrum einer Ozondichtezeitreihe. Der im Inertialbereich erwartete  $f^{-3}$ -Verlauf der spektralen Dichte ist gestrichelt eingezeichnet. Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m (kleines Teleskop), Zeit: 9:40–11:40 UT, Auflösung der Zeitserie: 10 s, 75 m

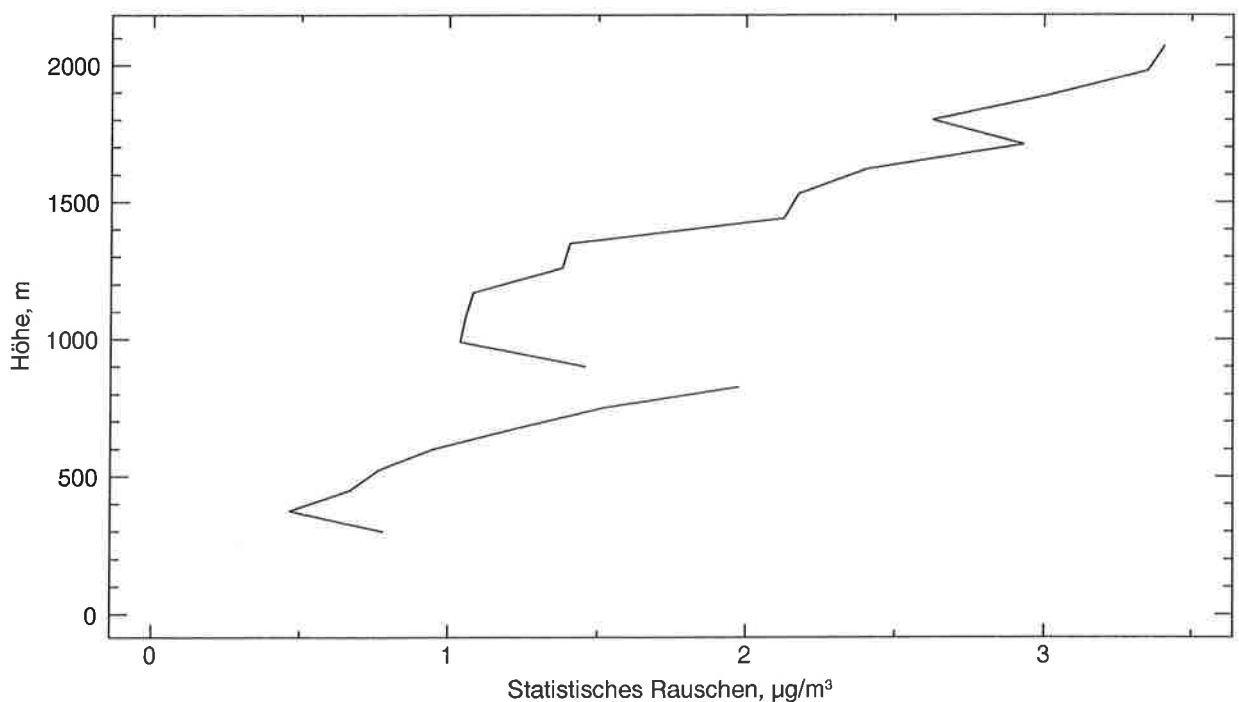


Abbildung 5.6: Statistisches Rauschen des DIAL-Systems bei einer zeitlichen Auflösung von 1 min. Unteres Profil: 75 m Höhenauflösung, gemessen mit kleinem Teleskop und dem Wellenlängenpaar 268/292 nm. Oberes Profil: 90 m Höhenauflösung, gemessen mit großem Teleskop und dem Paar 277/313 nm. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:40–11:40 UT bzw. 7:05–7:36 UT.

angedeutet. Die Varianz des gezeigten Beispiels ergibt sich zu  $3.2 \left(\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}\right)^2$ . Allerdings ist zu beachten, daß das vorgestellte Verfahren eine obere Abschätzung liefert, da auch Beiträge durch natürliche Fluktuationen möglich sind.

Das statistische Rauschen des DIAL-Systems, dargestellt in Abb. 5.6, wurde aus Varianzspektren von Messungen im Sommer 1993 bestimmt. Dazu wurden die Zeitserien in voller zeitlicher Auflösung analysiert. Diese betrug bei Messungen mit dem kleinen Teleskop 10 s und bei Messungen mit dem großen Teleskop 20 s. Die Messungen mit dem kleinen Teleskop wurden mit dem Wellenlängenpaar 268/292 nm und die mit dem großen Teleskop mit 277/313 nm durchgeführt. Das Rauschen wurde nachträglich auf eine zeitliche Auflösung von 1 min umgerechnet. Die räumliche Auflösung betrug bei Messungen mit dem kleinen/großen Teleskop 75/90 m. Zu erkennen ist eine nahezu lineare Zunahme des Rauschens mit der Höhe. Das Rauschen der Messungen mit dem kleinen Teleskop ist in allen Höhen kleiner als  $2 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ , das mit dem großen Teleskop kleiner als  $3.5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .



# Kapitel 6

## Vergleichsmessungen

Wie bei jedem Meßinstrument, so ist es auch beim Ozon-DIAL notwendig, die Genauigkeit der Messungen nicht nur aufgrund theoretischer Überlegungen herzuleiten, sondern ebenso unter realistischen Bedingungen unter Beweis zu stellen. Deshalb wurden verschiedene Vergleichsmessungen durchgeführt. Es stellt sich jedoch ein generelles Problem bei der Durchführung von Vergleichsmessungen in der Grenzschicht: Bedingt durch die hohe räumliche und zeitliche Variabilität der Ozonkonzentration, sind nur solche Vergleichsmessungen sinnvoll, bei denen im Prinzip das gleiche Meßvolumen erfaßt wird. Aus diesem Grund besitzen Vergleiche mit Flugzeugmessungen oder Radiosondenaufstiegen in der Grenzschicht nur eine sehr begrenzte Aussagekraft. Anders ist die Situation in der freien Troposphäre, da dort die Ozondichte erheblich homogener ist.

### 6.1 Vergleich mit UV-Photometer

Die einfachste Möglichkeit Vergleichsmessungen durchzuführen, bietet sich im Falle einer Horizontalmessung mit dem DIAL-System. In diesem Fall kann leicht ein in-situ Referenz-Ozonmeßgerät, z.B. ein UV-Photometer, nahe an die Meßstrecke gebracht werden. Horizontale Vergleichsmessungen wurden 1991 im Rahmen von TROLIX (Tropospheric Ozone Lidar Intercomparison Experiment) durchgeführt. Die Durchführung des Experiments und die Ergebnisse sind ausführlich von Bösenberg et al. (1993) beschrieben.

Als ein Beispiel ist in Abb. 6.1 der Vergleich des Ozon-DIAL-Systems bei einer Horizontalmessung gegen ein Standard-Photometer wiedergegeben. Die Messung erfolgte mit dem Wellenlängenpaar 268/292 nm. Es ist zu erkennen, daß die gemessenen Ozondichten beider Systeme sehr gut übereinstimmen. Die mittlere Abweichung beträgt lediglich  $2.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ . Bei der Auswertung der DIAL-Daten wurde außer zu Sauerstoff keine Querempfindlichkeit zu anderen Gasen berücksichtigt. Die sehr gute Übereinstimmung der Ozonzeitserien läßt deshalb den Schluß zu, daß keine größeren Korrekturterme vernachlässigt worden sind. Insbesondere ergibt sich die Schlußfolgerung, daß die veröffentlichten Absorptionsquerschnitte von Wasserdampf (Klimkin und Fedorichev, 1989; Lukyanenko et al., 1989) nicht mit diesen Messungen in Einklang zu bringen sind.

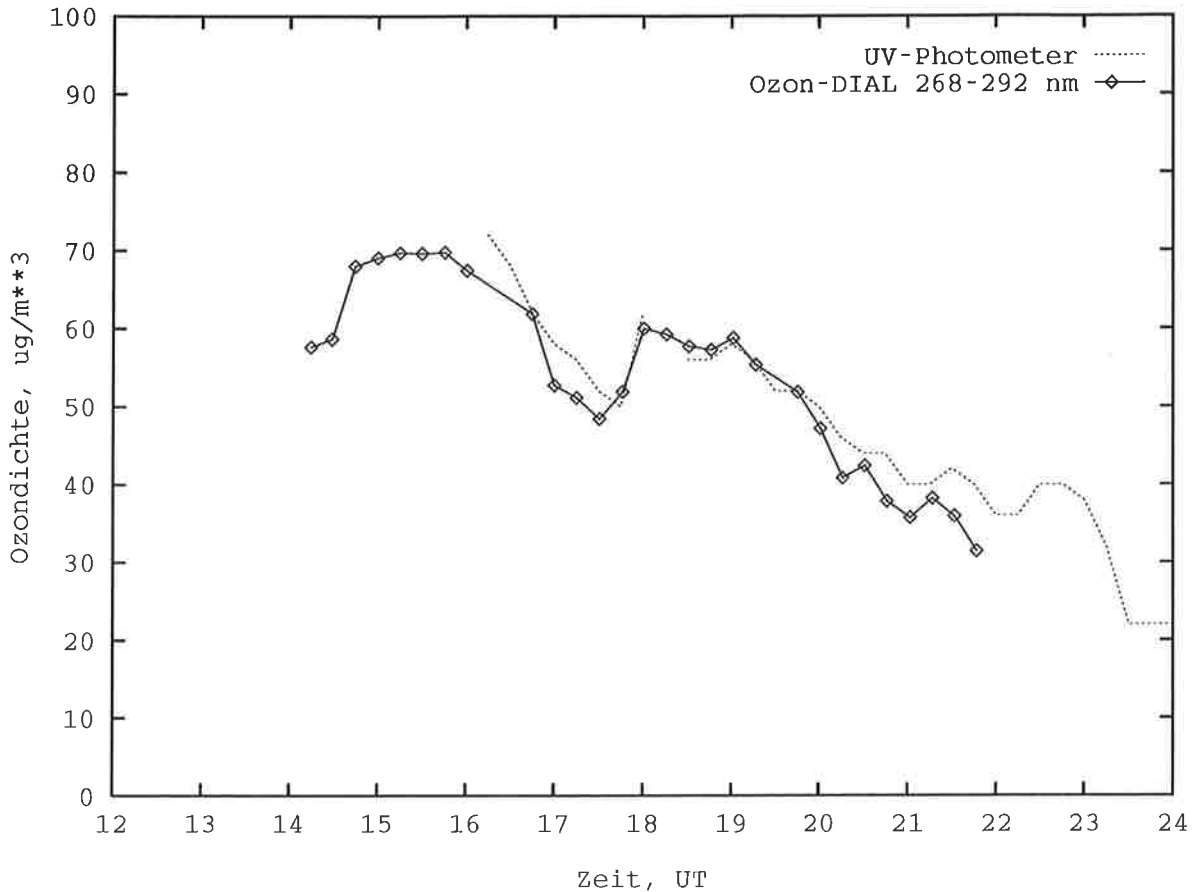


Abbildung 6.1: Horizontalvergleich zwischen DIAL und UV-Photometer

## 6.2 Vergleich mit ECC-Sonde

Ein horizontaler Vergleich erlaubt zwar eine Prüfung der Methode selbst und auch von Teilen der Sende- und Empfangsoptik. Ein derartiger Vergleich ist jedoch nicht vollständig, da erstens Aerosolgradienten, die eine der Hauptursachen für Fehler in Ozonmessungen mit DIAL darstellen (Browell et al., 1985), bei Horizontalmessungen kaum auftreten und zweitens Sende- und Empfangsoptik modifiziert werden mußten. Deshalb wurde versucht, Vergleichsmessungen in der Grenzschicht und freien Troposphäre durchzuführen. Jedoch sind Vergleiche in einigen hundert Metern Höhe schwierig, da ein Referenz in-situ-Meßinstrument nicht einfach derart zu betreiben ist, daß es das gleiche Meßvolumen wie das Lidar erfaßt. Ein Ausweg ist die Verwendung einer ECC-Sonde (Electrochemical Concentration Cell), die von einem Fesselballon getragen werden kann. Ein Vorteil bei der Verwendung eines Fesselballons ist, daß die Sonde und das Lidar relativ dicht zusammen gebracht werden können, so daß beide annähernd das gleiche Volumen erfassen. Ferner sind lange Meßreihen möglich, die einen Vergleich von statistischen Größen erlauben. Nachteilig ist, daß der Höhenbereich meistens durch die maximale Flughöhe des Fesselballons eingeschränkt wird und ein Vergleich immer nur in einer Höhe möglich ist. Außerdem gilt es zu beachten, daß ECC-Sonden keinen Kalibrationsstandard darstellen, sondern viele Fehlerquellen bekannt sind, die die Meßergebnisse

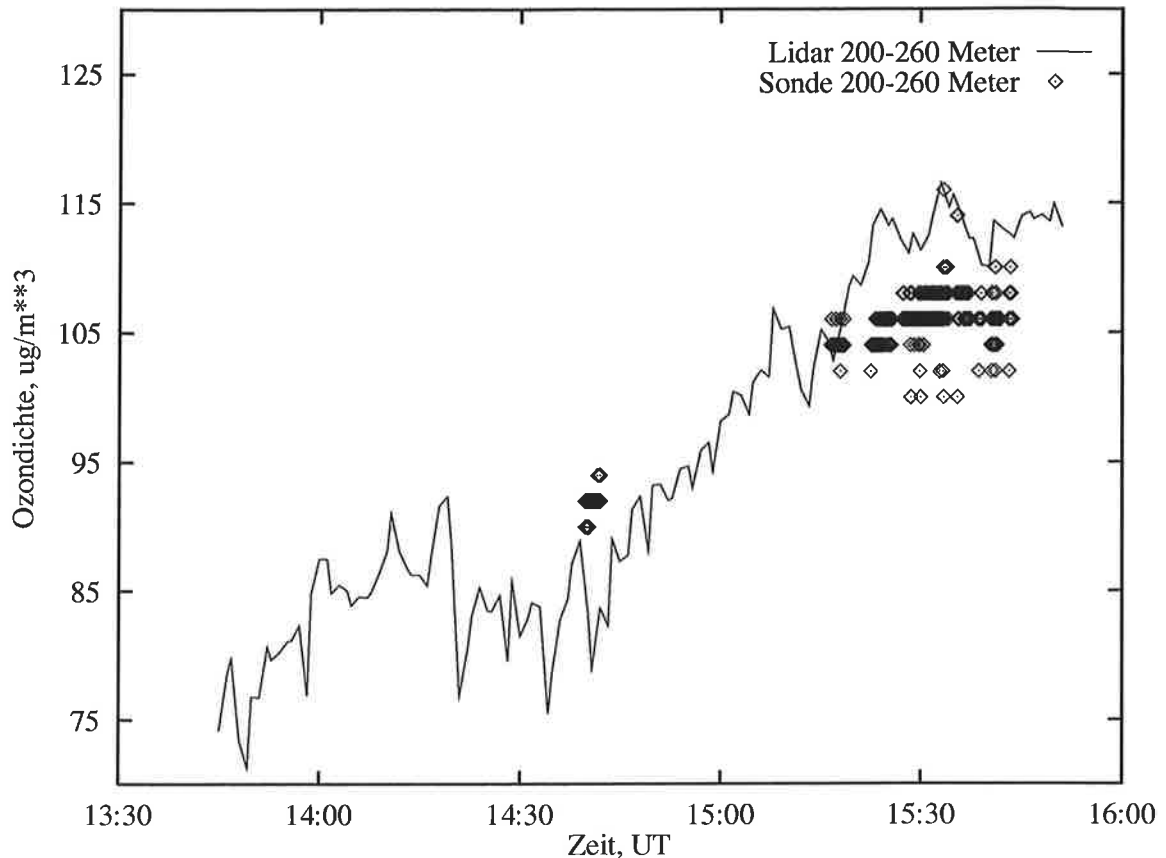


Abbildung 6.2: Vergleich von DIAL und ECC-Sonde

verfälschen können (Schenkel und Broder, 1982), was durch verschiedenartige Vergleichsmessungen eindeutig bestätigt worden ist (Hilsenrath et al., 1986; Beekmann et al., 1994; Smit et al., 1994).

Im Juni 1994 wurden mehrere Vergleichsmessungen am Meteorologischen Observatorium Lindenberg durchgeführt. Die Durchführung des Experiments und die Ergebnisse sind von Bösenberg et al. (1995) und Grabbe et al. (1995) beschrieben. Als ein Beispiel ist eine Messung vom 14.06. in Abb. 6.2 herausgegriffen. Die Lidardaten wurden in einem Höhenbereich von 200–260 m über Grund ausgewertet. Von der Sonde wurden nur die Daten berücksichtigt, die aus dem gleichen Höhenintervall stammen. Erneut ist zu erkennen, daß die zeitliche Entwicklung der Ozondichte von Lidar und Sonde gleichermaßen gut erfaßt wird. Auch die absoluten Werte sind weitestgehend in sehr guter Übereinstimmung.

Vergleiche dieser Art sind in Lindenberg mehrfach durchgeführt worden. Im Mittel aller Vergleichsmessungen, die mit einem Fesselballon durchgeführt worden sind, beträgt der Unterschied zwischen Lidar und ECC-Sonde  $3.5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  (Grabbe et al., 1995). Zusätzlich wurden auch Vergleiche mit freifliegenden ECC-Sonden durchgeführt, wodurch ein Vergleich in der freien Troposphäre ermöglicht wurde. Bei diesen Vergleichen ist die mittlere Abweichung mit  $3.9 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  nahezu gleich groß. Ferner wurden die Varianzen der Ozondichte verglichen, die zum

einen mit dem DIAL-System und zum anderen mit der ECC-Sonde am Fesselballon gemessen wurden. Hierbei wurde festgestellt, daß die gemessenen Varianzen im Falle homogener Aerosolverteilung nahezu gleich groß sind. Bei Messungen in Höhen mit großen Aerosolgradienten ist die vom Lidar gemessene Varianz größer als die von der Sonde gemessene Varianz. Dieses ist wahrscheinlich auf eine fehlerhafte Aerosolkorrektur zurückzuführen (Grabbe et al., 1995).

Diese Vergleiche demonstrieren, daß das Ozon-DIAL-System ein geeignetes Meßgerät darstellt, um die Ozondichteverteilung und -entwicklung im unteren Teil der Troposphäre mit großer Genauigkeit bei hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung zu erfassen.

# Kapitel 7

## Ozonflußmessungen in der Grenzschicht

### 7.1 Einführung

Ozon ist eines der Spurengase, das erheblichen Einfluß auf die chemischen Reaktionen und Spurengaskonzentrationen in der Troposphäre hat. Die Kenntnis des Ozontransportes ist somit wichtig für ein besseres Verständnis der in der Atmosphäre ablaufenden chemischen Prozesse. Einer der wesentlichen Transportprozesse in der konvektiven Grenzschicht ist dabei die turbulente Durchmischung. Also ist der turbulente Ozonfluß entscheidend für den Ozontransport. Aus diesem Grund sind die regionalen Ozonflüsse auch wichtige Eingangsparameter in Zirkulationsmodelle der Atmosphäre. Dafür sind allerdings Messungen in der Grenzschicht notwendig, da die Erdoberfläche die größte Ozonsenke in der Troposphäre ist und damit Messungen in Oberflächennähe stark von der lokalen Umgebung beeinflusst und kaum repräsentativ sind (van Dop et al., 1977). Von besonderem Interesse ist ferner die Ozonbilanz, um die Ozonproduktions- und -vernichtungsraten zu bestimmen. Dabei ist insbesondere die vertikale Flußdivergenz, zu deren Bestimmung vertikal aufgelöste Ozonflußmessungen in der Grenzschicht erforderlich sind, ein wichtiger Term in der Bilanzgleichung.

Bisher sind Ozonflüsse in der Grenzschicht nur mit in-situ-Meßgeräten gemessen worden. Als Meßplattform sind entweder ein meteorologischer Mast oder Turm im untersten Teil der Grenzschicht (van Dop et al., 1977; Wesely et al., 1978; Droppo, 1985; Neumann und Hartog, 1985) und/oder ein Flugzeug (Lenschow et al., 1980, 1981, 1982; Greenhut, 1983, 1986; Greenhut et al., 1984, 1995; Godowitch, 1990) mit entsprechend hohem logistischen und finanziellen Aufwand eingesetzt worden. Hier wird ein neues Meßsystem durch Kombination des Ozon-DIAL-Systems mit einem Radar-RASS (Radio Acoustic Sounding System) vorgestellt. Beim Radar-RASS handelt es sich ebenfalls um ein aktives Fernmeßsystem, mit dem der dreidimensionale Windvektor mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung gemessen werden kann (Peters, 1990). Somit können gleichzeitig Ozondichte und Vertikalwind im gleichen Meßvolumen mit hoher Auflösung erfaßt werden, so daß eine direkte Bestimmung

des turbulenten vertikalen Ozonflusses durch die Berechnung der Kovarianz von Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen möglich ist (Eddy-Korrelations-Verfahren). Da dieses gleichzeitig in verschiedenen Höhenstufen erfolgt, kann simultan das Vertikalprofil des turbulenten Ozonflusses bestimmt werden. Die Idee zu diesem Verfahren geht zurück auf Bösenberg et al. (1991), die eine Kombination aus Wasserdampf-DIAL- und Radar-RASS-System verwendet haben, um den latenten Wärmefluß in der Grenzschicht zu messen.

Nach Darlegung der theoretischen Grundlagen im folgenden Abschnitt, wird in Abschnitt 7.3 der experimentelle Aufbau beschrieben. Daran anschließend wird die Auswertung anhand einiger Beispiele erläutert. In Abschnitt 7.5 werden mögliche Fehlerquellen diskutiert und insbesondere auf die Frage nach ausreichender Auflösung der Meßgeräte eingegangen. Im letzten Abschnitt werden Ozonflußprofile sowie Abschätzungen des Ozonbudgets vorgestellt, die unter konvektiven Bedingungen an vier Tagen im Sommer 1993 gemessen worden sind.

## 7.2 Theorie

### 7.2.1 Aufbau der Grenzschicht

Die Troposphäre, der unterste Teil der Atmosphäre mit einer Erstreckung von ca. 10–15 km, kann grob in zwei Bereiche unterteilt werden:

1. Grenzschicht
2. Freie Troposphäre

Die Grenzschicht ist der untere Teil der Troposphäre, welcher direkt von der Erdoberfläche beeinflusst wird und innerhalb einer Stunde oder schneller auf Oberflächenantriebe reagiert (Stull, 1988, S. 2). Die Höhe der Grenzschicht ist zeitlich und räumlich stark variabel, da sie von der Untergrundbeschaffenheit und den meteorologischen Bedingungen abhängt. Sie kann zwischen 100 und 3000 m schwanken (Stull, 1988, S. 1). Die freie Troposphäre, die meist stabil geschichtet ist, wird häufig durch einen besonders stabil geschichteten Bereich von der Grenzschicht getrennt. Daher ist oft nur ein schwacher Austausch zwischen Grenzschicht und freier Troposphäre möglich, so daß sich Änderungen der Bodeneigenschaften gar nicht oder nur schwach und zeitlich stark verzögert in der freien Troposphäre bemerkbar machen.

Während Transporte in horizontaler Richtung primär durch Advektion mit dem mittleren Wind erfolgen, wird der Vertikalaustausch in der Grenzschicht im wesentlichen durch Turbulenz bewirkt. Diese ist mehrere Größenordnungen effizienter als die molekulare Diffusion (Stull, 1988, S. 5), mit Ausnahme einer nur wenige Millimeter starken Schicht in Bodennähe, der sogenannten molekular-viskosen Schicht. Turbulenz kann verursacht werden durch Windscherungen, Überströmung von Hindernissen und Konvektion. Während die durch Windscherung und Überströmung erzeugte Turbulenz häufig nur einen Teil der Grenzschicht erfaßt, erstreckt sich die durch Konvektion ausgelöste Turbulenz zumeist auf die gesamte Grenzschicht. Konvektion tritt z.B. dann auf, wenn der Erdboden durch die Sonne erwärmt wird

oder eine kalte Luftmasse über eine warme Oberfläche strömt. In der kühleren Umgebungsluft steigen warme Luftpakete aufgrund ihrer geringeren Dichte auf, während gleichzeitig aufgrund der Massenerhaltung an anderen Stellen kältere Luftpakete absinken. Dieses führt zu einer turbulenten Durchmischung der Grenzschicht, deren Intensität unter anderem von der thermischen Schichtung abhängt. Es ergeben sich unterschiedliche Grenzschicht-Typen in Abhängigkeit vom Untergrund und der Wettersituation. Im folgenden wird näher auf die konvektive Grenzschicht über Land bei sommerlicher Hochdruckwetterlage eingegangen, da diese Lage für erhöhte Ozonproduktion besonders wichtig ist, und deshalb die Ozonflußmessungen unter diesen Bedingungen stattgefunden haben. Weitere Details zu Struktur und Aufbau der Grenzschicht sind z.B. in Kaimal und Finnigan (1994) oder Stull (1988) zu finden.

Eine typische tageszeitliche Entwicklung der Grenzschicht unter konvektiven Bedingungen ist in Abb. 7.1 gezeigt. Nach Sonnenaufgang führt die Sonneneinstrahlung zu einer Aufheizung des Erdbodens. Es bilden sich Warmluftblasen in Bodennähe, die sich nach ausreichender Erwärmung vom Erdboden ablösen und aufsteigen. Die aufsteigenden großen Warmluftblasen und Wirbel durchstoßen teilweise die stabil geschichtete Zone zwischen der freien Troposphäre und der Grenzschicht. Gleichzeitig dringt aufgrund der Massenerhaltung Luft aus der freien Troposphäre in die Grenzschicht ein, die durch die starke Turbulenz sofort mit eingemischt wird. Die in die freie Troposphäre aufgestiegenen Luftmassen sinken zumeist in die Grenzschicht zurück, ohne sich in der freien Troposphäre zu vermischen, da dort kaum Turbulenz vorhanden ist. Dieser Prozeß führt zu einem stetigen Anwachsen der Grenzschichthöhe. Den konvektiven Bereich der Grenzschicht bezeichnet man auch als Mischungsschicht, da die Turbulenz für eine gleichmäßige Durchmischung sorgt. Der Übergangsbereich zwischen Grenzschicht und freier Troposphäre wird als Entrainment-Zone (Entrainment = Mitschleppen oder -reißen) bezeichnet.

Aufgrund des steigenden Sonnenstandes und damit zunehmender Konvektion wächst die Grenzschicht bis zum Mittag auf typischerweise 1–2 km an. Häufig kommt es dabei, wie in Abb. 7.1 angedeutet, zu einer Wolkenbildung in der Entrainment-Zone, wenn das Cumulus-Kondensationsniveau in der Grenzschicht liegt. Nachmittags, wenn die Sonneneinstrahlung schwächer wird, läßt die Konvektion und damit die Turbulenz nach, so daß die Grenzschicht nicht weiter anwächst. Bereits etwa eine Stunde vor Sonnenuntergang wird die Strahlungsbilanz am Erdboden negativ, wenn die zugeführte Strahlungsenergie kleiner als der Strahlungsverlust wird. Nach Sonnenuntergang führen die Strahlungsverluste zu einer raschen Abkühlung, wodurch sich eine stabile Schichtung in Bodennähe und anschließend eine nächtliche Inversion aufbaut. Über der Bodenschicht befindet sich die Mischungsschicht vom Vortag, die als Restschicht bezeichnet wird. Aufgrund des fehlenden äußeren Antriebs bleibt sie neutral geschichtet. Insgesamt ist somit in der nächtlichen Grenzschicht viel weniger Turbulenz vorhanden.

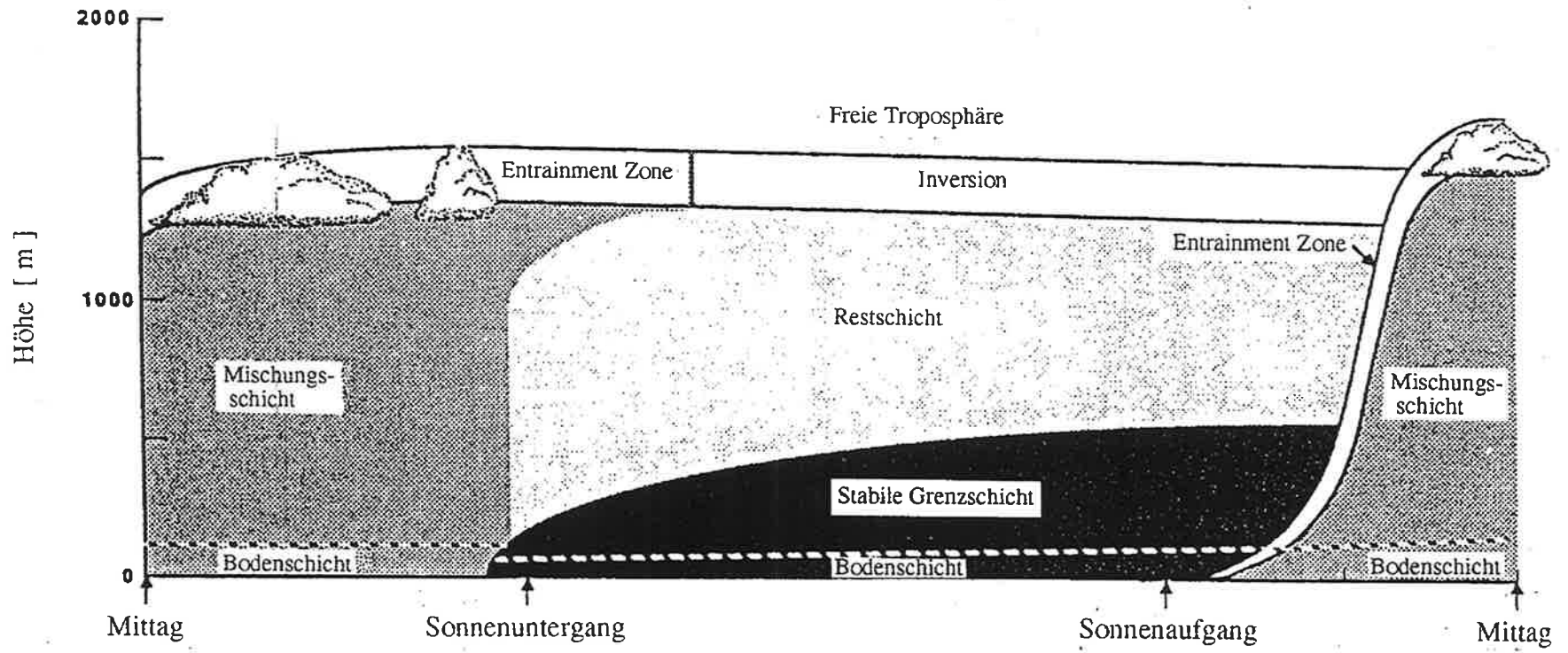


Abbildung 7.1: Zeitliche Entwicklung einer Grenzschicht unter konvektiven Bedingungen (nach Stull, 1988, S. 11).



Nach Sonnenaufgang wird der Erdboden wieder langsam erwärmt. Die Grenzschichthöhe nimmt am Anfang jedoch kaum zu, da zunächst die bodennahe stabile Schichtung ausgeglichen werden muß. Nach Beseitigung der Temperaturinversion wächst die Grenzschichthöhe häufig sehr schnell an, da die Restschicht nahezu neutral geschichtet ist und somit ein aufsteigendes Luftpaket sehr hoch vorstoßen kann. Dabei wird die Restschicht mit in die neue Grenzschicht eingemischt.

Abweichende meteorologische Randbedingungen können die geschilderte Grenzschichtentwicklung modifizieren. So kann z.B. das Anwachsen der Grenzschicht durch horizontale Advektion stark gefördert oder gebremst werden.

### 7.2.2 Turbulenz

Turbulenz kann man sich als eine Überlagerung vieler Wirbel (eddies) unterschiedlicher Größe vorstellen. Das Größenspektrum der Wirbel umfaßt mehrere Größenordnungen: Die räumliche Ausdehnung der Wirbel variiert von Millimetern bis zu Kilometern mit entsprechenden zeitlichen Skalen von Sekunden bis Stunden. Die großen Wirbel, die den Hauptbeitrag an Transport und Durchmischung übernehmen, entstehen durch großräumige Instabilitäten. Ihre Lebenszeit ist begrenzt, da sie in Wechselwirkung mit den anderen Wirbeln stehen. Dieses führt dazu, daß die größeren Wirbel in einer Art Kaskaden-Prozeß mit der Zeit in immer kleinere Wirbel zerfallen, bis die Wirbel so klein werden, daß die kinetische Energie aufgrund innerer Reibung in Wärmeenergie überführt wird.

#### 7.2.2.1 Taylorsche Hypothese

Sollen Messungen in einer turbulent durchmischten Grenzschicht durchgeführt werden, so müßte eigentlich der Zustand der Atmosphäre als Momentaufnahme festgehalten werden, da die Wirbel räumliche Gebilde sind. Dieses ist praktisch nicht durchführbar und kann nur annähernd durch Flugzeugmessungen realisiert werden. Hingegen ist es wesentlich einfacher längere Messungen an einem einzigen Ort durchzuführen. Dazu hat Taylor (1938) vorgeschlagen, daß unter bestimmten Voraussetzungen die Turbulenz als „eingefroren“ betrachtet werden darf, d.h. daß sich beim Transport der Wirbel mit einem mittleren Wind über das Meßinstrument hinweg die Turbulenzeigenschaften kaum verändern, wenn die Lebenszeit der einzelnen Wirbel groß ist im Vergleich zur Zeit, die der Transport der Wirbel über den Sensor hinweg dauert. Daraus folgt, daß eine beobachtete Zeitserie über die mittlere Windgeschwindigkeit  $\bar{u}$  auf eine räumliche Skala übertragen werden kann. Willis und Deardorff (1976) geben als Kriterium für die Gültigkeit der Taylorschen Hypothese an, daß die turbulente Intensität  $I = \sigma_u / \bar{u}$ , wobei  $\sigma_u$  die Standardabweichung der Windgeschwindigkeit ist, kleiner als 0.5 sein muß. Eine weitere Voraussetzung ist eine einigermaßen homogene Umgebung, da sonst eine gemessene Zeitreihe nicht repräsentativ für die regionale Grenzschicht ist. Wenngleich die Wirbel in einer turbulent durchmischten Grenzschicht nie wirklich eingefroren sind, so haben Korrelationsstudien die Gültigkeit der Taylorschen Hypothese bestätigt (Lumley und Panofsky, 1964).

### 7.2.2.2 Spektrale Darstellung der Turbulenz

Eine Möglichkeit um die Effekte und Auswirkungen der einzelnen Wirbelgrößen zu trennen und untersuchen, ist die Fouriertransformation. Da Turbulenz auf Zufallsprozessen beruht, ist eine deterministische Beschreibung nicht möglich. Trotzdem haben Feldexperimente gezeigt, daß die Varianzspektren gewisse Gesetzmäßigkeiten besitzen, die einen Vergleich verschiedener Messungen untereinander möglich macht.

Messungen (van der Hoven, 1957) haben gezeigt, daß das Varianzspektrum der Windgeschwindigkeit und damit indirekt das Spektrum der turbulenten kinetischen Energie eine „spektrale Lücke“ (spectral gap) besitzt. Diese erstreckt sich typischerweise von 0.001 bis 0.0001 Hz ( $\equiv$  15–150 min) mit einem Minimum bei ca. 0.0003 Hz ( $\equiv$  1 h) (van der Hoven, 1957). Die spektrale Lücke trennt die synoptischen und turbulenten Skalen. Die synoptischen Skalen, die einhergehen mit Wetteränderungen und Fronten, die große Teile oder die gesamte Troposphäre erfassen, haben ein Maximum bei ca. 100 h mit einem kleinen Nebenmaximum bei 24 h, verursacht durch den Tagesgang. Der erneute Anstieg des Spektrums bei Zeitskalen kleiner als 1 h wird durch Turbulenz verursacht. Deshalb ist gerade diese Zeitspanne in die Definition der Grenzschicht (s. S. 60) übernommen worden.

Bei der Auswertung atmosphärischer Messungen wird in der Regel die Existenz einer spektralen Lücke vorausgesetzt (Kaimal und Finnigan, 1994, S. 38). Dieses rechtfertigt die Trennung einer gemessenen meteorologischen Größe  $m$  in einen mittleren Wert  $\bar{m}$  und einen turbulenten Anteil  $m'$ :

$$m = \bar{m} + m' \quad (7.1)$$

Die Berechnung des mittleren Wertes erfolgt dabei durch Tiefpaßfilterung, typischerweise mit einer Filterlänge zwischen 30 und 60 min (Stull, 1988, S.33).

Da es im folgenden um Ozonflußmessungen in der Grenzschicht geht, wird der Schwerpunkt nur noch auf den turbulenten Skalen liegen. In Abb. 7.2 ist das idealisierte Varianzspektrum der turbulenten kinetischen Energie gegen die Wellenzahl  $\kappa$  aufgetragen. Die turbulente kinetische Energie  $E$  ist definiert als:

$$E = \frac{1}{2}(u'^2 + v'^2 + w'^2) \quad (7.2)$$

wobei  $u$ ,  $v$  und  $w$  die drei Komponenten der Windgeschwindigkeit bezeichnen. Wie aus der Abbildung ersichtlich, läßt sich das Spektrum in 3 Bereiche unterteilen:

1. Energie-enthaltender Bereich
2. Inertialbereich
3. Dissipationsbereich

Die Größe der Wirbel des Energie enthaltenden und des Dissipationsbereiches können jeweils durch eine charakteristische Länge beschrieben werden: Die Eulersche Integral-Skala  $\Lambda$  im Energie enthaltenden Bereich und die Kolmogorov-Microskala  $\eta$  im Dissipationsbereich.

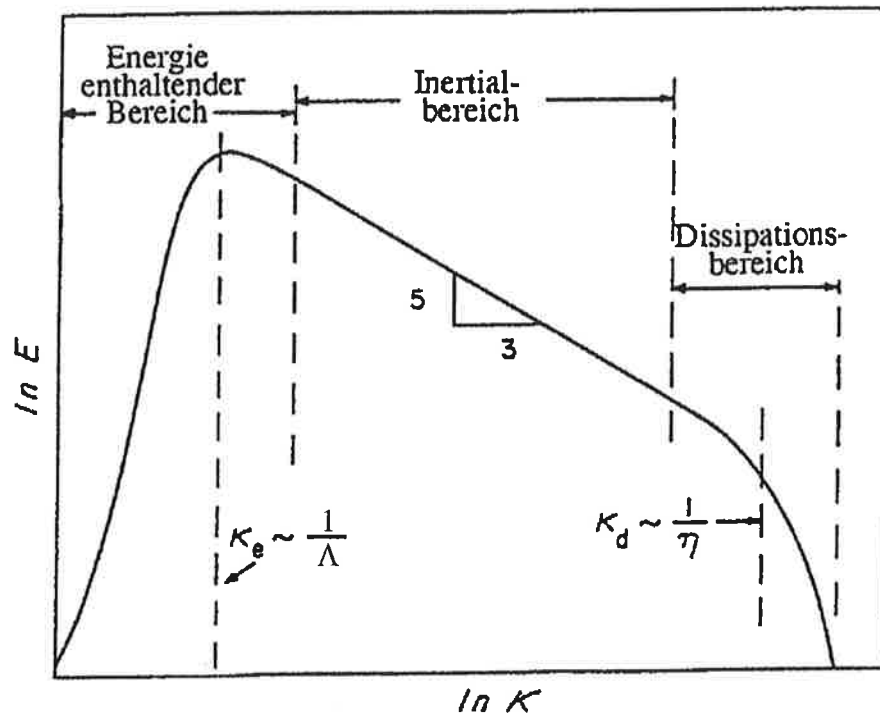


Abbildung 7.2: Schematisches Energiespektrum in der Grenzschicht. (nach Wyngaard, 1991)

**Der Energie-enthaltende Bereich:** Wie aus dem Spektrum in Abb. 7.2 ersichtlich, haben die Wirbel im Energie-enthaltenden Bereich den größten Anteil an der turbulenten kinetischen Energie. Die charakteristische Größe dieser Wirbel ist durch die Eulersche Integral-Skala  $\Lambda$  gegeben, die für eine meteorologische Variable  $m$  durch das Integral über die normierte Autokorrelationsfunktion (Lumley und Panofsky, 1964, S. 14ff) definiert ist:

$$\Lambda_m = \int_0^{\infty} \frac{\overline{m'(\vec{r}_0)m'(\vec{r}_0 + \vec{r})}}{\sigma_m^2(\vec{r}_0)} d\vec{r} \quad (7.3)$$

wobei  $\sigma^2$  die Varianz bezeichnet. Anschaulich betrachtet ist  $\Lambda$  die Strecke, über die die Meßgröße  $m$  mit sich selbst korreliert ist. Wie in Abb. 7.2 eingezeichnet, liegt das Maximum der turbulenten kinetischen Energie in etwa bei Wellenzahlen von  $1/\Lambda$ . Bei kleineren Wellenzahlen fällt das Spektrum rasch ab, so daß die längeren Wellenlängen kaum noch einen Beitrag zur turbulenten Energie liefern. Dieses kennzeichnet den Anfang der spektralen Lücke.

**Der Inertialbereich:** Dieses ist der Bereich, wo Energie weder erzeugt noch in Wärme umgewandelt wird. Stattdessen zerfallen die größeren Wirbel in einer Art Kaskadenprozeß in immer kleinere. Die Form des Spektrums wurde über Ähnlichkeitsbetrachtungen von Kolmogorov (1941) und Obukhov (1941) hergeleitet:

$$E(\kappa) \sim \epsilon^{\frac{2}{3}} \kappa^{-\frac{5}{3}} \quad (7.4)$$

wobei  $\epsilon$  die Dissipationsrate der turbulenten kinetischen Energie ist.

**Der Dissipationsbereich:** Im Dissipationsbereich wird die kinetische Energie in Wärme umgewandelt, so daß das Spektrum in diesem Bereich schneller als im Inertialbereich abfällt. Die charakteristische Größe des Dissipationsbereich ist die Kolmogorov-Microskala  $\eta$ , mit:

$$\eta = \left( \frac{\nu^3}{\epsilon} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (7.5)$$

wobei  $\nu$  die kinematische Zähigkeit ist. In einer konvektiven Grenzschicht beträgt die Dissipationsrate  $\epsilon$  ungefähr  $0.003 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^3}$  und die kinematische Zähigkeit  $\nu$  ca.  $1.5 \cdot 10^{-5} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$ . Daraus ergibt sich nach Gl. 7.5 für die Größe der dissipierenden Wirbel ungefähr 1 mm. Der Übergang vom Inertial- zum Dissipationsbereich erfolgt bei Wellenzahlen von ca.  $0.1/\eta$  (Dubovikov und Tatarskii, 1987).

Wenngleich die bisher gemachten Aussagen ausschließlich die kinetische Energie betreffen, so können sie jedoch prinzipiell auch auf andere Skalare übertragen werden (Kaimal und Finnigan, 1994, S. 37). Das Spektrum der Kovarianz fällt im Inertialbereich sogar proportional zu  $\kappa^{-\frac{7}{3}}$  ab, d.h. daß der Beitrag dieser Wirbel zur Kovarianz noch schneller vernachlässigbar wird (Kaimal et al., 1972).

Es läßt sich festhalten, daß genaue Form und Lage des Spektrums zwar variablenabhängig sind, insgesamt die Form jedoch immer derjenigen in Abb. 7.2 ähnelt. Dieses gilt insbesondere für den Inertialbereich, der für alle Skalare proportional zu  $\kappa^{-\frac{5}{3}}$  ist. Unter der Voraussetzung der Taylorschen Hypothese gelten diese Aussagen in gleicher Weise für das Varianzspektrum einer Zeitserie.

### 7.2.3 Eddy-Korrelations-Methode

Um den vertikalen turbulenten Ozonfluß  $\overline{w' \rho'_{\text{O}_3}}$  direkt bestimmen zu können, müssen Ozondichte  $\rho_{\text{O}_3}$  und Vertikalwind  $w$  im gleichen Volumen gleichzeitig gemessen werden. Durch geeignete Hochpaßfilterung können dann aus den beiden Zeitreihen die Fluktuationsterme bestimmt werden. Eine anschließende Mittelung über das Produkt der Fluktuationen liefert direkt den turbulenten Ozonfluß. Dieses Verfahren ist unter dem Namen „Eddy-Korrelations-Methode“ bekannt. Eine entscheidende Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Eddy-Korrelations-Methode ist, daß Spurengasdichte und Vertikalwindgeschwindigkeit mit ausreichender zeitlicher Auflösung gemessen werden. Ausreichend bedeutet in diesem Zusammenhang, daß die Wirbel, die hauptsächlich zum turbulenten Austausch beitragen, erfaßt werden. Gleichzeitig müssen die Messungen natürlich sehr präzise sein, damit die natürlichen Fluktuationen nicht durch das Systemrauschen überdeckt werden.

Die Idee der Eddy-Korrelations-Methode soll kurz anhand einer bodennahen Messung des turbulenten Ozonflusses vorgestellt werden. Bekanntermaßen wird Ozon am Erdboden abgebaut, so daß die bodennahe Schicht in der Regel eine geringere Ozonkonzentration als der Rest der Grenzschicht aufweist. Somit besitzt eine Warmluftblase, die sich durch die Erwärmung der Erdoberfläche vom Erdboden ablöst, eine geringere Ozonkonzentration. Ein

Wind- und Ozonsensor, die einige Meter über der Erdoberfläche angebracht sind, werden deshalb zeitgleich einen nach oben gerichteten Wind sowie eine verminderte Ozonkonzentration messen. Per Definition hat ein nach oben gerichteter Wind positives Vorzeichen, die Abnahme der Ozonkonzentration ein negatives, so daß das Produkt der Fluktuationen negativ ist. Wenn zu einem späteren Zeitpunkt ein anderes Luftpaket an gleicher Stelle absinkt, so führt es ozonreiche Luft aus der durchmischten Grenzschicht mit sich. Die Meßfühler werden also gleichzeitig einen abwärts gerichteten Wind und einen Anstieg der Ozonkonzentration feststellen. Das Produkt ist somit wieder negativ und der Mittelwert wird insgesamt ein negatives Vorzeichen haben. Dieses bedeutet, daß Ozon von oben nach unten transportiert wird.

In diesem einfachen Modell trat nur der Boden als Ozonsenke auf. In der Grenzschicht finden zusätzlich noch diverse chemische Reaktionen statt, so daß eine Voraussage über den Ozonfluß in der mittleren und oberen Grenzschicht nicht so einfach zu treffen ist. Insofern kann die Messung des turbulenten Flusses dazu beitragen, ein besseres Verständnis der zugrundeliegenden Prozesse zu erhalten.

#### 7.2.4 Webb-Korrektur

Webb et al. (1980) haben darauf hingewiesen, daß eine Korrektur des gemessenen turbulenten Flusses notwendig ist, wenn das Eddy-Korrelations-Verfahren auf direkten Dichtemessungen in der Atmosphäre beruht. Dieses ist bei DIAL-Messungen der Fall. Die Ursache kann man wie folgt verstehen: Bei einem positiven fühlbaren Wärmefluß sind aufsteigende Luftpakete im Mittel wärmer und damit auch von geringerer Dichte als absteigende Luftpakete. Nimmt man an, daß der vertikale Massentransport null ist, so muß zum Ausgleich ein aufwärts gerichteter mittlerer Vertikalwind vorhanden sein. Gleiches gilt für einen positiven Wasserdampflluß, da feuchte Luft eine kleinere Dichte als trockene Luft besitzt, so daß sich beide Effekte addieren. Dieser mittlere Vertikalwind ist durch herkömmliche Meßgeräte nicht auflösbar, da er typischerweise kleiner als  $1 \frac{\text{mm}}{\text{s}}$  ist. Wäre er meßbar, so bräuchte keine Korrektur angebracht zu werden.

Nach Webb et al. (1980) kann der korrigierte Ozonfluß  $(\overline{w' \rho'_{\text{O}_3}})_{\text{corr}}$  folgendermaßen berechnet werden:

$$(\overline{w' \rho'_{\text{O}_3}})_{\text{corr}} = \overline{w' \rho'_{\text{O}_3}} + \frac{M_{\text{L}} \bar{\rho}_{\text{O}_3}}{M_{\text{W}} \bar{\rho}_{\text{L}}} \cdot \overline{w' \rho'_{\text{W}}} + \left(1 + \frac{M_{\text{L}} \bar{\rho}_{\text{W}}}{M_{\text{W}} \bar{\rho}_{\text{L}}}\right) \cdot \left(\frac{\bar{\rho}_{\text{O}_3}}{\bar{T}}\right) \cdot \overline{w' T'} \quad (7.6)$$

wobei  $M_{\text{L}}$  die Molmasse von trockener Luft,  $M_{\text{W}}$  die Molmasse von Wasser,  $\rho_{\text{L}}$  die Dichte von trockener Luft,  $\rho_{\text{W}}$  die Wasserdampfdichte und  $T$  die Temperatur ist. Bedingt durch die Vorfaktoren, geht der fühlbare Wärmefluß ungefähr fünfmal so stark in die Korrektur wie ein gleichgroßer latenter Wärmefluß ein.

### 7.2.5 Ozonhaushalt

Betrachtet man ein gewisses Volumen in der Atmosphäre und setzt Massenerhaltung voraus, so wird die Massenbilanz eines Spurengases, für die vorliegende Arbeit also Ozon, durch die Kontinuitätsgleichung beschrieben:

$$\frac{\partial \varrho_{\text{O}_3}}{\partial t} + \frac{\partial j_i}{\partial x_i} = S_{\text{O}_3} \quad , \quad i = 1, 2, 3 \quad (7.7)$$

wobei  $j_i$  die Komponenten der Massenstromdichte,  $x_i$  die Komponenten des Ortsvektors und  $S_{\text{O}_3}$  den Quell- bzw. Senkenterm bezeichnet. In dieser sowie allen folgenden Gleichungen wird die Einsteinsche Summenkonvention benutzt, d.h. über doppelt auftretende Indizes wird summiert. Die Komponenten der Massenstromdichte lassen sich darstellen als:

$$j_i = u_i \varrho_{\text{O}_3} - D \frac{\partial \varrho_{\text{O}_3}}{\partial x_i} \quad (7.8)$$

wobei  $u_i$  die Komponenten der Windgeschwindigkeit und  $D$  den Diffusionskoeffizient bezeichnet. Durch Zerlegung der Windgeschwindigkeitskomponenten und Ozondichte in einen mittleren und fluktuierenden Anteil gemäß Gl. 7.1 und Einsetzen von Gl. 7.8 in Gl. 7.7 folgt:

$$\frac{\partial \bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{\partial t} + \frac{\partial \overline{\varrho'_{\text{O}_3}}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \bar{u}_i \bar{\varrho}_{\text{O}_3} + \overline{u'_i \varrho'_{\text{O}_3}} + u'_i \bar{\varrho}_{\text{O}_3} + \bar{u}_i \varrho'_{\text{O}_3} - D \frac{\partial (\bar{\varrho}_{\text{O}_3} + \overline{\varrho'_{\text{O}_3}})}{\partial x_i} \right) = S_{\text{O}_3} \quad (7.9)$$

Daraus folgt nach zeitlicher Mittelung:

$$\frac{\partial \bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \bar{u}_i \bar{\varrho}_{\text{O}_3} + \overline{u'_i \varrho'_{\text{O}_3}} - D \frac{\partial \bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{\partial x_i} \right) = \bar{S}_{\text{O}_3} \quad (7.10)$$

da  $\overline{\varrho'_{\text{O}_3}} = \overline{u'_i} = 0$ . Der Term  $\overline{u'_i \varrho'_{\text{O}_3}}$  wird als mittlerer turbulenter Ozonfluß bezeichnet. Gl. 7.10 läßt sich durch einige, in einer konvektiven Grenzschicht in der Regel gut erfüllte Annahmen weiter vereinfachen:

1. Luft ist inkompressibel (Businger, 1982)
2. Mittlere Vertikalwindgeschwindigkeit verschwindet (Stull, 1988, S. 53)
3. Molekulare Diffusion vernachlässigbar gegen Turbulenz

Aus der 1. Annahme folgt direkt, daß die Divergenz der Windgeschwindigkeit verschwindet (Garratt, 1992, S. 21). Aus der 2. Annahme folgt, daß der vertikale advektive Fluß normalerweise vernachlässigbar ist im Vergleich zu den turbulenten Flüssen. Wählt man ferner die  $x$ -Achse in Richtung der mittleren Windgeschwindigkeit, so ist  $\bar{v} = 0$  und Gl. 7.10 vereinfacht sich zu:

$$\frac{\partial \bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{\partial x} + \frac{\partial \overline{u'_i \varrho'_{\text{O}_3}}}{\partial x_i} = \bar{S}_{\text{O}_3} \quad (7.11)$$

Wenngleich horizontale Homogenität in der konvektiven Grenzschicht im allgemeinen nicht gegeben ist, so ist dennoch die vertikale Inhomogenität erheblich größer. Deshalb sind die

horizontalen turbulenten Flüsse, und damit auch ihre horizontalen Gradienten, erheblich kleiner als die vertikalen. Vernachlässigt man die horizontalen Gradienten des turbulenten Flusses, so folgt aus Gl. 7.11:

$$\frac{\partial \bar{\rho}_{\text{O}_3}}{\partial t} + \bar{u} \frac{\partial \bar{\rho}_{\text{O}_3}}{\partial x} + \frac{\partial \overline{w' \rho'_{\text{O}_3}}}{\partial z} = \bar{S}_{\text{O}_3} \quad (7.12)$$

Gl. 7.12 besagt, daß die Summe aus der zeitlichen Änderung der lokalen Ozondichte, horizontaler Advektion und vertikaler Flußdivergenz gerade den lokalen mittleren Produktions- oder Senkenterm ergibt.

## 7.3 Experimentaufbau und -durchführung

Die Ozonflußmessungen mit dem kombinierten DIAL-RASS-System wurden auf dem Militärflugplatz „Hungrierer Wolf“ (geographische Lage: 53°59' N, 9°35' O), ca. 7 km nördlich von Itzehoe und 55 km nordwestlich von Hamburg, durchgeführt. Das Flugplatzgelände besteht hauptsächlich aus Wiesen mit niedrigem Grasbewuchs sowie einigen Versorgungsstraßen und Gebäuden. Der Flugplatz liegt in einer Gegend mit vorwiegend landwirtschaftlich genutzten Feldern, einigen Wäldern sowie kleineren Orten. Größere Industrieanlagen sind nicht vorhanden. Insgesamt ist die Umgebung relativ eben und ohne größere Erhebungen, so daß sich bei großräumiger Betrachtung eine relativ einheitliche Geländestruktur ergibt.

Das DIAL-System wurde bereits ausgiebig in Kap. 3 beschrieben. Im folgenden werden das Meßverfahren und der Aufbau des Radar-RASS kurz vorgestellt. Detailliertere Beschreibungen sind bei Peters et al. (1988) und Bauer (1992) zu finden.

### 7.3.1 Beschreibung des Radar-RASS-Systems

Das Radar-RASS-System besteht aus einem FM-CW-Dopplerradar (Frequency Modulated Continuous Wave), das mit einer Schallquelle zu einem RASS-System gekoppelt wurde.

Das Radar-RASS-System kann simultan in zwei verschiedenen Meßmodi, dem Clear-Air- und dem RASS-Modus, betrieben werden:

**Clear-Air-Modus:** Durch Temperatur- und Feuchtefluktuationen werden natürliche Brechungsindexschwankungen erzeugt, die als Streuzentren für das emittierte elektromagnetische Radarsignal wirken. Aus der Dopplerverschiebung des empfangenen gegenüber dem emittierten Radarsignal kann die radiale Windkomponente direkt bestimmt werden. Wird der Radarstrahl senkrecht nach oben ausgerichtet, so liefert der Clear-Air-Modus unmittelbar den Vertikalwind.

Ein Nachteil des Clear-Air-Modus ist, daß die Intensität der rückgestreuten Signale aufgrund der geringen Rückstreuquerschnitte sehr klein sind. Zudem ist die Intensität abhängig von den meteorologischen Bedingungen, z.B. ist das Signal an feuchten Tagen erheblich größer als an trockenen Tagen und hohe Signalintensitäten erhält man nur in Bereichen

kräftiger Turbulenz. Ferner kann das Signal durch Festechos z.B. von Gebäuden gestört werden. Ein Vorteil dieses Meßmodus ist, daß die Windgeschwindigkeit im Gegensatz zum RASS-Modus direkt gemessen wird.

**RASS-Modus:** Durch Schallwellen werden künstliche Brechungsindexschwankungen erzeugt, an denen der Radarstrahl zurückgestreut wird. Dabei ist das reflektierte Signal aus zwei Gründen sehr groß: Erstens breiten sich Schall- und Radarwellen kugelförmig aus, so daß die Radarstrahlen gut refokussiert werden. Zweistens werden Schall- und Radarfrequenz so gewählt, daß die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Dieses wird in der Praxis dadurch erreicht, daß gleichzeitig verschiedene Schallfrequenzen emittiert werden. Aus dem Frequenzspektrum des Empfangssignals wird für jede Höhe die Schallfrequenz  $f_B$  ermittelt, für die die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Hieraus läßt sich die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Schallwellen  $c_a$  bestimmen:

$$c_a = \frac{cf_B}{2f_R} \quad (7.13)$$

wobei  $f_R$  die elektromagnetische Sendefrequenz ist. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit  $c_a$  setzt sich zusammen aus der eigentlichen, temperaturabhängigen Schallgeschwindigkeit  $c_s$  und der Windgeschwindigkeit in Ausbreitungsrichtung  $u_r$ :

$$c_a = c_s + u_r \quad (7.14)$$

Temperatur und Vertikalwindgeschwindigkeit lassen sich somit nur unter zusätzlichen Annahmen bei senkrechtem Meßbetrieb bestimmen: Dazu wird vorausgesetzt, daß die Fluktuationen im wesentlichen auf den Vertikalwind zurückzuführen sind und andererseits der Vertikalwind im Mittel verschwindet, so daß die mittlere Ausbreitungsgeschwindigkeit nur von der Schallgeschwindigkeit und damit von der Temperatur bestimmt wird. Die Separation von Temperatur und Vertikalwindgeschwindigkeit erfolgt somit über eine geeignete Filterung der Zeitreihen. Richter (1994) hat gezeigt, daß obige Annahme in der konvektiven Grenzschicht gut erfüllt ist.

Ein Nachteil des RASS-Modus ist, daß die vertikale Windkomponente nicht direkt gemessen wird, sondern nur unter zusätzlichen Annahmen hergeleitet werden kann. Ferner ist die Reichweite durch die Verdriftung der Schallwellen mit dem mittleren Wind begrenzt. Ein Vorteil dieses Meßmodus ist die kleinere Abhängigkeit von den meteorologischen Bedingungen im Vergleich zum Clear-Air-Modus. Insbesondere bei Schwachwind-Situationen wird eine große Reichweite erzielt. Zudem gibt es keine störenden Festechos, da ein anderer Frequenzbereich benutzt wird.

Zusammenfassend läßt sich festhalten, daß der RASS-Modus gut für Messungen in der unteren Grenzschicht geeignet ist, da die Schallwellenfronten weder stark deformiert noch verdriftet sind, so daß eine gute Fokussierung des Radarsignals erzielt wird. Hingegen wird das Clear-Air-Signal insbesondere in den unteren Höhen durch Festechos gestört. Dieses ist in der Regel in der oberen Grenzschicht kein Problem, während dort das RASS-Signal normalerweise bereits sehr klein ist. Beide Meßmodi stellen also zur Bestimmung des Vertikalwindes eine gute Ergänzung zueinander dar.



	Radarsender	Akustischer Sender
Frequenz	1235 MHz	2700–3000 Hz
Bandbreite	2 MHz ( $\equiv$ 75 m)	100 Hz
Sendeleistung	800 W	40 W
Antennenapertur	1.6 x 1.6 m <sup>2</sup>	0.8 x 0.8 m <sup>2</sup>
Antennengewinn	27.5 dB	
Antennentyp	4 x 4 Hornstrahler in quadratischer Anordnung	
Strahlrichtung	$\pm 8.5^\circ$ Zenitwinkel in Nord/Süd- und Ost/West-Ebene	
Strahlbreite (3 dB)	$\pm 2.4^\circ$	
<u>Modulation:</u>	Sägezahnförmig	
Modulationsfrequenz	100 Hz	
Frequenzhub	2 MHz	

Tabelle 7.1: Radar-RASS-Systemdaten

Die Abstrahlung der elektromagnetischen und akustischen Signale erfolgt jeweils über vier mal vier Hornstrahler. Wenn alle Hornstrahler gleichphasig geschaltet werden, entsteht ein vertikal gerichteter Kegel mit einem vollen Öffnungswinkel von 85 mrad. Mittels gezielter Phasenverschiebungen können die Strahlen um ca.  $9^\circ$  in alle Himmelsrichtungen geschwenkt werden. Dadurch ist eine Bestimmung des dreidimensionalen Windvektors möglich. Allerdings beträgt die Mindestmeßzeit je Strahlrichtung aus statistischen Gründen knapp 10 s.

Der akustische Sender ist gegenüber dem Radar um  $360^\circ$  drehbar, damit die Schallquelle immer so gedreht werden kann, daß die Schallwellen mit dem Wind über Radarsender und -empfänger hinwegdriften. Zusätzlich ist der Abstand zwischen Schall- und Radarsender veränderbar, um eine Anpassung an unterschiedliche Windgeschwindigkeiten vornehmen zu können. Eine Zusammenstellung der technischen Daten des Radar-RASS-Systems findet sich in Tab. 7.1.

### 7.3.2 Durchführung

Für den Betrieb des DIAL-Systems konnte zwischen folgenden Optionen gewählt werden:

1. Großes oder kleines Teleskop (mit entsprechend unterschiedlichem Entfernungsbereich)
2. SRS in Wasserstoff oder Deuterium (mit entsprechend unterschiedlichen Wellenlängen)

Das System ist so aufgebaut (vgl. Kap. 3), daß jede der vier Kombinationsmöglichkeiten gewählt werden kann. Für die Flußmessungen, die in der turbulent durchmischten Grenzschicht durchgeführt wurden, wurde das kleine Teleskop mit einem nutzbaren Signalhöhensbereich von etwa 225–825 m verwendet. Aufgrund des häufig relativ hohen Aerosolgehalts in der Grenzschicht und den damit verbundenen Aerosolgradienten in der Entrainmentzone, wurde für die Messung das Wellenlängenpaar 268/292 nm (SRS in Deuterium) dem Paar

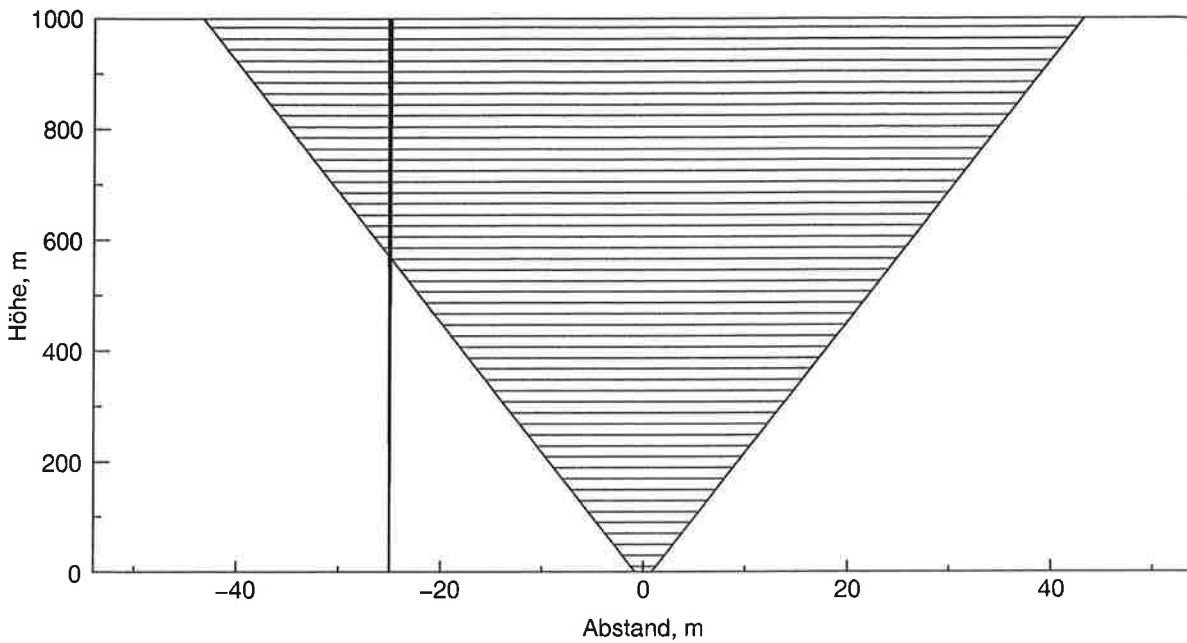


Abbildung 7.3: Meßvolumina von DIAL und Radar-RASS

277/313 nm aufgrund der deutlich kleineren Aerosolempfindlichkeit (s. Kap. 5.1.1) vorgezogen. Die Lidarsignale wurden mit 10 s zeitlicher Auflösung bei 10 Hz Laserpulsrate, d.h. jeweils 100 Schuß, aufgezeichnet. Nach ca. 1.5 Stunden wurden die Messungen unterbrochen, um die Strahleinstellung zu kontrollieren. Alle 3–4 Stunden wurde zusätzlich eine Messung mit dem großen Teleskop durchgeführt, um den Tagesgang der Ozonkonzentration in der freien Troposphäre zu erfassen. Aufgrund der größeren Reichweite wurde hierfür das Wellenlängenpaar 277/313 nm verwendet.

Das Radar-RASS-System wurde parallel im RASS- und Clear-Air-Modus betrieben. Da für die Ozonflußmessung nur die Vertikalwindfluktuationen benötigt werden, wurde auf die Messung des dreidimensionalen Windvektors verzichtet, also das Radar-RASS parallel zu den DIAL-Messungen mit dem kleinen Teleskop nur in vertikaler Ausrichtung betrieben. Dieses ermöglichte eine Vertikalwindmessung mit 10 s zeitlicher Auflösung. Zwischenzeitlich wurde gleichzeitig zu den DIAL-Messungen mit dem großen Teleskop, auch der dreidimensionale Windvektor mit einer zeitlichen Auflösung von 1 min gemessen. Neben den in Echtzeit berechneten Schall- bzw. Windgeschwindigkeiten wurden auch die Frequenzspektren der Empfangssignale für nachträgliche Untersuchungen aufgezeichnet.

Die beiden Meßsysteme wurden für die Flußmessungen so nahe wie möglich zusammengebracht, um eine Überlappung der Meßvolumina in möglichst geringen Höhen zu erreichen. Dieses war aufgrund der räumlichen Ausdehnung der Geräte und der lokalen Verhältnisse nur mit Einschränkungen möglich, so daß ein Abstand von 25 m blieb. In Abb. 7.3 sind die Meßvolumina beider Systeme in Abhängigkeit von der Meßhöhe dargestellt. Aufgrund

der unterschiedlichen Erfassungswinkel und des Horizontalabstandes sind die Meßvolumina des DIAL-Systems und Radar-RASS unterschiedlich. Die Abweichungen sind jedoch sehr klein, wenn man sie mit der räumlichen Ausdehnung der erfaßten Wirbel vergleicht. Für die Ozonflußberechnung werden die Meßwerte über 60 s gemittelt. Dieses entspricht, bei einem typischen horizontalen Wind in der konvektiven Grenzschicht von  $3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ , einer räumlichen Mittelung über 180 m. Somit haben die kleinsten von dem System noch erfaßten Wirbel eine Wellenlänge von 360 m. Auf die Fehler, die durch die unterschiedlichen Meßvolumina verursacht werden, wird in Kap. 7.5.1.1 noch näher eingegangen.

### 7.3.3 Bodenstation

Zur Erfassung der atmosphärischen Parameter Temperatur, Druck, Feuchte, Globalstrahlung sowie Windrichtung und -geschwindigkeit in Bodennähe wurde ein meteorologischer Mast benutzt. Dieser war bestückt mit Meßfühlern der Fa. Siggelkow, die sich in ca. 2 m Höhe über dem Erdboden befanden, mit Ausnahme der Windmeßfühler, die in ca. 10 m Höhe befestigt waren. Die Meßdaten wurden mit einer Rate von 6 s abgefragt und an eine Datenstation sowie einen Personal-Computer (PC) weitergeleitet. Von diesem wurden die Daten über 10 Minuten gemittelt und die Mittelwerte auf Festplatte gespeichert.

Die Ozonkonzentration in Bodennähe wurde mit einem Ozonanalysator der Fa. Ansyco, Modell O<sub>3</sub>41M, mit 1 min zeitlicher Auflösung gemessen und ebenfalls auf Festplatte gespeichert. Die Luftansaugöffnung befand sich ca. 2 m über dem Erdboden. Der Ozonanalysator arbeitet nach dem Prinzip der UV-Absorption und ermöglicht so eine direkte Bestimmung der Ozonkonzentration (Ansyco, 1991).

Zur Bestimmung des vertikalen Ozonflusses in Oberflächennähe wurden ein schneller Ozonsensor der Fa. GFAS, Modell OS-G-2, und ein schneller Windsensor der Fa. Metek, Modell usat-3, eingesetzt. Der Ozonsensor (maximale Meßrate 10 Hz) mißt die Ozonkonzentration nach dem Chemilumineszenz-Prinzip (Güsten et al., 1992). Dieses erlaubt lediglich relative Ozonmessungen, so daß eine Eichung durch ein absolut messendes Ozonmeßgerät notwendig ist. Der Windsensor (maximale Meßrate 24 Hz) mißt die drei Komponenten der Windgeschwindigkeit über die Differenz, sowie die Temperatur über die Summe von Schalllaufzeiten (Metek, 1990). Die Meßwerte beider Sensoren wurden in digitalisierter Form gleichzeitig mit 5 Hz auf einem PC aufgezeichnet. Beide Sensoren waren in ca. 5 m Höhe in einem Abstand von ungefähr 30 cm montiert.

Die Ozon- und meteorologischen Daten wurden automatisch ganztägig, die Daten der Ozonsonde und des schnellen Windsensors in Abschnitten von je ca. 3 Stunden gespeichert. Einmal täglich wurde ein Uhrenabgleich aller beteiligten Rechner durchgeführt, um zeitliche Übereinstimmung zu gewährleisten.

Ein Teil der eingesetzten Meßgeräte ist in Abb. 7.4 abgebildet.

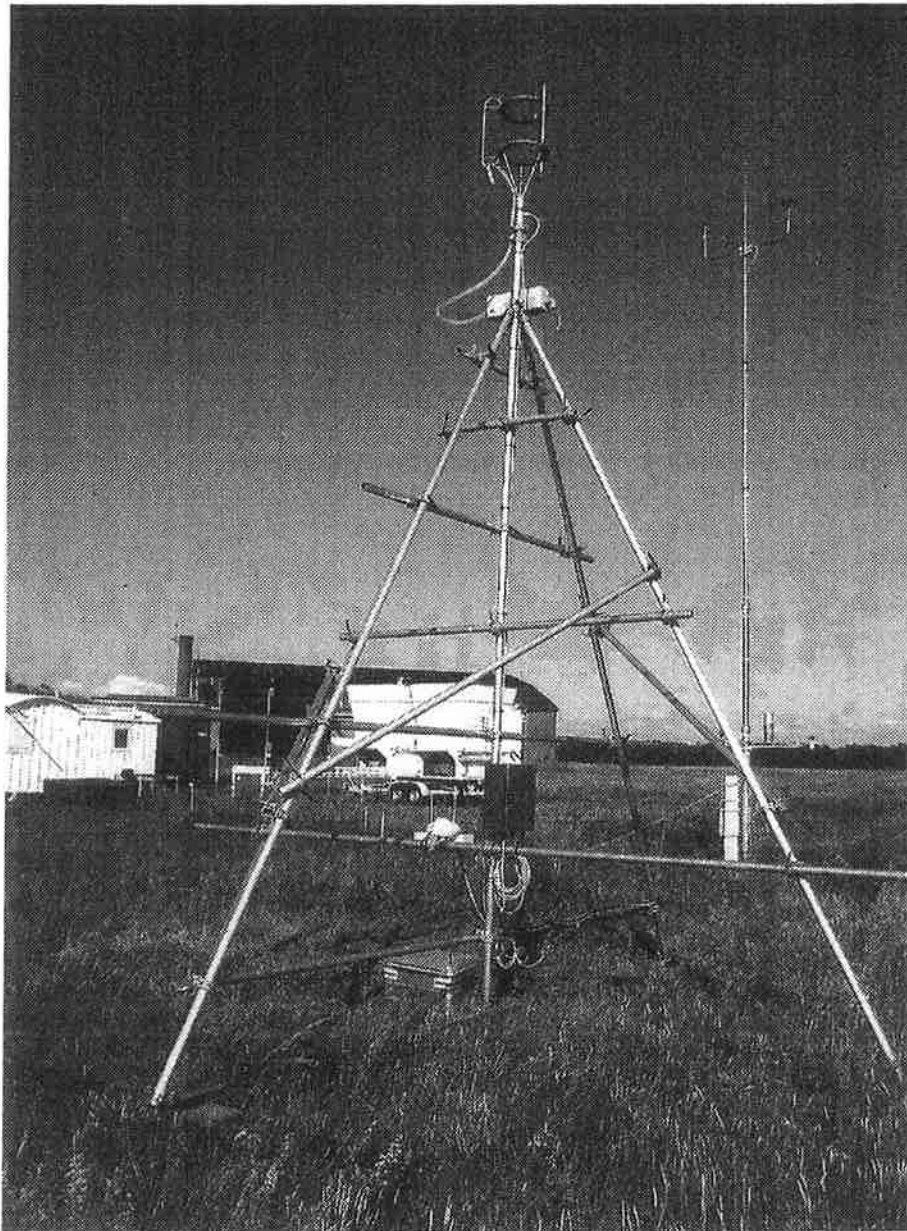


Abbildung 7.4: *Bodenstation. Die schnelle Ozonsonde und der Windsensor zur Messung des Ozonflusses in Bodennähe sind an der Spitze des Gerüsts im Vordergrund erkennbar. Rechts daneben befindet sich der Mast mit Fühlern zur Messung der meteorologischen Daten. Im Hintergrund ist das Radar-RASS zu sehen.*

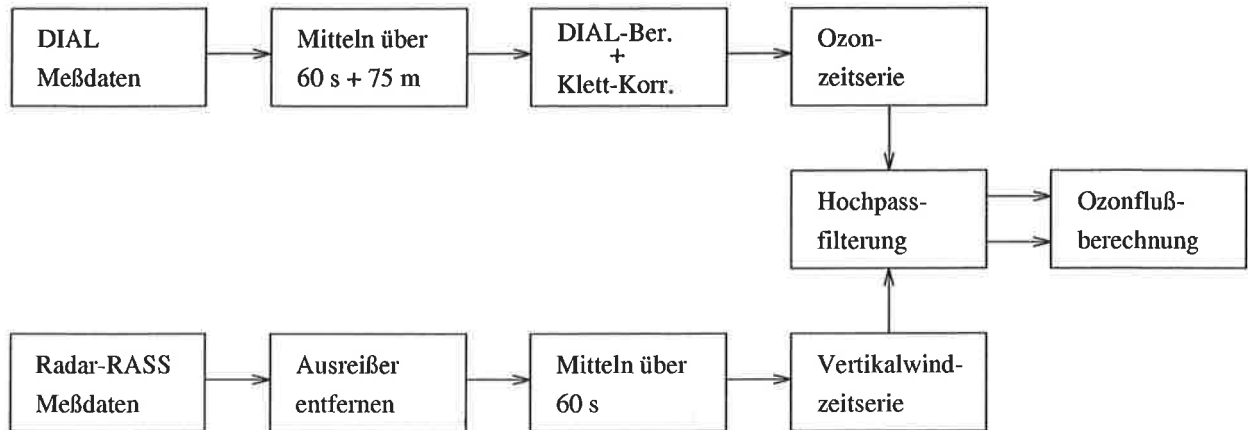


Abbildung 7.5: Datenauswertung zur Ozonflußberechnung

## 7.4 Auswertung

### 7.4.1 Bestimmung des Ozonflusses in der Grenzschicht

Zur Übersicht ist die Datenauswertung zur Bestimmung des turbulenten Ozonflusses in der Grenzschicht nach der Eddy-Korrelations-Methode in Abb. 7.5 grob skizziert. Die Aufbereitung der DIAL-Rohdaten bis hin zur Berechnung einer Ozonzeitserie ist bereits in Kap. 4 beschrieben. In diesem Kapitel wird zunächst die Behandlung der Radar-RASS-Daten im Detail erläutert und anschließend die Flußberechnung sowie die Zeitreihenuntersuchungen an einem Beispielfall vom 01.07.93, Meßzeitraum 09:43–11:31 UT (Universal Time), skizziert. Die Grenzschichthöhe des gezeigten Beispiels lag zwischen 800 und 1300 m.

Die DIAL- und Radar-RASS-Daten wurden mit 10 s Auflösung aufgezeichnet. Bei einer mittleren Windgeschwindigkeit von  $3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  beträgt damit die kleinste auflösbare Wellenlänge 60 m. Da der Abstand der Geräte, das Meßvolumen des Radar-RASS-Systems und die vertikale Mittelungstrecke in der gleichen Größenordnung liegen, ist eine Flußberechnung mit 10 s Auflösung nicht sinnvoll. Stattdessen wurden die Meßdaten vor der Flußberechnung über 1 min gemittelt. Wie in Kap. 7.5.1.1 gezeigt werden wird, ist diese Mittelungszeit kompatibel mit der Geometrie des Aufbaus.

#### 7.4.1.1 Aufbereitung der Radar-RASS-Daten

Zur Auswertung der Radar-RASS-Daten werden aus einem Datensatz, der jeweils einen ganzen Tag umfaßt, Blöcke zu je ca. 1.5 h herausgeschnitten. Die Blöcke werden so gewählt, daß sie die Zeiträume der entsprechenden DIAL-Messungen mit einschließen. Gründe für diese Vorgehensweise sind, daß erstens bei längeren Zeitspannen in der Regel keine stationäre meteorologische Situation mehr vorliegt und es zweitens am sinnvollsten ist, die Radar- und Lidardaten über denselben Zeitraum zu bearbeiten. Da die Zeitreihen Meßlücken und variierende Zeitabstände aufweisen, werden die Daten jedes Blocks zunächst auf ein äquidistantes

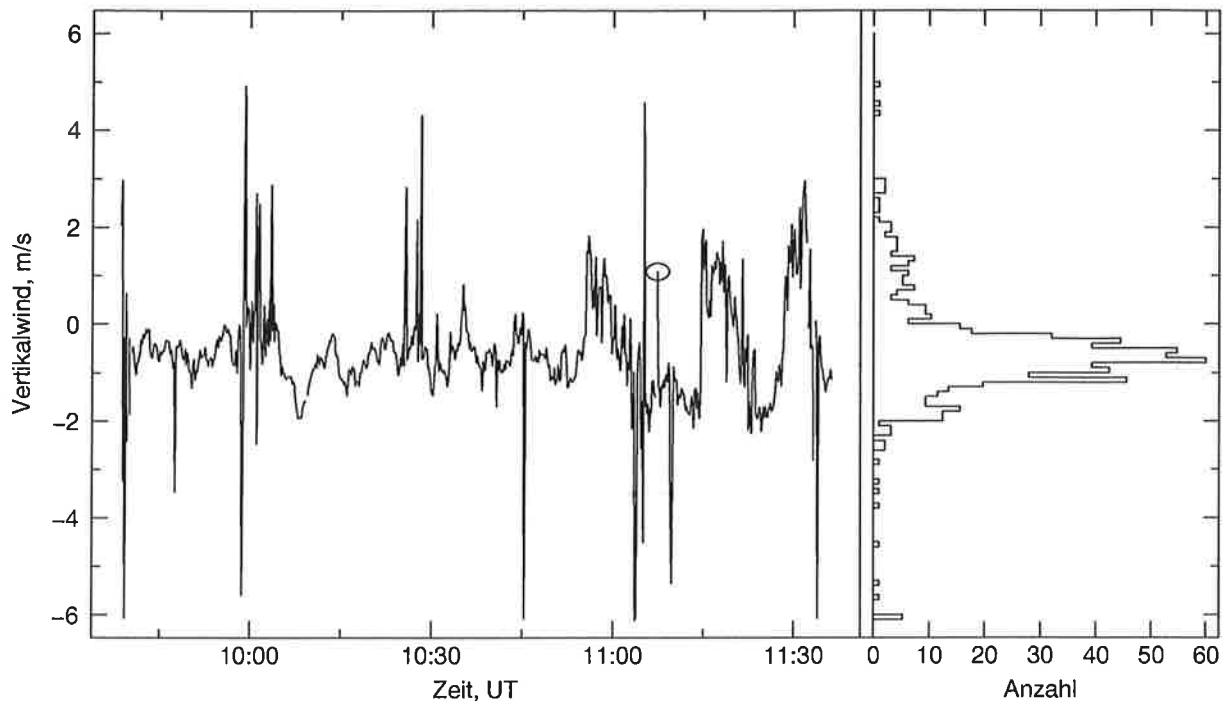


Abbildung 7.6: Zeitserie des Vertikalwindes gemessen im Clear-Air-Modus. In der rechten Abbildung ist die Häufigkeitsverteilung der Vertikalwindgeschwindigkeiten mit einer Intervallsbreite von  $0.1 \frac{m}{s}$  dargestellt. Der Kreis markiert einen Ausreißer, der in der Hauptverteilung liegt (vgl. Text). Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m

Zeitgitter abgebildet, um so die Voraussetzung für eine Zeitreihenanalyse mittels Fouriertransformation zu schaffen. Dabei werden die Meßwerte von Datenlücken als nicht verfügbar gekennzeichnet.

Als Beispiel ist in Abb. 7.6 eine im Clear-Air-Modus gemessene Vertikalwindzeitserie mit 10 s zeitlicher Auflösung gezeigt, folgende Ausführungen gelten jedoch in gleicher Weise für die Schallgeschwindigkeitsmessungen im RASS-Modus. Wie aus der Abbildung ersichtlich, enthält die Zeitreihe Ausreißer, die nicht auf meteorologische Ursachen zurückzuführen sind. Ursache für Ausreißer, die durch fehlerhafte Positionsbestimmungen im Frequenzspektrum des Radarsignals verursacht werden, können u.a. folgende Effekte sein:

- Echos von sich bewegenden Objekten in der Luft, z.B. Flugzeuge, Vögel, Insekten
- Echos von sich bewegenden Objekten am Erdboden, z.B. Bäume, Sträucher
- Elektromagnetische Einstrahlung, z.B. Netzfrequenz
- Zusätzlich im Clear-Air-Modus: Echos von ruhenden Objekten, z.B. Gebäude, Türme

Vor einer Flußberechnung nach der Eddy-Korrelations-Methode müssen die Ausreißer herausgefiltert werden, da sonst der Fluß stark verfälscht werden würde. Dabei stellt sich das grundlegende Problem, die Ausreißer von natürlichen Fluktuationen zu trennen.

Das Verfahren zur Identifikation von Ausreißern ist in Anlehnung an Senff (1993) entwickelt worden. Von der gesamten Zeitserie wird zunächst eine Häufigkeitsverteilung in Form eines Histogramms erstellt (s. rechten Teil der Abb. 7.6), typischerweise mit einer Intervallsbreite von  $0.1 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ . Ausreißer sind im Histogramm daran zu erkennen, daß sie deutlich außerhalb der Hauptverteilung liegen. Als Kriterium wird definiert, daß zwischen der Hauptverteilung, die durch die Mehrzahl der Meßwerte bestimmt wird, und den Datenwerten, die als Ausreißer betrachtet werden, eine Lücke mit einer Mindestbreite  $\Delta_G$  ohne einen einzigen Meßwert existieren muß. Die als Ausreißer identifizierten Meßwerte werden als nicht brauchbar gekennzeichnet. Hierbei handelt es sich jedoch nur um eine Art Grobfilter, mit dem die großen Ausreißer erkannt werden. Einige Ausreißer werden jedoch nicht erfaßt, da sie innerhalb der Hauptverteilung liegen, z.B. der in Abb. 7.6 mit einem Kreis gekennzeichnete Meßwert. Deshalb wird eine analoge Histogrammanalyse zusätzlich auch auf kleinere Zeitabschnitte angewendet, indem jeweils mit einem gleitenden Fenster nur ein Teil der Zeitserie untersucht wird. Hierbei werden Ausreißer wiederum durch das Auftreten einer Lücke der Mindestbreite  $\Delta_{G_i}$  identifiziert.

Es wurden verschiedene Kombinationen von Fensteranzahl und -breiten sowie unterschiedliche Lückenmindestbreiten  $\Delta_G$  und  $\Delta_{G_i}$  untersucht. Bewährt haben sich folgende Parameter:

- $\Delta_G = 0.5 \frac{\text{m}}{\text{s}}$
- Fensterbreiten: nacheinander 201, 51, 21, 11 Datenpunkte, jeweils mit  $\Delta_{G_i} = 1.5 \frac{\text{m}}{\text{s}}$

Eine komplette Zeitreihe wird als nicht brauchbar gekennzeichnet, wenn mehr als 10% Ausreißer gefunden werden.

Wenngleich das vorgestellte Verfahren bei den meisten Zeitreihen zuverlässig funktioniert, ist dennoch eine abschließende subjektive Beurteilung der Zeitreihen unerlässlich. Problematisch sind z.B. Zeitreihen mit sehr vielen Ausreißern (50% oder mehr). Bei diesen werden entweder die wenigen guten Werte als Ausreißer markiert oder kaum Ausreißer gefunden, wenn die Häufigkeitsverteilung keine größeren Lücken aufweist. Ferner wurden in einzelnen Fällen im RASS-Modus die Schallfrequenzen für einige Höhenstufen nicht geeignet gewählt, so daß der meßbare Schallgeschwindigkeitsbereich unzulässig eingegrenzt wird. Solche Zeitreihen werden ebenfalls als nicht brauchbar gekennzeichnet. Die Ausreißeridentifikation und Beurteilung der Zeitserie wird für jede Höhenstufe getrennt durchgeführt.

Alle als brauchbar gekennzeichneten Zeitserien werden sodann über 60 s gemittelt. Wenn in dem Mittelungsintervall drei oder mehr Werte brauchbar sind, wird das arithmetische Mittel über diese Werte gebildet. Sind weniger als drei, d.h. weniger als 50%, der Werte brauchbar, so wird der Mittelwert als nicht brauchbar gekennzeichnet und bei der Flußberechnung nicht berücksichtigt.

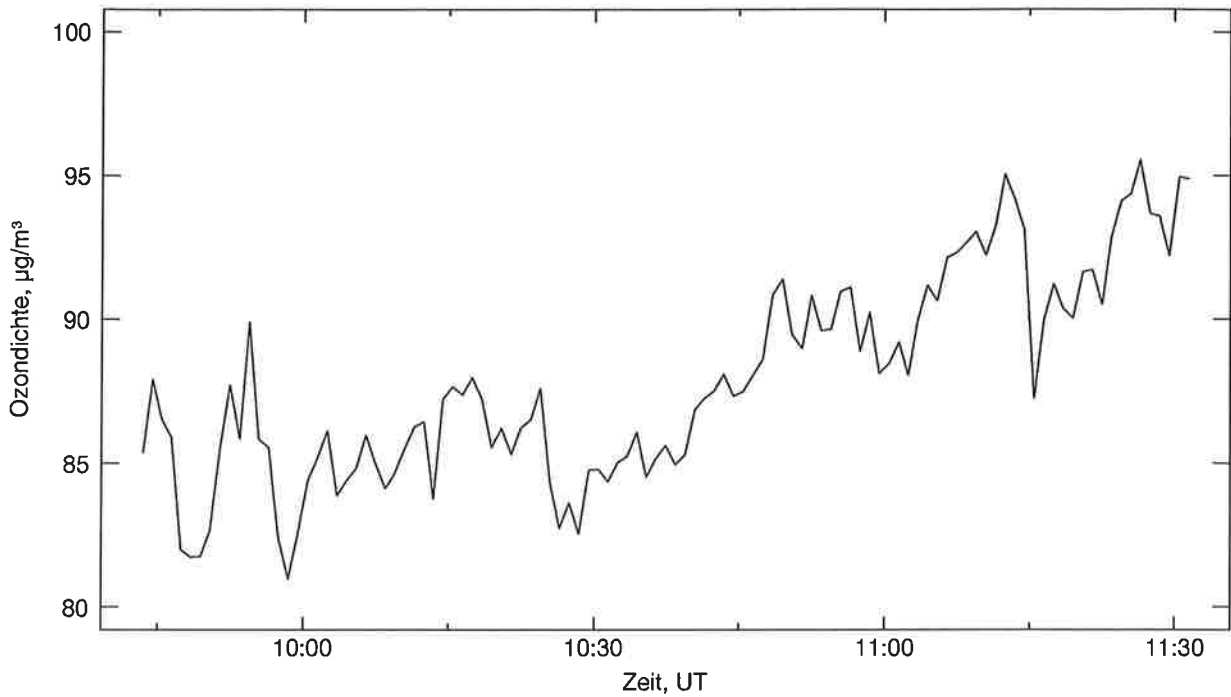


Abbildung 7.7: Zeitserie der Ozondichte. Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m

#### 7.4.1.2 Hochpaßfilterung und Flußbestimmung

Zur Berechnung des turbulenten Ozonflusses nach der Eddy-Korrelations-Methode ist eine Trennung der Zeitserien in einen langwelligen Anteil (Trend) und durch Turbulenz bedingte Fluktuationen notwendig. Die Hochpaßfilterung soll beispielhaft anhand einer Ozonzeitreihe vom 01.07.93, 525 m Höhe, dargestellt in Abb. 7.7, erläutert werden. Die Ozondichte schwankt bis ca. 10:30 UT um einen konstanten Wert, um danach nahezu linear zuzunehmen. Insofern wäre ein Abzug des Mittelwertes oder eines linearen Fits als Hochpaßfilterung nur sehr unzureichend. Stattdessen wird die Hochpaßfilterung im Frequenzraum durchgeführt. Jedoch ist auch vor einer Fouriertransformation das Abziehen eines Trends ratsam, da sonst die höheren Frequenzen durch ein Übersprechen zwischen den Frequenzbändern von den niedrigeren Frequenzen verfälscht werden würden. Dazu können Polynome 0. bis 4. Grades nach der Methode der kleinsten Quadrate an die Zeitserien angepaßt werden. Die besten Resultate werden erwartungsgemäß mit Polynomen 4. Grades erzielt. Datenlücken werden nach der Trendsabtraktion auf Null gesetzt, da eine Fouriertransformation mit Lücken nicht möglich ist. Nach Transformation in den Frequenzraum wird das Fourierspektrum mit einer Filterfunktion multipliziert, um die niedrigen Frequenzen zu unterdrücken. Die Filterfunktion ist für kleine Frequenzen Null und für große Eins. Als Übergang wird die Halbwelle einer Kosinusfunktion benutzt, da eine senkrechte Stufe unerwünschte Interferenzen bei der Rücktransformation verursacht. Die Breite der Halbwelle beträgt typischerweise drei Punkte im Frequenzspektrum. Die Mitte wird durch die Filterlänge bestimmt, deren Wahl unten diskutiert wird. Nach Multiplikation mit der Filterfunktion wird das Fourierspektrum wieder in



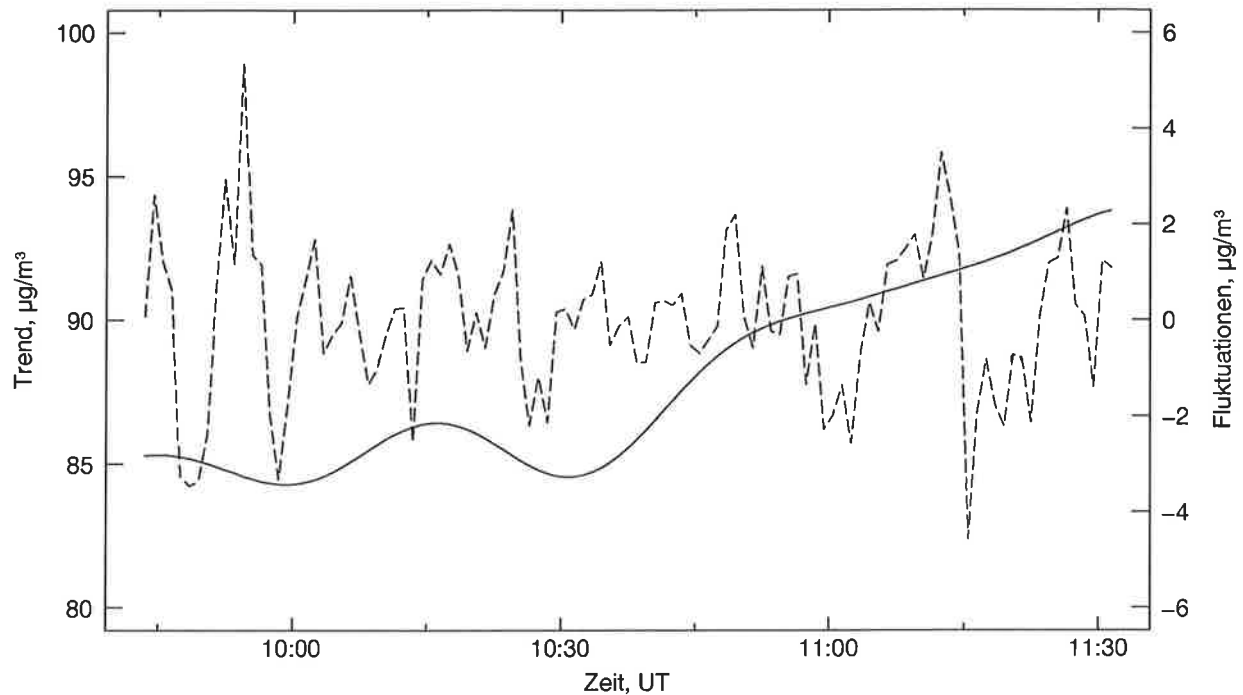


Abbildung 7.8: Tief- (—) und hochpaßgefilterte (---) Zeitreihe der Ozondichte aus Abb. 7.7. Die Filterlänge beträgt 30 min. Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m

den Zeitraum zurücktransformiert. Die hoch- und tiefpaßgefilterten Zeitreihen des Beispiels aus Abb. 7.7 sind in Abb. 7.8 dargestellt.

In genau gleicher Art und Weise werden die Radar-RASS-Daten gefiltert, um eine einheitliche Behandlung der Zeitreihen zu gewährleisten (Kaimal und Finnigan, 1994, S. 264). Die auf diese Weise erhaltenen Fluktuationen werden multipliziert und anschließend arithmetisch gemittelt.

Die Wahl einer geeigneten Filterlänge wird dadurch festgelegt, daß alle turbulenten Wirbel erfaßt werden sollen, im Gegensatz zu langwelligen Variationen, die z.B. durch Advektion verursacht werden. Zur Untersuchung dieser Fragestellung ist in Abb. 7.9 für die Höhen 300 und 750 m — die unterste und oberste Meßhöhe — die Abhängigkeit des Ozonflusses von der Filterlänge dargestellt. Die betragsmäßig starke Zunahme des Flusses bei Filterlängen bis zu 20 min ist dadurch zu erklären, daß bei kleinen Filterlängen Wirbel herausgefiltert werden, die wesentlich zum Fluß beitragen. Bei Filterlängen zwischen 25 und 40 min wird ein Plateau erreicht, was dadurch zu erklären ist, daß die wesentlichen turbulenten Flußbeiträge erfaßt werden. Bei Filterlängen länger als 40 min ändert sich der Fluß minimal kann jedoch sowohl kleiner als auch größer werden. Dieses wird durch langwellige Anteile verursacht. Aus diesen Gründen wird eine Filterlänge von 30 min gewählt, da mit dieser offensichtlich die Hauptbeiträge zum Fluß erfaßt werden. Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit Stull (1988, S. 33), der als sinnvolle Filterlänge 30–60 min angibt.

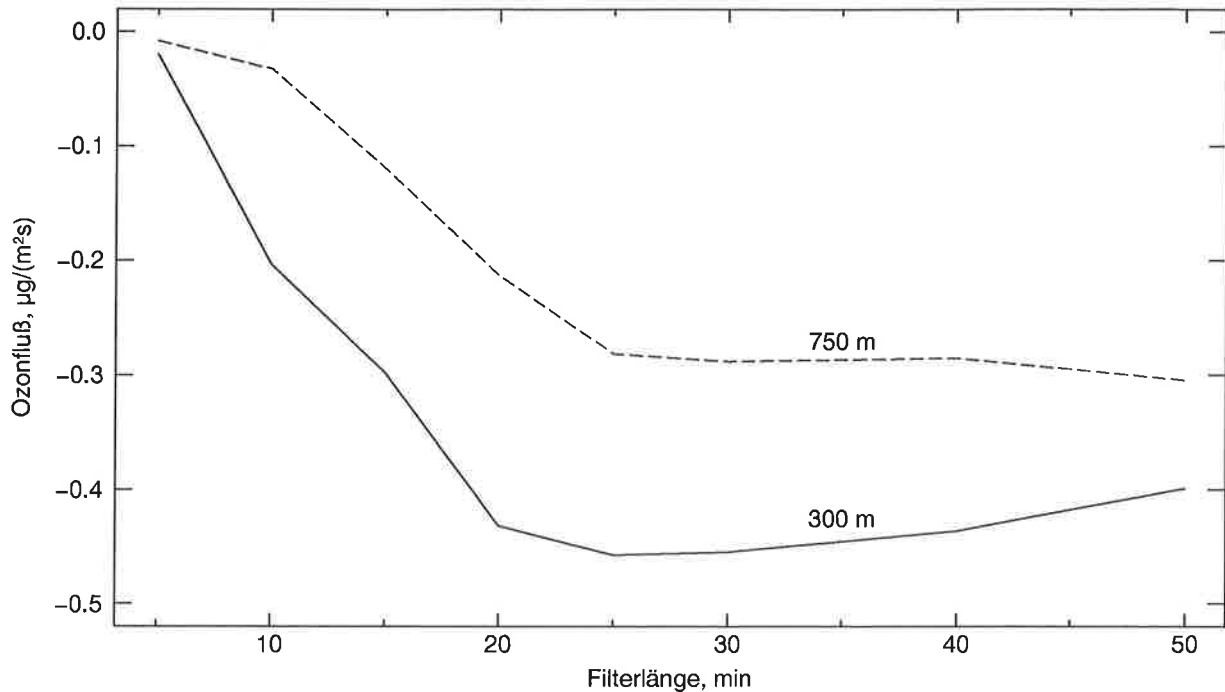


Abbildung 7.9: Abhängigkeit des Ozonflusses von der Filterlänge. Tag: 01.07.93, Höhen: 300 m und 750 m.

#### 7.4.1.3 Vertikalwindselektion

Prinzipiell stehen zwei Vertikalwind-Datensätze zur Verfügung, und zwar die Daten des Clear-Air- und RASS-Modus. Wenn in einer Höhe nur die Meßwerte eines Betriebsmodus nutzbar sind, so werden diese zur Flußberechnung verwendet. Sehr häufig ist zu beobachten, daß in den unteren Höhen die Winddaten des Clear-Air-Modus aufgrund zu vieler Ausreißer nicht brauchbar sind, während der RASS-Modus des öfteren in den oberen Meßhöhen keine zuverlässigen Resultate liefert (Begründung s. Kap. 7.3.1). Aufgrund der Vorzüge des RASS-Modus in den unteren und des Clear-Air-Modus in den oberen Meßhöhen werden im allgemeinen, wenn beide Datensätze brauchbar sind, bis einschließlich 525 m Höhe die Daten des RASS-Modus und in den Höhen darüber die Daten des Clear-Air-Modus benutzt.

Die Daten des RASS-Modus setzen sich aus der Schallgeschwindigkeit und dem Vertikalwind zusammen. Die Separation des Vertikalwindes erfolgt lediglich durch Hochpaßfilterung. Dieses bedeutet aber auch, daß in der hochpaßgefilterten Vertikalwindzeitreihe durch Temperaturschwankungen verursachte Fluktuationen enthalten sind. Richter (1994, S. 50ff) hat nachgewiesen, daß typischerweise in der Mitte der konvektiven Grenzschicht der Anteil der Temperaturfluktuationen an den Fluktuationen der RASS-Meßwerte kleiner als 10% ist.

Als ein Beispiel, daß die Hochpaßfilterung der RASS-Daten tatsächlich zur Vertikalwindbestimmung geeignet und ausreichend ist, sind in Abb. 7.10 die Vertikalwindfluktuationen im RASS- und Clear-Air-Modus nach Mittelung dargestellt. Die Messung stammt ebenfalls vom 01.07.93 aus 525 m Höhe. Dieses stellt gerade den Übergangsbereich nach obiger Re-

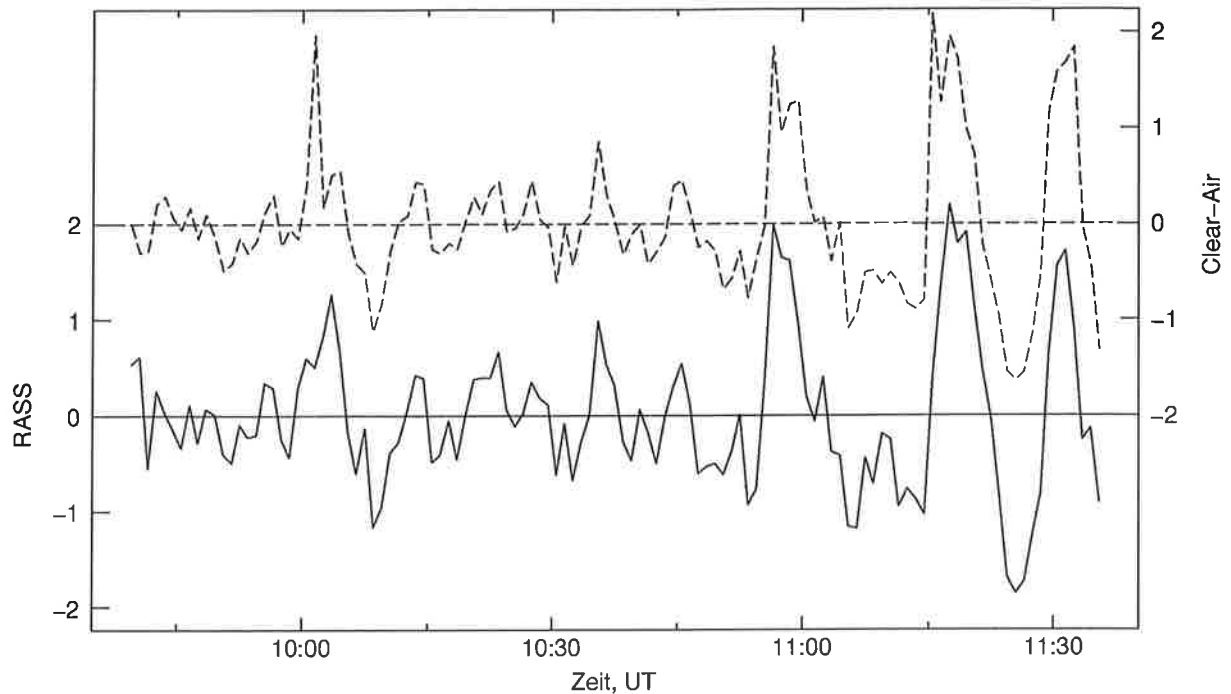


Abbildung 7.10: Vertikalwindfluktuationen gemessen im RASS-(—) und Clear-Air-Modus (---). Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m

gel dar. Zu erkennen ist, daß die wesentlichen Auf- und Abwinde durch beide Kanäle gut erfaßt werden. Im Detail ergeben sich jedoch kleine Abweichungen, die durch den Temperatureinfluß und statistisches Rauschen erklärt werden können. Für diesen Fall ergibt sich ein Ozonfluß von  $-0.315$  bzw.  $-0.303 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , je nachdem ob zur Flußberechnung die Vertikalwinde des Clear-Air- oder RASS-Modus benutzt werden. Für andere Zeiträume und Höhen ist die Übereinstimmung, wenn die Windzeitreihen beider Meßmodi gleichzeitig vorliegen, nicht in allen Fällen genauso gut wie in dem gezeigten Beispiel. Festzuhalten bleibt aber, daß die Abweichungen kleiner als die übrigen Meßfehler (s. Kap. 7.5) sind.

#### 7.4.1.4 Flußkorrektur

Der gemessene Ozonfluß ist gemäß Gl. 7.6 (Webb-Korrektur) zu korrigieren:

$$(\overline{w' \varrho'_{\text{O}_3}})_{\text{corr}} = \overline{w' \varrho'_{\text{O}_3}} + \frac{M_{\text{L}} \bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{M_{\text{W}} \bar{\varrho}_{\text{L}}} \cdot \overline{w' \varrho'_{\text{W}}} + \left(1 + \frac{M_{\text{L}} \bar{\varrho}_{\text{W}}}{M_{\text{W}} \bar{\varrho}_{\text{L}}}\right) \cdot \left(\frac{\bar{\varrho}_{\text{O}_3}}{\bar{T}}\right) \cdot \overline{w' T'}$$

Zur Anwendung dieser Formel müssen die einzelnen Größen bestimmt werden. Das Verhältnis der Molmassen von trockener Luft und Wasser  $M_{\text{L}}/M_{\text{W}}$  ( $= 28.96/18$ ) ist konstant und höhenunabhängig. Die Wasserdampfdichte  $\bar{\varrho}_{\text{W}}$  wird ebenfalls in allen Höhen konstant mit  $8 \frac{\text{g}}{\text{m}^3}$  angesetzt. Die mittlere Ozondichte  $\bar{\varrho}_{\text{O}_3}$  wird aus den DIAL-Messungen durch arithmetische Mittelung gewonnen. Die mittlere Temperatur  $\bar{T}$  und die Luftdichte  $\bar{\varrho}_{\text{L}}$  werden aus den gemessenen meteorologischen Daten unter Annahme einer neutralen Schichtung höhenabhängig berechnet. Ferner gehen noch der latente ( $\overline{w' \varrho'_{\text{W}}}$ ) und fühlbare Wärmefluß

$(\overline{w'T'})$  in obige Gleichung ein. Da diese beiden Größen nicht direkt gemessen worden sind, müssen sie über Ähnlichkeitsbeziehungen abgeschätzt werden.

Eine gute Näherung für den fühlbaren Wärmefluß in einer Höhe  $z$ , mit  $0.1z_i < z < 0.9z_i$ , ist (Stull, 1988, S. 370):

$$(\overline{w'T'})_z = (\overline{w'T'})_0 \cdot \left(1 - 1.2 \frac{z}{z_i}\right) \quad (7.15)$$

wobei  $z_i$  die Grenzschichthöhe und  $(\overline{w'T'})_0$  den fühlbaren Wärmefluß in Oberflächennähe bezeichnet. Die Grenzschichthöhe  $z_i$  wird aus der Ableitung  $A (= \frac{d}{dz} \ln P(z)z^2)$  der Offline-Wellenlänge der Lidar-Messung abgeschätzt. Da der fühlbare Wärmefluß in Oberflächennähe gemessen wurde, kann nach Gl. 7.15 der fühlbare Wärmefluß in der Grenzschicht bestimmt werden.

Schwieriger ist die Abschätzung des latenten Wärmeflusses. Es gilt zwar ebenfalls eine lineare Beziehung für den latenten Wärmefluß in der Grenzschicht (Stull, 1988, S. 370):

$$(\overline{w'\rho'_W})_z = (\overline{w'\rho'_W})_0 \cdot \left(1 + (S - 1) \frac{z}{z_i}\right) \quad (7.16)$$

wobei  $S$  das Verhältnis der Wasserdampfflüsse in der Entrainmentzone und in Oberflächennähe ist:

$$S = \frac{(\overline{w'\rho'_W})_{z_i}}{(\overline{w'\rho'_W})_0}$$

Es wurde jedoch keiner der beiden Flüsse gemessen. Deshalb wird der latente Wärmefluß in Oberflächennähe über eine Energiebilanz abgeschätzt. Zugrunde gelegt wird, daß der Nettostrahlungsfluß an der Erdoberfläche in Bodenwärmefluß sowie fühlbaren und latenten Wärmefluß aufgespalten werden kann. Da jedoch nur der einfallende kurzwellige Strahlungsanteil im Wellenlängenbereich 300–2800 nm gemessen wurde, wird der Nettostrahlungsfluß gemäß der Prozedur von De Bruin und Holtslag (1982) berechnet. Die Oberflächenalbedo wird zu 0.2 angesetzt, ein typischer Wert für landwirtschaftlich genutzte Flächen im Sommer (Oke, 1978, S. 15). Damit ergibt sich der Nettostrahlungsfluß  $Q$  aus der gemessenen Globalstrahlung  $G$  zu (De Bruin und Holtslag, 1982, Anhang B):

$$Q = (1 - 0.07) \cdot (1 - 0.20) \cdot G + 5.31 \cdot 10^{-13} \cdot T^6 - 5.67 \cdot 10^{-8} \cdot T^4 \quad (7.17)$$

wobei  $T$  die absolute Lufttemperatur in 2 m Höhe über Grund ist. Ferner wird gemäß Burridge und Gadd (1977) angenommen, daß der Bodenwärmefluß 10 % des Nettostrahlungsflusses beträgt. Die restlichen 90 % werden auf den latenten  $(\overline{w'\rho'_W})_0$  und fühlbaren Wärmefluß  $(\overline{w'T'})_0$  in Oberflächennähe, der direkt gemessen worden ist, aufgeteilt. Es ergibt sich somit:

$$\lambda(\overline{w'\rho'_W})_0 = (1 - 0.1)Q - c_p \rho_L (\overline{w'T'})_0 \quad (7.18)$$

wobei  $\lambda$  die spezifische Verdunstungsenergie und  $c_p$  die spezifische Wärmekapazität von feuchter Luft ist. Da eine direkte Abschätzung des Entrainmentflusses nicht möglich ist und bislang beobachtete Werte für  $S$  zwischen Null und Zwei liegen (Stull, 1988, S. 97ff),

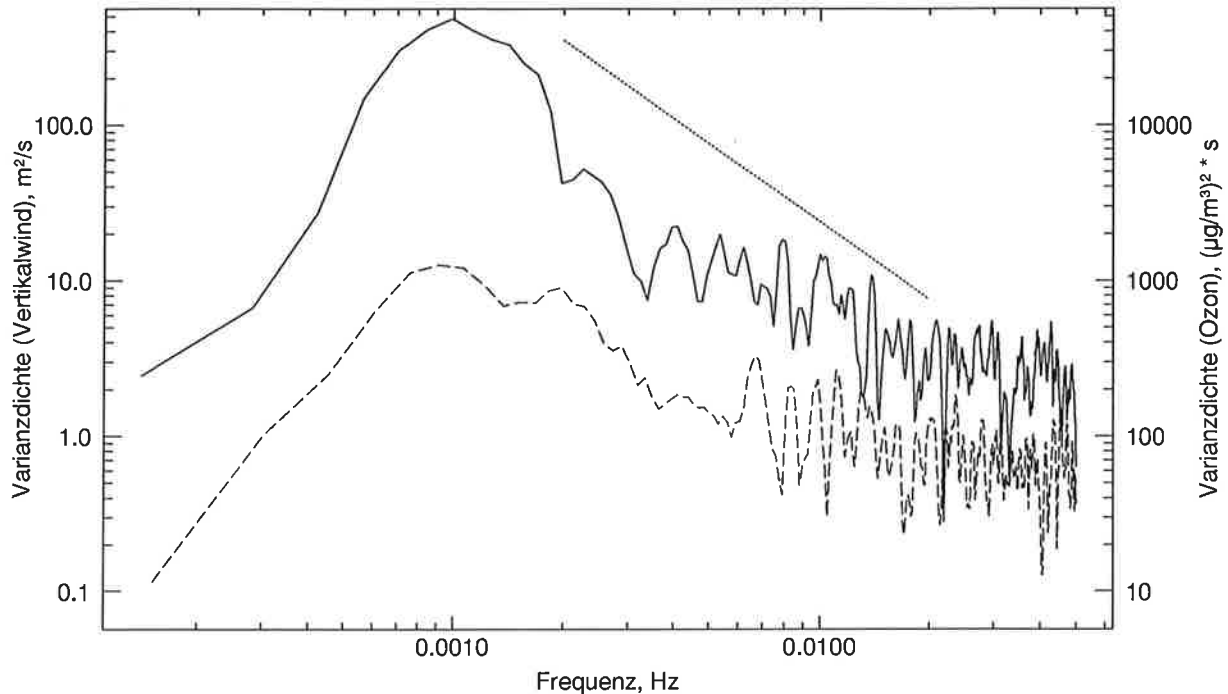


Abbildung 7.11: Varianzspektren der Vertikalwind- (—) und Ozondichtefluktuationen (---). Der im Inertialbereich erwartete  $f^{-5/3}$ -Verlauf der spektralen Dichte ist gepunktet eingezeichnet. Auflösung: 10 s. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:40–11:40 UT, Höhe: 525 m.

wird für  $S$  der Mittelwert Eins verwendet, was einen konstanten latenten Wärmefluß in der Grenzschicht bedeutet. Damit ergibt sich der latente Wärmefluß aus Gl. 7.16 und 7.18 mit  $\lambda = 2.453 \cdot 10^6 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$  und  $c_p = 1010 \frac{\text{J}}{\text{kgK}}$  zu:

$$\overline{(w' \rho_w')} = 4.077 \cdot 10^{-7} \frac{\text{kg}}{\text{J}} \left( 0.9Q - 1212 \frac{\text{J}}{\text{m}^3\text{K}} \cdot \overline{(w'T')} \right) \quad (7.19)$$

Für den gezeigten Beispielfall beträgt der fühlbare Wärmefluß in Oberflächennähe  $\overline{(w'T')} = 103 \text{ W/m}^2$  und die Globalstrahlung  $G = 890 \text{ W/m}^2$ . Es ergibt sich eine Webb-Korrektur von  $-0.03 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  entsprechend 9% in 525 m Höhe.

#### 7.4.1.5 Zeitreihenanalyse

Das Varianzspektrum liefert wichtige Aufschlüsse über die Größe der hauptsächlich für die Variabilität und den turbulenten Transport verantwortlichen Wirbel. Damit ist es ein wichtiges Hilfsmittel zur Untersuchung der Fragestellung, ob die Meßgeräteaufösung ausreichend für eine direkte Bestimmung des Ozonflusses mittels der Eddy-Korrelations-Methode ist. Die Varianzspektren der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen vom 01.07.93, 525 m Höhe, sind in Abb. 7.11 dargestellt. Sie wurden aus den Zeitserien in der maximal möglichen Auflösung von 10 s berechnet. Somit beträgt die Nyquist-Frequenz 0.05 Hz. Ferner wurden sie über fünf Datenpunkte gleitend gemittelt, um das Rauschen zu reduzieren. Punktirt eingezeichnet ist der im Inertialbereich erwartete  $f^{-5/3}$ -Verlauf (vgl. Kap. 7.2.2.2).

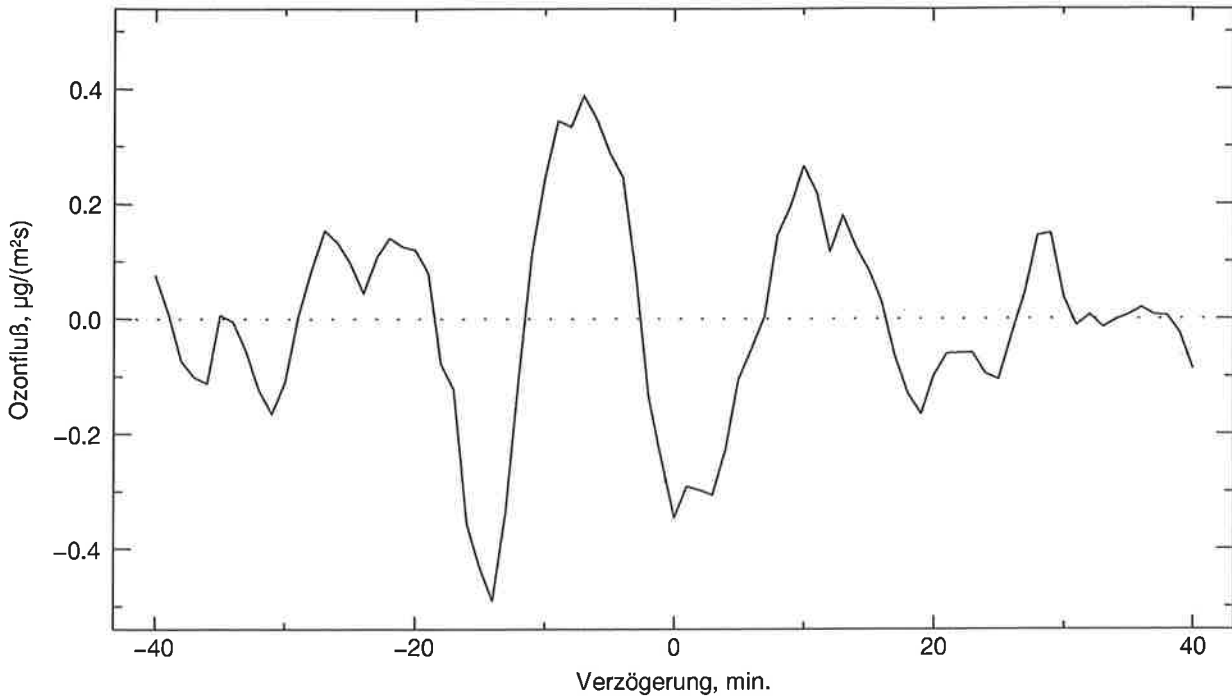


Abbildung 7.12: Kreuzkovarianzfunktion der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen. Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m, Zeit: 9:40–11:40 UT.

Es ist zu erkennen, daß die Form beider Varianzspektren sehr ähnlich ist. Bei beiden liegt das Maximum der spektralen Dichte ungefähr bei 0.001 Hz ( $\equiv 17$  min). Daran schließt sich ein Bereich an, in dem beide Spektren ungefähr parallel zu dem erwarteten  $f^{-5/3}$ -Verlauf sind, d.h. daß ein Teil des Inertialbereiches und damit auch die wesentlichen Flußbeiträge erfaßt werden. Am hochfrequenten Ende gehen beide Varianzspektren in ein konstantes Rauschen über. Dieses wird als obere Abschätzung für den statistischen Fehler der beiden Geräte benutzt (vgl. Kap. 5.2).

Vergleicht man die Spektren aus verschiedenen Höhen und zu verschiedenen Zeiten, so kann eine leichte Verschiebung des Maximums der spektralen Dichte zu längeren Wellenlängen mit der Höhe und eine Abnahme der Varianz im Laufe des Nachmittags, wenn die Konvektion schwächer wird, beobachtet werden.

In Abb. 7.12 ist die Kreuzkovarianzfunktion, d.h. der Ozonfluß in Abhängigkeit von einem zeitlichen Versatz der Ozondichte- und Vertikalwindzeitserien, dargestellt. Es ist zu erkennen, daß die beiden Zeitreihen in Phase sind. Hieraus folgt, daß durch den geometrischen Aufbau und die beiden Meßsysteme kein systematischer zeitlicher Versatz verursacht wird. Ferner ist aus den Nebenextrema zu erkennen, daß die Wirbel, die den größten Anteil am turbulenten Transport haben, eine Periode von 15–19 min besitzen. Dieses Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit den Maxima der Varianzspektren bei 17 min (s. Abb. 7.11), wie zu erwarten ist, da die großen Wirbel ebenfalls für den Haupttransport verantwortlich sind. Unter der Annahme, daß die Taylorsche Hypothese gültig ist, folgt hieraus bei einer Windgeschwindigkeit

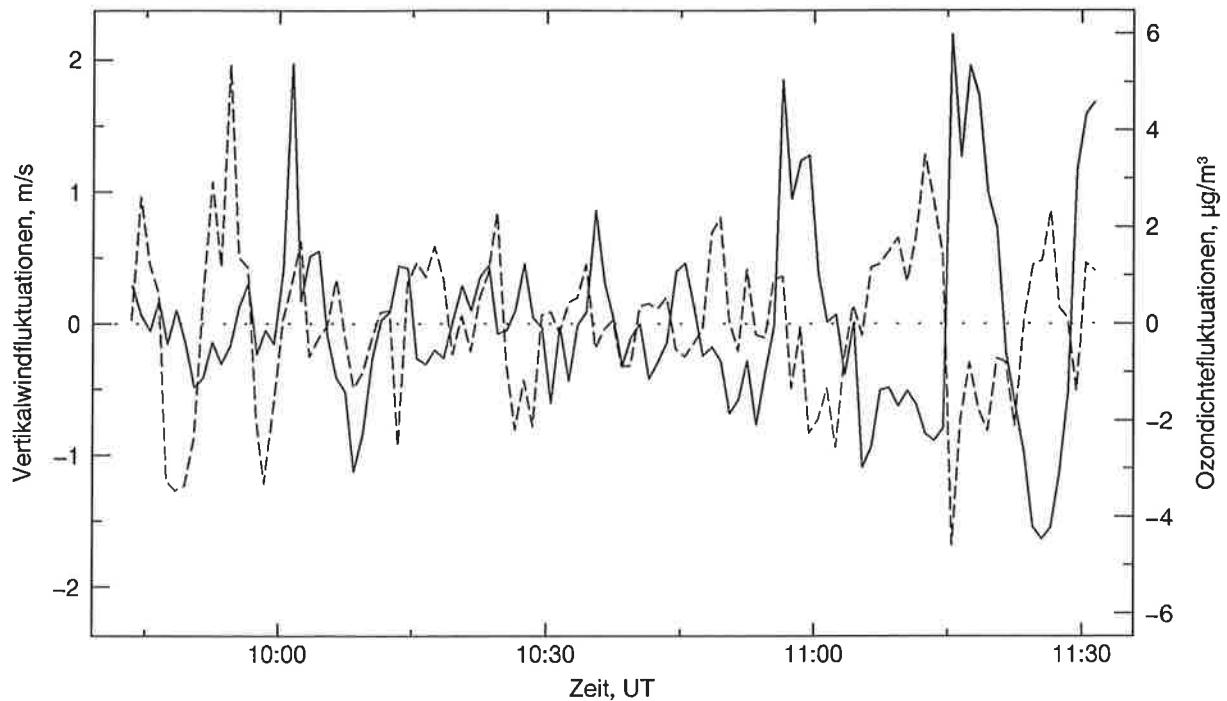


Abbildung 7.13: Zeitreihen der Vertikalwind- (—) und Ozondichtefluktuationen (- - -). Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m.

keit von  $2-3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  (dieses ist die mittlere Windgeschwindigkeit in der Grenzschicht am 01.07.93) eine horizontale Erstreckung der Hauptwirbel von 1800–3400 m. Kaimal et al. (1976) geben als Faustformel für die Wellenlänge  $\lambda_{\text{max}}$  des spektralen Maximums der Vertikalwindspektren in der konvektiven Grenzschicht in der Höhe  $z$ , mit  $0.1z_i < z < 0.9z_i$ , an:

$$\lambda_{\text{max}} = 1.5 z_i \cdot \left( 1 - \exp\left(-5 \frac{z}{z_i}\right) \right) \quad (7.20)$$

Danach ergibt sich für eine Grenzschichthöhe von 1200 m eine Wirbelgröße von 1600–1700 m in der Mitte der Grenzschicht. Dieses ist in guter Übereinstimmung mit obigen Beobachtungen bei einer mittleren Windgeschwindigkeit von  $2 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ .

In Abb. 7.13, wiederum vom 01.07.93, 525 m Höhe, sind die Zeitreihen der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen dargestellt. Aus den Winddaten ist zu erkennen, daß die Konvektion ab ca. 10:40 Uhr kräftig zunimmt. Für den Zeitraum nach 10:40 UT gibt es eine hohe Antikorrelation der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen (Korrelationskoeffizient  $r = -0.57$ ), d.h. daß bei einem Aufwind die Ozondichte ab- und bei einem Abwind zunimmt. Wie jedoch besonders aus dem Zeitraum vor 10:30 Uhr deutlich wird, gibt es auch viele Zeitpunkte, an denen die beiden Signale positiv korreliert sind. Dieses wird besonders deutlich, wenn das Streudiagramm der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen, dargestellt in Abb. 7.14, betrachtet wird. Es ist zu erkennen, daß nur eine leichte Häufung von Datenpunkten im 2. und 4. Quadranten auftritt. Stattdessen liegen auch viele Datenpunkte im 1. und 3. Quadranten. Dieses bedeutet, daß es viele negative und positive instantane

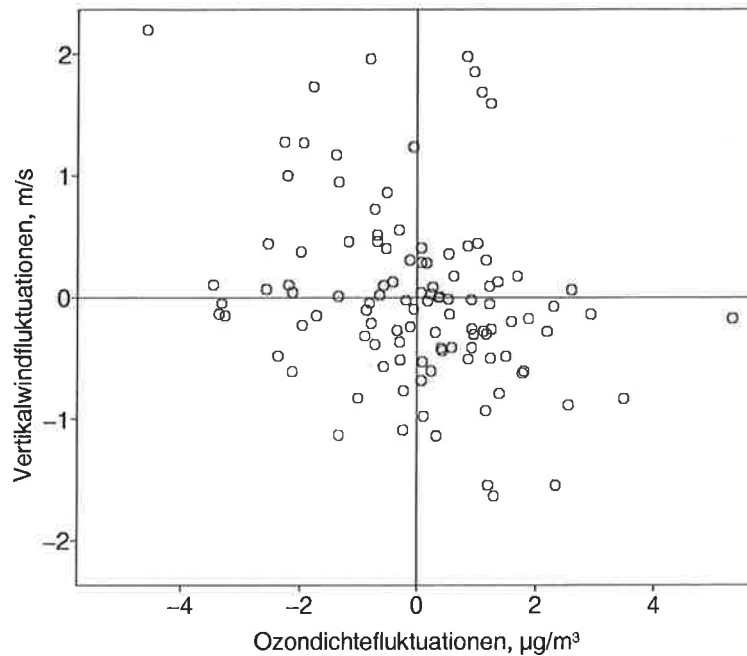


Abbildung 7.14: Streudiagramm der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen.  
 Tag: 01.07.93, Höhe: 525 m.

Flüsse gibt. Daß dennoch nach Mittelung ein Nettofluß übrig bleibt, liegt im wesentlichen an einigen wenigen Ereignissen mit großen Fluktuationen. Dieses wird ebenfalls bei vielen anderen atmosphärischen Meßreihen beobachtet (Stull, 1988, S. 53). Hieraus wird nochmal besonders deutlich, wie wichtig es ist, die Ausreißer der Radar-RASS-Daten vor der Flußberechnung zuverlässig zu eliminieren, da sie sonst den Fluß stark verfälschen würden.

Die hier vorgestellten Untersuchungen wurden für alle Meßfälle durchgeführt. Nur bei denjenigen Messungen, bei denen sich grundlegende Änderungen ergeben, werden diese in Kap. 7.6 diskutiert. In den übrigen Fällen sind die Resultate vergleichbar mit den hier gezeigten Ergebnissen.

#### 7.4.2 Bestimmung des Ozonflusses in Oberflächennähe

Zusätzlich zu den DIAL-RASS-Messungen wurde der Ozonfluß in 5 m Höhe über dem Erdboden zur Vervollständigung der Flußprofile gemessen. Auch hier wird die Auswertung nur an einem Beispiel ungefähr im gleichen Zeitraum (9:50–11:30 UT am 01.07.93) wie in den letzten Abschnitten erläutert.



### 7.4.2.1 Eichung

Die Ozonsonde, die nach dem Chemilumineszenz-Prinzip arbeitet, liefert als Meßwert eine Spannung proportional zur Ozonkonzentration. Die Empfindlichkeit der Sonde ist allerdings von verschiedenen Parametern abhängig, z.B. Alter und Betriebsdauer der Chemilumineszenzplatte. Insofern kann nur eine relative Ozonkonzentration bestimmt werden, so daß eine Eichung gegen ein absolut messendes Gerät notwendig ist. Dazu werden die Daten des Ozonmonitors verwendet, der das Volumenmischungsverhältnis von Ozon mißt. Dieses wird unter Annahme einer Standardatmosphäre in eine Ozondichte umgerechnet.

Die Meßwerte der Ozonsonde, die mit 5 Hz Auflösung vorliegen, werden entsprechend der zeitlichen Auflösung des Ozonmonitors über eine Minute gemittelt. Für jeden Tag wird zwischen den Mittelwerten und den Ozonmonitordaten eine lineare Regression durchgeführt und daraus die Eichkoeffizienten bestimmt. Mit diesen werden die Sondenspannungswerte in Ozondichten umgerechnet.

### 7.4.2.2 Zeitreihenanalyse und Flußbestimmung

Zur Trennung der turbulenzbedingten Fluktuationen von den langwelligen Variationen des Vertikalwindes bzw. der Ozondichte wird das bereits in Kap. 7.4.1.2 vorgestellte Verfahren zur Hochpaßfilterung benutzt. Die Filterlänge wird zu 15 min gewählt, da die für den turbulenten Transport relevanten Wellenlängen mit abnehmender Höhe kleiner werden. Gleichzeitig zu den turbulenten Ozonflüssen wird ebenso der fühlbare Wärmefluß in Oberflächennähe  $(\overline{w'T'})_0$  bestimmt.

Durch Untersuchung der Kreuzkovarianzfunktion wurde festgestellt, daß die Zeitreihen des Vertikalwindes und der Ozondichte um drei Datenpunkte ( $\equiv 0.6$  s) gegeneinander verschoben sind. Der Grund dafür ist, daß durch den mechanischen Aufbau der Ozonsonde und der Länge des Ansaugschlauches die Ozondichtemessungen mit ca. 0.6 s Verzögerung erfolgten. Ohne Berücksichtigung dieses Effektes sind die berechneten Ozonflüsse in Oberflächennähe etwa 10% zu klein.

Die Ozonsondendaten weisen zeitweilig kurzfristige (typ. 5 s), aber starke Ozondichteabnahmen auf. Es ist zu vermuten, daß eine Ozonzerstörung durch Stickoxide stattgefunden hat (Lenschow et al., 1981), die durch Kraftfahrzeuge emittiert wurden. Da dieser Effekt nichts mit den zu messenden turbulenten Vertikalflüssen zu tun hat, werden alle hochpaßgefilterten Datenwerte, die um mehr als  $15 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  vom Mittelwert nach unten abweichen, als nicht brauchbar gekennzeichnet. Die natürlichen Ozondichtefluktuationen sind an allen vier Meßtagen deutlich kleiner. Der Unterschied im Ozonfluß, je nachdem ob der Fluß mit oder ohne Ausreißer berechnet wird, ist kleiner als 5%, da der prozentuale Anteil der Ausreißer sehr gering ist. Deshalb wird die Einführung einer Schwelle zur Ausreißerelimination als ausreichend betrachtet.

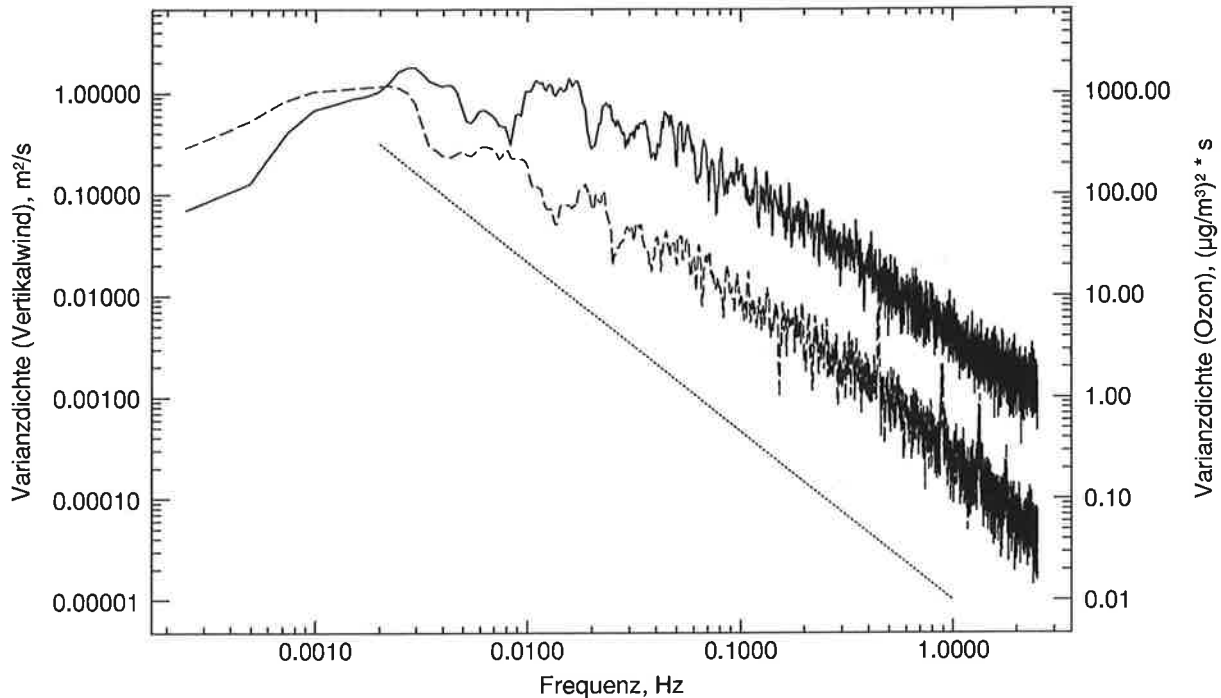


Abbildung 7.15: Varianzspektren der Vertikalwind- (—) und Ozondichtefluktuationen (---) in Bodennähe. Der im Inertialbereich erwartete  $f^{-\frac{5}{3}}$ -Verlauf der spektralen Dichte ist gepunktet eingezeichnet. Auflösung: 0.2 s. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:50–11:30 UT.

Die Varianzspektren der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen sind in Abb. 7.15 dargestellt. Wiederum ist der im Inertialbereich erwartete  $f^{-\frac{5}{3}}$ -Verlauf des Spektrums mit-eingezeichnet. Es ist zu erkennen, daß der Inertialbereich offensichtlich erfaßt wird, d.h. es ist zu erwarten, daß die relevanten Wirbel durch das System aufgelöst werden.

In Abb. 7.16 ist das Produkt aus Frequenz und kospektraler Dichte der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen gegen den Logarithmus der Frequenz aufgetragen. Diese Darstellungsweise bietet den Vorteil flächentreu zu sein, d.h. gleiche Flächen unter der Kurve entsprechen der gleichen Kovarianz. Das Kospektrum wurde so normiert, daß das Integral des Kospektrums über den dargestellten Frequenzbereich gleich der Kovarianz ist. Wie aus der Abbildung ersichtlich, liegen die Hauptbeiträge im Frequenzbereich zwischen 0.01 und 0.1 Hz (10–100 s), was bei einer mittleren Windgeschwindigkeit von  $2.7 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ , dieses ist der Mittelwert der Winddaten in Oberflächennähe vom 01.07.93, 9:50–11:30 UT, einer räumlichen Ausdehnung von 27 bis 270 m entspricht. Dieses zeigt, daß die Filterlänge mit 15 min auf jeden Fall lang genug gewählt ist, um die wesentlichen Flußbeiträge zu erfassen. Frequenzen größer als ca. 0.5 Hz liefern offensichtlich keinen Beitrag mehr zur Kovarianz, d.h. die Meßauflösung ist ausreichend, um alle relevanten Wirbel zu erfassen.

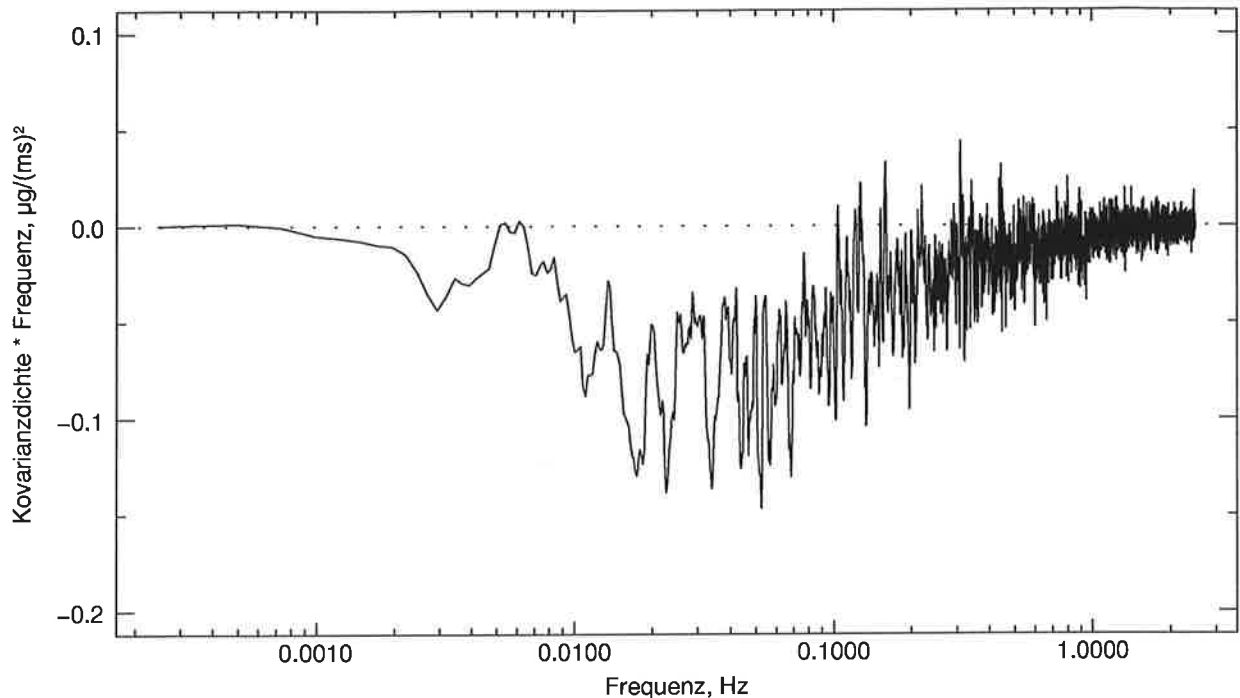


Abbildung 7.16: Kospektrum der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen in Bodennähe. Auflösung der Zeitserien: 0.2 s. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:50–11:30 UT.

### 7.4.3 Ozonhaushalt

Durch Umformung von Gl. 7.12, S. 69, folgt:

$$\bar{S}_{\text{O}_3} - \bar{u} \frac{\partial \bar{\rho}_{\text{O}_3}}{\partial x} = \frac{\partial \bar{\rho}_{\text{O}_3}}{\partial t} + \frac{\partial \overline{w' \rho'_{\text{O}_3}}}{\partial z} \quad (7.21)$$

d.h. die Summe aus zeitlicher Änderung der Ozondichte und Flußdivergenz ergibt die Differenz aus Ozonproduktionsrate und Advektion. Die Terme der rechten Seite können aus den Messungen bestimmt werden: Die höhenaufgelöste Flußdivergenz  $\overline{w' \rho'_{\text{O}_3}} / \partial z$  wird aus den Flußprofilen bestimmt, indem die Profile zunächst mit gaußförmiger Wichtung über 3 Höhenstufen gleitend gemittelt und anschließend die Differenzenquotienten gebildet werden. Die mittlere zeitliche Änderung der Ozondichte  $\partial \bar{\rho}_{\text{O}_3} / \partial t$  wird ermittelt, indem für jede Meßhöhe zunächst eine Gerade nach der Methode der kleinsten Quadrate an die Ozonzeitreihen angepaßt wird. Die Steigungen der Geraden, die der mittleren zeitlichen Änderung der Ozondichte entsprechen, werden ebenfalls gaußförmig gewichtet über drei Höhenstufen gleitend gemittelt.

Die Terme auf der linken Seite von Gl. 7.21 sind unbekannt. Eine Trennung von Ozonproduktionsrate und Advektion ist somit nicht möglich. Die Ozonproduktionsrate wird deshalb nur dann korrekt bestimmt, wenn die Advektion vernachlässigbar ist.

## 7.5 Fehlerdiskussion

Die Fehlerursachen der Ozonflußmessungen können in drei Gruppen untergliedert werden:

- Systematische Fehler
- Statistische Fehler
- Stichprobenfehler

### 7.5.1 Systematische Fehler

Die wesentlichen Ursachen für systematische Abweichungen des gemessenen vom wahren Ozonfluß sind:

- Nicht aufgelöste Wirbel
- Systematischer Fehler eines Meßgeräts
- Fehlerhafte Webbkorrektur

#### 7.5.1.1 Fehler durch nicht aufgelöste Wirbel

Eine zentrale Frage bei der Flußbestimmung nach der Eddy-Korrelations-Methode ist, ob die räumliche und zeitliche Auflösung der verwendeten Meßsysteme ausreicht, die wesentlichen Flußbeiträge zu erfassen. Am einfachsten wäre es, die Größe des Fehlers durch eine höher aufgelöste Vergleichsmessung abzuschätzen. Eine solche Messung steht nicht zur Verfügung. Deshalb werden die mit dem System aufgenommenen Zeitserien analysiert und qualitativ mit den erwarteten Resultaten verglichen.

Die aufgelösten Wirbelgrößen werden nach oben durch die Hochpaßfilterung eingegrenzt. Eine Hochpaßfilterung der Zeitreihen ist notwendig, um die langwelligen synoptischen Terme zu unterdrücken. Jedoch werden dadurch eventuell auch langwellige turbulente Anteile herausgefiltert. Wie aus Abb. 7.9, S. 80 ersichtlich, ist die Änderung des Ozonflusses bei Vergrößerung der Filterlänge von 30 auf 50 min kleiner als 10%. Dieses Resultat ist in guter Übereinstimmung mit dem von Senff (1993, S. 81) bestimmten Fehler, der eine Änderung des Wasserdampfflusses um ca. 10% bei Änderung der Filterlänge von 50 auf 80 min gefunden hat.

Nach unten werden die auflösbaren Wirbelgrößen durch die Zeitauflösung des kombinierten DIAL-RASS-Systems von 60 s begrenzt. Wie aus Abb. 7.11, S. 83, ersichtlich, fallen die Varianzspektren der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen proportional zu  $f^{-\frac{5}{3}}$  ab, was charakteristisch für den Inertialbereich ist (s. Kap. 7.2.2.2) und deshalb darauf hinweist, daß bereits ein Teil des Inertialbereiches durch das System erfaßt wird. Da der Beitrag zum turbulenten Fluß durch Wirbel aus dem Inertialbereich sogar proportional zu  $f^{-\frac{7}{3}}$  abnimmt, sollte der Fehler durch die nicht erfaßten Anteile vernachlässigbar sein. Diese These wird

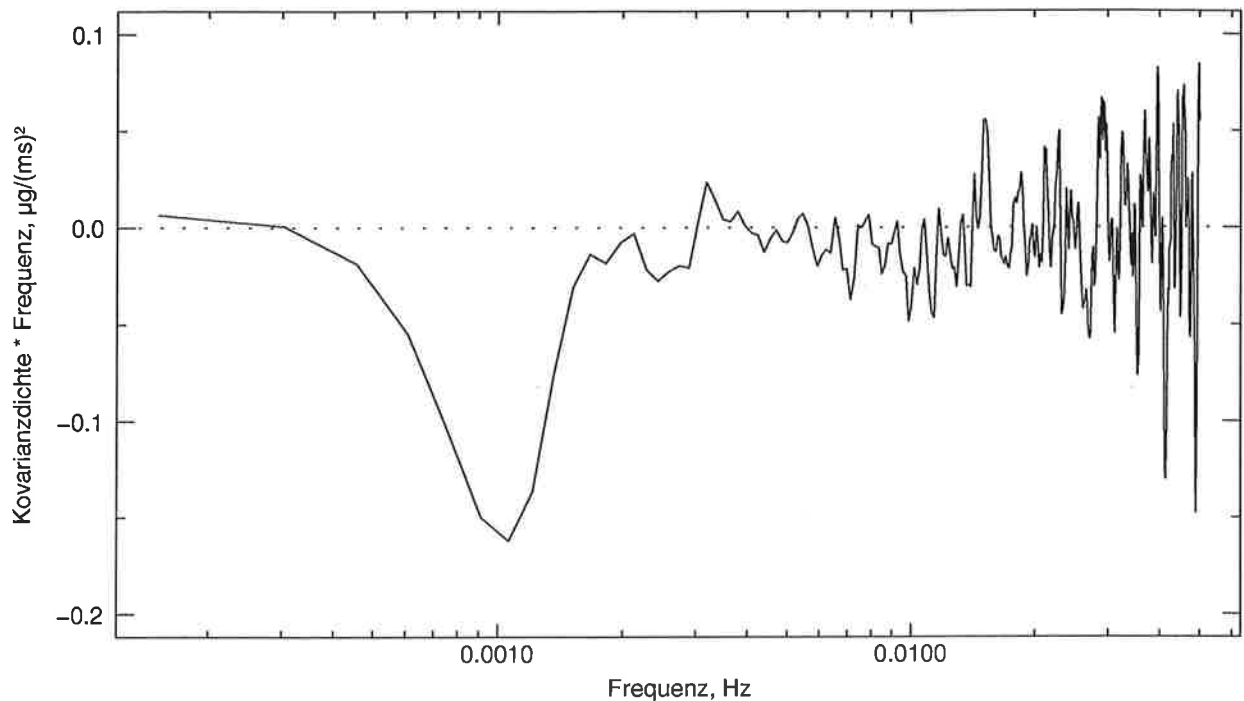


Abbildung 7.17: Kospektrum von Vertikalwind und Ozondichte. Auflösung der Zeitserien: 10 s. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:40–11:40 UT, Höhe: 525 m.

auch durch das Kospektrum von Vertikalwind und Ozondichte gestützt, das in Abb. 7.17 dargestellt ist. Die Darstellung wurde wieder flächentreu gewählt. Zu erkennen ist, daß das Maximum der Kovarianz bei 0.001 Hz (17 min) liegt und ab etwa 0.004 Hz (4 min) kein nennenswerter Beitrag mehr zur Kovarianz geliefert wird. Insofern sollte der systematische Fehler durch die begrenzte Zeitaufösung von 1 min vernachlässigbar sein.

Bedingt durch die unterschiedlichen Meßvolumina des DIAL- und Radar-RASS-Systems und die vertikale Mittelung, wird das Spektrum der von beiden Systemen gleichermaßen erfaßten Wirbel ebenfalls eingeschränkt. Eine ausführliche Diskussion ist bei Senff (1993, S. 53ff) zu finden und soll hier nicht wiederholt werden. Stattdessen werden die wesentlichen Ergebnisse zusammengefaßt.

Nach Kohsiek (1984) bleibt das Kospektrum bei einem Sensorabstand  $\delta$  unverfälscht für Wellenzahlen  $\kappa$ , mit:

$$\kappa \leq \frac{0.3}{\delta} \quad (7.22)$$

Für einen Abstand der Meßvolumina von 25 m folgt, daß nur Wirbel mit einer Wellenlänge größer als 500 m vollständig erfaßt werden.

Bedingt durch die vertikale Mittelung werden ebenfalls die Wirbelgrößen eingegrenzt. Nach Kristensen und Fitzjarrald (1984) gilt als obere Grenze für die Wellenzahl  $\kappa$ :

$$\kappa \cdot \Delta z \leq 1 \quad (7.23)$$

wobei  $\Delta z$  das vertikale Mittelungsintervall bezeichnet. Mit einer vertikalen Ausdehnung des Meßvolumens von 75 m, folgt daß die Wellenlängen größer gleich 450 m sein müssen.

Mit einer Windgeschwindigkeit von  $3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  und unter Annahme der Taylorschen Hypothese haben die kleinsten aufgelösten Wirbel eine Ausdehnung von 360 m. Damit haben sie etwa die gleiche Größe wie die oben angegebenen Grenzwellenlängen, d.h. daß die kleinsten aufgelösten Wirbel korrekt erfaßt werden.

Es läßt sich festhalten, daß die Geometrie des Aufbaus, die vertikale Mittelungsstrecke und die zeitliche Auflösung des DIAL-RASS-Systems gut zueinander passen.

#### 7.5.1.2 Systematische Fehler eines Meßgeräts

Durch systematische Fehler eines Meßgerätes kann der gemessene Ozonfluß verfälscht werden. Systematische Fehler, die zu einer konstanten Verschiebung des Mittelwertes führen, z.B. eine falsche Sauerstoff-Korrektur bei der Ozondichtebestimmung, verursachen keinen systematischen Fehler bei der Bestimmung des turbulenten Ozonflusses nach der Eddy-Korrelations-Methode, da durch die Hochpaßfilterung nur die Fluktuationen berücksichtigt werden. Lediglich in die Webbkorrektur der Flüsse geht die absolute Ozondichte ein. Dieses wird im folgenden Kapitel diskutiert.

Viel entscheidender ist hingegen die Frage, ob es eine Fehlerquelle gibt, die die Fluktuationen systematisch verfälschen kann. Für die DIAL-Messungen ist dieses möglich durch die notwendige Aerosolkorrektur der Ozondichten bei der DIAL-Berechnung (s. Kap. 2.4). Ein systematischer Fehler wird dadurch verursacht, daß die Aerosolparameter, d.h. das Lidarverhältnis und die Wellenlängenabhängigkeit, nicht genau vorgegeben werden können, da die Aerosolzusammensetzung unbekannt ist. Die Aerosolkorrektur ist hauptsächlich von der differentiellen Aerosolrückstreuung und damit vor allen Dingen von vertikalen Aerosolgradienten abhängig. Wenn große Aerosolgradienten vorkommen, führen diese zu einer großen Korrektur und zwangsläufig zu einem großen Fehler aufgrund der unbekanntenen Aerosolparameter (vgl. Kap. 5.1.1). Dieses ist häufig in der Entrainmentzone der Fall, da dort typischerweise große Aerosolgradienten anzutreffen sind. Zusätzlich sind die Aerosolgradienten mit dem Vertikalwind korreliert, da mit einem Aufwind Aerosole aus der Grenzschicht nach oben und mit einem Abwind aerosolarme Luft aus der freien Troposphäre nach unten transportiert wird. Insofern ist auch die Ozondichtekorrektur mit dem Wind korreliert. Da die Korrektur fehlerbehaftet ist, werden die Ozondichtefluktuationen verfälscht und damit auch die Kovarianz. Dieses wird im folgenden als Aerosolkorrekturfehler bezeichnet. Aus den genannten Gründen ist ein großer Aerosolkorrekturfehler in der Entrainmentzone zu erwarten. Jedoch gibt es auch in der Grenzschicht Aerosolgradienten, da z.B. durch einen Aufwind Aerosole aus Bodennähe nach oben transportiert werden. Da diese ebenfalls mit dem Wind korreliert sind, gibt es auch hier einen Aerosolkorrekturfehler. Dieser sollte allerdings erheblich kleiner als der Fehler in der Entrainmentzone sein, da die vorkommenden Gradienten meist sehr klein sind.

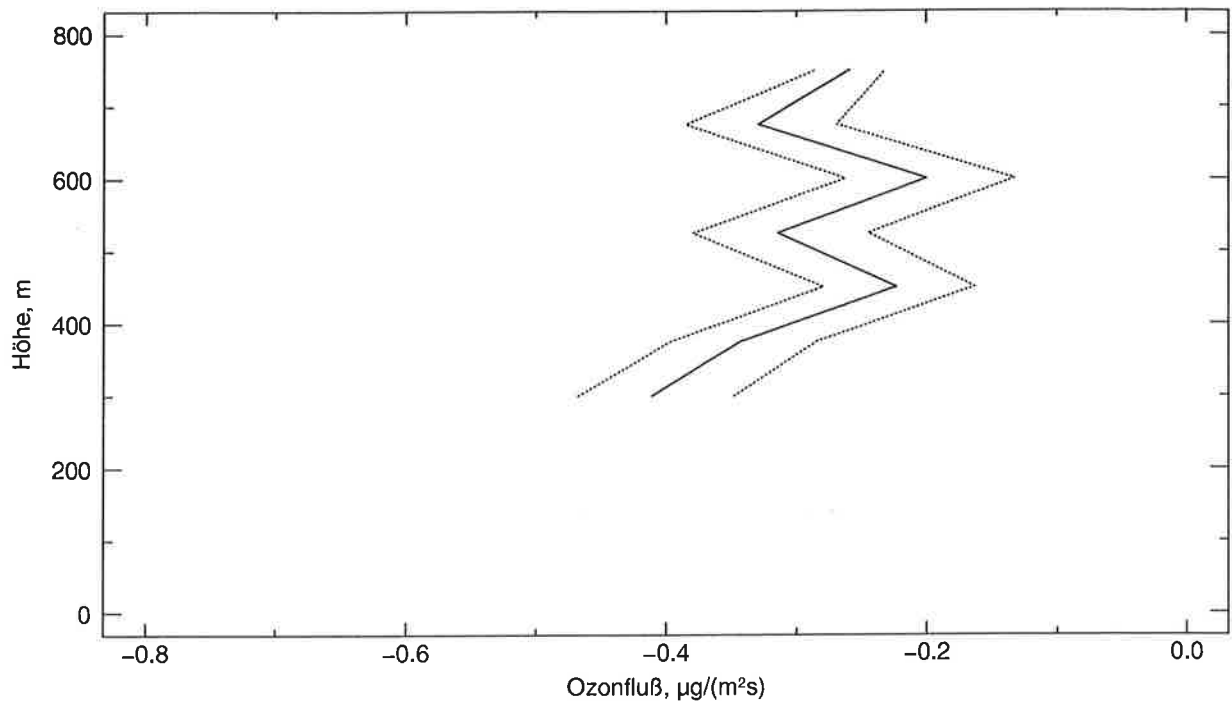


Abbildung 7.18: *Abhängigkeit des Ozonflusses von der Aerosolkorrektur der Ozondaten, bei Korrektur mit Standardparametern  $S = 40$  und  $k_\beta = 0$  (—) und die Schwankungsbreite ( $\cdots$ ). Tag: 01.07.93, Zeitraum: 9:40–11:40 UT.*

Da die Korrelation von Aerosolgradient und Vertikalwind nicht allgemeingültig angegeben werden kann, wird der Einfluß der Aerosolkorrektur auf den gemessenen Ozonfluß durch Variation der Aerosolparameter gemäß Tab. 5.1 abgeschätzt. Dazu werden die Ozonflüsse mit den verschiedenen Kombinationen der Aerosolparameter berechnet und die Schwankungsbreite der so berechneten Flüsse betrachtet.

Von den 7 Kombinationsmöglichkeiten sind in Abb. 7.18 drei Ozonflußprofile dargestellt. Das durchgezogene Profil wurde mit den „Standardparametern“, d.h. einem Lidarverhältnis  $S$  von 40 und einer Wellenlängenabhängigkeit  $k_\beta$  von 0, berechnet. Die gestrichelt eingezeichneten Flußprofile stellen die Schwankungsbreite dar, die sich in diesem Beispiel für  $S = 40$  und  $k_\beta = \pm 1$  ergeben. Zu erkennen ist, daß das mit den Aerosolstandardparametern berechnete Flußprofil ungefähr in der Mitte des Schwankungsbereiches liegt, also bei unbekanntem Korrekturparametern die beste Näherung darstellt. Ferner fällt auf, daß die Flußprofilform auch bei anderen Korrekturparametern weitestgehend erhalten bleibt, so daß die Flußdivergenz für verschiedene Aerosolparameter nicht sehr unterschiedlich ist. Die Unsicherheit aufgrund der unbekanntem Parameter beträgt für den gezeigten Fall ungefähr  $\pm 0.05 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , jedoch liegt diese Messung komplett in der Grenzschicht.

Der wichtigste systematische Fehler der Vertikalwindmessung durch das Radar-RASS-System ist das Auftreten von Fehlmessungen (Ausreißern) aufgrund fehlerhafter Positionsbestimmungen im Frequenzspektrum des Radarsignals (s. Kap. 7.4.1.1). Da der turbulente

Ozonfluß hauptsächlich durch wenige Ereignisse bestimmt wird (vgl. Kap. 7.4.1.5), ist es wichtig alle Ausreißer auszusortieren, da sonst der Fluß stark verfälscht werden kann. Die Qualität der Winddaten wird durch sehr restriktive Maßnahmen und große Vorsicht sichergestellt, indem eine Windzeitserie bei mehr als 10% Ausreißern oder in zweifelhaften Fällen verworfen wird. Sollte trotzdem ein Ausreißer übersehen worden sein, so ist dieses nur möglich, wenn der Betrag des Ausreißers in der gleichen Größe wie die natürlichen Fluktuationen der Vertikalwindgeschwindigkeit liegt. Da die Winddaten über 1 Minute bzw. 6 Werte gemittelt werden, reduziert sich der Einfluß eines übersehenen Ausreißers nochmals um den Faktor 6. Eine Größe des Fehlers durch übersehene Ausreißer kann nicht angegeben werden. Es ist aber zu vermuten, daß der systematische Fehler bedingt durch übersehene Ausreißer vernachlässigbar ist.

Ein weiterer Fehler wird in einigen Fällen durch die Verwendung der RASS-Daten verursacht, da die Fluktuationen der scheinbaren Schallgeschwindigkeit zum kleinen Teil auch durch Temperaturfluktuationen verursacht werden. Der Anteil der Temperaturfluktuationen an den gesamten Fluktuationen ist in der konvektiven Grenzschicht kleiner als 10% (Peters und Kirtzel, 1994). Somit ist der Fehler ebenfalls kleiner als 10%.

### 7.5.1.3 Webbkorrektur

Der gemessene Ozonfluß muß gemäß Gl. 7.6 korrigiert werden. Dabei wird der wesentliche Fehler durch eine ungenaue Abschätzung des latenten Wärmeflusses  $\overline{w'q'_w}$  verursacht. Dieser wird gemäß Gl. 7.16 aus dem Wärmefluß in Oberflächennähe und der Vorgabe des Verhältnis  $S$  der latenten Wärmeflüsse in der Entrainmentzone und in Oberflächennähe bestimmt.  $S$  kann Werte zwischen Null und Zwei annehmen (Stull, 1988, S. 97ff). Der Fehler des latenten Wärmeflusses an der Oberkante der Grenzschicht beträgt somit bis zu 100%. Selbst wenn ferner der latente Wärmefluß sogar fünfmal so groß wie der fühlbare Wärmefluß sein sollte, so ist die Korrektur durch beide Terme ungefähr gleich groß (Webb et al., 1980). Da die Webbkorrektur insgesamt maximal  $0.04 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  bzw. 10% des gemessenen Ozonflusses ausmacht, beträgt die Korrektur durch den latenten Wärmefluß maximal  $0.02 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Bei einem Fehler dieses Korrekturterms von maximal 100% ist damit der Fehler des Ozonflusses in allen Fällen kleiner als  $0.02 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ .

Die Fehler bei der Bestimmung des fühlbaren Wärmeflusses und der absoluten Ozondichte sind eine Größenordnung kleiner und können damit vernachlässigt werden.

## 7.5.2 Statistische Fehler

Bedingt durch das Rauschen der Meßgeräte wird ein statistischer Fehler der gemessenen Ozonflüsse verursacht. Da das Rauschen durchaus in der gleichen Größenordnung wie die zu messenden Fluktuationen liegen kann, darf der dadurch verursachte Fehler nicht vernachlässigt werden.



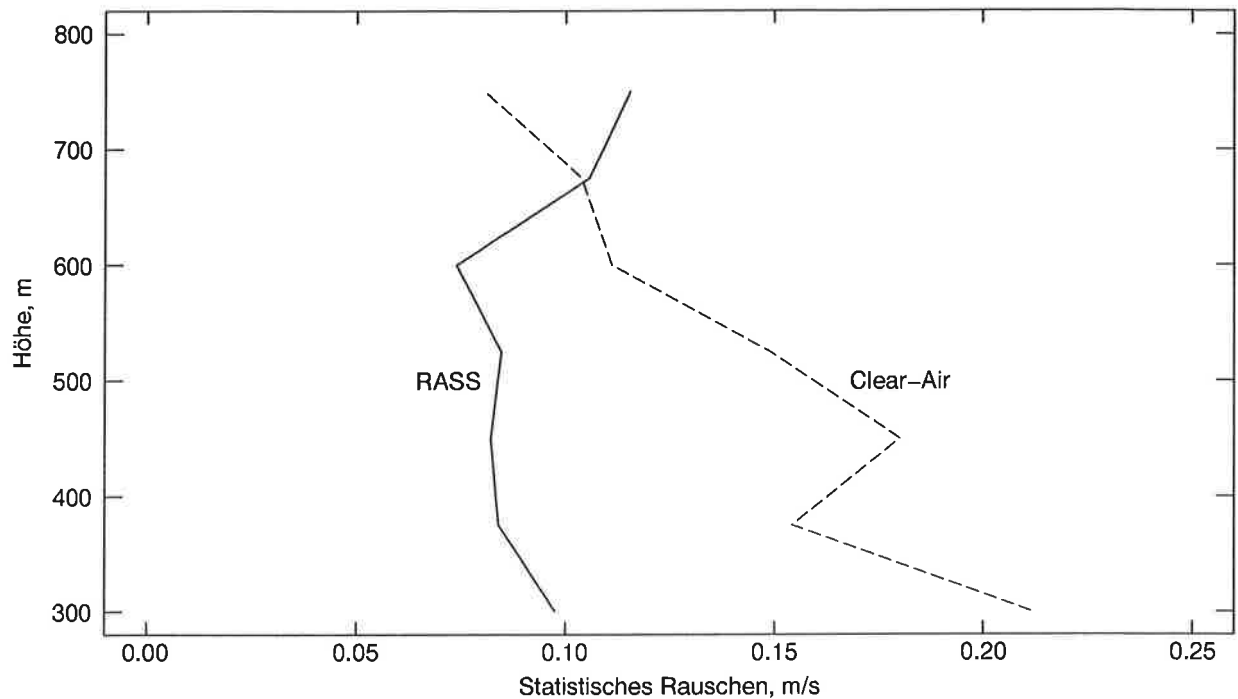


Abbildung 7.19: *Statistisches Rauschen des Vertikalwindes gemessen mit dem Radar-RASS-System. Auflösung: 75 m und 60 s, Tag: 01.07.93, Zeit: 9:40–11:40 UT*

Zum Einfluß des statistischen Meßfehlers auf die gemessene Varianz einer meteorologischen Variablen  $m$ , wird ihr Erwartungswert  $E$  betrachtet:

$$E(\overline{m'^2_M}) = E(\overline{(m' + \delta m)^2}) = \overline{m'^2} + E(\overline{\delta^2 m}) \quad (7.24)$$

wobei der Index M andeutet, daß es sich um einen Meßwert handelt und  $\delta m$  den Meßfehler aufgrund Systemrauschens bezeichnet. Gl. 7.24 besagt, daß zur Bestimmung der tatsächlichen Varianz einer meteorologischen Größe die Varianz aufgrund Systemrauschens von der gemessenen Varianz abgezogen werden muß.

Für den statistischen Fehler des turbulenten Ozonflusses gilt (Senff, 1993, S. 85):

$$\sigma(\overline{w' \varrho'_{O_3 M}}) = \left( \frac{1}{N} \left( \overline{\delta^2 \varrho_{O_3} w'^2_M} + \overline{\varrho'^2_{O_3 M} \delta^2 w} - \overline{\delta^2 \varrho_{O_3} \delta^2 w} \right) \right)^{\frac{1}{2}} \quad (7.25)$$

wobei  $N$  die Anzahl der Meßwerte bezeichnet. Bei der Herleitung von Gl. 7.25 wurde Gl. 7.24 berücksichtigt.

Zur Anwendung von Gl. 7.25 muß die Varianz aufgrund Systemrauschens vom DIAL- und Radar-RASS-System bestimmt werden. Das Systemrauschen wird mit Hilfe der Varianzspektren für jede Messung einzeln bestimmt. Das Verfahren ist bereits detailliert in Kap. 5.2 beschrieben. Auf die gleiche Art und Weise wird das statistische Rauschen des Vertikalwindes abgeschätzt. Als ein Beispiel ist das Rauschprofil vom 01.07.93 in Abb. 7.19 dargestellt. Das Rauschen wurde wiederum aus den Winddaten mit 10 s Auflösung bestimmt

und anschließend durch  $\sqrt{6}$  dividiert, um die Mittelung der Winddaten über 1 min bzw. 6 Werte zu berücksichtigen.

Die Bestimmung des Rauschniveaus aus den Varianzspektren liefert eine obere Abschätzung für das Systemrauschen. Der Extremfall ist sicherlich, daß das Systemrauschen so hoch abgeschätzt wird, daß die gesamte gemessene Varianz alleine durch das Systemrauschen erklärt wird. Dieses bedeutet z.B. für die Ozondichte, daß  $\overline{\rho'_{O_3M}{}^2} = \overline{\delta^2 \rho_{O_3}}$ . Damit folgt aus Gl. 7.25:

$$\sigma \left( \overline{w' \rho'_{O_3M}} \right) = \left( \frac{1}{N} \left( \overline{\delta^2 \rho_{O_3}} \overline{w'^2_M} \right) \right)^{\frac{1}{2}} \quad (7.26)$$

Da  $\overline{\delta^2 \rho_{O_3}}$  nach oben abgeschätzt ist, liefert Gl. 7.26 ebenfalls eine obere Abschätzung für das statistische Rauschen der Ozonflüsse. Ein analoges Resultat erhält man, wenn statt der Ozondichte der Vertikalwind betrachtet wird. Dieses zeigt, daß Gl. 7.25 eine obere Abschätzung des statistischen Fehlers der Ozonflüsse liefert.

### 7.5.3 Stichprobenfehler

Da mit einer Meßserie nur ein Teil der vorhandenen Wirbel erfaßt wird, ist in der Regel der Stichproben-Mittelwert nicht identisch mit dem Ensemble-Mittelwert. Diese Abweichung wird als Stichprobenfehler bezeichnet. Der Stichprobenfehler wird desto kleiner und konvergiert insgesamt gegen Null, je größer die räumliche Mittelung ist (Lumley und Panofsky, 1964, S. 36).

Nach Lumley und Panofsky (1964, S. 35f) beträgt der Stichprobenfehler  $\sigma_f$  einer skalaren Funktion  $f$ :

$$\sigma_f = \left[ \frac{2 \langle f'^2 \rangle \Lambda_f}{L_f} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (7.27)$$

wobei  $\langle \quad \rangle$  den Ensemble-Mittelwert,  $\Lambda_f$  die Integral-Skala und  $L_f$  die Mittelungslänge bezeichnet. Diesem Ansatz liegt die Annahme zugrunde, daß die Integral-Skala der Funktion  $f$  existiert, d.h. daß das Integral der Autokorrelationsfunktion endlich ist, oder anders ausgedrückt, daß die Funktionswerte nach einer gewissen Zeitspanne nicht mehr vom Ausgangszustand abhängen. Diese Annahme ist in der Atmosphäre im allgemeinen sicher erfüllt.

Unter der Annahme der Gültigkeit der Taylorschen Hypothese kann die Mittelungslänge  $L_f$  auch durch die Mittelungszeit  $T_f$  ersetzt werden:

$$L_f = \bar{u} T_f \quad (7.28)$$

Ausgehend von Gl. 7.27 gilt nach Lenschow und Stankov (1986) für den relativen Stichprobenfehler des Produkts zweier Variablen  $\alpha$  und  $\beta$ , deren Mittelwert Null ist:

$$\left( \frac{\sigma_{\alpha\beta}}{\langle \alpha\beta \rangle} \right)^2 = \frac{2}{L_{\alpha\beta}} \left( 1 + \frac{1}{r_{\alpha\beta}^2} \right) \Lambda_{\alpha\beta} \quad (7.29)$$

wobei  $r_{\alpha\beta}$  der Korrelationskoeffizient ist, definiert als:

$$r_{\alpha\beta} = \frac{\langle \alpha\beta \rangle}{[\langle \alpha^2 \rangle \langle \beta^2 \rangle]^{1/2}} \quad (7.30)$$

Gl. 7.29 darf auf Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen übertragen werden, da ihre Mittelwerte Null betragen.

Für die Integral-Skala von Ozondichte und Vertikalwind in einer turbulent gemischten Grenzschicht geben Lenschow und Stankov (1986) an:

$$\Lambda_{w' \varrho'_{O_3}} = 0.16 \cdot \left( \frac{z}{z_i} \right)^{\frac{1}{3}} z_i \quad (7.31)$$

Die Integral-Skala nimmt somit in der Grenzschicht proportional mit  $z^{\frac{1}{3}}$  zu. Daraus folgt nach Gl. 7.29, daß der relative Stichprobenfehler in der Grenzschicht bei gleicher Mittelungszeit ebenfalls mit der Höhe zunimmt.

Durch Einsetzen der Gl. 7.28, 7.30 und 7.31 in Gl. 7.29 ergibt sich für den absoluten Stichprobenfehler:

$$\sigma_{w' \varrho'_{O_3}} = \left( 0.32 \cdot [\langle w' \varrho'_{O_3} \rangle^2 + \langle \varrho'_{O_3} \rangle \langle w'^2 \rangle] \cdot \left( \frac{z}{z_i} \right)^{\frac{1}{3}} \cdot \frac{z_i}{\bar{u}} \cdot \frac{1}{T} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (7.32)$$

Zur Berechnung des Stichprobenfehlers nach dieser Gleichung wird die Grenzschichthöhe  $z_i$  aus der Ableitung  $A (= \frac{d}{dz} \ln Pz^2)$  des Offline-Lidarsignals und die mittlere Windgeschwindigkeit  $\bar{u}$  aus Radiosondenaufstiegen abgeschätzt, die in Kiel durchgeführt worden sind und freundlicherweise vom meteorologischen Beratungsdienst der Bundeswehr zur Verfügung gestellt wurden. Ferner gehen in Gl. 7.32 die Ensemble-Mittelwerte des turbulenten Ozonflusses und der Varianzen der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen ein.

Für den Erwartungswert der Kovarianz gilt:

$$E(\overline{w' \varrho'_{O_3M}}) = E(\overline{(\varrho'_{O_3} + \delta \varrho_{O_3})(w' + \delta w)}) = \overline{w' \varrho'_{O_3}} \quad (7.33)$$

d.h. der Ensemble-Mittelwert wird am besten durch den Stichproben-Mittelwert repräsentiert.

Die Ensemble-Mittelwerte der Varianzen der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen werden gemäß Gl. 7.24 am besten durch Abzug des Systemrauschens von der gemessenen Varianz angenähert.

Der Stichprobenfehler wird mit dem vorgestellten Verfahren nicht korrekt bestimmt, da in Gl. 7.32 eigentlich die Ensemble-Mittelwerte des turbulenten Ozonflusses und der Varianzen der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen eingesetzt werden müßten. Da diese nicht bekannt sind, wird aus der Messung die beste Näherung bestimmt. Somit liefert das vorgestellte Verfahren die bestmögliche Abschätzung des Stichprobenfehlers, nicht jedoch eine obere Abschätzung, wie im Falle des statistischen Fehlers.

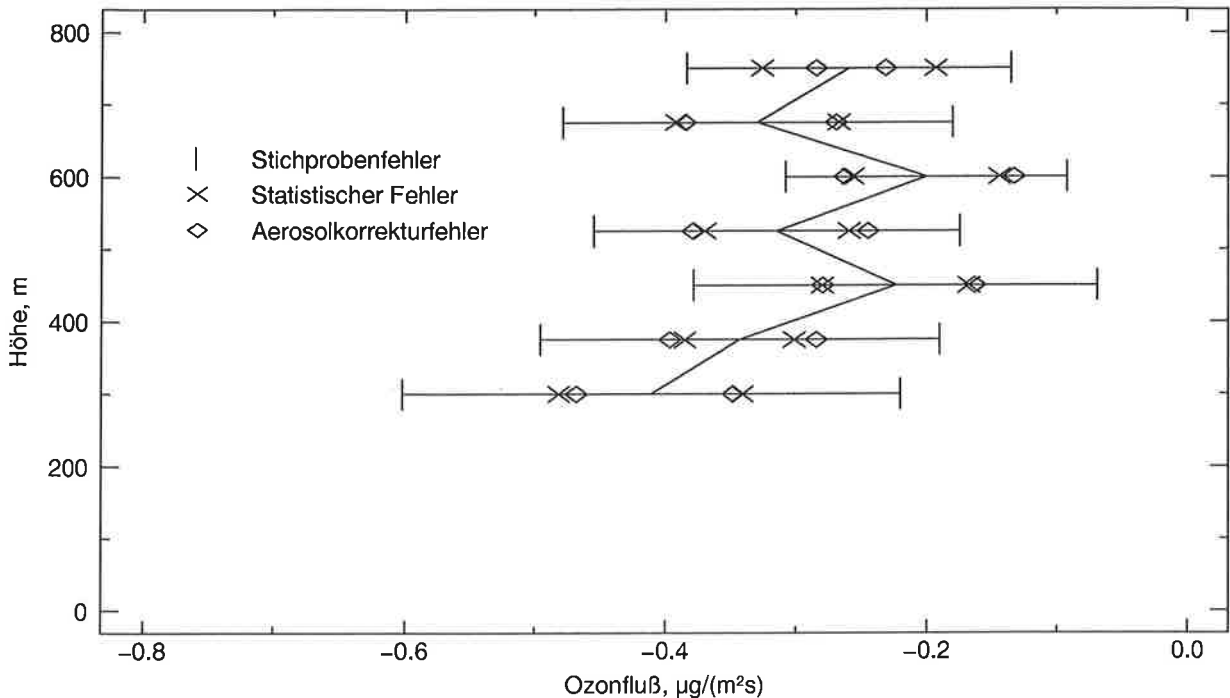


Abbildung 7.20: Ozonflußprofil inklusive Fehler. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:40–11:40 UT

#### 7.5.4 Zusammenfassung der Ozonflußfehler

In Abb. 7.20 sind die wesentlichen Fehler bei der Bestimmung des Ozonflusses zusammengefaßt. Es ist zu erkennen, daß der größte Fehler der Stichprobenfehler ist, der für die gezeigte Messung etwa  $0.15 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  oder 50% beträgt. Die statistischen Fehler und Aerosolkorrekturfehler sind etwa gleich groß und betragen  $0.06 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  bzw. 20%.

Nicht eingezeichnet ist der Fehler der Webbkorrektur, der  $0.02 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  beträgt und damit gegen die anderen Fehler vernachlässigt werden darf. Ebenfalls vernachlässigt werden darf der Fehler durch die nichtaufgelösten langwelligen Wirbelgrößen, da er kleiner als 10% ist. Nicht bekannt sind die Fehler durch nichtaufgelöste kurzwellige Wirbel und übersene Ausreißer. Wie beschrieben, ist jedoch davon auszugehen, daß diese Fehler gegen die gezeigten Fehler vernachlässigt werden können. Ein weiterer Fehler wird in einigen Höhenstufen durch die Verwendung der RASS-Daten verursacht, da die Fluktuationen der scheinbaren Schallgeschwindigkeit zum kleinen Teil auch durch Temperaturfluktuationen verursacht werden. Dieser Fehler ist kleiner als 10% und darf damit ebenfalls vernachlässigt werden.

Der wesentliche Ozontransport erfolgt durch große Wirbel, die die gesamte Grenzschicht umfassen. Aus diesem Grund ist davon auszugehen, daß die Stichprobenfehler in verschiedenen Höhenstufen stark positiv korreliert sind, da im Prinzip dieselbe Stichprobenmenge aus dem gesamten Ensemble in allen Höhenstufen erfaßt wird. Aus demselben Grund ist auch der Betrag des Stichprobenfehlers in angrenzenden Höhenstufen etwa gleich groß, wie aus Abb. 7.20 ersichtlich. Daraus folgt, daß der Stichprobenfehler im wesentlichen zu einer

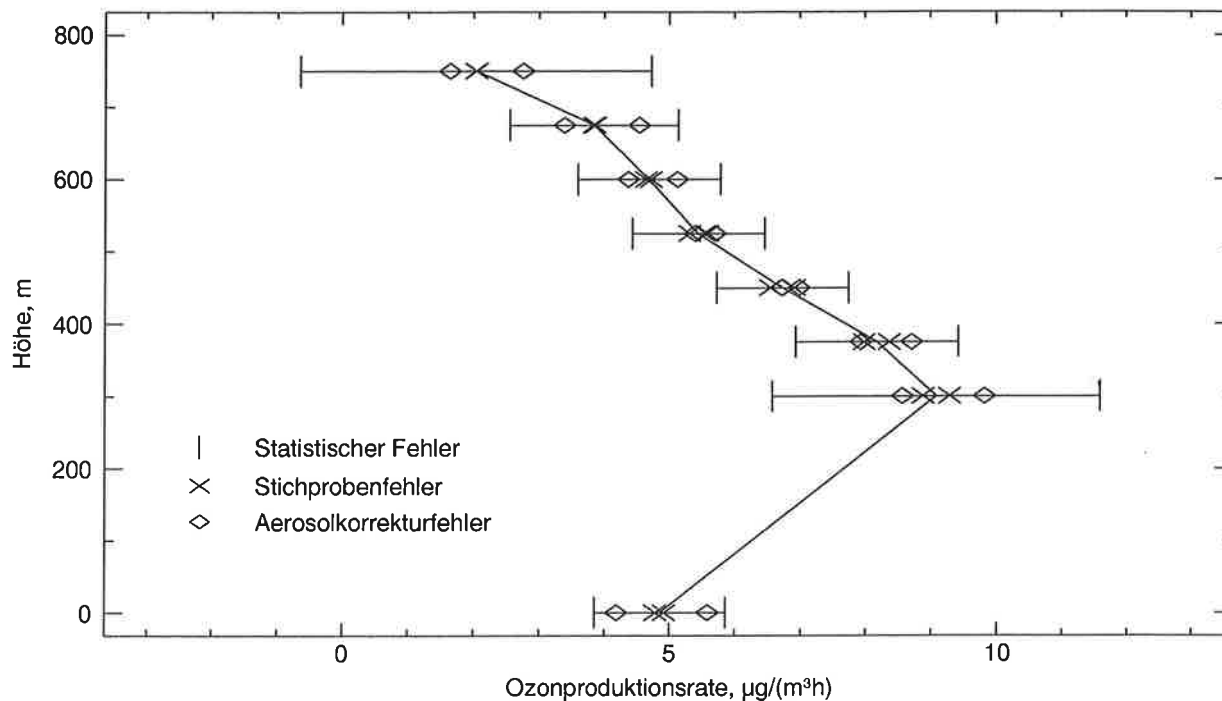


Abbildung 7.21: Ozonproduktionsrate inklusive Fehler. Tag: 01.07.93, Zeit: 9:40–11:40 UT

Parallelverschiebung des Flußprofils führt, und somit sein Einfluß auf die Flußdivergenz klein ist. Ähnliches gilt für den Aerosolkorrekturfehler, der ebenfalls in angrenzenden Höhen hoch positiv korreliert ist. Im Gegensatz dazu sind die statistischen Fehler zweier benachbarter Höhenstufen nicht miteinander korreliert.

### 7.5.5 Fehler der Ozonproduktionsrate

Aus den Messungen werden Flußdivergenz und zeitliche Änderung der Ozondichte bestimmt, deren Summe gleich der Differenz von Ozonproduktionsrate und Advektion ist (s. Kap. 7.2.5 und 7.4.3). Eine Abschätzung der Advektion kann nicht vorgenommen werden. Im folgenden werden nur die bekannten Fehlerquellen berücksichtigt.

Alle Fehler, die zu einer Fehlbestimmung des Ozonflusses führen, führen zwangsläufig auch zu einem Fehler bei der Bestimmung der Ozonproduktionsrate. Dies sind im wesentlichen die Stichproben-, statistischen und Aerosolkorrekturfehler. Ein weiterer Fehler bei der Berechnung der Ozonproduktionsrate ergibt sich durch die Bestimmung der mittleren zeitlichen Änderung der Ozondichte.

Die zeitliche Änderung der Ozondichte und ihre Standardabweichung werden nach der Methode der kleinsten Quadrate bestimmt, wobei die anschließende Mittelung berücksichtigt wird. Der Fehler der Flußdivergenz aufgrund statistischer Fehler wird nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz berechnet. Anschließend werden die so erhaltenen Fehler quadratisch addiert und ergeben den statistischen Fehler der Ozonproduktionsrate.

Wie im vorigen Abschnitt beschrieben, ist davon auszugehen, daß die Stichprobenfehler in verschiedenen Höhenstufen hoch positiv korreliert sind. Deshalb wird ihr Einfluß auf die Ozonproduktionsrate dadurch abgeschätzt, daß die Ozonproduktionsrate aus den Flußprofilen jeweils plus und minus Stichprobenfehler berechnet wird. Der Einfluß der unterschiedlichen Aerosolparameter wird wiederum durch Berechnung der Ozonproduktionsrate mit allen Kombinationsmöglichkeiten abgeschätzt, indem die volle Schwankungsbreite betrachtet wird.

Alle Fehler der Ozonproduktionsrate des gezeigten Meßabschnitts sind in Abb. 7.21 zusammengefaßt. Der größte Fehlerterm ist der statistische Fehler. Er wird hauptsächlich vom statistischen Fehler der Flußdivergenz bestimmt, während der statistische Fehler der zeitlichen Änderung der Ozondichte in der Regel vernachlässigbar ist. Da die Stichprobenfehler im wesentlichen zu einer Parallelverschiebung des Flußprofils führen, ist ihr Einfluß auf die Ozonproduktionsrate klein, wie anhand der Kreuze in Abb. 7.21 ersichtlich ist. Ähnliches gilt für die unterschiedlichen Aerosolparameter, die ebenfalls im wesentlichen zu einer Parallelverschiebung des Ozonflußprofils führen, so daß der Einfluß auf die Flußdivergenz und damit auf die Ozonproduktionsrate gering ist.

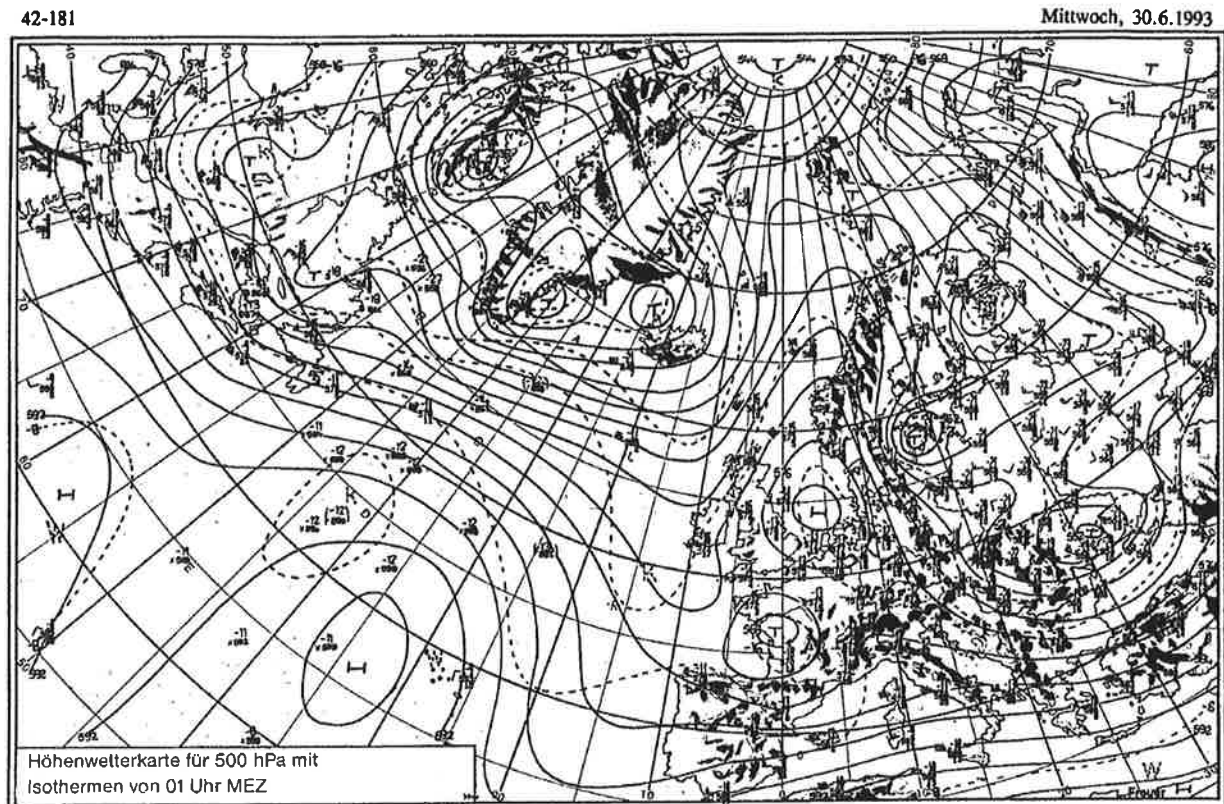


Abbildung 7.22: Höhenwetterkarte für 500 hPa vom 30.06.93, 00 UT (aus Berliner Wetterkarte, 1993).

## 7.6 Ergebnisse

Die Ozonflußmessungen wurden in der Zeit vom 29.06. – 02.07.1993 in Norddeutschland auf dem Flugplatz „Hungrier Wolf“ durchgeführt. Nach einer Beschreibung der Wetterlage wird die Ozondichteentwicklung an den vier Meßtagen vorgestellt. Es folgt eine Beschreibung und Interpretation der gemessenen Ozonflüsse. Abschließend werden die Ozonproduktionsraten diskutiert.

### 7.6.1 Wetterlage

In der Zeit vom 29.06. – 02.07.1993 war für weite Teile Deutschlands ein Höhenhochdruckgebiet mit Schwerpunkt über der Nordsee wetterbestimmend, von dem sich ein Hochdruckkeil vom Nordmeer über Norwegen bis nach Mitteleuropa erstreckte (s. 500 hPa-Karte in Abb. 7.22). Tiefdruckgebiete lagen über Frankreich, der östlichen Ostsee und der Ukraine, die jedoch nur zeitweilig Einfluß auf Teile Süddeutschlands und den Alpenraum hatten. An der Lage des Hochdruckgebiets änderte sich im gesamten Meßzeitraum wenig, abgesehen von einer geringfügigen Verlagerung des Schwerpunkts in Richtung Südost (Wetterkarte des DWD, 1993).

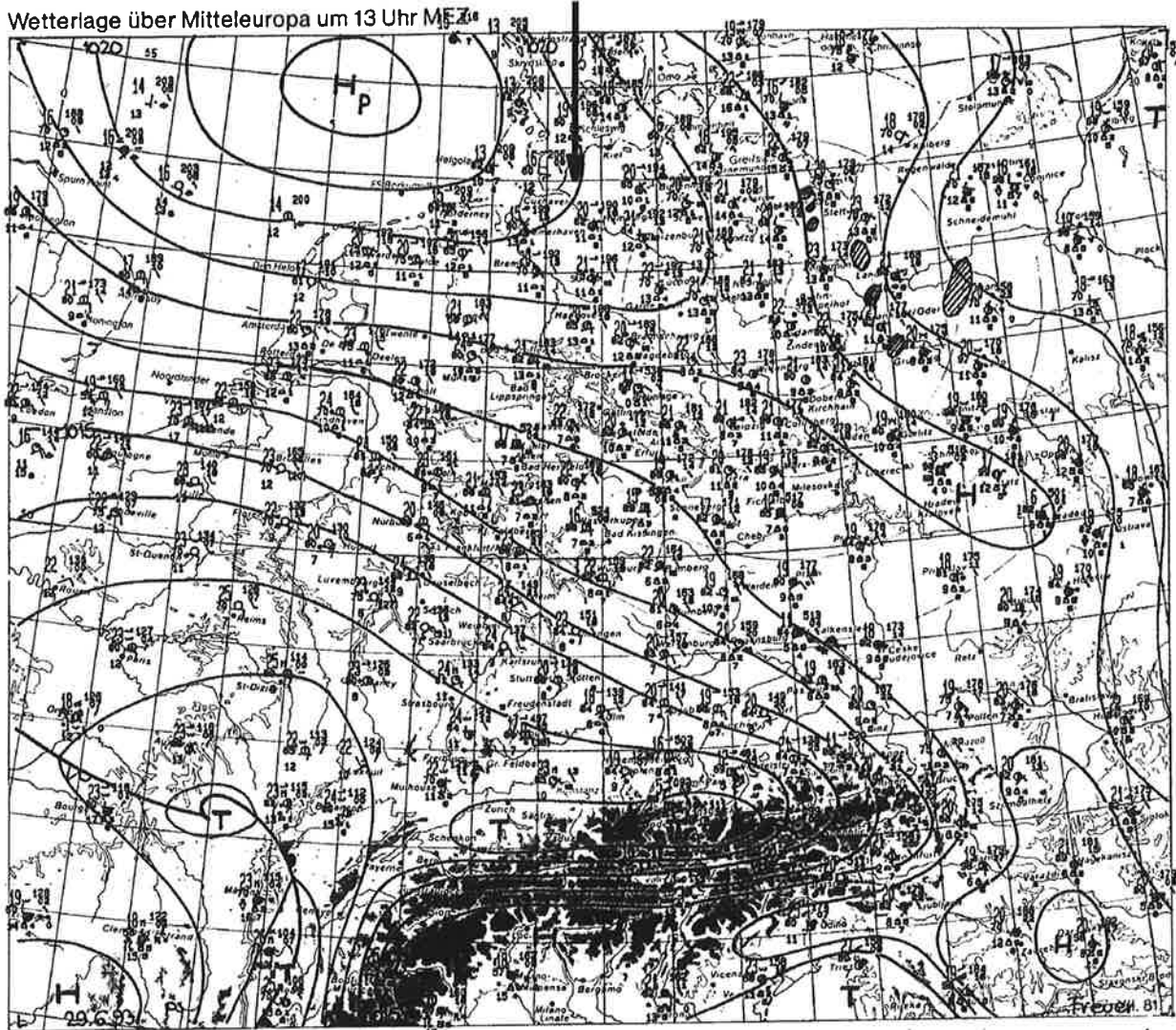


Abbildung 7.23: Bodenwetterkarte vom 29.06.93, 12 UT (aus Berliner Wetterkarte, 1993). Der Abstand der Isobaren beträgt 1 hPa.

#### 7.6.1.1 29.06.1993

Die Bodenwetterkarte vom 29.06.93 ist in Abb. 7.23 dargestellt. Der Meßort „Hungrier Wolf“ ist durch einen Pfeil angedeutet. Zu erkennen ist das über der Nordsee gelegene Hochdruckgebiet, das einen Keil bis zur Tschechischen Republik ausbildete und so wetterbestimmend für das nördliche Mitteleuropa war. Über Teilen Norddeutschlands sorgte von der Nordsee her eingedrungene feuchte Luft für Nebel, der sich erst im Laufe des Vormittags auflöste. Ansonsten war der Himmel über Norddeutschland weitestgehend wolkenfrei (Berliner Wetterkarte vom 29.06.1993).



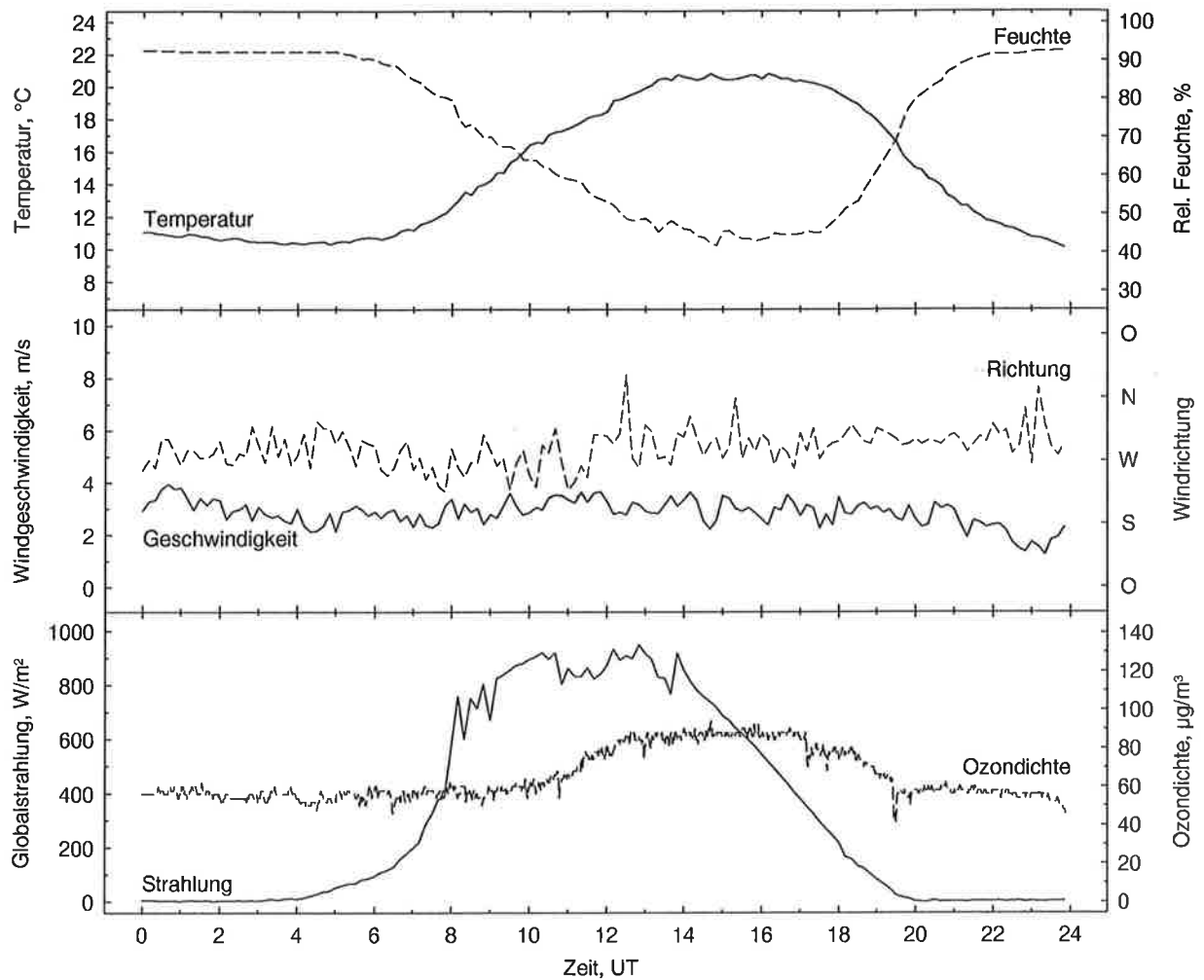


Abbildung 7.24: Bodendaten vom 29.06.93

Die am 29.06. gemessenen Bodendaten sind in Abb. 7.24 dargestellt. Früh morgens war es dunstig, so daß die Sonneneinstrahlung abgeschwächt wurde. Im Laufe des Vormittags löste sich der Dunst auf, und den restlichen Tag über war es überwiegend heiter. Zur Mittagszeit — die tatsächliche Ortszeit entspricht UT (universal time) plus ungefähr 40 min — betrug die maximale Strahlungsintensität ca.  $950 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$ . Die Temperatur stieg im Laufe des Tages auf max.  $21^\circ\text{C}$  an. Die relative Feuchte betrug knapp 100% in der Nacht und verringerte sich auf 42% am Nachmittag. Den ganzen Tag über kam der Wind aus nordwestlicher Richtung und es war schwachwindig mit Geschwindigkeiten um  $3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ . Die Ozondichte blieb nachts mit  $50\text{--}60 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  relativ hoch und erreichte ihr Maximum am Nachmittag mit  $94 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

Wetterlage über Mitteleuropa um 13 Uhr MEZ

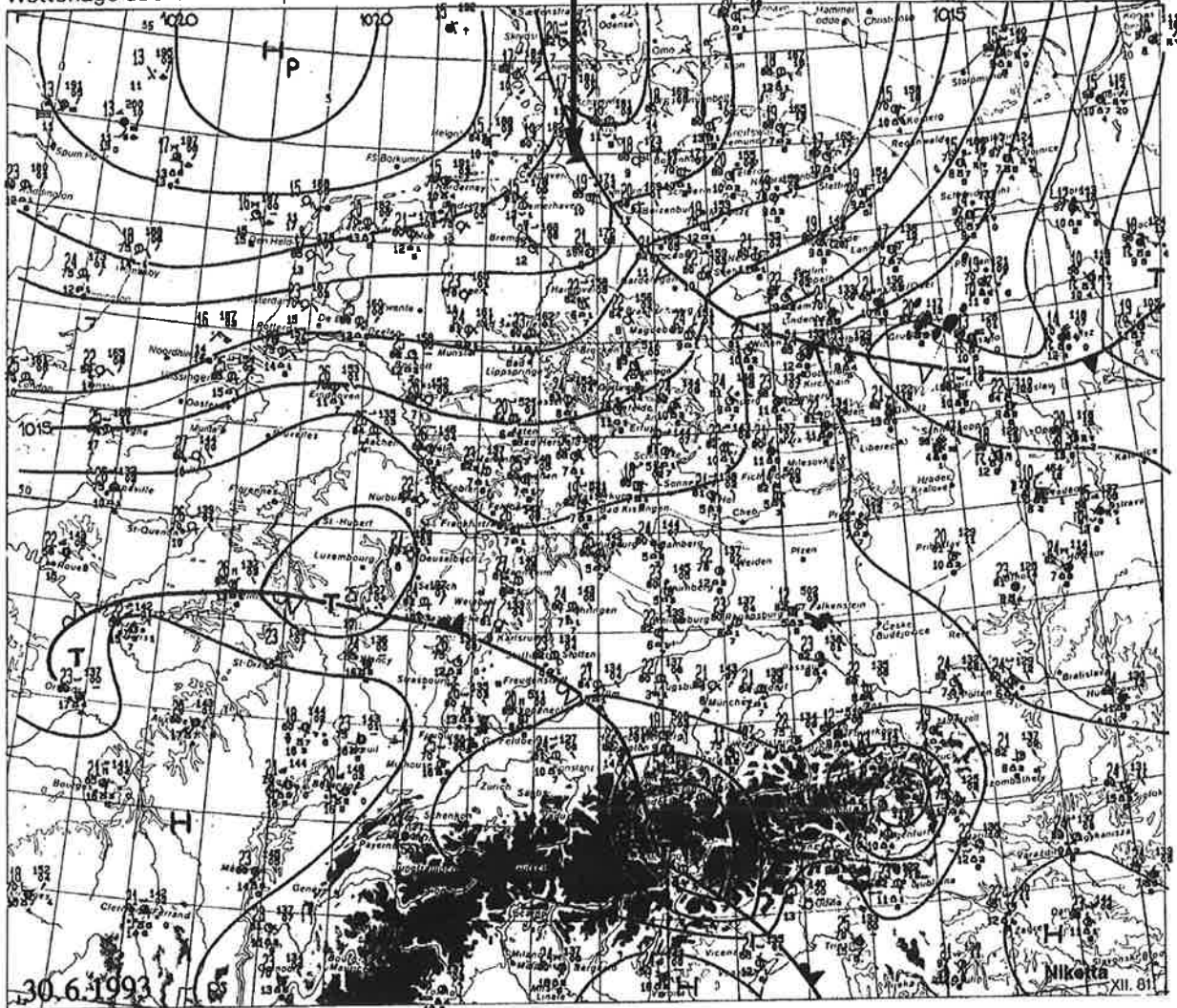


Abbildung 7.25: Bodenvetterkarte vom 30.06.93, 12 UT (aus Berliner Wetterkarte, 1993).  
Der Abstand der Isobaren beträgt 1 hPa.

### 7.6.1.2 30.06.1993

Die Bodenvetterkarte vom 30.06.93 in Abb. 7.25 zeigt erneut das Hoch über der Nordsee, das für sonnenreiches und warmes Sommerwetter sorgte. Im Nordosten Deutschlands drang am Rande eines Höhenwirbels eine schwache Kaltfront vor, die mittags Itzehoe erreichte.

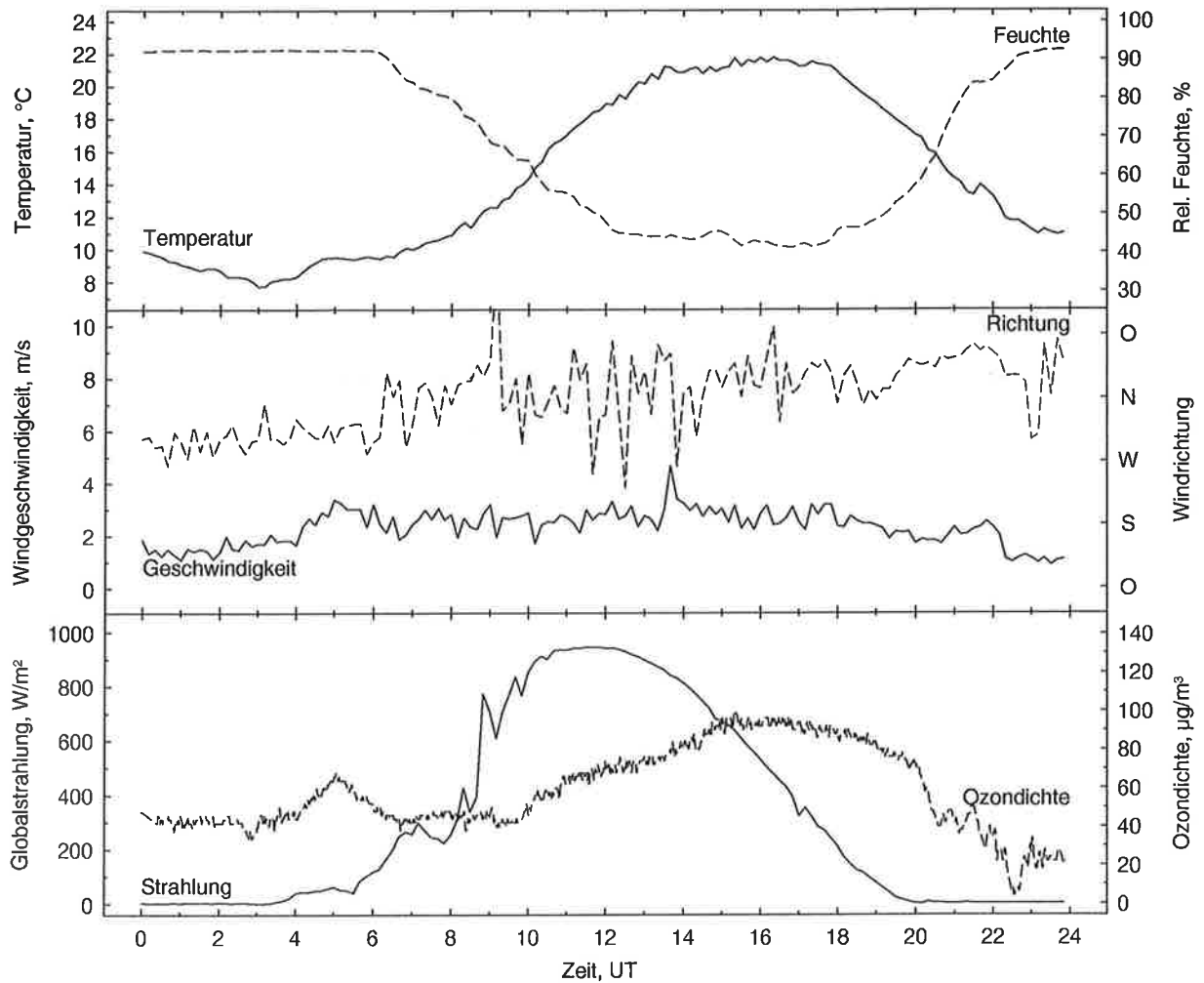


Abbildung 7.26: Bodendaten vom 30.06.93

In Oberflächennähe (Abb. 7.26) war wie am Vortag in den frühen Morgenstunden Nebel vorhanden, der sich im Laufe des Vormittags auflöste. Tagsüber war es dann sonnig mit einer maximalen Einstrahlung von ebenfalls  $950 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$ . Auch relative Feuchte und Temperatur zeigten einen ähnlichen Tagesgang wie am Vortag. Obwohl weiterhin schwachwindig mit  $2-3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ , drehte der Wind im Laufe des Tages von Nordwest über Nord auf Nordost. Die Ozondichte blieb in der Nacht vom 29.06. auf den 30.06. mit  $35-50 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  wieder relativ hoch mit einem kleinen Maximum um 5 UT. Im Laufe des Tages wurden dann Spitzenwerte bis zu  $100 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  gemessen. Der in der Bodenwetterkarte (Abb. 7.25) angedeutete Kaltfrontdurchgang erscheint kaum in den Bodendaten. Lediglich kurz vor 14 UT nimmt die Windgeschwindigkeit vorübergehend zu, die Richtung ist dabei jedoch stabil aus Nord.

Wetterlage über Mitteleuropa um 13 Uhr MEZ

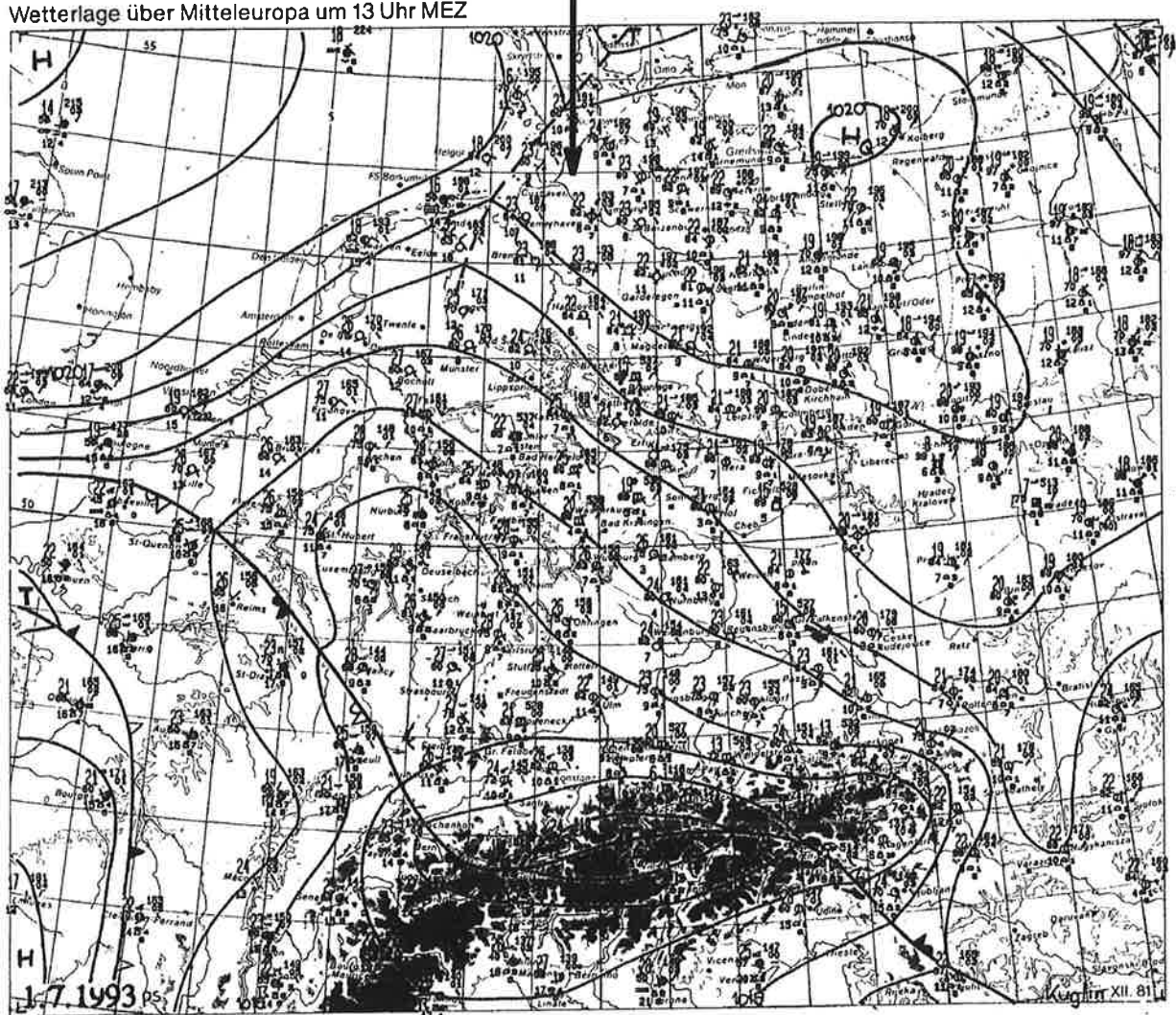


Abbildung 7.27: Bodenwetterkarte vom 01.07.93, 12 UT (aus Berliner Wetterkarte, 1993). Der Abstand der Isobaren beträgt 1 hPa.

### 7.6.1.3 01.07.1993

Am 01.07. war über Mitteleuropa praktisch keine Veränderung der großräumigen Wetterlage gegenüber dem Vortag zu beobachten (s. Abb. 7.27). Nach dem Kaltfrontdurchgang vom Vortag kam es zu einem Luftdruckanstieg im nordöstlichen Mitteleuropa und der Ausbildung einer Hochdruckbrücke von den Britischen Inseln bis nach Polen, so daß es in ganz Deutschland meist wolkenlos oder gering bewölkt war. Nur im Nordosten Deutschlands, wo sich die am Vortag eingedrungene Kaltluft nur zögernd erwärmte, gab es am Vormittag lockere Cumulusbewölkung.

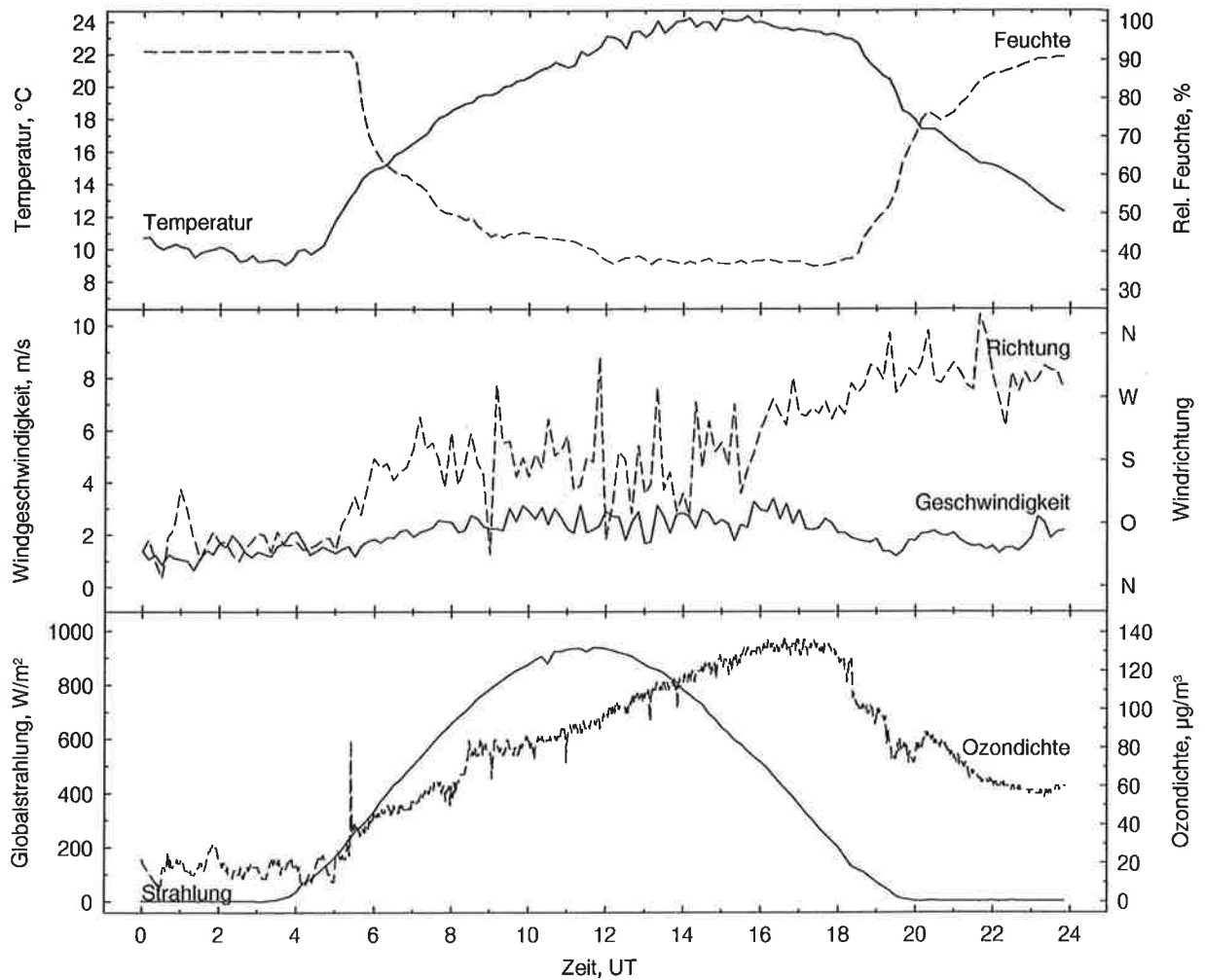


Abbildung 7.28: Bodendaten vom 01.07.93

Der 01.07.93 war fast wolkenfrei (s. Abb. 7.28), so daß die maximale Einstrahlung mit  $940 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$  nahezu gleich groß wie an den Vortagen war. Die Temperatur hingegen stieg auf max.  $24^\circ\text{C}$  an, während die relative Feuchte auf unter 40% abnahm. Die Windgeschwindigkeit war mit ca.  $2-3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  wieder so niedrig wie an den vorangegangenen Tagen. Der Wind drehte im Laufe des Tages von Nordost über Süd auf West bis Nordwest zurück. In der Nacht vom 30.06. auf den 01.07. ging die Ozondichte in Bodennähe auf unter  $20 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  zurück. Um 5:25 UT war ein kurzzeitiger, sehr kräftiger Anstieg der Ozondichte zu beobachten. Dieses wurde wahrscheinlich durch einen Frontdurchgang und die damit verbundene Advektion einer anderen Luftmasse verursacht, da sich zeitgleich auch Windrichtung und Luftfeuchte geändert haben. Es ist zu vermuten, daß dieses die in der Bodenwetterkarte (Abb. 7.27) gezeigte Konvergenzlinie war. Im Laufe des Tages stieg die Ozondichte auf maximal  $140 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  an und war damit deutlich höher als an den Vortagen.

Wetterlage über Mitteleuropa um 13 Uhr MEZ

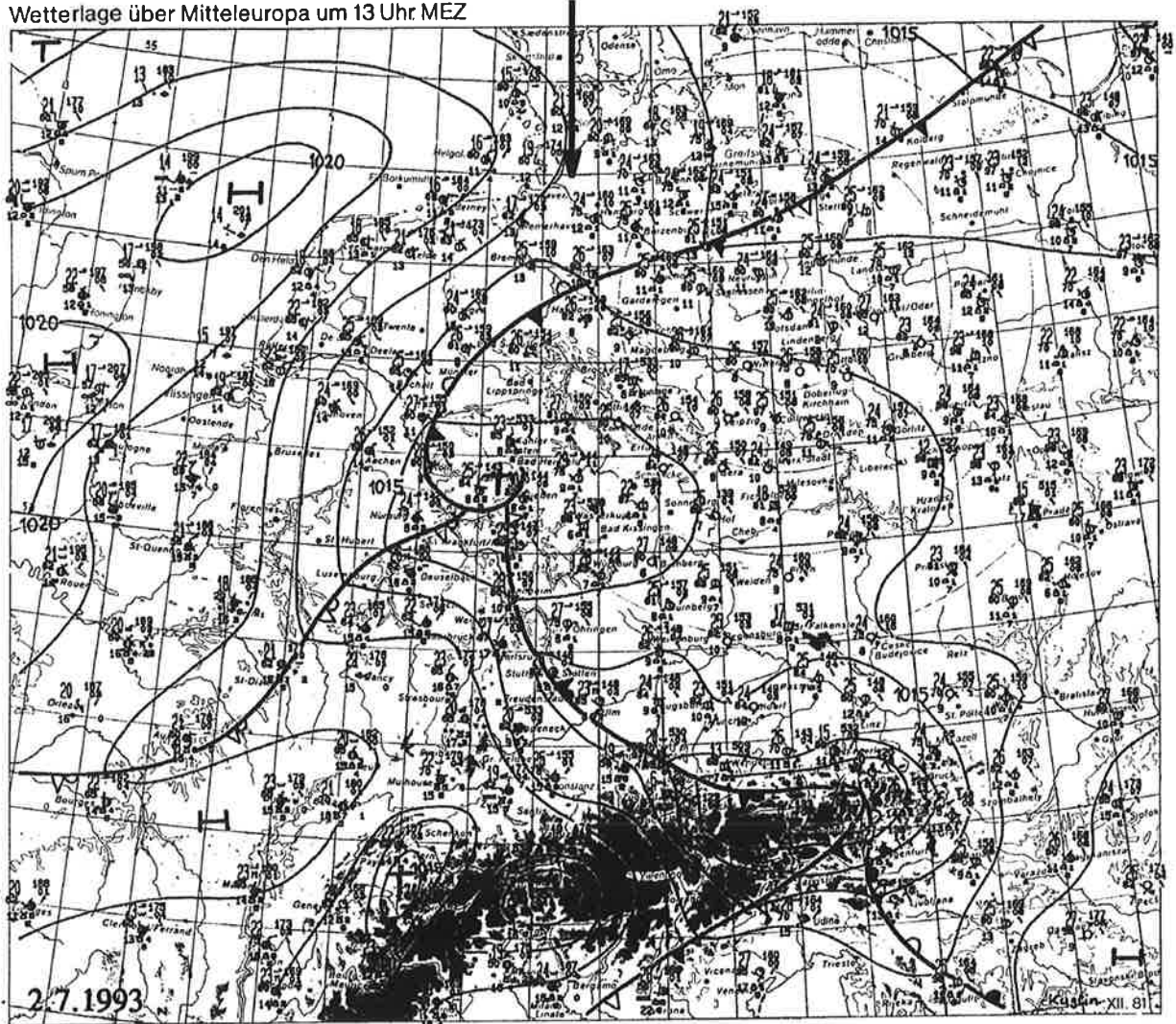


Abbildung 7.29: Bodenerwetterkarte vom 02.07.93, 12 UT (aus Berliner Wetterkarte, 1993). Der Abstand der Isobaren beträgt 1 hPa.

#### 7.6.1.4 02.07.1993

Da es am 02.07. kaum Änderungen der Großwetterlage über Deutschland gab (s. Abb. 7.29), war es wieder ein sonniger und sehr warmer Tag.

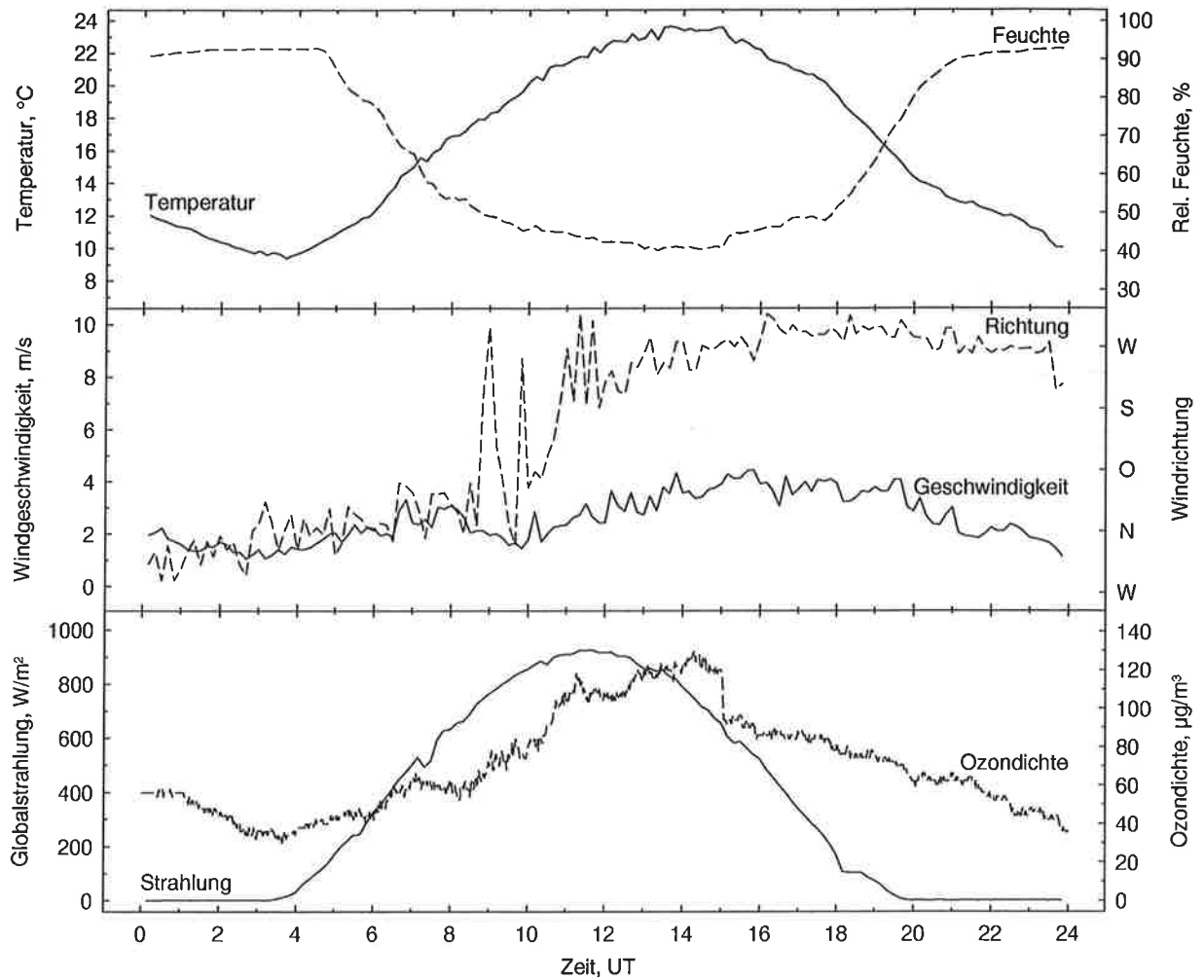


Abbildung 7.30: Bodendaten vom 02.07.93

Wie aus Abb. 7.30 ersichtlich, war der 02.07. wieder ein wolkenfreier Tag, mit einer maximalen Globalstrahlung von  $930 \frac{\text{W}}{\text{m}^2}$ . Das Temperaturmaximum betrug wieder  $24^\circ\text{C}$  mit einer minimalen Feuchte von 40%. Der Wind drehte im Laufe des Tages von Nord über Ost auf Südwest bis West, wiederum bei Windgeschwindigkeiten von  $2\text{--}3 \frac{\text{m}}{\text{s}}$ . Die Ozondichte in Bodennähe ging in der Nacht vom 01.07. auf den 02.07. nur langsam zurück. Tagsüber nahm sie zunächst nur relativ langsam zu, erreichte dann kurzzeitig Spitzenwerte bis zu  $130 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ , als der Wind aus süd- bis südwestlicher Richtung kam, und fiel danach wiederum sehr schnell auf unter  $100 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  ab, nachdem der Wind auf westliche Richtung gedreht hatte. Dieses ist ein deutlicher Hinweis darauf, daß die lokalen Ozondichten vom 02.07. stark durch Advektionsprozesse beeinflusst waren.

## 7.6.2 Schichtung der Atmosphäre und Ozonverteilungen

### 7.6.2.1 29.06.1993

Wie in Kap. 4.2.1 diskutiert, sind anhand der Größe  $A = \frac{d}{dz} \ln(P(z)z^2)$  der Offline-Wellenlänge vertikale Aerosolrückstreugradienten zu erkennen. Der Übergang von der Grenzschicht zur freien Troposphäre zeichnet sich im allgemeinen durch ein Minimum von  $A$  aus.

In Abb. 7.31 ist  $A$  für den Zeitraum 10:30–13:40 UT vom 29.06.93 dargestellt. Als Offline-Wellenlänge wurde 292 nm verwendet. Die Originaldaten, die mit 10 s und 15 m Auflösung aufgezeichnet worden sind, wurden für diese Darstellung zunächst gleitend mit einem gaußförmigen Filter der Breite 30 m räumlich gemittelt. Nach der Berechnung von  $A$  wurde diese aus graphischen Gründen auf 5 s und 5 m Auflösung linear interpoliert. Die Höhenangabe in dieser sowie allen folgenden Abbildungen bezeichnet die Höhe über Grund. Die Standorthöhe, die 20 m über Normal Null beträgt, wurde nicht berücksichtigt.

Im unteren Teil der Grenzschicht (0–200 m) ist  $A$  positiv und sehr groß (weiße Fläche in Abb. 7.31). Dieses ist die Folge aus der Signalzunahme mit der Höhe bedingt durch die zunehmende Überlappung zwischen Teleskop und Laserstrahl. Somit erlaubt diese Darstellung die Bestimmung der Mindesthöhe, in der vollständige Überlappung eintritt (vgl. Kap. 4.2). Deutlich zeichnet sich die Grenzschichtoberkante ab, die an den dunklen Farben entsprechend dem Minimum von  $A$  zu erkennen ist. Im Vergleich dazu weist die Grenzschicht erheblich weniger Strukturen auf, wie aufgrund der guten Durchmischung zu erwarten ist. Ebenso sind in der freien Troposphäre kaum Strukturen zu erkennen, da der Aerosolgehalt und damit auch die Gradienten klein sind. Die roten Streifen oberhalb von 1000 m werden durch ein kleines Signal-zu-Rausch-Verhältnis verursacht. Am Ende des dargestellten Meßzeitraumes können vereinzelte Cumuluswolken identifiziert werden. Bedingt durch den starken Anstieg des Rückstreukoeffizienten an der Unterseite der Cumuluswolken wird  $A$  sehr groß, was in der Abbildung als weiße Flecken zu erkennen ist.

Wie aus Abb. 7.31 ersichtlich, ist die momentane Höhe der Grenzschichtoberkante gut anhand der Lidarrückstreudaten zu erkennen. Mit momentaner oder instantaner Grenzschichthöhe wird im folgenden die Höhe der Grenzschichtoberkante zu einem bestimmten Zeitpunkt über dem Lidar bezeichnet. Der klassische Begriff der Grenzschichthöhe bezeichnet eigentlich den Ensemble-Mittelwert der instantanen Grenzschichthöhe zu einem bestimmten Zeitpunkt gemittelt über eine größere Fläche. Übertragen auf die Lidarmessungen bedeutet dieses, daß unter Grenzschichthöhe die zeitlich gemittelte Grenzschichthöhe zu verstehen ist.

Aus Abb. 7.31 ist ferner zu ersehen, daß der Begriff der Grenzschicht mit Vorsicht zu verwenden ist. Im Zeitraum 10:30–11:45 UT beträgt die mittlere Grenzschichthöhe etwa 600 m. Dennoch gibt es einzelne Abwindereignisse, die bis zu 300 m herunterreichen, und ebenso Aufwindereignisse, die bis zu 800 m hinaufreichen. Insofern kann eine Meßhöhe, die deutlich kleiner als die Grenzschichthöhe ist, dennoch zeitweilig in der Entrainmentzone liegen.



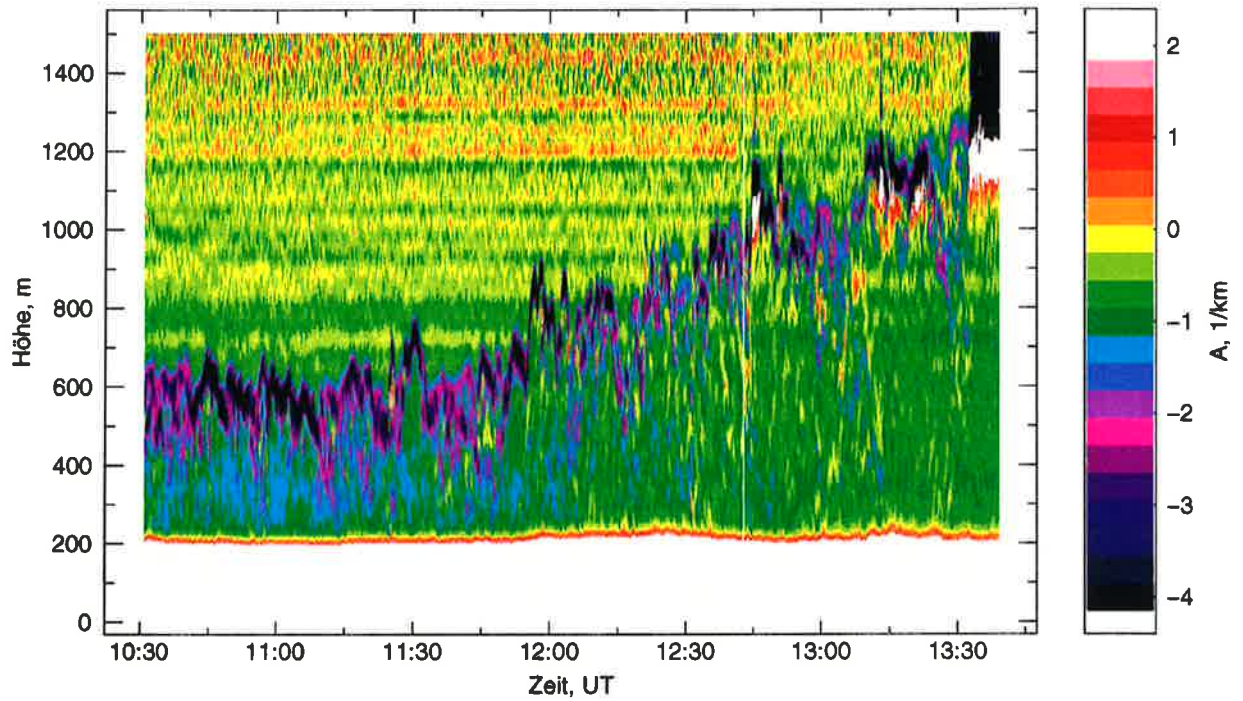


Abbildung 7.31: Ableitung  $A$  ( $= \frac{d}{dz} \ln Pz^2$ ) des Offline-Lidarsignals. Wellenlänge: 292 nm, Tag: 29.06.93

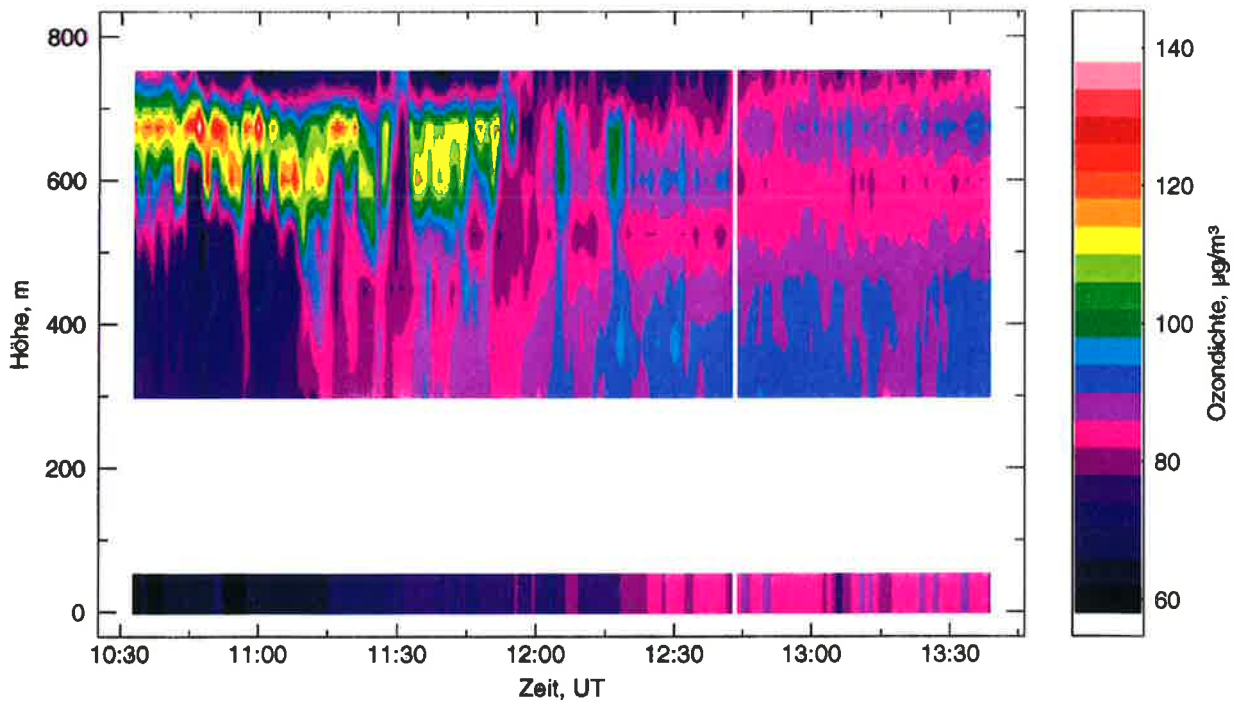


Abbildung 7.32: Ozondichte in der Grenzschicht am 29.06.93



Abb. 7.31 ist weiterhin zu entnehmen, daß die Grenzschichthöhe am 29.06. bis kurz vor 12 UT relativ konstant bei 600 m liegt. Besonders auffällig ist eine kräftige, konvektive Aufwärtsbewegung um 11:30 UT, während der die Grenzschicht bis 750 m hinaufreicht. Ab ca. 11:50 UT wächst die Grenzschicht kontinuierlich an und erreicht gegen 13:30 UT eine Höhe von 1150 m.

In Abb. 7.32 ist die im gleichen Zeitraum gemessene Ozondichte dargestellt. Die Ozondichte wurde mit einer Auflösung von 1 min und 75 m berechnet und anschließend ebenfalls aus graphischen Gründen auf 5 s und 5 m linear interpoliert. Die mit einem Ozonanalysator in Bodennähe gemessenen Ozondichten sind als Balken am unteren Rand hinzugefügt. Besonders auffällig ist eine Schicht mit einer erhöhten Ozondichte von 100–120  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  zu Beginn des Meßzeitraums in 600–700 m Höhe, während die Ozondichte in der Grenzschicht nur 75–80  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  und in Bodennähe 65  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  beträgt. Die Ozondichte in der freien Troposphäre, die nicht in der Abbildung enthalten ist, beträgt ca. 78  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ . Da die Grenzschichthöhe ungefähr 600 m beträgt, befindet sich die ozonreiche Schicht oberhalb der Mischungsschicht. Es handelt sich dabei um die sogenannte Restschicht, d.h. den Rest der Grenzschicht vom Vortag (vgl. Kap. 7.2.1).

Die kräftige Aufwärtsbewegung um 11:30 UT, die bereits in Abb. 7.31 zu erkennen war, ist auch in dieser Abbildung wiederzufinden. Da sie ein Anheben der Restschicht bewirkt, so daß die Mischungsschicht zu diesem Zeitpunkt höher hinausreicht, ist die Ozondichte zu diesem Zeitpunkt in 675 m Höhe etwa die gleiche wie in der Mischungsschicht. Nach 12 UT löst sich die Restschicht auf und wird mit in die Grenzschicht eingemischt. Bis 12:30 UT steigen die Ozondichten in der Mischungsschicht auf etwa 90  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  an.

Während des gesamten dargestellten Zeitraumes ist die Ozondichte in der Mischungsschicht etwa 10  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  größer als in Bodennähe. Im Zeitraum 12:45–13:40 UT, nachdem die Restschicht eingemischt ist, ist die Ozondichte im oberen Teil der Grenzschicht ebenfalls ca. 10  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  niedriger als im unteren Teil. Es ergibt sich somit ein Maximum der Ozondichte in der unteren Hälfte der Grenzschicht. Im Mittel über die letzte Stunde beträgt die Ozondichte in Bodennähe 85  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ , in 300 m 92  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  und in 750 m 81  $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

Aus Gründen der Übersichtlichkeit werden zur Darstellung der Ozondichteentwicklung im folgenden vier Höhen herausgegriffen. In Abb. 7.33 sind die am 29.06.93 gemessenen Ozondichten in Bodennähe und in den Höhen 300, 600 und 1800 m zusammengefaßt. Die Ozondaten des Lidars wurden mit einer Auflösung von 75 m und 1 min bestimmt. Die Ozondichten in Bodennähe und in den Höhen 300 und 600 m wurden anschließend mit einem gaußförmigen Fenster der Breite 15 min gleitend zeitlich gemittelt. Die mit dem großen Teleskop gemessenen Ozondichten wurden räumlich zwischen 1700 und 1900 m und zeitlich über 15–30 min zusammengemittelt.

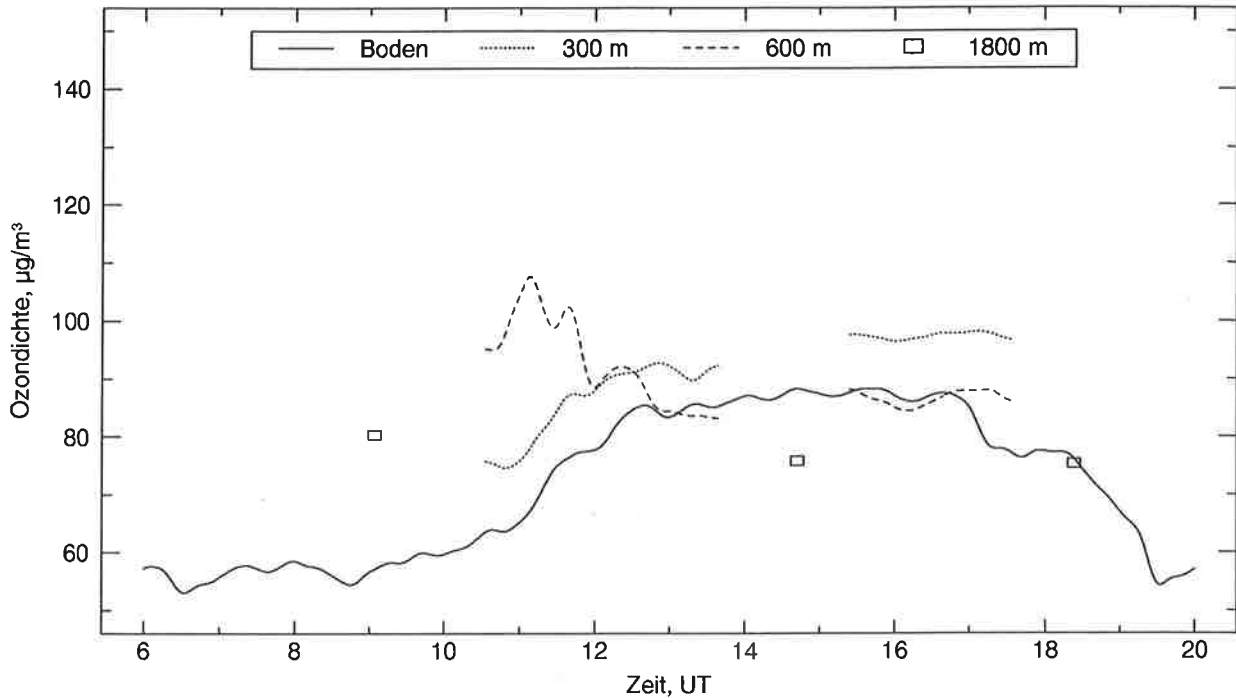


Abbildung 7.33: Zeitliche Entwicklung der Ozondichte in Bodennähe und in 300, 600 und 1800 m. Tag: 29.06.93

Am 29.06. verläuft die zeitliche Entwicklung der Ozondichte in 300 und 600 m meistens parallel zur Ozondichte in Bodennähe. Eine Ausnahme ist die Meßhöhe 600 m am Vormittag, da sie teilweise in der Restschicht liegt. Ferner nimmt nach 17 UT die Ozondichte in Bodennähe ab, während sie in den Höhen 300 und 600 m ungefähr konstant bleibt. Die Ozondichte in der freien Troposphäre ist im Laufe des Tages annähernd konstant mit etwa  $77 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

#### 7.6.2.2 30.06.1993

Die Grenzschichthöhe am 30.06. stieg von ca. 500 m um 10:30 UT auf ca. 850 m um 13:20 UT. Nachmittags schwankte sie zwischen 900 und 1000 m.

Die tageszeitliche Entwicklung der Ozondichte am 30.06. ist derjenigen vom 29.06. ähnlich (s. Abb. 7.34), wobei der Maximalwert in der Grenzschicht leicht angestiegen ist. Zu Beginn der Messungen befindet sich die Restschicht noch in 600 m Höhe und wird kurz darauf eingemischt. Während die Ozondichte der freien Troposphäre tagsüber konstant  $79 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  beträgt, steigt sie im Laufe des Nachmittags auf  $92 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ .

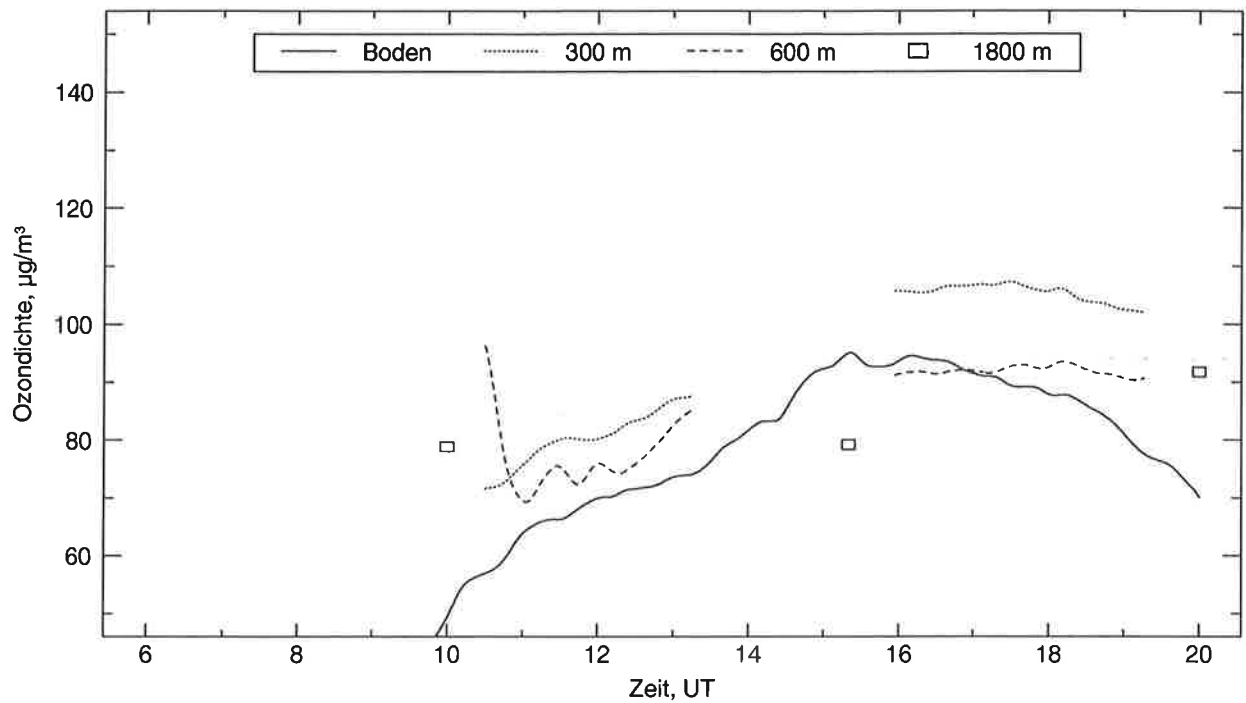


Abbildung 7.34: Zeitliche Entwicklung der Ozondichte in Bodennähe und in 300, 600 und 1800 m. Tag: 30.06.93

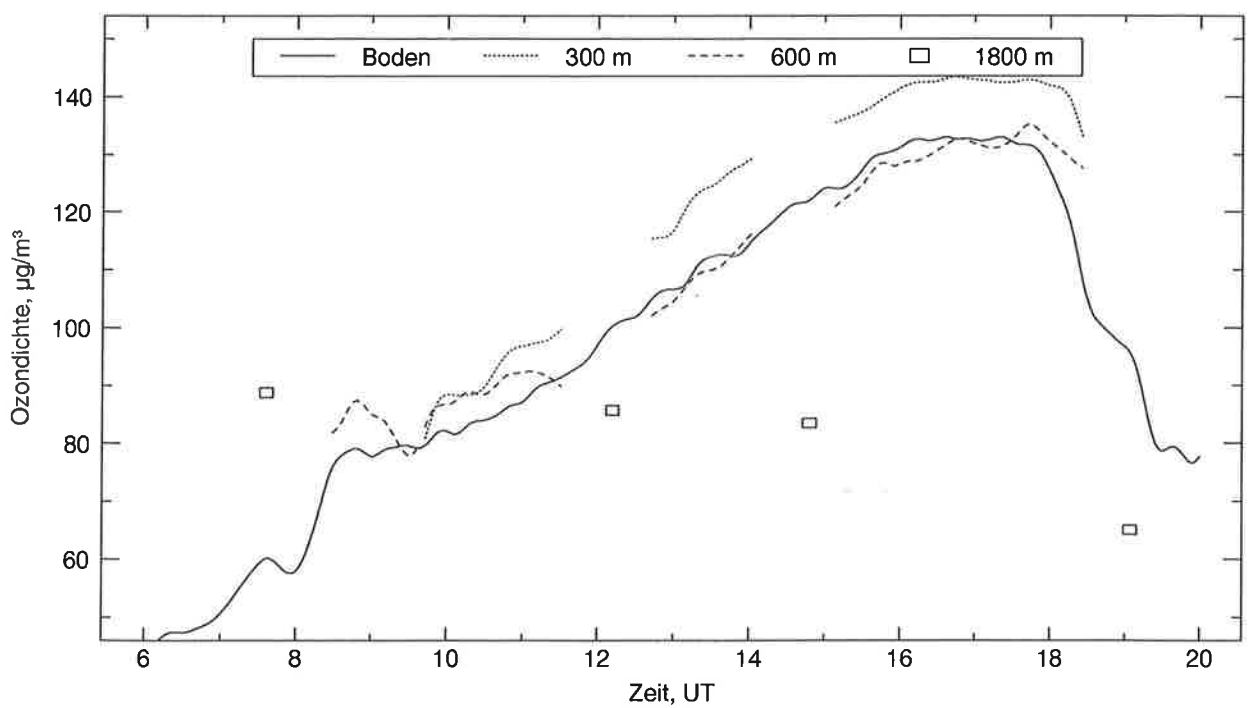


Abbildung 7.35: Zeitliche Entwicklung der Ozondichte in Bodennähe und in 300, 600 und 1800 m. Tag: 01.07.93

### 7.6.2.3 01.07.1993

Das Anwachsen der Grenzschicht ging am 01.07. sehr rasch vonstatten. So stieg die Grenzschichthöhe von ca. 400 m um 8:30 innerhalb einer Stunde auf ca. 850 m. Die maximale Grenzschichthöhe wurde am Nachmittag mit ca. 1300 m erreicht.

Die tageszeitliche Entwicklung der Ozondichten war am 01.07. ähnlich wie an den Vortagen (s. Abb. 7.35). Eine Ausnahme ist am Abend um 18 UT zu erkennen. Die Ozondichte in Bodennähe geht innerhalb einer halben Stunde von 130 auf unter  $100 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  zurück. Den Beginn einer Ozondichteabnahme sieht man in diesem Fall auch in den Höhen 300 und 600 m. Gleichzeitig ist die Ozondichte in der freien Troposphäre ebenfalls erheblich zurückgegangen. Um 19 UT beträgt sie nur noch  $65 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ , nachdem sie tagsüber von 89 auf  $83 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  innerhalb von 7 h nur leicht abgenommen hatte. Eine mögliche Erklärung ist ein Frontdurchgang, der durch Advektion einer anderen Luftmasse für die beobachtete Ozondichteabnahme in allen Höhen sorgt. Dafür findet man auch Hinweise in den meteorologischen Bodendaten (Abb. 7.28, S. 107), denn um 18 UT dreht der Wind von West auf Nordwest und die relative Feuchte steigt an.

### 7.6.2.4 02.07.1993

Am 02.07. unterscheidet sich der Aufbau und die Schichtung der unteren Troposphäre erheblich von den anderen Tagen. Dazu ist in Abb. 7.36 die Ableitung  $A$  des entfernungskorrigierten Offline-Lidarsignals für den Zeitraum von 5:25–8:25 UT vom 02.07. dargestellt. Ab ungefähr 6:30 UT ist in ca. 200 m Höhe die sich entwickelnde Mischungsschicht zu erkennen, die bis 8:20 auf ca. 350 m anwächst. Darüber können mehrere Schichten unterschieden werden. Diese werden zwar im Laufe des Tages durch das Anwachsen der Grenzschicht aufgelöst und eingemischt, jedoch bilden sich schon am Nachmittag um ca. 16 UT erneut diverse Schichten aus. Dieses Beispiel macht deutlich, daß die Entwicklung der Grenzschicht auch bei sommerlichen Hochdruckwetterlagen keineswegs immer durch das einfache Modell von Stull erklärt werden kann (vgl. Kap. 7.2.1).

Die Grenzschichthöhe stieg am 02.07. relativ gleichmäßig an und betrug max. etwa 1400 m um 14 UT. Die Messhöhe 1800 m befand sich somit zu keinem Zeitpunkt in der Grenzschicht.

Auch in der zeitlichen Entwicklung der Ozondichte unterscheidet sich der 02.07. von den anderen drei Tagen, wie anhand der großen Schwankungen der Ozondichte im Laufe des Tages zu erkennen ist (s. Abb. 7.37). Während die zeitliche Änderung der Ozondichte in der freien Troposphäre normalerweise gering ist, ändert sich die Ozondichte am 02.07. in 1800 m Höhe von  $85 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  um 4:40 UT, über  $70 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  (9:20 UT) und  $62 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  (13:30 UT) auf  $85 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  (17:15 UT) sehr rasch.

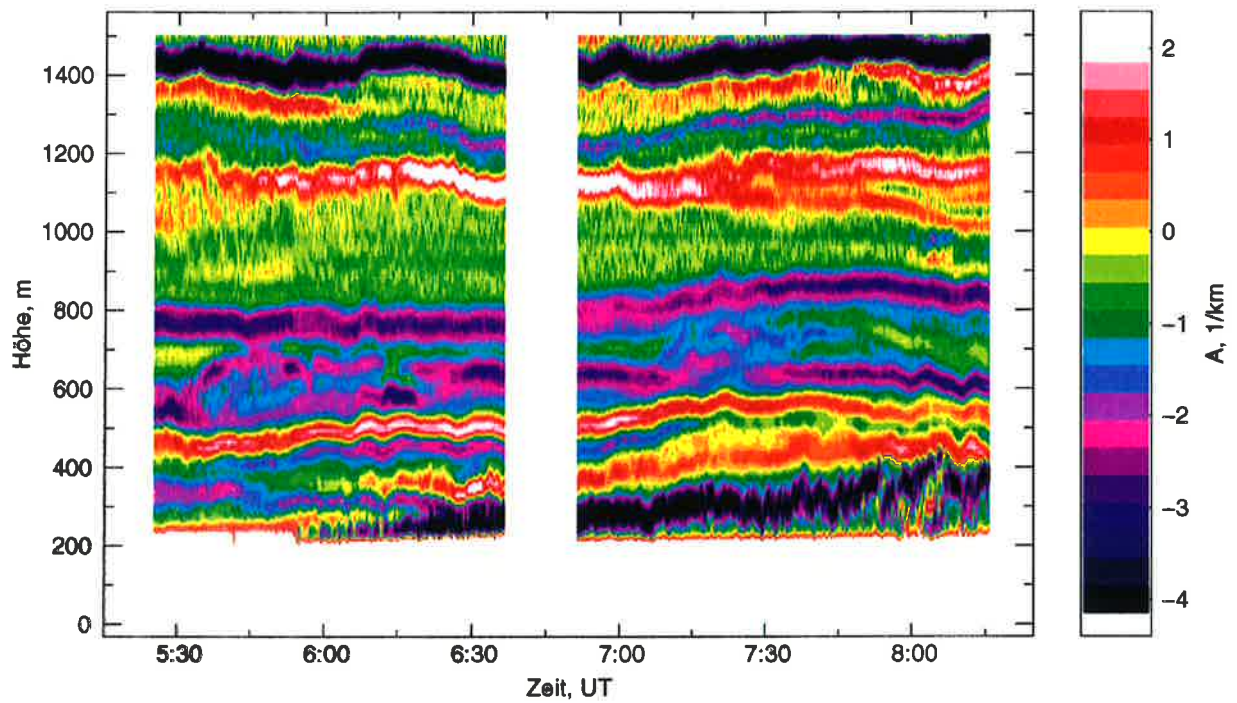


Abbildung 7.36: Ableitung  $A (= \frac{d}{dz} \ln Pz^2)$  des Offline-Lidarsignals. Wellenlänge: 292 nm, Tag: 02.07.93

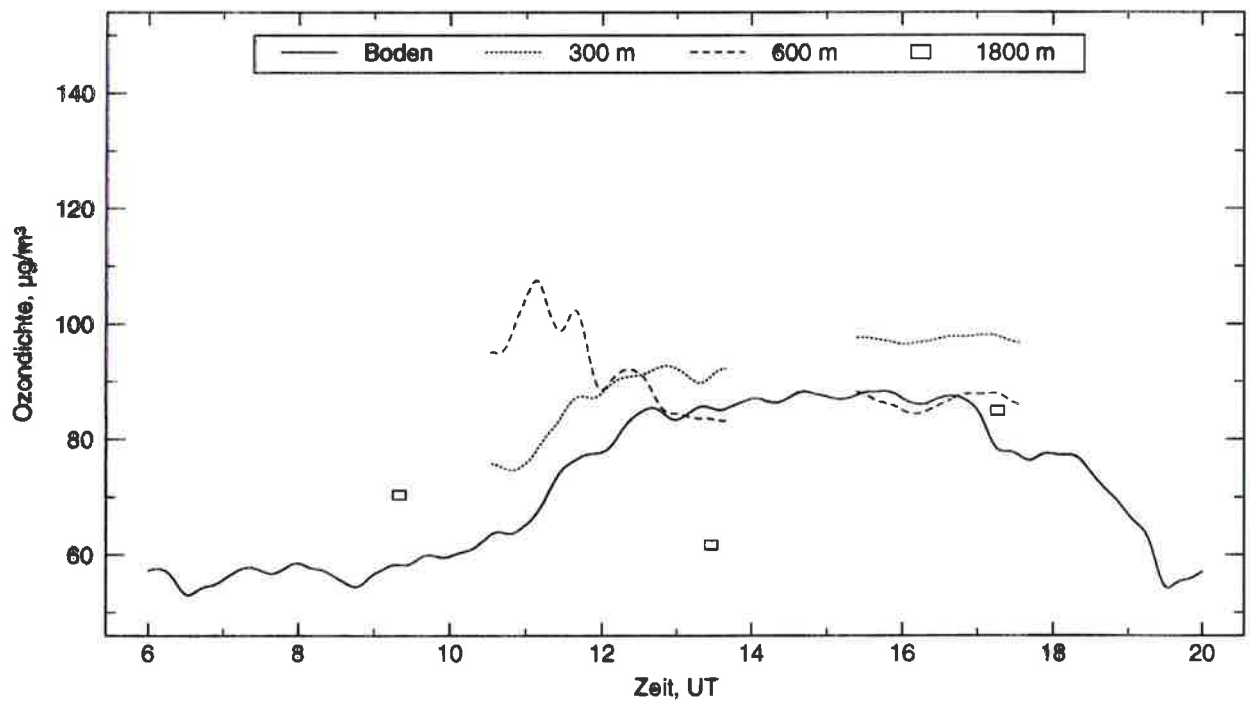


Abbildung 7.37: Zeitliche Entwicklung der Ozondichte in Bodennähe und in 300, 600 und 1800 m. Tag: 02.07.93

### 7.6.2.5 Zusammenfassung

Die Entwicklung der Ozondichte in Bodennähe an den ersten drei Tagen ist typisch für sonnenreiche Tage unter konvektiven Bedingungen. Die Ozondichten nehmen im Laufe des Tages zu und erreichen ihr Maximum am Nachmittag. Ferner ist ein Anstieg der Maxima von Tag zu Tag zu beobachten, wie es bei strahlungsintensiven Perioden im Sommer („Ozonepisode“) häufig beobachtet wird (z.B. Guicherit, 1988; Logan, 1988).

Die hohen Ozondichten, die vormittags in der Restschicht beobachtet werden und etwa dem Maximum vom Vortag entsprechen, lassen den Schluß zu, daß die Ozonab- und -aufbauraten aufgrund chemischer Reaktionen in der Restschicht während der Nacht klein sind. Dieses ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen anderer Forschungsgruppen, die ebenfalls hohe Ozonkonzentrationen in der Restschicht beobachteten (de Muer et al., 1990).

An allen vier Tagen ist zu erkennen, daß die Ozondichte in der untersten Lidarmefßhöhe ca.  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  größer ist als in Bodennähe. Dieser Gradient wird vermutlich durch den Ozonabbau am Boden verursacht. Ebenso ist die Ozondichte nach Einmischen der Restschicht im oberen Teil der Grenzschicht etwa  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  kleiner als in der unteren Grenzschicht. Dieses kann durch Einmischen von Luft aus der freien Troposphäre in die Grenzschicht erklärt werden. Da die Ozondichte in der freien Troposphäre niedriger als in der Mischungsschicht ist, wirkt das Einmischen der ozonärmeren Luft gleichsam als Ozonsenke. Somit weist die Ozondichte ein Maximum in der Grenzschicht auf. Ähnliche Beobachtungen werden auch von van Dop et al. (1977) berichtet.

In der freien Troposphäre ist praktisch kein Tagesgang zu erkennen. Dieses wird ebenfalls an anderen Tagen beobachtet (Grabbe et al., 1994). Lediglich bei Advektion einer anderen Luftmasse werden rasche Änderungen der Ozondichte in der freien Troposphäre beobachtet.

## 7.6.3 Ozonflüsse

### 7.6.3.1 Theoretische Überlegungen

Die im vorigen Kapitel vorgestellten Ozondichteverteilungen erlauben einige grundlegende Aussagen zu den erwarteten Ozonflüssen. Dazu ist im oberen Teil der Abb. 7.38 ein Ausschnitt einer idealisierten Grenzschichtentwicklung dargestellt. Diese entspricht dem Modell von Stull (Abb. 7.1), und wurde an den ersten drei Meßtagen beobachtet. Zu Anfang befindet sich oberhalb der Mischungsschicht noch die Restschicht, die durch Konvektion mit in die Mischungsschicht eingemischt wird. Dieser Vorgang führt zu einem raschen Anwachsen der Grenzschichthöhe.

Für zwei Zeitpunkte  $t_1$  und  $t_2$  sind dazu im unteren Teil der Abb. 7.38 typische idealisierte Ozonkonzentrationen und die sich daraus ergebenden Ozonflüsse skizziert. Zu einem Zeitpunkt  $t_1$ , wenn die Restschicht noch vorhanden ist, ist die Ozondichte in der Restschicht größer als in der Mischungsschicht, da in dieser über Nacht ein Großteil des Ozons abgebaut



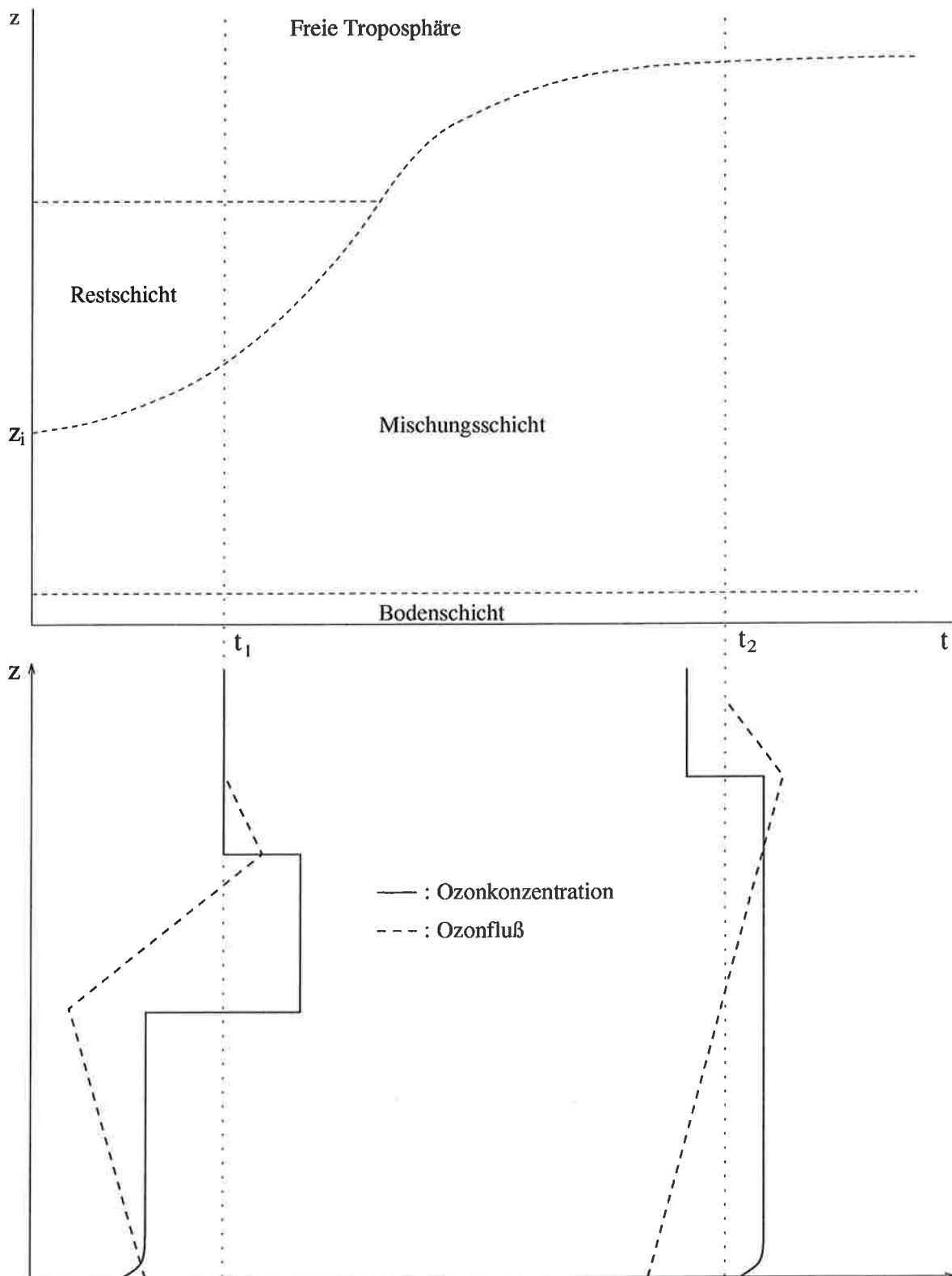


Abbildung 7.38: Modell zur qualitativen Betrachtung der Ozonflüsse (Beschreibung s. Text).

worden ist. Die Ozonkonzentration in der freien Troposphäre ist vom Tagesgang praktisch unbeeinflusst. Ihre Ozondichte kann somit am Vormittag größer oder kleiner als diejenige in der Mischungsschicht sein. Die Ozonkonzentration in Oberflächennähe ist trotz der guten Durchmischung geringer als in der Mischungsschicht, da die Erdoberfläche eine Ozonsenke ist, währenddessen die photochemische Produktion von Ozon in der Grenzschicht eine Quelle darstellt.

Am Übergang Mischungsschicht — Restschicht, wo ein großer positiver Ozonkonzentrationsgradient vorliegt, wird mit einem Aufwind ozonarme Luft aus der Mischungsschicht nach oben und bei einem Abwind ozonreiche Luft aus der Restschicht nach unten transportiert. Somit erhält man einen negativen Fluß. Aufgrund der häufig recht großen Gradienten, z.B. wurden am Vormittag des 29.06. ungefähr  $75 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  in der Mischungsschicht und  $110 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  in der Restschicht beobachtet, kann der Fluß betragsmäßig sehr groß werden. Dagegen ist der Ozongradient im unteren Teil der Grenzschicht erheblich kleiner, z.B. am 29.06.  $65 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  in Bodennähe und  $75 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  in der Grenzschicht, so daß der Fluß am Übergang zur Restschicht in der Regel betragsmäßig größer sein sollte als der Fluß in Oberflächennähe. Am Übergang der Restschicht zur freien Troposphäre ist der Ozongradient negativ, da die Ozonkonzentration in der Restschicht hoch und in der freien Troposphäre niedrig ist. Deshalb ist ein positiver Ozonfluß zu erwarten. Da jedoch die Turbulenz gering ist, ist der Betrag des Ozonflusses klein. Damit muß der Ozonfluß in der oberen Hälfte der Restschicht einen Nulldurchgang haben.

Zu einem späteren Zeitpunkt  $t_2$ , wenn die Restschicht komplett mit in die Grenzschicht eingemischt ist, ist die Ozonkonzentration in der Grenzschicht aufgrund der Einmischung und photochemischen Produktion erheblich gestiegen. In der Regel ist sie höher als in der freien Troposphäre, so betrug z.B. am 29.06. die Ozondichte in der Grenzschicht etwa  $90 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  und in der freien Troposphäre  $80 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ . Zu diesem Zeitpunkt wird somit ein positiver Fluß in der Entrainmentzone erwartet. Daraus folgt, daß der Ozonfluß in der Mischungsschicht einen Nulldurchgang haben muß.

Gegen Abend, wenn die Konvektion aufgrund geringerer Sonneneinstrahlung nachläßt, ist zu erwarten, daß die Flüsse gegen Null gehen.

### 7.6.3.2 29.06.1993

Die Ozonflußprofile vom 29.06.93 sind in Abb. 7.39 zusammengefaßt. Ozonflüsse konnten in den Zeiträumen 10:30–13:40 UT und 16:40–17:30 UT bestimmt werden. Die Mittelungszeiten betragen 48–83 min. Um die Messungen untereinander besser vergleichbar zu machen, wurden die Höhen jeweils mit der Grenzschichthöhe  $z_i$  normiert, die aus der Offline-Wellenlänge abgeleitet wurde. Die mit den in-situ-Meßgeräten in Bodennähe gemessenen Ozonflüsse wurden jeweils über den gleichen Zeitraum gemittelt und in der Höhe Null hinzugefügt.

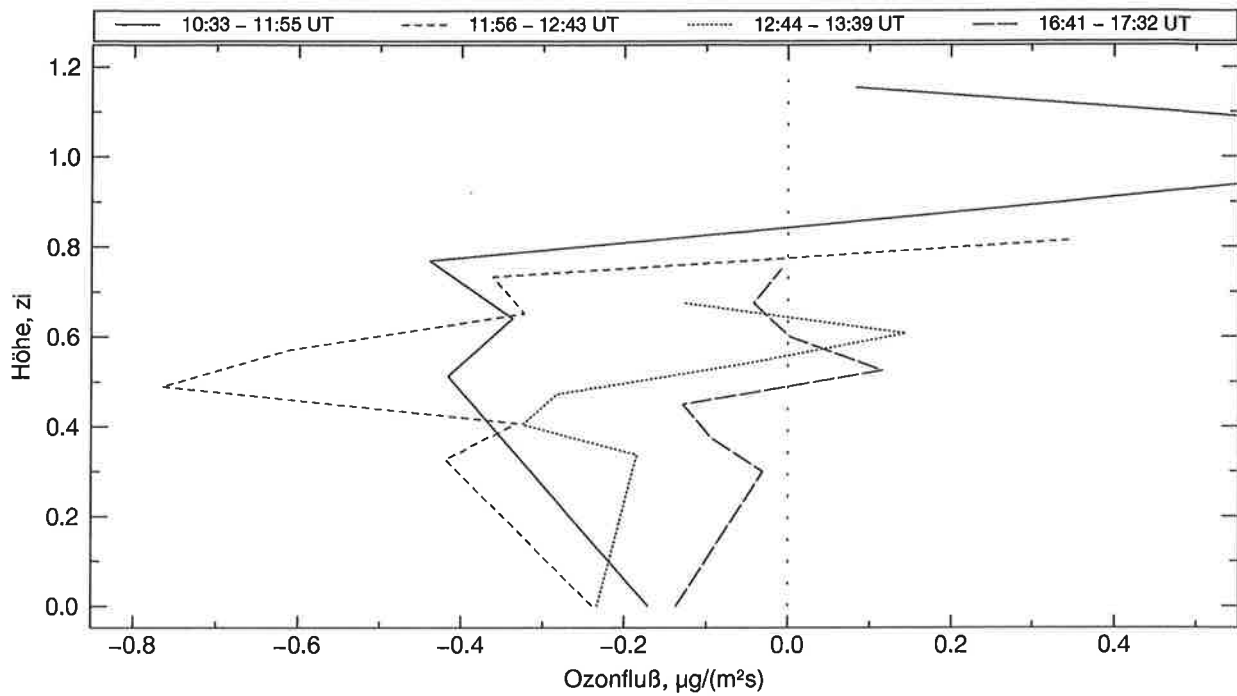


Abbildung 7.39: Ozonflußprofile vom 29.06.93

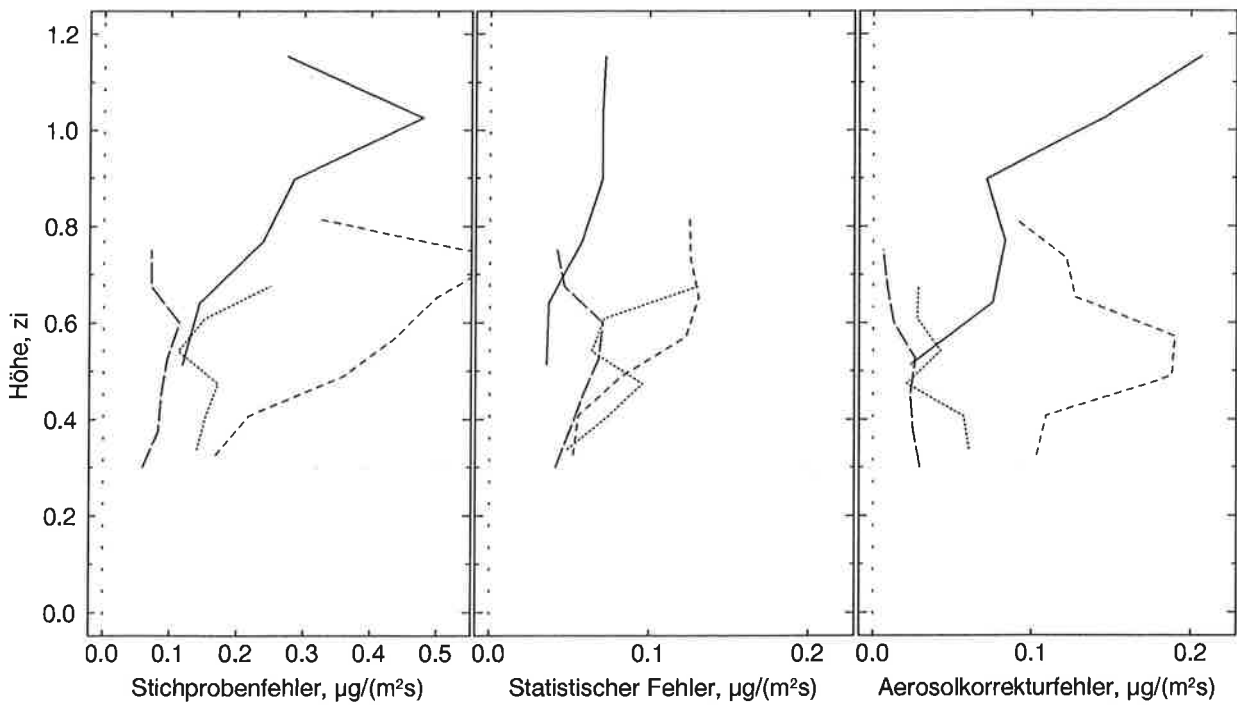


Abbildung 7.40: Fehler der Ozonflüsse vom 29.06.93

Zu erkennen ist, daß die Ozonflüsse zumeist negativ oder nahezu Null und in der gleichen Größenordnung wie die Flüsse in Oberflächennähe sind. Eine Ausnahme hiervon sind die oberen Meßpunkte des ersten und zweiten Flußprofils, die aus der Entrainmentzone stammen und große positive Flüsse aufweisen. Die Problematik der Ozonflußmessung in der Entrainmentzone wird im kommenden Abschnitt gesondert diskutiert. Im folgenden wird deshalb der Bereich oberhalb von  $0.8 z_i$  ausgeklammert.

Der erste Meßabschnitt am 29.06. ist durch kräftige Konvektion bestimmt, da der fühlbare Wärmefluß ( $\overline{w'T'}$ ) in Bodennähe  $103 \text{ W/m}^2$  beträgt. Der Ozonfluß in Bodennähe beträgt  $-0.17 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Die Flüsse in der Mischungsschicht sind ebenfalls negativ und ihre Absolutwerte größer als in Bodennähe. Dieses ist in Übereinstimmung mit dem im vorigen Kapitel vorgestellten Modell, da die ozonreiche Restschicht mit in die Grenzschicht eingemischt wird, resultierend in einer negativen Flußdivergenz.

Im 2. Meßabschnitt (11:56–12:43 UT) herrscht ebenfalls kräftige Konvektion ( $\overline{w'T'}$  =  $119 \text{ W/m}^2$ ). Das Profil ähnelt dem ersten, was dadurch zu erklären ist, daß die Restschicht immer noch zum Teil eingemischt wird. Auch während des 3. Meßabschnittes (12:44–13:39 UT) herrscht kräftige Konvektion ( $\overline{w'T'}$  =  $105 \text{ W/m}^2$ ). Die unteren Meßhöhen bis knapp  $0.5 z_i$  haben ungefähr die gleiche Größe wie der Fluß in Bodennähe mit  $-0.23 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Oberhalb von  $0.5 z_i$  strebt der Ozonfluß gegen Null. Die 4. Messung am 29.06. stammt vom Spätnachmittag (16:41–17:32 UT) mit bereits entsprechend geringerer Konvektion ( $\overline{w'T'}$  =  $30 \text{ W/m}^2$ ). Zu beobachten ist, daß die Ozonflüsse in der Grenzschicht ungefähr Null sind, während noch ein kleiner Ozonfluß in Bodennähe von  $-0.14 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  vorhanden ist.

Die wesentlichen Fehlerquellen der Ozonflüsse, d.h. die Stichproben-, statistischen und Aerosolkorrekturf Fehler sind in Abb. 7.40 dargestellt. Die Fehler der Ozonflüsse in Bodennähe sind nicht eingezeichnet, da sie entweder wesentlich kleiner (Stichproben- und statistischer Fehler) oder nicht vorhanden (Aerosolkorrekturf Fehler) sind. Es ist zu erkennen, daß die Meßgenauigkeit am stärksten durch den Stichprobenfehler eingeschränkt wird. Mit Ausnahme des zweiten Meßintervalls betragen die Stichprobenfehler bis  $0.8 z_i$  bis zu  $0.25 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Hingegen sind die statistischen Fehler bedingt durch das Rauschen der verwendeten Meßinstrumente immer kleiner als  $0.13 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Der Aerosolkorrekturf Fehler beträgt in diesem Höhenbereich maximal  $0.08 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , mit Ausnahme des zweiten Meßintervalls. Für dieses betragen die Stichprobenfehler bis zu  $0.60 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , die statistischen Fehler ebenfalls bis zu  $0.13 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  und die Aerosolkorrekturf Fehler max.  $0.19 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Die Stichprobenfehler sind somit immer ca. 2–3 mal so groß wie die statistischen und Aerosolkorrekturf Fehler.

### 7.6.3.3 Problematik der Eddy-Korrelations-Methode in der Entrainmentzone

Wie aus Abb. 7.39 zu erkennen, weisen die Flußprofile des ersten und zweiten Meßabschnitts große positive Flüsse in der Entrainmentzone auf. Zur Untersuchung dieses Effekts sind in Abb. 7.41 die Kreuzkovarianzfunktionen der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen des ersten Meßabschnitts vom 29.06. in 300 und 600 m Höhe dargestellt. Es ist zu erkennen,

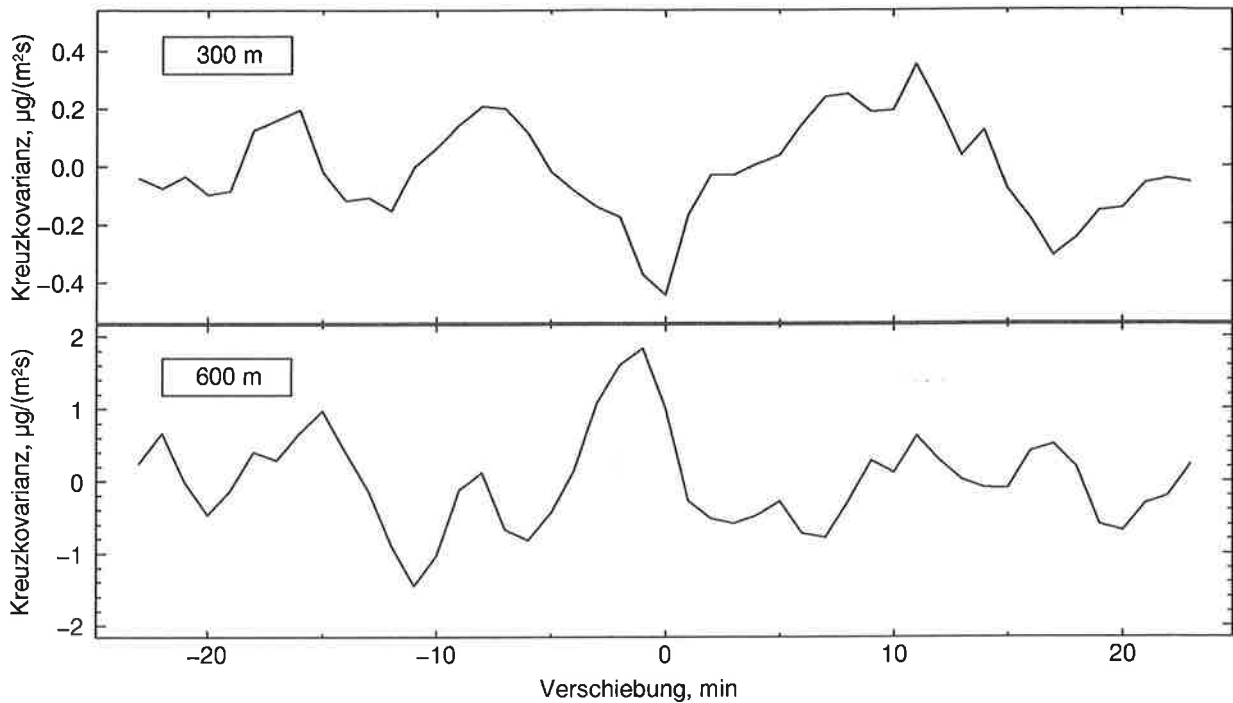


Abbildung 7.41: Kreuzkovarianzfunktion der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen.  
 Tag: 29.06.93, Zeitraum: 10:33–11:55

daß Vertikalwind und Ozondichte in 300 m Höhe in Phase sind, da die Kovarianz ein Minimum besitzt, wenn die beiden Zeitreihen nicht gegeneinander verschoben sind. Ferner ist zu erkennen, daß die Periode ca. 12–17 min beträgt. Völlig anders hingegen sieht die Kreuzkovarianzfunktion in 600 m Höhe aus, was in etwa die Grenzschichthöhe ist. Man erkennt, daß das Extremum verschoben ist und nicht bei Null liegt. Zudem ist die Amplitude ungefähr drei mal so groß und die Periode beträgt lediglich 5–6 min. Der Grund für die großen Amplituden ist, daß sich die instantane Grenzschichthöhe ständig ändert, so daß die Meßhöhe von 600 m zeitweilig in der Mischungsschicht und zeitweilig in der Restschicht liegt. Da die Ozondichtedifferenz beider Schichten ca.  $35 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  beträgt, werden entsprechend große Ozondichtefluktuationen beobachtet, die zu den abgebildeten großen Amplituden führen. Die Ozondichte ist antikorreliert zur momentanen Grenzschichthöhe, da eine niedrige Grenzschichthöhe bedeutet, daß sich in 600 m die Restschicht mit ihrem hohen Ozongehalt befindet. Wenn man sich die Variation der Grenzschichthöhe vereinfacht als eine gleichmäßige Schwingung vorstellt, so ist ersichtlich, daß eine Phasenverschiebung von  $90^\circ$  zwischen den Ozondichtefluktuationen und dem Vertikalwind existiert, da dieser die zeitliche Ableitung der momentanen Grenzschichthöhe ist. Bei einer Periode von 6 min entspricht eine  $90^\circ$ -Phasenverschiebung 1.5 min. Dieses ist im Rahmen der Auflösung in guter Übereinstimmung mit der abgebildeten Kreuzkovarianzfunktion.

In der Entrainmentzone sind also bedingt durch die Variation der instantanen Grenzschichthöhe sehr große Ozondichtefluktuationen zu beobachten, die eine Phasenverschiebung von  $90^\circ$  zum Vertikalwind besitzen. Hierbei handelt es sich um eine Art „Scheintransport“, der dem echten Transport überlagert ist. Der Mittelwert des „Scheintransports“ sollte Null sein, da die Korrelation zweier Größen mit  $90^\circ$ -Phasenverschiebung prinzipiell Null ist. Dieses wäre auch der Fall, wenn über sehr viele Ereignisse dieser Art gemittelt würde. Da die Anzahl der erfaßten Wirbel in einem Meßintervall jedoch recht gering ist, ergibt sich ein sehr großer Stichprobenfehler. Aus diesem Grund sind die in der Entrainmentzone gemessenen Ozonflüsse nicht repräsentativ. Zu betonen ist, daß dieser Effekt nicht durch die Verwendung des DIAL-RASS-Systems verursacht wird, sondern ein allgemeines Problem des Eddy-Korrelations-Verfahrens in der Entrainmentzone darstellt.

Gleichzeitig wird der Aerosolkorrekturfehler aufgrund unbekannter Aerosolparameter in der Entrainmentzone groß, da dort typischerweise große Aerosolgradienten auftreten. Wie jedoch aus Abb. 7.40 ersichtlich, bleibt der Aerosolkorrekturfehler auch in der Entrainmentzone kleiner als  $0.21 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  und ist damit immer noch um einen Faktor 2.3 kleiner als der Stichprobenfehler. Aufgrund der großen Unsicherheiten in der Entrainmentzone werden die Flüsse in diesem Höhenbereich in der folgenden Diskussion außer acht gelassen.

#### 7.6.3.4 30.06.1993

Die am 30.06. gemessenen Ozonflußprofile sind in Abb. 7.42 zusammengefaßt. An diesem Tag konnten sechs einzelne Flußprofile bestimmt werden. Für die ersten zwei Meßintervalle sind wieder positive Flüsse im Bereich der Entrainmentzone zu beobachten. Dieses ist auf die großen Stichprobenfehler zurückzuführen, wie im vorigen Kapitel beschrieben. Während des 1. Meßabschnitts ( $\overline{w'T'} = 127 \text{ W/m}^2$ ) wird wiederum die Restschicht miteingemischt, resultierend in einer negativen Flußdivergenz. Die Flußprofile des 2. (11:34–13:14 UT,  $\overline{w'T'} = 132 \text{ W/m}^2$ ) und 3. Meßabschnitts (13:20–14:32 UT,  $\overline{w'T'} = 112 \text{ W/m}^2$ ) vom Mittag bzw. frühen Nachmittag zeigen einen nahezu höhenkonstanten Verlauf der Ozonflüsse mit etwa  $-0.2 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Die Konvektion am Nachmittag (15:57–17:08 und 17:10–18:15 UT) ist deutlich kleiner mit  $\overline{w'T'} = 52 \text{ W/m}^2$  bzw.  $27 \text{ W/m}^2$ . Die Flußprofile zeigen eine leicht positive Flußdivergenz mit einem Nulldurchgang etwa bei  $0.6 z_i$ . Am Abend in der Zeit von 18:17–19:16 UT ist die Konvektion praktisch völlig zusammengebrochen ( $\overline{w'T'} = 0 \text{ W/m}^2$ ). Die in der Grenzschicht vom DIAL-RASS-System gemessenen Ozonflüsse sind nahezu identisch Null. Nur noch in Bodennähe ist ein negativer Ozonfluß von  $-0.10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  zu beobachten.

Die Fehler der Ozonflüsse vom 30.06. sind in Abb. 7.43 zusammengefaßt. Unter Ausklammerung des Bereiches oberhalb von  $0.8 z_i$ , betragen die Stichprobenfehler bis zu  $0.23 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , die statistischen Fehler bis zu  $0.09 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  und die Aerosolkorrekturfehler bis zu  $0.12 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Die maßgebenden Fehler sind somit wieder die Stichprobenfehler, die ungefähr doppelt so groß wie die statistischen und Aerosolkorrekturfehler sind.

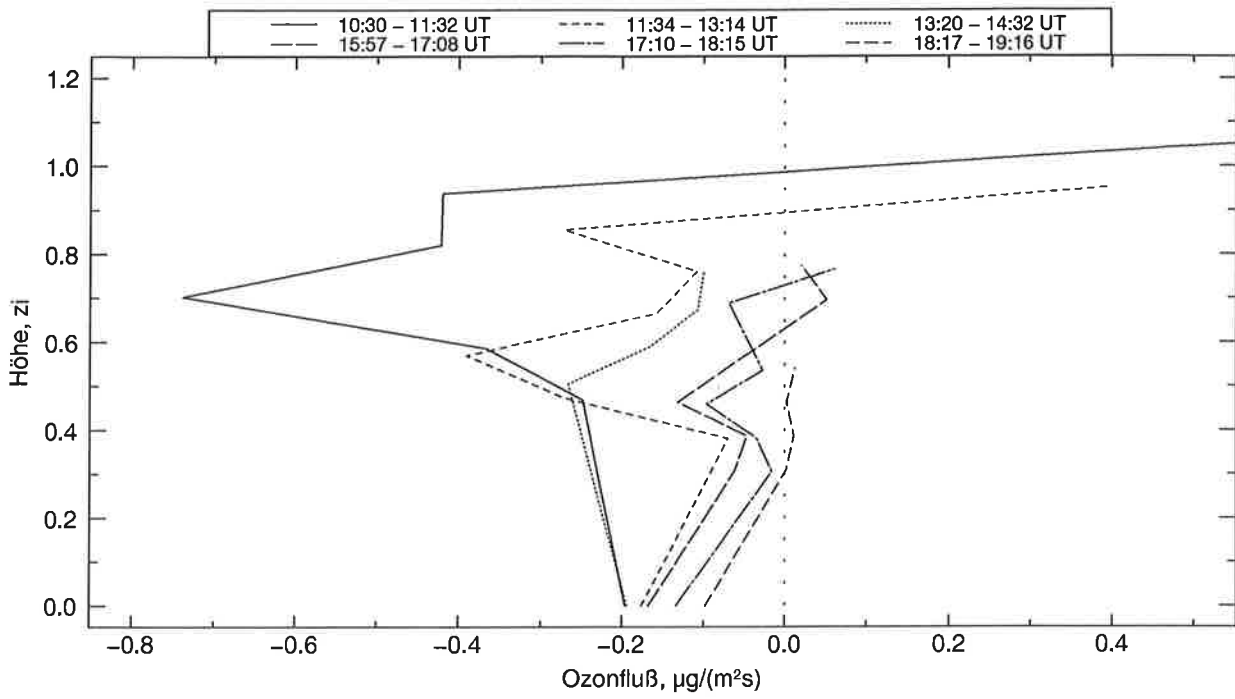


Abbildung 7.42: Ozonflußprofile vom 30.06.93

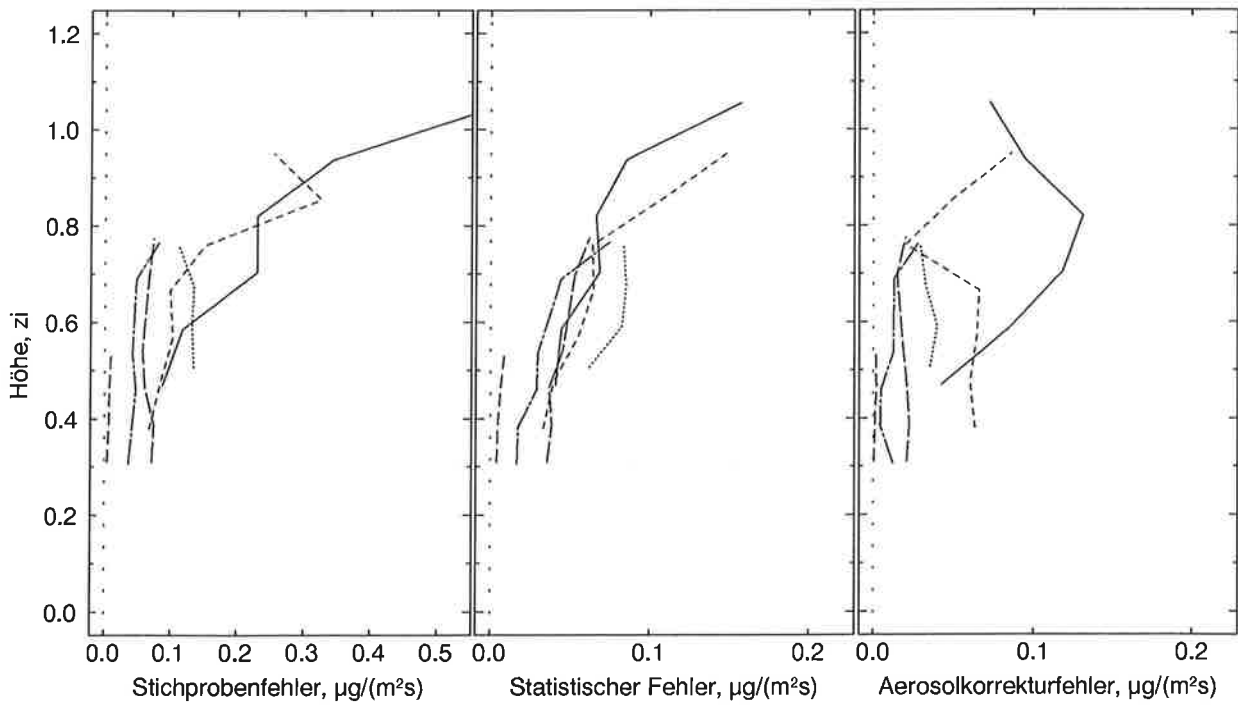


Abbildung 7.43: Fehler der Ozonflüsse vom 30.06.93

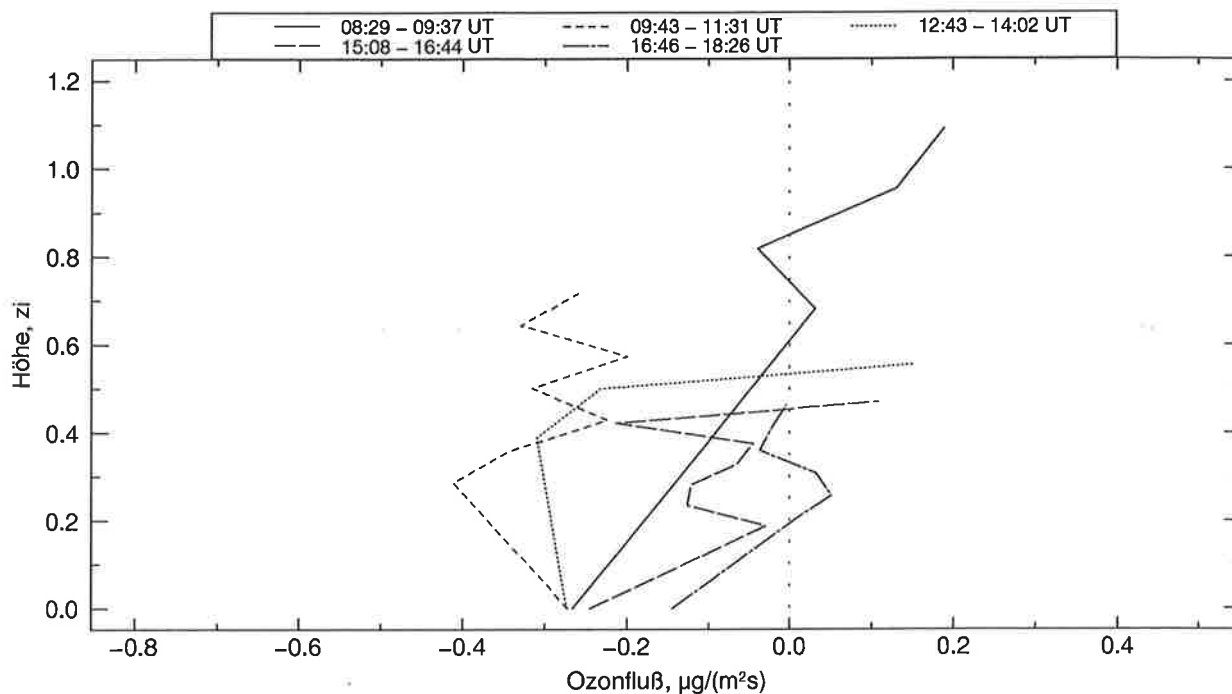


Abbildung 7.44: Ozonflußprofile vom 01.07.93

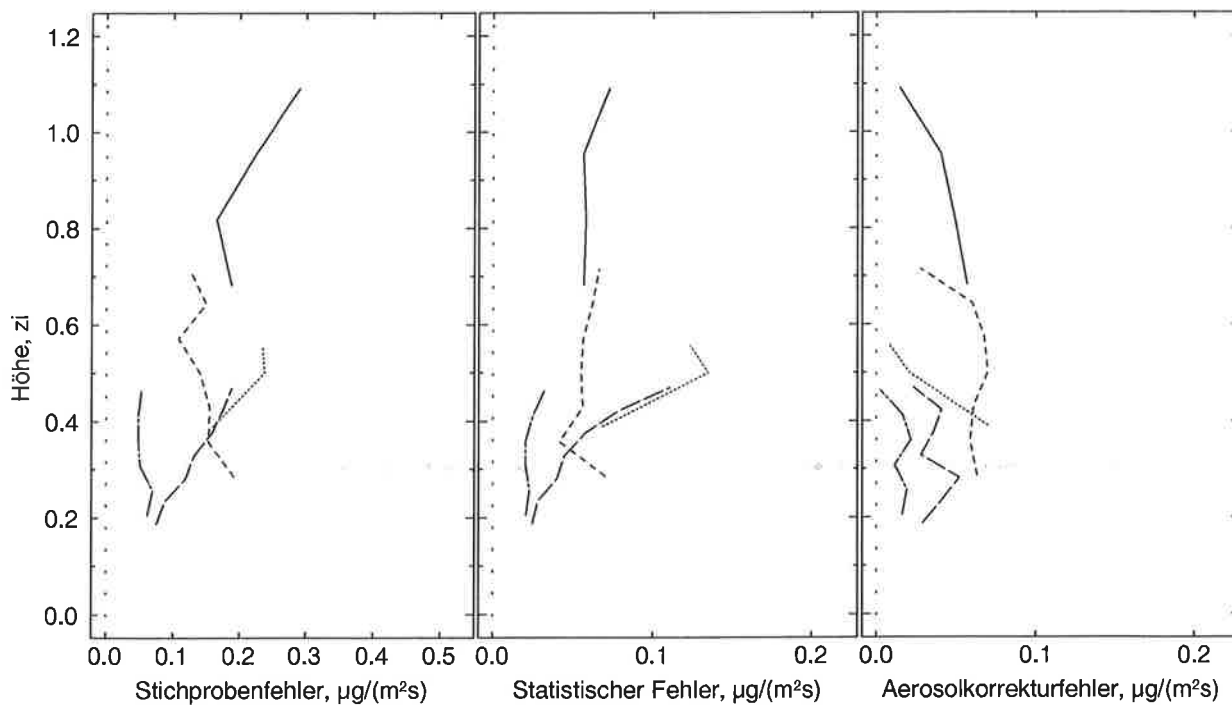


Abbildung 7.45: Fehler der Ozonflüsse vom 01.07.93



### 7.6.3.5 01.07.1993

Die am 01.07. gemessenen Ozonflüsse sind in Abb. 7.44 zusammengefaßt. Das erste Profil vom Morgen (8:29–9:37 UT,  $\overline{w'T'} = 87 \text{ W/m}^2$ ) weist eine positive Flußdivergenz auf mit einem Nulldurchgang etwa in der Mitte der Grenzschicht. Allerdings sind die Ozonflüsse in diesem Meßintervall nicht sehr zuverlässig, da sich die Grenzschichthöhe während der Messung stark änderte (von 400 auf 850 m), so daß sich die unterste Meßhöhe teilweise in der Entrainmentzone befand. Das 2. Meßintervall von 9:43–11:31 UT ( $\overline{w'T'} = 103 \text{ W/m}^2$ ) zeigt einen höhenkonstanten Verlauf von ca.  $-0.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Mittags (12:43–14:02 UT,  $\overline{w'T'} = 104 \text{ W/m}^2$ ) ist im unteren Teil der Grenzschicht wiederum ein ungefähr konstanter Ozonfluß von  $-0.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  zu beobachten und ein Nulldurchgang etwa bei  $0.5 z_i$ . Am Nachmittag (15:08–16:44 UT) ist bei deutlich gemäßigter Konvektion ( $\overline{w'T'} = 48 \text{ W/m}^2$ ) der Ozonfluß in Oberflächennähe mit  $-0.25 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  nur minimal kleiner geworden. Der Ozonfluß in der Grenzschicht hingegen ist kleiner bei etwa  $-0.07 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Abends (16:46–18:26 UT), bei sehr geringer Konvektion ( $\overline{w'T'} = 21 \text{ W/m}^2$ ), ist der Ozonfluß in der Grenzschicht im Rahmen der Fehler identisch Null.

Die Fehler der Ozonflüsse vom 01.07. sind in Abb. 7.45 dargestellt. Es ist zu erkennen, daß auch am 01.07. die Stichprobenfehler deutlich größer als die anderen Fehlerquellen sind. Die Stichprobenfehler betragen bis zu  $0.24 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , während die statistischen Fehler kleiner als  $0.13 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  sind. Die Aerosolkorrekturfelder sind an diesem Tag mit max.  $0.07 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  außerordentlich klein.

### 7.6.3.6 02.07.1993

Die am 02.07. gemessenen Ozonflußprofile sind in Abb. 7.46 zusammengefaßt. Im 1. Zeitraum (6:52–8:15 UT,  $\overline{w'T'} = 82 \text{ W/m}^2$ ) entwickelte sich die Grenzschichthöhe von 280 auf 380 m. Damit lag die unterste DIAL-RASS-Meßhöhe bereits innerhalb der Entrainmentzone. Der Ozonfluß in Oberflächennähe hat für diesen Meßzeitraum mit  $-0.38 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  seinen höchsten Wert, der je an allen vier Tagen beobachtet worden ist. Der Grund dafür könnte erneut das Einmischen der Restschicht in die sich neu entwickelnde Grenzschicht sein, zusammen mit der Tatsache, daß die Grenzschichthöhe noch sehr niedrig ist. Auch an den anderen Tagen wurde eine betragsmäßige Zunahme des Ozonflusses mit abnehmendem Abstand zur Entrainmentzone beobachtet. Während des 2. Meßintervalls von 9:42–11:02 UT ( $\overline{w'T'} = 113 \text{ W/m}^2$ ) hat der Ozonfluß in Oberflächennähe mit  $-0.29 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  wieder abgenommen. Der Fluß in der untersten DIAL-RASS-Meßhöhe beträgt  $-0.20 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Der Nulldurchgang wird wiederum bei etwa  $0.5 z_i$  beobachtet. Darüber schwanken die Flüsse um Null. Die Profile vom 3. (11:06–12:45 UT,  $\overline{w'T'} = 113 \text{ W/m}^2$ ) und 5. Meßintervall (15:14–16:31 UT,  $\overline{w'T'} = 74 \text{ W/m}^2$ ) sind sehr ähnlich und weisen einen nahezu höhenkonstanten Verlauf mit etwa  $-0.25 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  auf. Das 4. Profil vom Nachmittag (13:49–14:53 UT,  $\overline{w'T'} = 92 \text{ W/m}^2$ ) zeigt eine große Variation des Flusses mit der Höhe. Für dieses Meßintervall sind jedoch auch die Stichproben-, statistischen und Aerosolkorrekturfelder größer als in den anderen Meßabschnitten.

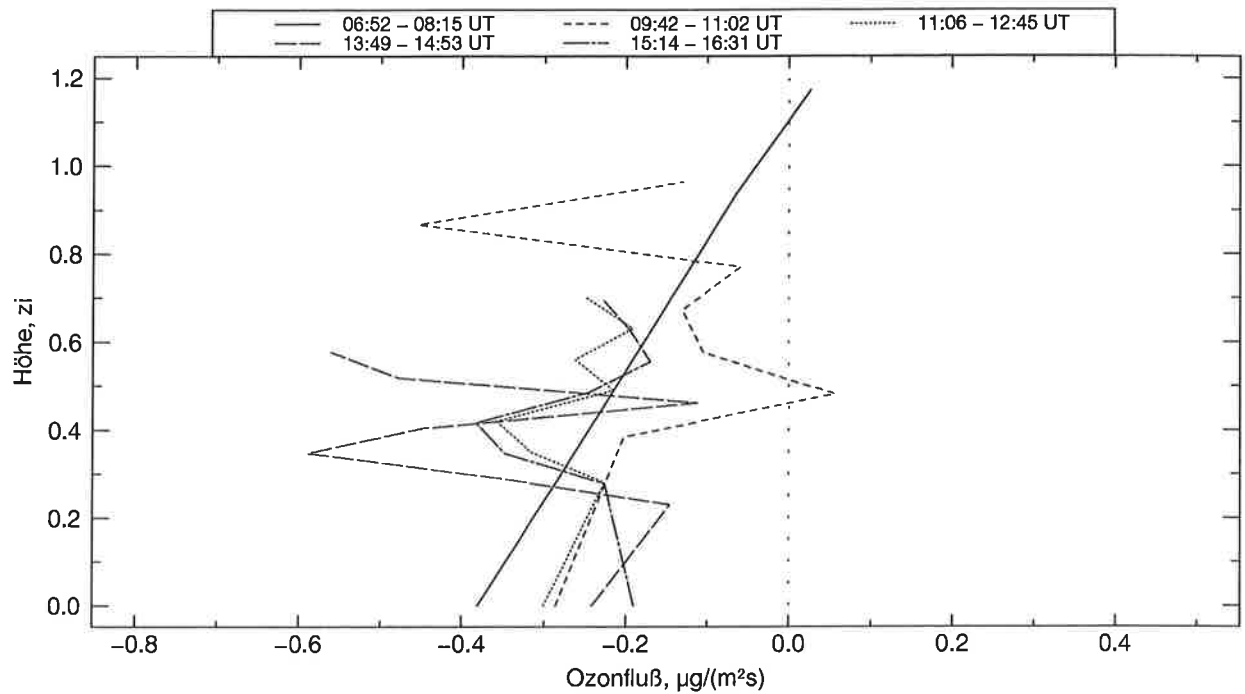


Abbildung 7.46: Ozonflußprofile vom 02.07.93

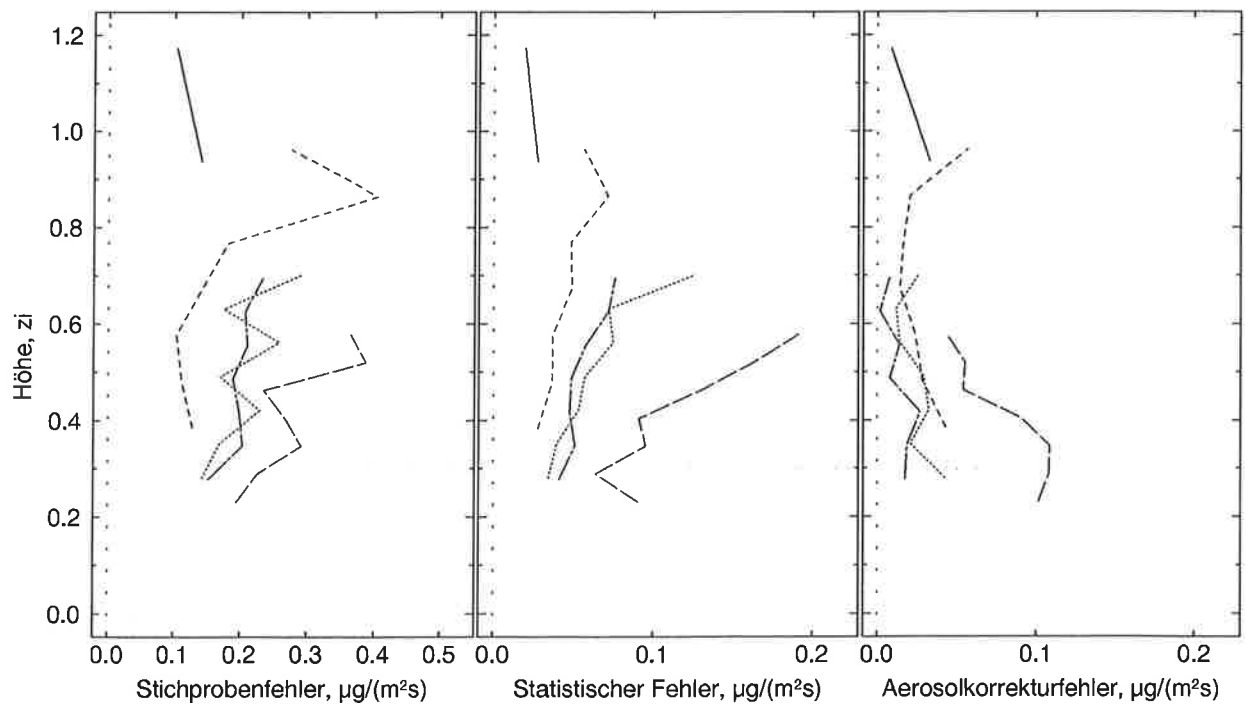


Abbildung 7.47: Fehler der Ozonflüsse vom 02.07.93

Mit Ausnahme des 4. Profils betragen die Stichprobenfehler max.  $0.29 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  (s. Abb. 7.47). Dagegen sind die statistischen und Aerosolkorrekturfelder mit max. 0.13 bzw.  $0.04 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  deutlich kleiner. Für das 4. Flußprofil betragen die Stichprobenfehler max.  $0.39 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ , die statistischen  $0.19 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  und die Aerosolkorrekturfelder  $0.11 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ .

### 7.6.3.7 Zusammenfassung

Die turbulenten Ozonflüsse in Bodennähe waren an allen vier Tagen wie erwartet negativ. Die Ozonflüsse in der untersten DIAL-RASS-Meßhöhe (300 m) waren ebenfalls negativ und in der Regel etwa genauso groß. Dieses bedeutet, daß Ozon in Bodennähe und im unteren Teil der Grenzschicht immer von oben nach unten transportiert wurde. Zu Zeiten starker Konvektion, d.h. vom Vormittag bis zum frühen Nachmittag, wurden typischerweise  $-0.2$  bis  $-0.4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  in Bodennähe und in der untersten Meßhöhe gemessen.

Im oberen Teil der Grenzschicht ist der Ozonfluß abhängig von der Schichtung. Grundsätzlich lassen sich zwei Situationen unterscheiden: Erstens, wenn eine ozonreiche Restschicht vorhanden ist und mit in die Grenzschicht eingemischt wird und zweitens, wenn die Mischungsschicht direkt an die freie Troposphäre angrenzt.

1. Wenn eine Restschicht oberhalb der Grenzschicht vorhanden ist, so sind die Ozonflüsse in der ganzen Grenzschicht negativ und ihr Betrag nimmt mit der Höhe zu. Das Maximum wird ungefähr bei  $0.8 z_i$  beobachtet. Es ergibt sich also erwartungsgemäß eine negative Flußdivergenz bedingt durch das Einmischen der ozonreichen Luft aus der Restschicht. Unmittelbar im Bereich der Entrainmentzone, d.h. oberhalb von  $0.8 z_i$ , sind zuverlässige Messungen des turbulenten Ozonflusses mit der Eddy-Korrelations-Methode nicht möglich, da die Phasenverschiebung zwischen Vertikalwind und Ozondichtefluktuationen zusammen mit den teilweise sehr großen Ozongradienten einen großen „Scheintransport“ verursachen, der das eigentliche Meßsignal überdeckt.
2. Wenn die Mischungsschicht direkt an die freie Troposphäre angrenzt, so ist die Flußdivergenz im untersten Teil der Grenzschicht Null oder leicht positiv. Mit zunehmender Höhe nehmen die Ozonflüsse ab und haben ungefähr in der Mitte der Grenzschicht, d.h. bei  $0.5-0.7 z_i$ , einen Nulldurchgang. Dieses ist plausibel, da die Ozondichte in der freien Troposphäre geringer als in der Grenzschicht ist. Deshalb wirkt das Einmischen von Luft aus der freien Troposphäre gleichsam wie ein Ozonabbau, resultierend in positiven Flüssen in Richtung Senke (freie Troposphäre).

Die gemessenen Ozonflußprofile stimmen somit gut mit dem in Kap. 7.6.3.1 vorgestellten Modell überein.

Gegen Abend mit nachlassender Konvektion nehmen die Ozonflüsse in der Grenzschicht erwartungsgemäß ab und streben gegen Null, d.h. daß in der Mischungsschicht vom Tage kein weiterer Ozontransport stattfindet. Lediglich in Bodennähe werden noch kleine negative Ozonflüsse um  $-0.1 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  beobachtet.

Von anderen Forschungsgruppen (Lenschow et al., 1980, 1981, 1982; Greenhut, 1983; Greenhut et al., 1984, 1995; Godowitch, 1990) wurden ebenfalls negative Ozonflüsse im unteren Teil der Grenzschicht beobachtet. Der Betrag der Flüsse ist jedoch mindestens vom Untergrund abhängig und kann um mehr als eine Größenordnung variieren, z.B. wurden von Greenhut et al. (1984) Ozonflüsse bis zu  $-4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  berichtet, so daß ein genauerer Vergleich der absoluten Zahlenwerte nicht sinnvoll ist. In der Grenzschicht wurden ebenfalls höhenkonstante Ozonflüsse (Lenschow et al., 1981), als auch Flüsse mit positiver Divergenz (Lenschow et al., 1982; Greenhut, 1983; Godowitch, 1990) mit einem Nulldurchgang etwa bei  $0.5 z_i$  beobachtet. Es läßt sich festhalten, daß die hier gezeigten Ergebnisse im Vergleich zu den bislang beobachteten Ozonflüssen plausibel sind.

Wie bereits in Kap. 7.5.4 diskutiert ist die größte Fehlerquelle der Stichprobenfehler. Die Ursache dafür ist, daß die atmosphärischen Wirbel räumlich und zeitlich sehr variabel sind und somit eigentlich sehr lange Mittelungszeiträume notwendig sind, um eine repräsentative Stichprobe zu erhalten. Lenschow und Stankov (1986) geben zur Messung eines skalaren Flusses mit einer Genauigkeit von 10% als notwendige Mittelungslänge 100–10000  $z_i$  an, d.h. für  $z_i = 1$  km müßte räumlich über 100–10000 km gemittelt werden. Übertragen auf eine stationäre Messung bedeutet dieses, daß sehr lange Mittelungszeiträume notwendig sind. Allerdings dürfen die Mittelungszeiträume andererseits auch nicht zu groß werden, da sonst die Atmosphäre nicht mehr als stationär betrachtet werden kann. Dieses gilt allgemein für bodengebundene Meßsysteme und ist kein spezieller Nachteil des vorgestellten Meßsystems. Ein Ausweg, um den Stichprobenfehler zu reduzieren, ist deshalb das Zusammenmitteln von Ozonflüssen, die an verschiedenen Tagen unter ähnlichen meteorologischen Bedingungen gemessen worden sind. Dazu sind allerdings weitere Messungen und Untersuchungen notwendig, um Kriterien für „ähnliche Bedingungen“ zu definieren. Bereits jetzt läßt sich festhalten, daß neben dem fühlbaren Wärmefluß auch die Existenz einer Restschicht berücksichtigt werden muß. Eine Alternative sind Flugzeugmessungen, da die Fluggeschwindigkeit zumeist eine Größenordnung höher als die mittlere horizontale Windgeschwindigkeit ist. Deshalb kann die Mittelungszeit für den gleichen Stichprobenfehler um einen Faktor 10 kleiner sein. Allerdings muß die zeitliche Auflösung der Meßinstrumente ebenfalls um einen Faktor 10 größer sein, was derzeit nur mit in-situ-Instrumenten zu erreichen ist. Diese haben jedoch den prinzipiellen Nachteil, daß nur eine Meßhöhe je Messung erfaßt werden kann. Die Bestimmung von Flußprofilen und -divergenzen ist somit stark eingeschränkt. Ein weiterer entscheidender Nachteil ist, daß mit Flugzeugen keine Routinemessungen möglich sind.

Durch ein Zusammenmitteln mehrerer Messungen würden gleichzeitig die statistischen Fehler reduziert werden, nicht jedoch die systematischen. Der wesentliche systematische Fehler ist der Aerosolkorrekturf Fehler. Da grundsätzlich die Aerosolparameter nicht aus der Messung abzuleiten sind, ist eine Reduktion dieses Fehlers mit dem existierenden System nicht möglich. Dazu ist ein anderes Meßverfahren notwendig, z.B. eine Erweiterung des bestehenden Ozon-DIAL-Systems mit einem dritten elastischen Kanal oder mit Ramankanälen.

### 7.6.4 Abschätzung der Ozonproduktionsraten

Aus den Ozonflußprofilen können die vertikale Flußdivergenz und aus den DIAL-Daten die mittlere zeitliche Änderung der Ozondichte abgeleitet werden. Somit wurden zwei wesentliche Terme des Ozonbudgets direkt gemessen. Gemäß Gl. 7.21 ist die Summe dieser zwei Terme gleich der Differenz aus Ozonproduktionsrate und Advektion. Da keine weiteren Messungen vorliegen, kann der Advektionsterm nicht bestimmt werden. Nur wenn die Advektion klein gegenüber den anderen Budgettermen ist — eine Annahme, die sicher nicht in allen Fällen gerechtfertigt ist —, erhält man eine vernünftige Abschätzung der Ozonproduktionsrate.

Die Bestimmung der Ozonproduktionsrate in Bodennähe ist mit großen Unsicherheiten verbunden, da die niedrigste Meßhöhe des DIAL-RASS-Systems 300 m beträgt und somit die Flußdivergenz erheblich unter- oder überschätzt werden kann. Dieses würde fälschlicherweise als Ozonproduktion oder -abbau interpretiert werden. Hinzu kommt, daß in Bodennähe kleinskalige Advektion auftreten kann, selbst wenn die großräumige Advektion vernachlässigbar ist. Dieses muß zusätzlich bei der Beurteilung der folgenden Ozonproduktionsraten berücksichtigt werden.

Aufgrund der im vorigen Kapitel diskutierten Fehler der Ozonflüsse in der Entrainmentzone, wurden die Flußwerte oberhalb von  $0.8 z_i$  nicht zur Bestimmung der Ozonproduktionsrate verwendet. Vertikale Advektion, die bei der Herleitung von Gl. 7.12 vernachlässigt worden ist, könnte höchstens in der Entrainmentzone bedeutsam werden, da nur dort hinreichend große Ozongradienten auftreten. Da dieser Bereich nicht berücksichtigt wird, ist die Vernachlässigung der vertikalen Advektion gerechtfertigt.

#### 7.6.4.1 29.06.1993

Frontdurchgänge wurden am 29.06. nicht beobachtet. Der Wind war den ganzen Tag über schwach und kam aus nordwestlicher Richtung. Da weder größere Städte noch Industrieanlagen in dieser Richtung liegen, die starke Quellen von Vorläufergasen darstellen könnten, ist anzunehmen, daß die großräumige horizontale Advektion klein war.

In Abb. 7.48 ist die zeitliche Änderung der Ozondichte ( $\partial \bar{\rho}_{O_3} / \partial t$ ), die Flußdivergenz und die Summe der beiden Terme jeweils als Funktion der mit der Grenzschichthöhe  $z_i$  normierten Höhe dargestellt.

Es ist zu erkennen, daß die Ozonproduktionsrate in der Grenzschicht im Rahmen der Fehler höhenkonstant ist, wenn der Wert in Bodennähe aufgrund der großen Fehlermöglichkeiten ausgeklammert wird. Ferner nimmt die Produktionsrate im Laufe des Tages ab.

Das 1. Profil vom späten Vormittag zeigt eine nahezu höhenkonstante Produktionsrate von etwa  $12 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ , die hauptsächlich von der zeitlichen Änderung der Ozondichte bestimmt ist. Das 2. Profil zeigt eine im Rahmen der Fehler höhenkonstante Produktionsrate von etwa  $5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  mit einem kleinen Maximum bei  $0.6 z_i$ . Das 3. Profil vom frühen Nachmittag zeigt Produktionsraten in der unteren Hälfte der Grenzschicht um Null mit einem Maximum in der Mitte der Grenzschicht von  $6 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ . Dieses ist auf die Flußdivergenz zurückzuführen,

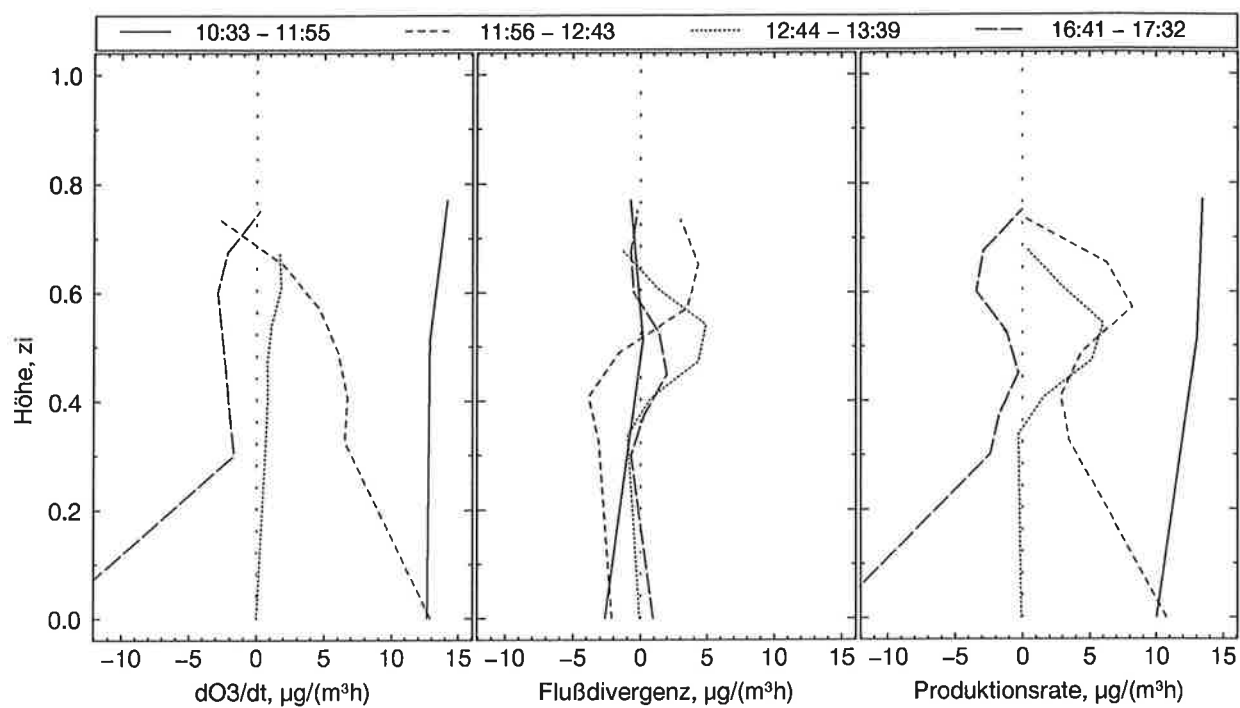


Abbildung 7.48: Ozoneproduktionsraten vom 29.06.93

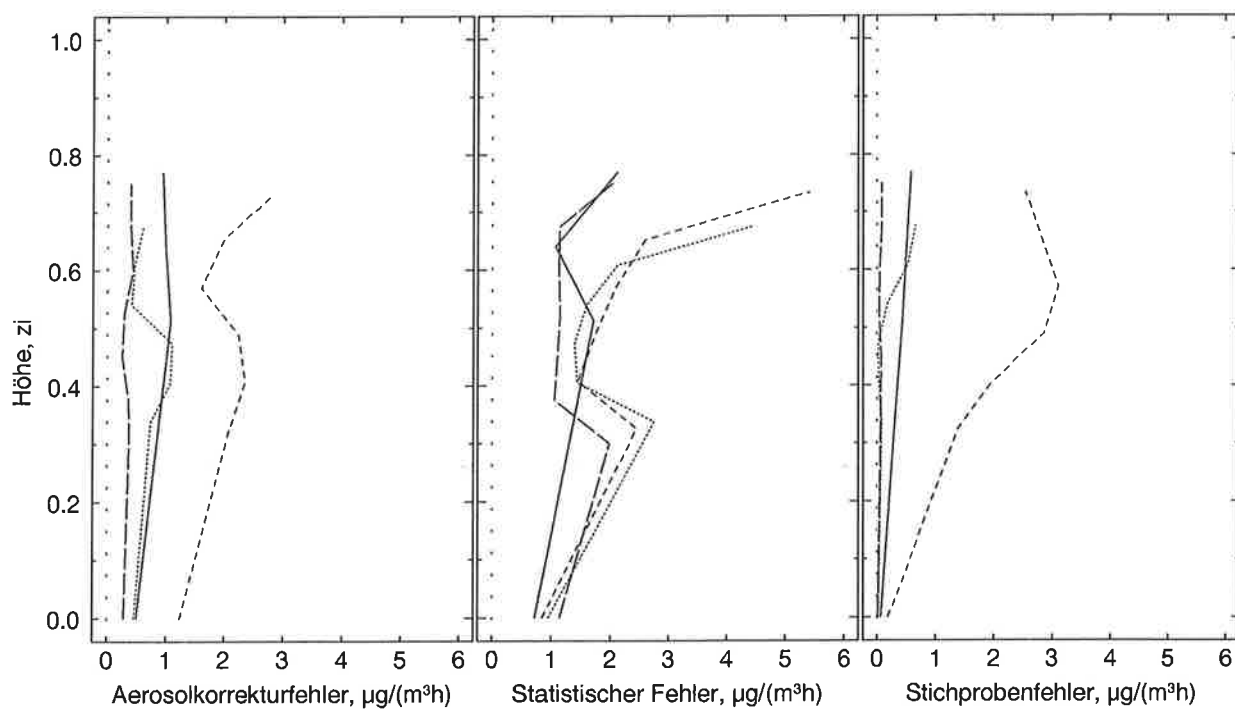


Abbildung 7.49: Fehler der Ozoneproduktionsraten vom 29.06.93

die dort ein Maximum besitzt, während die zeitliche Änderung der Ozondichte in allen Höhen nahezu Null ist. Das 4. Profil gemessen am Spätnachmittag weist eine leicht negative Ozonproduktionsrate auf, die wiederum höhenkonstant ist. Die sehr große Ozonabbaurate in Bodennähe ist aufgrund der geschilderten Fehlerquellen nicht realistisch.

Die Aerosolkorrektur-, statistischen und Stichprobenfehler der Ozonproduktionsraten sind in Abb. 7.49 abgebildet. Der größte Fehlerterm ist der statistische Fehler, der bis zu  $5.5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  beträgt. Die Aerosolkorrekturfehler und Stichprobenfehler sind kleiner als  $1 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ , mit Ausnahme des 2. Meßintervalls, wo sie bis zu  $3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  betragen.

#### 7.6.4.2 30.06.1993

Auch am 30.06. ist anzunehmen, daß die Advektion klein war, da der Wind aus nordwestlicher bis nordöstlicher Richtung kam, wo sich keine größeren Industrieanlagen befinden. Ein ganz kleiner Frontdurchgang wurde etwa gegen 14 UT beobachtet.

Die Ozonproduktionsraten sind in Abb. 7.50 zusammengefaßt. Auch am 30.06. sind die Produktionsraten im Rahmen der Fehler oberhalb von  $0.2 z_i$  konstant mit der Höhe. Die Produktionsrate nimmt im Laufe des Vormittags zu und erreicht ihr Maximum von etwa  $8 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  am frühen Nachmittag (13:20–14:32 UT). Danach nimmt sie wieder ab und beträgt am Abend ungefähr Null.

Die Fehler der Ozonproduktionsrate sind in Abb. 7.51 dargestellt. Die größte Fehlerquelle ist wiederum der statistische Fehler mit max.  $3.5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ . Der Aerosolkorrekturfehler beträgt bis zu  $1.7 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  und der Stichprobenfehler ist kleiner als  $0.6 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ .

#### 7.6.4.3 01.07.1993

Anhand der Messungen in Bodennähe konnten Frontdurchgänge um 5:30 UT und 18:00 UT beobachtet werden, die ebenfalls mit einer Advektion von Ozon verbunden waren. Da die Flußmessungen tagsüber zwischen den Frontdurchgängen stattgefunden haben, sind sie davon unbeeinflusst. Der Wind kam tagsüber aus südlichen Richtungen. Da sich Hamburg als großes Industriezentrum in südöstlicher und Itzehoe in südlicher Richtung befinden, ist eine Advektion von Ozon oder Vorläufergasen nicht auszuschließen.

Am 01.07. wurde die maximale Produktionsrate wiederum am frühen Nachmittag (12:43–14:02 UT) mit ca.  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  beobachtet (s. Abb. 7.52). Ansonsten ähneln die Produktionsraten denjenigen vom 30.06. mit einer Abnahme der Intensität im Laufe des Tages, mit Ausnahme der ersten Messung vom Morgen (8:29–9:37 UT). Diese zeigt eine Produktionsrate von  $-5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  bei  $0.7 z_i$ , bedingt durch die zeitliche Änderung der Ozondichte. Wie beschrieben, befand sich diese Meßhöhe teilweise in der Entrainmentzone. Deshalb ist die Bestimmung der Flußdivergenz in diesem Fall mit sehr großen Unsicherheiten verbunden.

Die Fehler der Ozonproduktionsrate vom 01.07. sind in Abb. 7.53 dargestellt. Der größte Fehler ist der statistische Fehler mit max.  $5.4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ . Die Aerosolkorrekturfehler sind kleiner als  $1 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  und die Stichprobenfehler mit max.  $0.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  praktisch vernachlässigbar.

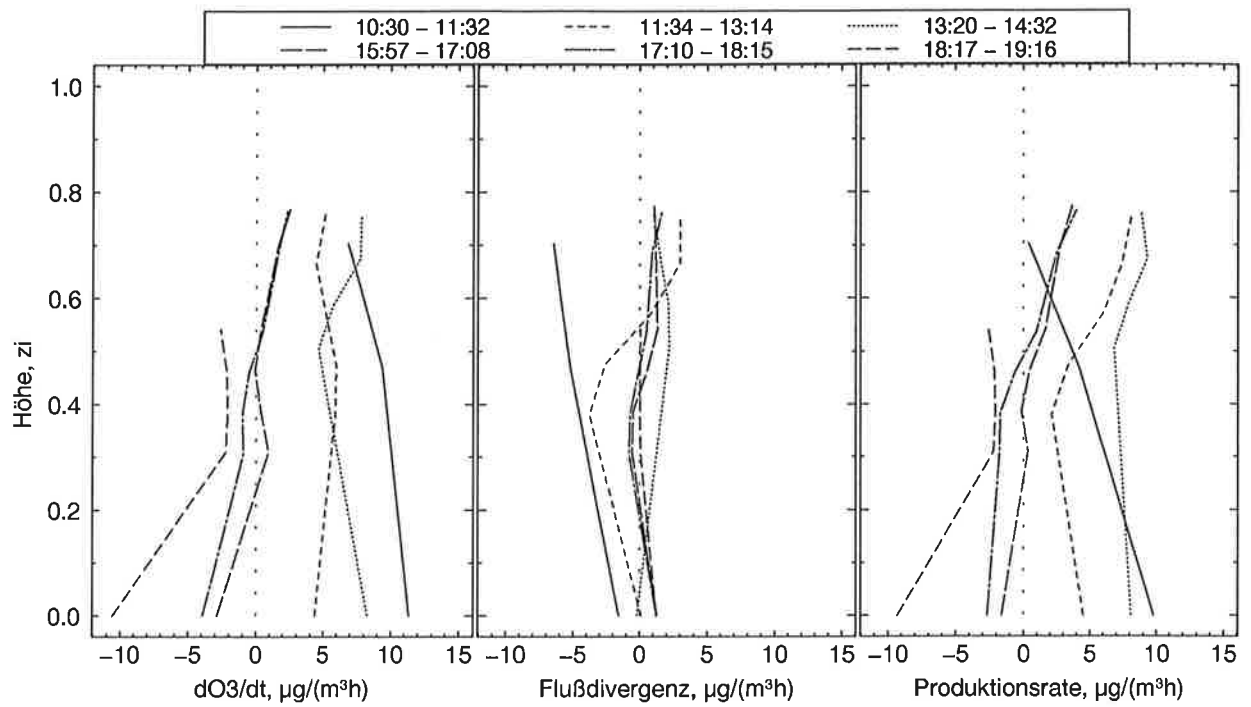


Abbildung 7.50: Ozonproduktionsraten vom 30.06.93

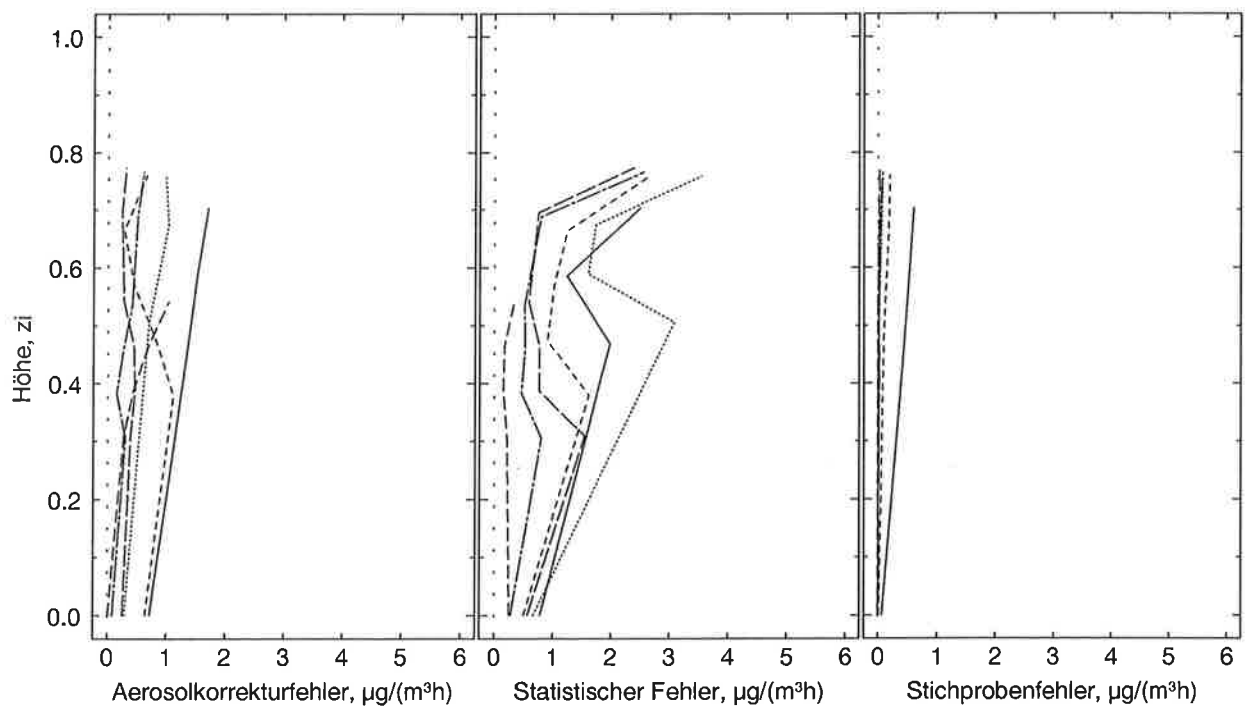


Abbildung 7.51: Fehler der Ozonproduktionsraten vom 30.06.93



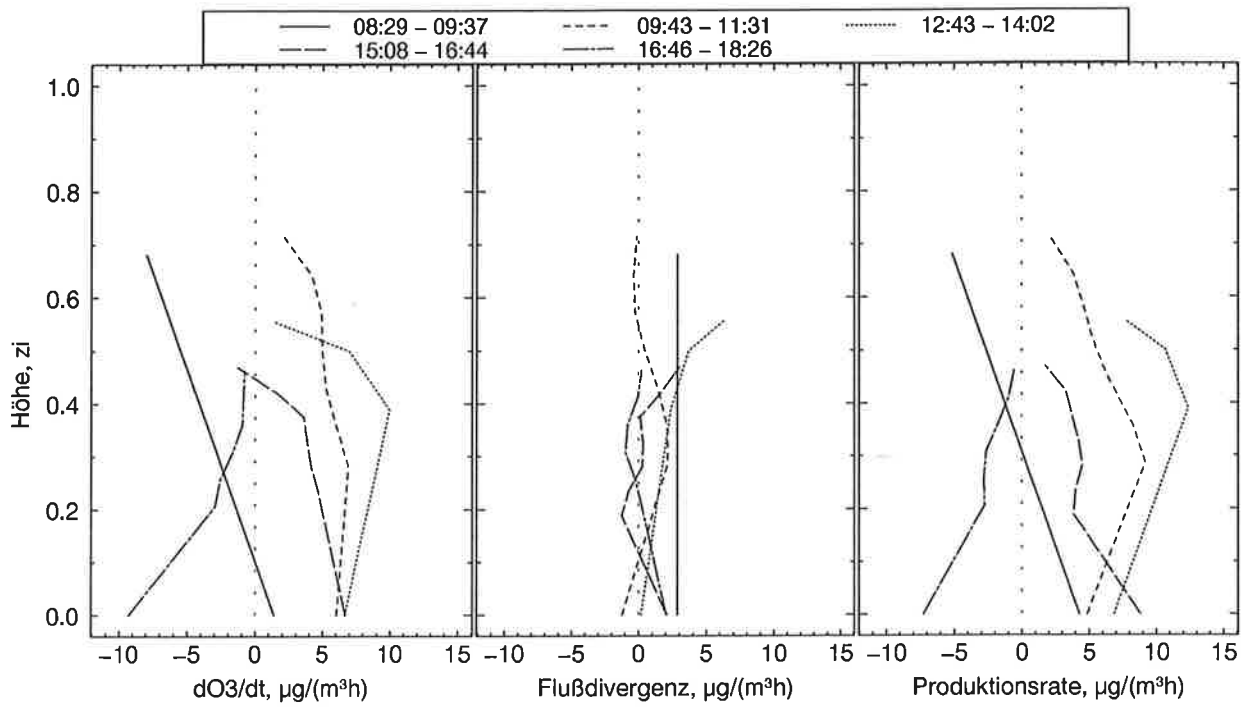


Abbildung 7.52: Ozonproduktionsraten vom 01.07.93

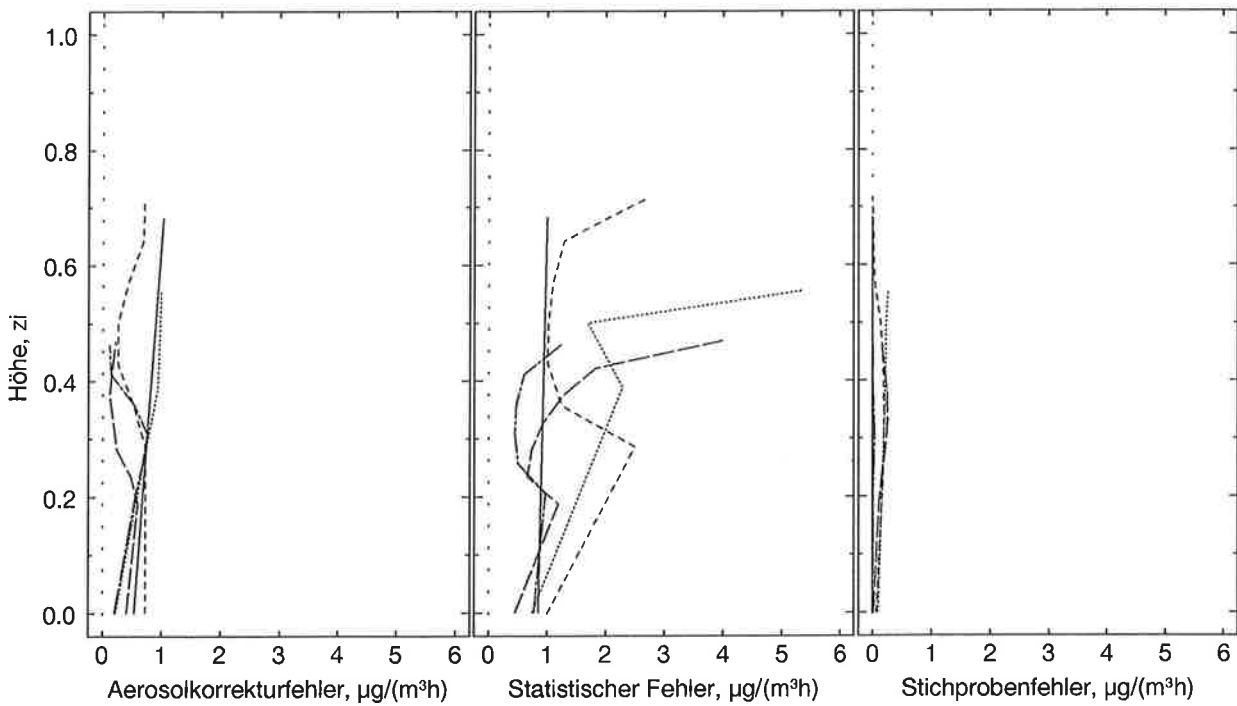


Abbildung 7.53: Fehler der Ozonproduktionsraten vom 01.07.93

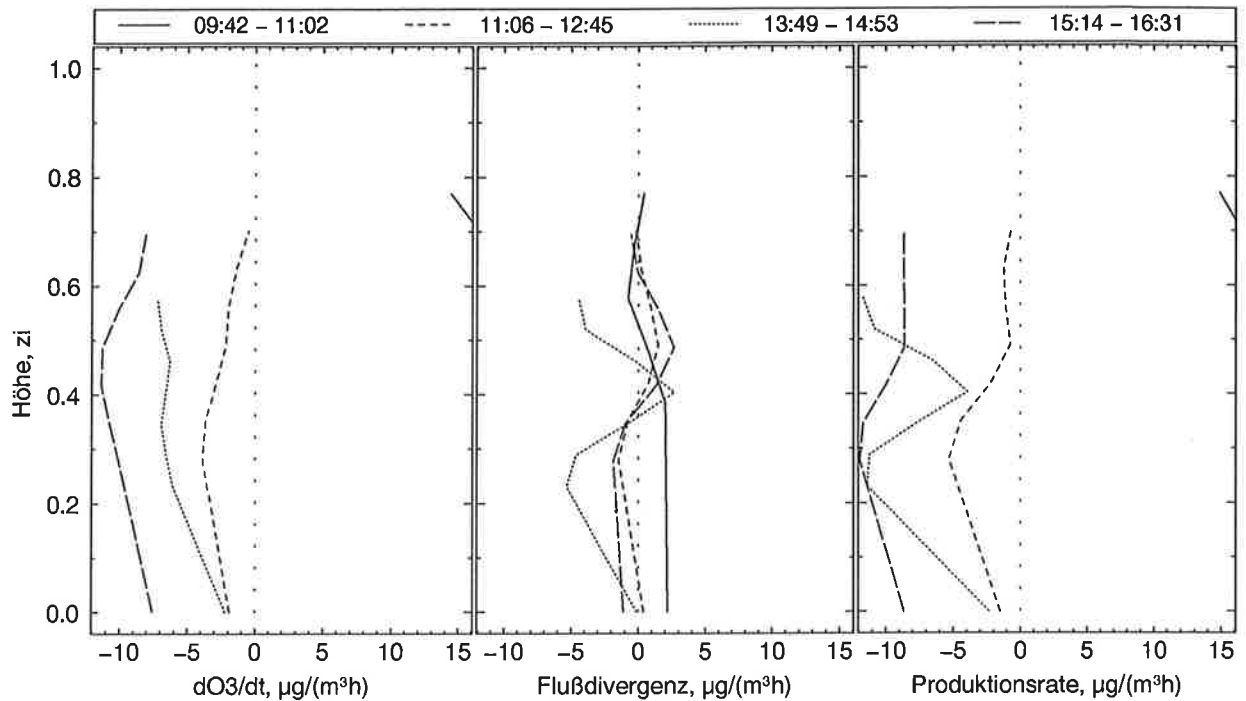


Abbildung 7.54: Ozonproduktionsraten vom 02.07.93

#### 7.6.4.4 02.07.1993

Wie bereits geschildert, ist der 02.07. durch Advektion geprägt. Dieses schlägt sich auch sehr deutlich in den Budgettermen nieder (s. Abb. 7.54). Die Flußdivergenz ist klein und beträgt max.  $+3/-5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ . Die zeitliche Änderung der Ozondichte hingegen ist zum Teil extrem groß (max.:  $+22/-11 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$ ), so daß sich entsprechend große Produktionsraten ergeben. Eine Analyse dieser Produktionsrate ist nicht sinnvoll, da sie nicht von der Advektion getrennt werden können. Auf eine Darstellung der Fehlerterme wurde verzichtet.

#### 7.6.4.5 Zusammenfassung

Im Rahmen der Meßgenauigkeit wurden höhenkonstante Ozonproduktionsraten beobachtet, wobei die Werte in Bodennähe aufgrund großer Unsicherheiten ausgenommen werden müssen. Höhenkonstante Produktionsraten sind plausibel, da die Vorläufergase aufgrund der guten Durchmischung gleichmäßig in der ganzen Grenzschicht verteilt und die Sonneneinstrahlung nahezu höhenunabhängig sein sollten. Maximale Produktionsraten wurden mittags oder am frühen Nachmittag mit etwa  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  beobachtet. Lenschow et al. (1981) haben eine Produktionsrate von  $8.6 \pm 0.9 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  am Vormittag im unteren Teil der Grenzschicht gemessen. Greenhut et al. (1995) berichten von einer Ozonproduktionsrate zwischen 1 und  $13 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  in der Mitte der Grenzschicht am frühen Nachmittag über der Schweiz. Dieses zeigt, daß die vorgestellten Produktionsraten in der gleichen Größenordnung liegen. Ein genauerer Vergleich der Zahlenwerte mit den Ergebnissen anderer Forschungsgruppen ist jedoch wie schon bei den Flüssen nicht sinnvoll, da die Ozonproduktionsrate entscheidend von den Konzentrationen der Vorläufergase, der Untergrundbeschaffenheit und der Einstrahlung bestimmt wird. Erwartungsgemäß gingen die Ozonproduktionsraten abends mit nachlassender Einstrahlung und Konvektion gegen Null. Bedingt durch die Fehler und den möglichen Einfluß von Advektionseffekten, ist eine detaillierte Analyse der vertikalen Verteilung der Produktionsraten nicht möglich. Dennoch zeigen diese Ergebnisse das Potential des vorgestellten Verfahrens für höhen- und zeitaufgelöste Messungen der Ozonbudgetterme in der Grenzschicht.

# Kapitel 8

## Zusammenfassung

### 8.1 Das Ozon-DIAL-System

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Ozon-DIAL-System aufgebaut und bereits für routinemäßige Messungen in der unteren Troposphäre eingesetzt. Ein DIAL-System bietet als aktives Fernmeßinstrument den Vorteil, daß es keinen störenden Einfluß des Gerätes auf die zu messende Größe gibt, und es als bodengebundenes System für Langzeitmessungen und -studien geeignet ist. Ferner kann die Ozondichte mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung gleichzeitig über einen großen Höhenbereich erfaßt werden.

Das Ozon-DIAL-System basiert auf einem Krypton-Fluorid-Excimerlaser mit einer Emission bei 248 nm. Die für DIAL-Messungen notwendigen Wellenlängen werden durch stimulierte Ramanstreuung in Deuterium (268/292 nm) oder Wasserstoff (277/313 nm) erzeugt. Die von Luftmolekülen und Aerosolen zurückgestreuten Laserpulse können wahlweise mit zwei Teleskopen empfangen werden. Bedingt durch die unterschiedliche Empfangsgeometrie der Teleskope in Kombination mit dem begrenzten Dynamikbereich der Datenerfassung, wird der nutzbare Höhenbereich eingeschränkt. Die gewählte Anordnung ließ Ozonmessungen nur zwischen 300 und 750 m bzw. 900 und 2100 m zu. Die Original DIAL-Meßdaten müssen zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses für die Ozondichtebestimmung räumlich und zeitlich gemittelt werden. Bei einer typischen Höhenauflösung von 75 m und einer zeitlichen Mittelung über eine Minute ergibt sich ein statistischer Fehler zwischen 0.5 und  $4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  je nach Höhenbereich.

Eine ausführliche Fehleranalyse der Ozondichtemessung mit DIAL wurde durchgeführt. Es konnte gezeigt werden, daß die Genauigkeit der Ozondichtemessung im wesentlichen durch die Datenerfassung und die Aerosolkorrektur eingeschränkt wird. Im Rahmen der Fehlergrenzen wurde bei Vergleichsmessungen sehr gute Übereinstimmung zu konventionellen in-situ-Instrumenten festgestellt. Die durchschnittliche Abweichung der Ozondichten bei einer Horizontalmessung des DIAL-Systems im Vergleich zu einem UV-Photometer betrug lediglich  $2.3 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ . Auch bei Vertikalmessungen wurden ähnlich gute Übereinstimmungen beobachtet. Bei einem Vergleich mit einer von einem Fesselballon getragenen ECC-Sonde betrug die Differenz zwischen DIAL-System und Sonde im Mittel  $3.5 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$  (Grabbe et al., 1995).

## 8.2 Ozonflußmessungen

Aufgrund seiner hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung ist das Ozon-DIAL-System auch zur Untersuchung von Transportvorgängen geeignet. Den Schwerpunkt dieser Arbeit bilden Ozonflußmessungen in der konvektiven planetarischen Grenzschicht. Dazu wurde das Ozon-DIAL- mit einem Radar-RASS-Fernmeßsystem kombiniert, das den dreidimensionalen Windvektor mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung mißt. Somit kann mit der Kombination von DIAL und Radar-RASS Ozondichte und Vertikalwind im gleichen Meßvolumen mit hoher Auflösung und damit der turbulente Ozonfluß nach der Eddy-Korrelations-Methode in verschiedenen Höhen bestimmt werden. Dieses Ozonflußprofil wurde durch eine Ozonflußmessung in Bodennähe mittels eines schnellen Ozon- und Windsensors ergänzt. Da somit gleichzeitig die lokale zeitliche Änderung der Ozondichte und die Flußdivergenz in der Grenzschicht gemessen wurden, konnte die Ozonproduktionsrate berechnet werden, sofern die horizontale Advektion vernachlässigt werden darf.

Die zeitliche und räumliche Auflösung des kombinierten DIAL-RASS-Systems ist von der Auflösung des DIAL-Systems bestimmt und beträgt 75 m und 60 s. Damit können nur relativ große Wirbel aufgelöst werden. Jedoch wird die auflösbare Größe der Wirbel auch durch den geometrischen Aufbau eingeschränkt. Bedingt durch die unterschiedlichen Rückstreuolumina des DIAL-Systems und Radar-RASS können Strukturen mit Zeitskalen unter 60 s prinzipiell nicht korrekt erfaßt werden. Insofern passen die Systemauflösung und der geometrische Aufbau gut zusammen.

Eine zentrale Frage bei der Flußbestimmung nach der Eddy-Korrelations-Methode ist, ob mit der räumlichen und zeitlichen Auflösung die wesentlichen Flußbeiträge erfaßt werden. Da die Varianzspektren von Vertikalwind und Ozondichte bei hohen Frequenzen einen für den Inertialbereich typischen  $f^{-\frac{5}{3}}$ -Abfall zeigen, sollten die von dem System nicht mehr aufgelösten Wirbel im Inertialbereich liegen. Da der Beitrag zum turbulenten Fluß durch Wirbel aus dem Inertialbereich zu kleineren Wirbeln hin sehr schnell abnimmt, dürften die wesentlichen Beiträge zum Ozonfluß erfaßt werden. Allerdings ist ein Einsatz des Systems nur in einer gut durchmischten, konvektiven Grenzschicht sinnvoll, wo die maßgeblichen räumlichen und zeitlichen Skalen größer sind als die Auflösung des kombinierten Meßsystems.

Die Ozonflußmessungen wurden an vier aufeinanderfolgenden Tagen während einer Schönwetterperiode im Sommer 1993 durchgeführt. An jedem Meßtag wurden durchschnittlich fünf ein- bis zweistündige Messungen durchgeführt. Die gemessenen Ozonflußprofile erstrecken sich über den ganzen Tag und erfassen Zeiträume mit unterschiedlich starker Konvektion. Dieses zeigt, daß ein Routinebetrieb des kombinierten DIAL-RASS-Systems möglich ist.

Zu Zeiten starker Konvektion, d.h. vom späten Vormittag bis zum frühen Nachmittag, sind die turbulenten Ozonflüsse im untersten Teil der Grenzschicht negativ und mit typischerweise  $-0.2$  bis  $-0.4 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  zum Boden gerichtet. In der Mischungsschicht sind grundsätzlich zwei Situationen zu unterscheiden: zum einen, ob eine ozonreiche Restschicht vorhanden ist

und in die Grenzschicht eingemischt wird, und zum anderen, ob die Mischungsschicht direkt an die freie Troposphäre angrenzt. Im ersten Fall nimmt der Betrag des Ozonflusses mit der Höhe zu und erreicht ein Maximum etwa bei  $0.8 z_i$ . Im zweiten Fall nimmt der Betrag mit der Höhe ab und hat ungefähr in der Mitte der Grenzschicht, d.h. typischerweise bei  $0.5-0.7 z_i$ , einen Nulldurchgang. Oberhalb von  $0.8 z_i$ , d.h. im Bereich der Entrainmentzone, sind zuverlässige Messungen des turbulenten Ozonflusses mit der Eddy-Korrelations-Methode nicht möglich, da eine Phasenverschiebung zwischen Vertikalwind und Ozondichte zusammen mit den großen Ozongradienten einen großen „Scheintransport“ verursachen, der das eigentliche Meßsignal überdeckt.

Tagsüber wird demnach im unteren Teil der Grenzschicht im Mittel Ozon durch Turbulenz nach unten transportiert. Der Transport schrumpft im Laufe des Nachmittags bei nachlassender Konvektion und erreicht abends Null. Lediglich in Bodennähe werden noch kleine negative Ozonflüsse um  $-0.10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$  beobachtet.

Die für den turbulenten Ozonfluß signifikanten Wirbel in der Grenzschicht besitzen eine große räumliche Ausdehnung und sind zudem räumlich und zeitlich stark variabel. Deshalb kann auch durch eine mehrstündige Meßreihe nur eine vergleichsweise kleine Anzahl dieser Wirbel erfaßt werden. Daraus resultieren bei einer Meßdauer von ein bis zwei Stunden große Stichprobenfehler von ca.  $0.25 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Dieses ist kein spezielles Problem des DIAL-RASS-Systems, sondern trifft auf alle bodengebundenen Fernmeßsysteme zu. Die statistischen Fehler, die durch das Rauschen der verwendeten Systeme entstehen, betragen dagegen nur etwa  $0.13 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ . Hinzu kommt noch ein systematischer Fehler durch die notwendige Aerosolkorrektur der Ozondaten. Dieser Fehler ist in der Grenzschicht nur in Ausnahmefällen größer als  $0.10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^2\text{s}}$ .

Zusätzlich wurde aus den Ozonflußprofilen die vertikale Flußdivergenz und aus den DIAL-Messungen die mittlere zeitliche Änderung der Ozondichte hergeleitet. Somit wurden zwei wesentliche Terme des Ozonbudgets direkt gemessen. Eine Trennung von Ozonproduktionsrate und -advektion ist jedoch nicht möglich, da die Advektion nicht gemessen wurde. Allerdings waren die meteorologischen Bedingungen zumindest an den ersten drei Tagen derart, daß die Advektion als klein angenommen werden kann.

Im Rahmen der Meßfehler war die Summe aus zeitlicher Änderung der Ozondichte und vertikaler Flußdivergenz an den ersten drei Tagen in der Grenzschicht konstant mit der Höhe, wobei der Wert in Bodennähe aufgrund großer Unsicherheiten ausgenommen werden muß. Höhenkonstante Produktionsraten sind plausibel, da die Vorläufergase aufgrund der guten Durchmischung gleichmäßig in der ganzen Grenzschicht verteilt und die Sonneneinstrahlung nahezu höhenunabhängig sein sollte. Das Maximum der Ozonproduktionsrate wurde erwartungsgemäß gegen Mittag mit ca.  $10 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3\text{h}}$  erreicht. Im Laufe des Tages nahm die Produktionsrate ab und strebte abends gegen Null. Der 4. Tag war stark durch advective Prozesse beeinflusst. Dieses zeigte sich an sehr großen zeitlichen Änderungen der Ozondichte, währenddessen die Flußdivergenzen klein blieben.

### 8.3 Ausblick

Zukünftige Verbesserungen des Ozon-DIAL-Systems sollten auf eine Vergrößerung des Entfernungsbereichs und Reduzierung der systematischen Fehler abzielen. Die bisherige Einschränkung des nutzbaren Entfernungsbereichs kann durch einen erhöhten Dynamikbereich der Datenerfassung erweitert werden. Auch der gleichzeitige Einsatz zweier Teleskope hilft einen größeren Höhenbereich gleichzeitig zu erfassen, was in Kürze realisiert sein wird. Eine weitere Möglichkeit, schwache Signale aus großen Entfernungen zu erfassen, ist der Einsatz von Photonen-zählern.

Der größte systematische Fehler des Ozon-DIAL-Systems geht derzeit auf die Aerosolkorrektur zurück. Die Aerosolkorrektur kann durch eine Systemerweiterung um einen oder zwei Ramankanäle verbessert werden. Ein zusätzlicher Ramakanal ist bereits installiert worden, jedoch sind die Untersuchungen dazu noch nicht abgeschlossen. Eine andere Möglichkeit bietet die gleichzeitige Emission weiterer Wellenlängen. Dazu muß allerdings auch ein neues Auswerteschema für drei Wellenlängen weiter entwickelt werden.

Einer der wesentlichen Fehler bei der Messung der turbulenten Ozonflüsse mit dem kombinierten DIAL-RASS-System ist der Stichprobenfehler. Die Repräsentativität der gemessenen Ozonflüsse ließe sich durch Mittelung von Messungen an verschiedenen Tagen unter ähnlichen meteorologischen Bedingungen erhöhen. Dieses setzt Routinemessungen, die mit dem kombinierten DIAL-RASS-System prinzipiell möglich sind, und weitere Untersuchungen voraus.

Um eine größere Genauigkeit bei der Bestimmung der Ozonproduktionsrate zu erzielen, muß die horizontale Advektion gemessen werden. Dieses kann durch den Einsatz von einem oder zwei weiteren Ozon-DIAL-Systemen geschehen, so daß die horizontalen Ozongradienten und damit die Advektion in jeder Meßhöhe bestimmt werden kann.

Abschließend läßt sich festhalten, daß schon jetzt ein für Routinemessungen geeignetes Ozon-DIAL-System zur Verfügung steht, das zeitlich und räumlich hochaufgelöste Ozonprofile liefert. Darüber hinaus ist die Messung von Profilen des turbulenten Ozonflusses mittels Kombination mit einem Radar-RASS möglich. Die ersten Messungen zeigen, daß das kombinierte DIAL-RASS-System wesentlich zur Aufklärung der physikalischen und chemischen Prozesse in der konvektiven Grenzschicht beitragen kann.

# Anhang A

## Umrechnung der Ozoneinheiten

### A.1 Massendichte $\leftrightarrow$ Teilchendichte

Der Zusammenhang zwischen Massen- und Teilchendichte ist bei einer Ozonmolmasse von 47.998 g:

$$1 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3} \equiv 1.25468 \cdot 10^{16} \frac{\text{Teilchen}}{\text{m}^3} \quad (\text{A.1})$$

### A.2 Massendichte $\leftrightarrow$ Volumenmischungsverhältnis

Aufgrund der guten Durchmischung ist die Zusammensetzung der Luft und damit ihre Molmasse bis in eine Höhe von ca. 100 km als konstant zu betrachten (Pichler, 1986, S. 149). Damit ergibt sich der Zusammenhang zwischen Ozondichte  $\rho_{\text{O}_3}$  und Volumenmischungsverhältnis  $M_V$  zu:

$$M_V = \frac{m_{\text{mol, L}}}{m_{\text{mol, O}_3}} \cdot \frac{\rho_{\text{O}_3}(z)}{\rho_{\text{L}}(z)} \quad (\text{A.2})$$

Wenn zur Berechnung der Luftdichte die Standardatmosphäre mittlerer Breiten, die im folgenden Abschnitt vorgestellt wird, verwendet wird, ergibt sich am Boden ein Umrechnungsfaktor von 0.49 ( $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3} \rightarrow \text{ppb}$ ) bzw. 2.03 ( $\text{ppb} \rightarrow \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ ). Die Höhenabhängigkeit des Umrechnungsfaktors kann Abb. A.1 entnommen werden.

### A.3 Standardatmosphäre

Vorgestellt wird die Standardatmosphäre mittlerer Breiten, die den Jahresmittelwert für 45° nördliche Breite beschreibt. Die zugrunde liegenden Annahmen sind:

Druck in Bodennähe:	$p_0 = 1013.20 \text{ mbar}$
Temperatur in Bodennähe:	$T_0 = 15^\circ\text{C}$
Lineare Temperaturabnahme mit der Höhe:	$\frac{dT}{dz} = -\frac{0.65^\circ\text{C}}{100\text{m}}$
Tropopausenhöhe:	11 km



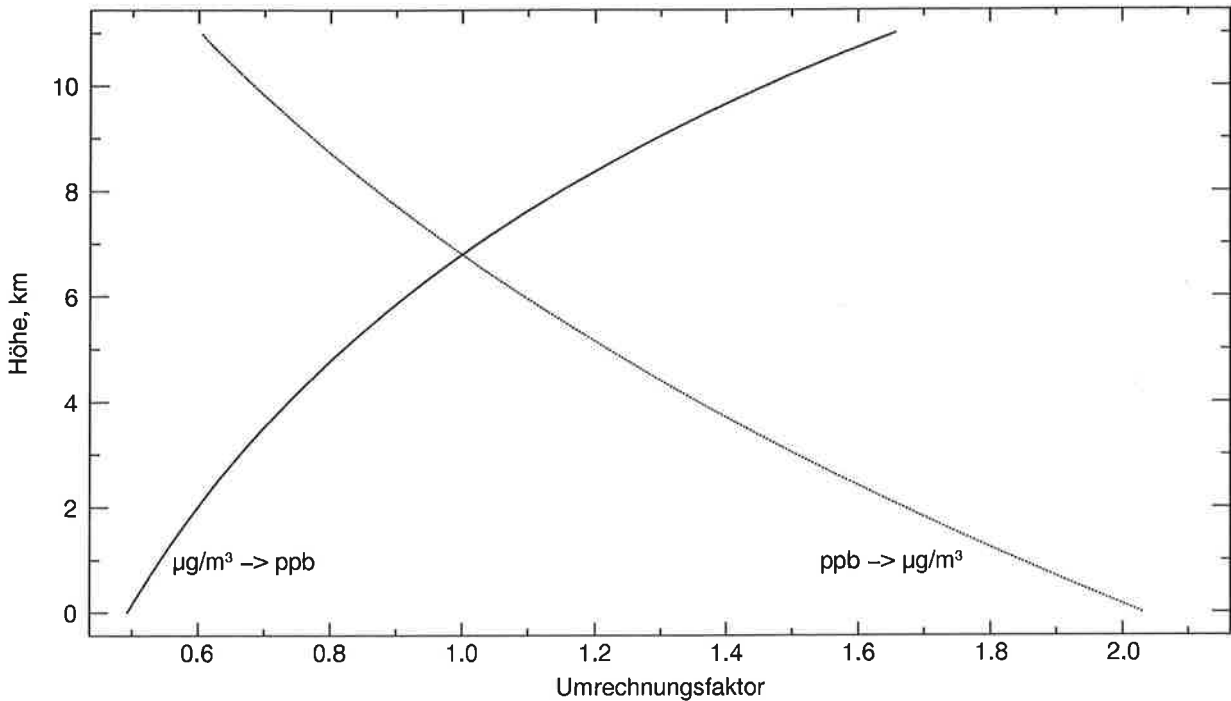


Abbildung A.1: Umrechnungsfaktoren zwischen Ozondichte und Mischungsverhältnis in Abhängigkeit von der Höhe bei Verwendung der Standardatmosphäre mittlerer Breiten.

Hiermit ergibt sich die Temperatur in der Höhe  $z$  zu:

$$T(z) = T_0 + \frac{dT}{dz} \cdot z \quad (\text{A.3})$$

Aus der Gasgleichung läßt sich folgender Zusammenhang für die Luftdichte  $\rho$  herleiten:

$$\rho = \frac{p}{RT} \quad (\text{A.4})$$

wobei  $R$  die universelle Gaskonstante bezeichnet. Dieses Resultat kann benutzt werden, um die barometrische Höhenformel zu integrieren:

$$\begin{aligned} \frac{dp}{dz} &= -\rho g \\ \Rightarrow \int_0^z \frac{dp}{p} &= \int_0^z -\frac{g}{R \cdot T(z')} dz' \end{aligned}$$

Unter Vernachlässigung der Höhenabhängigkeit der Erdbeschleunigung  $g$  und unter Berücksichtigung von Gleichung A.3 ergibt die Integration:

$$p(z) = p_0 \cdot \left( \frac{T(z)}{T_0} \right)^{\frac{g}{R \frac{dT}{dz}}} \quad (\text{A.5})$$

Durch Einsetzen der Gleichungen A.3 und A.5 in Gleichung A.4 läßt sich die Luftdichte als Funktion der Höhe berechnen.

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Die vertikale Struktur der Atmosphäre . . . . .	2
2.1	DIAL-Meßprinzip . . . . .	13
2.2	Nachweisgrenze . . . . .	14
2.3	Ozonabsorptionsquerschnitte im UV . . . . .	15
3.1	Schematischer Aufbau der Sendeoptik . . . . .	20
3.2	Emissionsspektrum mit Rotationslinien . . . . .	24
3.3	Vergleich der Emissionsspektren bei schmal-/breitbandigem Laserbetrieb . . . . .	25
3.4	Typische Emissionsspektren bei Laserbreitbandbetrieb . . . . .	26
3.5	Schematischer Aufbau der Empfangsoptik und -elektronik . . . . .	28
3.6	Schematische Übersicht des Gesamtaufbaus . . . . .	32
3.7	Innenaufnahme des Ozon-DIAL-Systems . . . . .	33
3.8	Außenaufnahme des Ozon-DIAL-Systems . . . . .	34
4.1	Von den Rohdaten zu den Signalen . . . . .	36
4.2	Signale . . . . .	37
4.3	$A$ von 292 und 313 nm bei Rayleighstreuung . . . . .	39
4.4	Ozondichte und Aerosolrückstreuoeffizient . . . . .	42
5.1	Abhängigkeit der Ozondichte von der Aerosolkorrektur . . . . .	45
5.2	Nullsignal . . . . .	47
5.3	Temperaturabhängigkeit des Ozonabsorptionsquerschnitts . . . . .	48
5.4	Wellenlängenabhängigkeit des Ozonabsorptionsquerschnitts . . . . .	49
5.5	Varianzspektrum einer Ozondichtezeitreihe . . . . .	53
5.6	Statistisches Rauschen des DIAL-Systems . . . . .	53
6.1	Horizontalvergleich zwischen DIAL und UV-Photometer . . . . .	56
6.2	Vergleich von DIAL und ECC-Sonde . . . . .	57
7.1	Zeitliche Entwicklung einer Grenzschicht unter konvektiven Bedingungen . . . . .	62
7.2	Schematisches Energiespektrum in der Grenzschicht . . . . .	65
7.3	Meßvolumina von DIAL und Radar-RASS . . . . .	72
7.4	Bodenstation . . . . .	74

7.5	Datenauswertung zur Ozonflußberechnung . . . . .	75
7.6	Zeitreihe des Vertikalwindes gemessen im Clear-Air-Modus . . . . .	76
7.7	Zeitreihe der Ozondichte . . . . .	78
7.8	Tief- und hochpaßgefilterte Zeitreihe der Ozondichte . . . . .	79
7.9	Abhängigkeit des Ozonflusses von der Filterlänge . . . . .	80
7.10	Vertikalwindfluktuationen gemessen im RASS- und Clear-Air-Modus . . . . .	81
7.11	Varianzspektren der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen . . . . .	83
7.12	Kreuzkovarianzfunktion der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen . . . . .	84
7.13	Zeitreihen der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen . . . . .	85
7.14	Streudiagramm der Ozondichte- und Vertikalwindfluktuationen . . . . .	86
7.15	Varianzspektren der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen in Bodennähe . . . . .	88
7.16	Kospektrum der Vertikalwind- und Ozondichtefluktuationen in Bodennähe . . . . .	89
7.17	Kospektrum von Vertikalwind und Ozondichte . . . . .	91
7.18	Abhängigkeit des Ozonflusses von der Aerosolkorrektur . . . . .	93
7.19	Statistisches Rauschen des Vertikalwindes . . . . .	95
7.20	Ozonflußprofil inklusive Fehler . . . . .	98
7.21	Ozonproduktionsrate inklusive Fehler . . . . .	99
7.22	Höhenwetterkarte für 500 hPa vom 30.06.93, 00 UT . . . . .	101
7.23	Bodenwetterkarte vom 29.06.93 . . . . .	102
7.24	Bodendaten vom 29.06.93 . . . . .	103
7.25	Bodenwetterkarte vom 30.06.93 . . . . .	104
7.26	Bodendaten vom 30.06.93 . . . . .	105
7.27	Bodenwetterkarte vom 01.07.93 . . . . .	106
7.28	Bodendaten vom 01.07.93 . . . . .	107
7.29	Bodenwetterkarte vom 02.07.93 . . . . .	108
7.30	Bodendaten vom 02.07.93 . . . . .	109
7.31	Ableitung $A$ des Offline-Lidarsignals vom 29.06.93 . . . . .	111
7.32	Ozondichte in der Grenzschicht am 29.06.93 . . . . .	111
7.33	Zeitliche Entwicklung der Ozondichte am 29.06.93 . . . . .	114
7.34	Zeitliche Entwicklung der Ozondichte am 30.06.93 . . . . .	115
7.35	Zeitliche Entwicklung der Ozondichte am 01.07.93 . . . . .	115
7.36	Ableitung $A$ des Offline-Lidarsignals vom 02.07.93 . . . . .	117
7.37	Zeitliche Entwicklung der Ozondichte am 02.07.93 . . . . .	117
7.38	Modell zur qualitativen Betrachtung der Ozonflüsse . . . . .	120
7.39	Ozonflußprofile vom 29.06.93 . . . . .	122
7.40	Fehler der Ozonflüsse vom 29.06.93 . . . . .	122
7.41	Kreuzkovarianzfunktion vom 29.06.93 . . . . .	124
7.42	Ozonflußprofile vom 30.06.93 . . . . .	126
7.43	Fehler der Ozonflüsse vom 30.06.93 . . . . .	126
7.44	Ozonflußprofile vom 01.07.93 . . . . .	127

7.45 Fehler der Ozonflüsse vom 01.07.93 . . . . .	127
7.46 Ozonflußprofile vom 02.07.93 . . . . .	129
7.47 Fehler der Ozonflüsse vom 02.07.93 . . . . .	129
7.48 Ozonproduktionsraten vom 29.06.93 . . . . .	133
7.49 Fehler der Ozonproduktionsraten vom 29.06.93 . . . . .	133
7.50 Ozonproduktionsraten vom 30.06.93 . . . . .	135
7.51 Fehler der Ozonproduktionsraten vom 30.06.93 . . . . .	135
7.52 Ozonproduktionsraten vom 01.07.93 . . . . .	136
7.53 Fehler der Ozonproduktionsraten vom 01.07.93 . . . . .	136
7.54 Ozonproduktionsraten vom 02.07.93 . . . . .	137
A.1 Umrechnungsfaktoren zwischen Ozondichte und Mischungsverhältnis . . . . .	144



# Symbolverzeichnis

## Lateinische Symbole

$A$	Teleskopempfangsfläche
$A$	Ableitung des Logarithmus eines entfernungskorrigierten Signals
$B$	differentieller Rückstreuterm
$c$	Lichtgeschwindigkeit
$c_a$	Ausbreitungsgeschwindigkeit der Schallwellen
$c_p$	spezifische Wärmekapazität von feuchter Luft
$c_s$	Schallgeschwindigkeit
$D$	Diffusionskoeffizient
$E$	Erwartungswert
$E$	turbulente kinetische Energie
$f$	Brennweite
$f$	Frequenz
$f$	skalare Funktion
$f_B$	Schallfrequenz, bei der Bragg-Bedingung erfüllt ist
$f_R$	elektromagnetische Sendefrequenz
$G$	Globalstrahlung
$g$	Erdbeschleunigung
$I$	turbulente Intensität
$j_i$	Komponenten der Massenstromdichte
$K'$	zusammengefaßte Systemkonstante
$k$	Systemkonstante
$k_{\alpha,\beta}$	Wellenlängenexponent der Aerosolextinktion und -rückstreuung
$k'$	Wellenzahl
$L$	Mittelungslänge
$M$	Molekularmasse
$M_V$	Volumenmischungsverhältnis
$m$	meteorologische Größe
$N$	Anzahl der Meßwerte
$n$	Teilchenzahldichte
$O$	Überlappungsfunktion
$\emptyset$	Durchmesser
$P$	Leistung
$p$	Druck
$Q$	Nettostrahlungsfluß
$Q$	Querempfindlichkeitsterm
$R$	Entfernung
$R$	universelle Gaskonstante
$r$	Korrelationskoeffizient

$\vec{r}$	Ortsvektor
$S$	Lidarverhältnis
$S$	Quell- bzw. Senkenterm
$S$	Verhältnis der Wasserdampf Flüsse in der Entrainmentzone und in Oberflächennähe
$S$	Verhältnis von Aerosol- zu Rayleighrückstreuung
$T$	differentieller Transmissionsterm
$T$	Mittelungszeit
$T$	Temperatur
$T$	Transmission der Atmosphäre
$t$	Zeit
$u_i$	Komponenten der Windgeschwindigkeit
$u_r$	radiale Windgeschwindigkeit
$u$	Windgeschwindigkeit in Hauptwindrichtung
$v$	Windgeschwindigkeit senkrecht zur Hauptwindrichtung
$w$	vertikale Windgeschwindigkeit
$x_i$	Komponenten des Ortsvektors
$z$	Höhe über Grund
$z_i$	Grenzschichthöhe

## Griechische Symbole

$\alpha$	Extinktionskoeffizient
$\alpha$	Variable
$\beta$	Rückstreuungskoeffizient
$\beta$	Variable
$\Delta$	Differenz
$\Delta_G$	vorgegebene Mindestbreite einer Lücke zur Ausreißeridentifikation
$\delta$	Abweichung vom wahren Wert
$\delta$	Sensorabstand
$\epsilon$	Dissipationsrate
$\eta$	Kolmogorov-Microscale
$\kappa$	Wellenzahl
$\Lambda$	Eulersche Integral-Skala
$\lambda$	Wellenlänge
$\lambda$	spezifische Verdunstungsenergie
$\nu$	kinematische Zähigkeit
$\pi$	Kreiszahl
$\rho$	Dichte
$\sigma$	Absorptionsquerschnitt
$\sigma$	Streuquerschnitt
$\sigma$	Standardabweichung
$\sigma^2$	Varianz
$\frac{d\sigma}{\Omega}$	differentieller Streuquerschnitt
$\tau$	Laserpulsdauer
$\Omega$	Raumwinkel

## Spezielle Symbole

$(\overline{\quad})$	horizontal räumlicher bzw. zeitlicher Mittelwert
$\langle \quad \rangle$	Ensemble-Mittelwert
$(\quad)'$	Fluktuation

## Indizes

0	Meßwert in Oberflächennähe
Aer	Aerosolstreuung
f	skalare Funktion
H	Höhenstufen
L	trockene Luft
M	Meßwert
O <sub>3</sub>	Ozon
on	Online
off	Offline
Ray	Rayleighstreuung
S	Spurengas
T	Zeitschritte
W	Wasserdampf
z <sub>i</sub>	Grenzschichthöhe
α	Extinktion
β	Rückstreuung
λ	Wellenlänge

## Flüsse

$\overline{w' \varrho'_{O_3}}$	turbulenter Ozonfluß
$\overline{w' \varrho'_W}$	latenter Wärmefluß
$\overline{w' T'}$	fühlbarer Wärmefluß



## Abkürzungen

AD	Analog-Digital
BBAR	Breitband-Antireflex
DIAL	Differential Absorption Lidar
ECC	Electrochemical Concentration Cell
EUROTRAC	European Experiment on Transport and Transformation of Environmentally Relevant Trace Constituents in the Troposphere over Europe
FM-CW	Frequency Modulated Continuous Wave
FWHM	Full Width at Half Maximum
IR	infraroter Spektralbereich
Lidar	Light Detecting and Ranging
MPI	Max-Planck-Institut für Meteorologie
NA	numerische Aberration
PC	Personal-Computer
PMT	Photomultiplier
ppb	parts per billion $\equiv 10^{-9}$
ppt	parts per trillion $\equiv 10^{-12}$
Radar	Radio Detecting and Ranging
RASS	Radio Acoustic Sounding System
SRS	stimulierte Raman-Streuung
SRRS	stimulierte Rotations-Raman-Streuung
TESLAS	Tropospheric Environmental Studies by Laser Sounding (Unterprojekt von EUROTRAC)
TOR	Tropospheric Ozone Research (Unterprojekt von EUROTRAC)
TRACT	Transport of Air Pollutions over Complex Terrain (Unterprojekt von EUROTRAC)
TROLIX	Tropospheric Ozone Lidar Intercomparison Experiment
UT	Universal Time
UV	ultravioletter Spektralbereich

# Literaturverzeichnis

- Ancellet, G., A. Papayannis, J. Pelon und G. Megie, 1989:** DIAL tropospheric ozone measurement using a Nd:YAG laser and the raman shifting technique. *J. Atmos. Ocean. Tech.* 6, 832 – 839
- Angell, J.K., und J. Korshover, 1980:** Update of ozone variations through 1979, *Proc. Ozone Symp.*, Boulder, 393 – 396
- Ansyco, 1991:** Bedienungsanleitung Ozonanalysator Modell O<sub>3</sub>41M, Karlsruhe
- Bauer, M., 1992:** Untersuchungen zur Reichweite eines Wind-Temperatur-RADARs. Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Kernforschungszentrum Karlsruhe / Universität Karlsruhe, Diplomarbeit
- Beekmann, M., G. Ancellet, G. Mégie, H.G.J. Smit und D. Kley, 1994:** Intercomparison campaign of vertical ozone profiles including electrochemical sondes of ECC and Brewer-Mast type and a ground based UV-differential absorption lidar. *J. Atm. Chem.* 19, 259 – 288
- Berliner Wetterkarte, 1993:** in: *Meteorologische Abhandlungen, Neue Folge, Serie B: Grundlagenmaterial, Ergebnisse des synoptischen Dienstes*, Bd. 70, Heft 6/7, Freie Universität Berlin, Institut für Meteorologie, Verlag von Dietrich Reimer, Berlin
- Bojkov, R.D., 1979:** Preliminary results of study of trends in ozone concentration. Appendix to WMO presentation, UNEP/CCOL-III/3/Add. 3, Paris
- Bojkov, R.D., 1988:** Ozone changes at the surface and in the free troposphere. in: *Tropospheric ozone, regional and global scale interactions*, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 83 – 96
- Bojkov, R.D., und G.C. Reinsel, 1984:** Trends in tropospheric ozone concentration. *Proc. Ozone Symp.* Halkidiki, Reidel Publ., 775 – 781
- Bösenberg, J., und F. Theopold, 1988:** Evaluation of DIAL measurements in presence of signal noise. *Proc. 14th International Laser-Radar Conference*, 209 – 211
- Bösenberg, J., C. Senff und G. Peters, 1991:** Measurement of water vapour flux profiles in the PBL with lidar and radar-rass. *Lower Tropospheric Profiling: needs and technologies*, Extended Abstracts, Boulder, Colorado

- Bösenberg, J., G. Ancellet, A. Apituley, H. Bergwerff, G.v. Cossart, H. Edner, J. Fiedler, B. Galle, C.d. Jonge, J. Mellqvist, V. Mitev, T. Schaberl, G. Sonnemann, J. Spakman, D. Swart und E. Wallinder, 1993:** Tropospheric ozone lidar intercomparison experiment, TROLIX '91, Field phase report. Max-Planck-Institut für Meteorologie, Report Nr. 102
- Bösenberg, J., G.C. Grabbe, V. Matthias, T. Schaberl und C. Senff, 1995:** Messungen der vertikalen Ozonverteilung in der unteren Troposphäre: Vergleich zwischen Lidar und ECC-Sonde. Eingereicht als DWD-Report
- Brassington, D.J., 1981:** Sulfur dioxide absorption cross-section measurements from 290 nm to 317 nm. *Appl. Opt.* 20, 3774 – 3779
- Browell, E.V., A.F. Carter, S.T. Shipley, R.J. Allen, C.F. Butler, M.N. Mayo, J.H. Siviter, Jr., and W.M. Hall, 1983:** NASA multipurpose airborne DIAL system and measurements of ozone and aerosol profiles. *Appl. Opt.* 22, 522 – 534
- Browell, E.V., S. Ismail und S.T. Shipley, 1985:** Ultraviolet DIAL measurements of O<sub>3</sub> profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols. *Appl. Opt.* 24, 2827 – 2836
- Bufton, J.L., R.W. Stewart und C. Weng, 1979:** Remote measurement of tropospheric ozone. *Appl. Opt.* 18, 3363
- Bureau, R., 1946:** *Météorologie* 3, 292
- Burrige, D.M., und A.J. Gadd, 1977:** The Meteorological Office operational 10-level numerical weather prediction model. *Sci. Pap.* 34, U.K. Meteorological Office
- Businger, J.A., 1982:** Equations and concepts. in: *Atmospheric turbulence and air pollution modelling*, Editoren: F.T.M. Nieuwstadt und H. van Dop, Reidel, Dordrecht
- Byer, R.L., and M. Garbuny, 1973: Pollutant detection by absorption using Mie scattering and topographic targets as retroreflectors. *Appl. Opt.* 12, 1496 – 1505
- Cann, M.W.P., J.B. Shin und R.W. Nicholls, 1984:** Oxygen absorption in the spectral range 180–300 nm for temperatures to 3000 K and pressures to 50 atm. *Can. J. Phys.* 62, 1738 – 1750
- Carnuth, W., und T. Trickl, 1992:** Entwicklung und praktischer Einsatz eines mobilen Lidarsystems zur Erfassung der Ozonkonzentration in der Troposphäre bis 13 km N.N. mittels differentieller Absorption. BMFT Abschlussbericht
- Carnuth, W., U. Kempfer, R. Lotz und T. Trickl, 1990:** Development and application of a tropospheric ozone lidar. *Proceedings of the EUROTRAC Symposium 1990*, Garmisch-Partenkirchen
- Collis, R.T.H., 1966:** Lidar: a new atmospheric probe. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 92, 220 – 230

- Collis, R.T.H., und P.B. Russell, 1976:** Lidar measurement of particles and gases by elastic backscattering and differential absorption. in: Laser monitoring of the atmosphere, Editor: E.D. Hinkley, Springer-Verlag, Berlin
- Cooney, J.A., 1968:** Measurements on the Raman component of laser atmospheric backscatter. Appl. Phys. Lett. 12, 40
- Cox, R.A., 1988:** Atmospheric chemistry of NO<sub>x</sub> and hydrocarbons influencing tropospheric ozone. in: Tropospheric ozone, regional and global scale interactions, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 263 – 292
- Crutzen, P.J., 1973:** A discussion of the chemistry of some minor constituents in the stratosphere and troposphere. Pure Appl. Geophys. 106 – 108, 1385 – 1399
- Crutzen, P.J., 1988:** Tropospheric ozone: an overview. in: Tropospheric ozone, regional and global scale interactions, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 3 – 32
- Crutzen, P.J., 1994:** in: Zeitbombe Ozon, H. Vockenhuber, Humboldt-Taschenbuchverlag, München
- Daumont, D., J. Brion, J. Charbonnier und J. Malicet, 1992:** Ozone UV Spectroscopy I: Absorption cross-sections at room temperature. J. Atm. Chem. 15, 145 – 155
- De Bruin, H.A.R., und A.A.M. Holtslag, 1982:** A simple parameterization of the surface fluxes of sensible and latent heat during daytime compared with the Penman-Monteith concept. J. Appl. Meteor. 21, 1610 – 1621
- De Muer, D., R. Heylen und H. De Backer, 1990:** Vertical profiles of ozone and meteorological parameters at Uccle (Belgium) obtained with free balloons and a tethered balloon. EUROTRAC, Annual Report, Part 9, Tropospheric Ozone Research, Garmisch-Partenkirchen
- Droppo, J.G., Jr., 1985:** Concurrent measurements of ozone dry deposition using eddy correlation and profile flux methods. J. Geophys. Res. 90, 2111 – 2118
- Dubovikov, M.M., und V.I. Tatarskii, 1987:** Calculation of the asymptotic form of spectrum of locally isotropic turbulence in the viscous range. Soviet Phys. J. Exp. Theor. Phys. 66, 1136 – 1141
- Edner, H., K. Fredriksson, A. Sunesson, S. Svanberg, L. Uneus und W. Wendt, 1987:** Mobile remote sensing system for atmospheric monitoring. Appl. Opt. 26, 4330 – 4338
- Elterman, L., 1968:** UV, visible and IR attenuation for altitudes to 50 km. Environmental Research Papers, No. 285, AFCRL-68-0153, Bedford, Mass.
- Fabian, P., 1992:** Atmosphäre und Umwelt. Springer-Verlag, Berlin

- Ferguson, J.A., und D.H. Stephens, 1983:** Algorithm for inverting lidar returns. Appl. Opt. 22, 3673 – 3675
- Fernald, F.G., 1984:** Analysis of atmospheric lidar observations: some comments. Appl. Opt. 23, 652 – 653
- Garratt, J.R., 1992:** The atmospheric boundary layer. Cambridge University Press, Cambridge
- Gast, E., 1991:** Messung des Linearitätsverhaltens von Photomultipliern und Untersuchung der zeitabhängigen Nachwirkungen kurzer hoher Lichtimpulse. Fachhochschule Wedel, Diplomarbeit
- Gibson, A.J., und L. Thomas, 1975:** Ultraviolet laser sounding of the troposphere and lower stratosphere. Nature 256, 561 – 563
- Godowitch, J.M., 1990:** Vertical ozone fluxes and related deposition parameters over agricultural and forested landscapes. Boundary-Layer Meteorol. 50, 375 – 404
- Grabbe, G.C., J. Bösenberg und T. Schaberl, 1994:** Ozone distribution in the lower troposphere investigated with the MPI ozone DIAL. Proceedings of the EUROTRAC Symposium '94, Academic Publishing, The Hague, 326 – 329
- Grabbe, G.C., J. Bösenberg, H. Dier, U. Görndorf, V. Matthias, G. Peters, T. Schaberl und C. Senff, 1995:** Intercomparison of ozone measurements between lidar and ECC-sondes. Eingereicht bei: Contr. Atmos. Phys.
- Greenhut, G.K., 1983:** Resistance of a pine forest to ozone uptake. Boundary-Layer Meteorol. 27, 387 – 391
- Greenhut, G.K., 1986:** Transport of ozone between boundary layer and cloud layer by cumulus clouds. J. Geophys. Res. 91, 8613 – 8622
- Greenhut, G.K., J.K.S. Ching, R. Pearson, Jr., und T.P. Repoff, 1984:** Transport of ozone by turbulence and clouds in an urban boundary layer. J. Geophys. Res. 89, 4757 – 4766
- Greenhut, G.K., A.M. Jochum und B. Neininger, 1995:** Boundary layer turbulent transport and production/destruction of ozone during summertime smog episodes in the swiss middleland. Zur Veröffentlichung akzeptiert in Boundary-Layer Meteorol. 73, number 4
- Guderian, R., K. Küppers und R. Six, 1985:** Wirkungen von Ozon, Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid auf Fichte und Pappel bei unterschiedlicher Versorgung mit Magnesium und Kalzium sowie auf die Blattflechte Hypogymnia physodes. VDI Bericht 560, Waldschäden, Düsseldorf, 657 – 702
- Guicherit, R., 1988:** Ozone on an urban and regional scale — with special reference to the situation in the Netherlands. in: Tropospheric ozone, regional and global scale interactions, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 49 – 62

- Güsten, H., G. Heinrich, R.W.H. Schmidt und U. Schurath, 1992:** A novel ozone sensor for direct eddy flux measurements. *J. Atmos. Chem.* 14, 73 – 84
- Hilsenrath, E., W. Attmannspacher, A. Bass, W. Evans, R. Hagemeyer, R.A. Barnes, W. Komhyr, K. Mauersberger, J. Mentall, M. Profitt, D. Robbins, S. Taylor, A. Torres und E. Weinstock, 1986:** Results from the balloon ozone intercomparison campaign (BOIC). *J. Geophys. Res.* 91, 13137 (1986)
- Inaba, H., und T. Kobayasi, 1969:** Laser-Raman radar for chemical analysis of polluted air. *Nature* 224, 170 – 172
- Kaimal, J.C., und J.J. Finnigan, 1994:** Atmospheric boundary layer flows: Their structure and measurement. Oxford University Press, Oxford
- Kaimal, J.C., J.C. Wyngaard, Y. Izumi und O.R. Coté, 1972:** Spectral characteristics of surface-layer turbulence. *Quart. J. R. Met. Soc.* 98, 563 – 589
- Kaimal, J.C., J.C. Wyngaard, D.A. Haugen, O.R. Cote, Y. Izumi, S.J. Caughey und C.J. Readings, 1976:** Turbulence structure in the convective boundary layer. *J. Atmos. Sci.* 33, 2152 – 2169
- Kildal, H., und R.L. Byer, 1971:** Comparison of laser methods for the remote detection of atmospheric pollutants. *Proc. IEEE* 59, 1644 – 1663
- Klett, J.D., 1981:** Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Appl. Opt.* 20, 211 – 220
- Klett, J.D., 1983:** Lidar calibration and extinction coefficients. *Appl. Opt.* 22, 514 – 515
- Klett, J.D., 1985:** Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Appl. Opt.* 24, 1638 – 1643
- Klimkin, V.M., und V.N. Fedorichev, 1989:** A new absorption band in the ultraviolet. *Atm. Opt.* 2, 174 – 175
- Kobayasi, T., und H. Inaba, 1970:** Spectroscopic detection of SO<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> molecules in polluted atmosphere by laser-Raman radar technique. *Appl. Phys. Lett.* 17, 139
- Kobayasi, T., und H. Inaba, 1971:** Laser beam technology for remotely sensing invisible molecules in the polluted atmosphere. *Proc. 11th Symposium on Electron, Ion and Laser Technology*, Boulder
- Kohsiek, W., 1984:** Inertial subrange correlation between temperature and humidity fluctuations in the unstable surface layer above vegetated terrains. *Boundary-Layer Meteorol.* 29, 211 – 224
- Kolmogorov, A.N., 1941:** The local structure of turbulence in incompressible viscous fluid for very large Reynolds numbers. *Doklady ANSSSR* 30, 301 – 304
- Kondratyev, K.Y., 1969:** Radiation in the atmosphere. Academic Press

- Krause, M., 1990:** Erzeugung frequenzverschobener Strahlung für ein Temperatur- und Feuchte-Lidar mit einem KrF-Laser unter Ausnutzung stimulierter Ramanstreuung. GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH, Diplomarbeit
- Kristensen, L., und D.R. Fitzjarrald, 1984:** The effect of line averaging on scalar flux measurements with a sonic anemometer near the surface. *J. Atmos. Ocean. Tech.* 1, 138 – 146
- Lambda Physik, 1994:** Private Mitteilung
- Lee, H.S., G.K. Schwemmer, C.L. Korb, M. Dombrowski und C. Prasad, 1990:** Gated photomultiplier response characterization for DIAL measurements. *Appl. Opt.* 29, 3303 – 3315
- Lenschow, D.H., und B.B. Stankov, 1986:** Length scales in the convective boundary layer. *J. Atmos. Sci.* 43, 1198 – 1209
- Lenschow, D.H., A.C. Delany, B.B. Stankov und D.H. Stedman, 1980:** Airborne measurements of the vertical flux of ozone in the boundary layer. *Boundary-Layer Meteorol.* 19, 249 – 265
- Lenschow, D.H., R. Pearson, Jr., und B.B. Stankov, 1981:** Estimating the ozone budget in the boundary layer by use of aircraft measurements of ozone eddy flux and mean concentration. *J. Geophys. Res.* 86, 7291 – 7297
- Lenschow, D.H., R. Pearson, Jr., und B.B. Stankov, 1982:** Measurements of ozone vertical flux to ocean and forest. *J. Geophys. Res.* 87, 8833 – 8837
- Logan, J.A., 1988:** The ozone problem in rural areas of the United States. in: *Tropospheric ozone, regional and global scale interactions*, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 327 – 344
- Lukyanenko, S.F., T.I. Novakovskaya und I.N. Potapkin, 1989:** Study of the H<sub>2</sub>O vapor absorption spectrum in the region 270–330 nm. *Atm. Opt.* 2, 579 – 582
- Lumley, J.L., und H.A. Panofsky, 1964:** The structure of atmospheric turbulence. Wiley-Interscience, New-York
- Malicet, J., D. Daumont, J. Charbonnier und J. Brion, 1992:** Ozone UV Spectroscopy II: Absorption cross-sections and temperature dependence. Eingereicht bei *J. Atm. Chem.*
- Matthias, V., und C. Senff, 1994 :** private Mitteilung
- Measures, R.M., und G. Pilon, 1972:** A study of tunable laser techniques for remote mapping of specific gaseous constituents of the atmosphere. *Opto-Electronics* 4
- Megie, G.J., 1994:** Lidar measurements of atmospheric ozone. 17th International Laser Radar Conference, Japan, Abstracts

- Megie, G.J., und R.T. Menzies, 1980:** Complementarity of UV and IR differential absorption lidar for global measurements of atmospheric species. *Appl. Opt.* 19, 1173 – 1183
- Mégie, G., J.Y. Allain, M.L. Chanin und J.E. Blamont, 1977:** Vertical profile of stratospheric ozone by laser sounding from the ground. *Nature* 270, 329 – 331
- Melfi, S.H., 1976:** Remote sensing for air quality management. in: *Laser monitoring of the atmosphere*, Editor: E.D. Hinkley, Springer-Verlag, Berlin
- Melfi, S.H., J.D. Lawrence, Jr., und M.P. McCormick, 1969:** Observation of Raman scattering by water vapor in the atmosphere. *Appl. Phys. Lett.* 15, 295
- Metek, 1990:** Bedienungshandbuch USAT-3
- Middleton, W.E.K., und A.F. Spilhaus, 1953:** *Met. Instruments*, Univ. of Toronto Press
- Milton, M.J.T., P.T. Woods, R.H. Partridge und B.W. Joliffe, 1992:** Long-path methods for remote sensing of pollutants in the boundary layer. *SPIE 1715, Optical Methods in Atmospheric Chemistry*, 312 – 321
- Molina, L.T., und M.J. Molina, 1986:** Absolute absorption cross-sections of ozone in the 185–350 nm wavelength range. *J. Geophys. Res.* 91, 14501 – 14508
- Neumann, H.H., und G.d. Hartog, 1985:** Eddy correlation measurements of atmospheric fluxes of ozone, sulphur, and particulates during the champaign intercomparison study. *J. Geophys. Res.* 90, 2097 – 2110
- Obukhov, A.M., 1941:** Energy distribution in the spectrum of a turbulent flow. *Izvestiya ANSSSR, Ser. Geogr. Geofiz.* 4-5, 453 – 466
- Oke, T.R., 1978:** *Boundary layer climates*. Halsted Press, New York
- Papayannis, A., G. Ancellet, J. Pelon und G. Mégie, 1990:** Multiwavelength lidar for ozone measurements in the troposphere and the lower stratosphere. *Appl. Opt.* 29, 467 – 476
- Paremter, J.R., und P.R. Miller, 1968:** Studies relating to the cause of decline and death of Ponderosa pine in Southern California. *Plant Disease Reporter* 52, 701 – 711
- Pelon, J., und G. Mégie, 1982:** Ozone monitoring in the troposphere and lower stratosphere: evaluation and operation of a ground-based lidar station. *J. Geophys. Res.* 87, 4947 – 4955
- Penkett, S.A., I.S.A. Isaksen und D. Kley, 1988:** A program of tropospheric ozone research (TOR). in: *Tropospheric ozone, regional and global scale interactions*, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 345 – 363



- Peters, G., 1990:** Temperature and wind profiles from radar wind profilers equipped with acoustic sources. *Meteorol. Rundschau*, 42, 152 – 154
- Peters, G., und H.J. Kirtzel, 1994:** Complementary wind sensing techniques: sodar and RASS. *Ann. Geophysicae* 12, 506 – 517
- Peters, G., D. Hasselmann und S. Pang, 1988:** Radio acoustic sounding of the atmosphere using a FMCW radar. *Radio Sci.* 23, 640 – 646
- Pichler, H., 1986:** *Dynamik der Atmosphäre.* Bibliographisches Institut, Zürich
- Prinz, B., 1988:** Ozone effects on vegetation. in: *Tropospheric ozone, regional and global scale interactions*, Ed: I.S.A. Isaksen, D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, 161 – 184
- Prinz, B., G.H.M. Krause und K.D. Jung, 1985:** Untersuchungen der LIS zur Problematik der Waldschäden. In: *Waldschäden – Theorie und Praxis auf der Suche nach Antworten*, Oldenbourg Verlag, München, 143 – 194
- Profitt, M.H., und A.O. Langford, 1991:** Measuring tropospheric ozone using differential absorption lidar technique. *SPIE 1491, Remote Sensing of Atmospheric Chemistry (1991)*, 2 – 6
- Reich, P.B., und R.G. Amundson, 1985:** Ambient levels of ozone reduce net photosynthesis in tree and crop species. *Science* 230, 566
- Reich, P.B., A.W. Schoettle, R.M. Rabe und R.G. Amundson, 1985:** Response of soybean to low concentrations of ozone: I. Reductions in leaf and whole plant net photosynthesis and leaf chlorophyll content. *J. Environ. Qual.* 15, 31 – 36
- Richter, M.C., 1994:** Niederschlagsmessungen mit dem vertikal ausgerichteten FM-CW-Dopplerradar-RASS-System, Validierung und Anwendung. *Berichte aus dem Zentrum für Meeres- und Klimaforschung, Reihe A, Nr. 12*
- Rösler, U.T., 1991:** Bau und Erprobung eines Ozon-Differential-Absorptions-LIDARs. *Deutsche Forschungsanstalt für Luft- und Raumfahrt, DLR-FB 91-17*
- Sasano, Y., E.V. Browell und S. Ismail, 1985:** Error caused by using a constant extinction/backscattering ratio in the lidar solution. *Appl. Opt.* 24, 3929 – 3932
- Schenkel, A., und B. Broder, 1982:** Interference of some trace gases with ozone measurements by the KI method. *Atm. Env.* 16, 2187-2190
- Schneider, W., G.K. Moortgat, G.S. Tyndall und J.P. Burrows, 1987:** Absorption cross-sections of NO<sub>2</sub> in the UV and visible region (200–700 nm) at 298 K. *J. Photochem. and Photobiol. A* 40, 195 – 217
- Schotland, R.M., 1964:** The determination of the vertical profile of atmospheric gases by means of a ground based optical radar. *Proceedings of the 3th Symposium on Remote Sensing of Environment*, Univ. of Michigan

- Schotland, R.M., 1966:** Some observations of the vertical profile of water vapor by means of a laser optical radar. Proc. 4th Symposium on Remote Sensing of Environment, Rev. Edition, 4864-11-X, Univ. of Michigan, 273 – 283
- Schotland, R.M., 1974:** Errors in the lidar measurement of atmospheric gases by differential absorption. *J. Appl. Meteor.* 13, 71 – 77
- Schaberl, T., 1990:** Aufbau und Erprobung der Sende- und Empfangsoptik für ein Ozon-LIDAR unter Benutzung der stimulierten Raman-Streuung. Fachbereich Physik der Universität Hamburg, Diplomarbeit
- Seinfeld, J.H., 1986:** Atmospheric chemistry and physics of air pollution. John Wiley & Sons, New York
- Senff, C., 1993:** Messung des Wasserdampf fluxes in der konvektiven Grenzschicht mit DIAL und RADAR-RASS. Fachbereich Geowissenschaften der Universität Hamburg, Dissertation
- Senff, C., J. Bösenberg und G. Peters, 1994:** Measurement of water vapor flux profiles in the convective boundary layer with Lidar and Radar-RASS. *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 11, 85 – 93
- Smit, H.G.J., W. Sträter, D. Kley und M.H. Profitt, 1994:** The evaluation of ECC ozone sondes under quasi flight conditions in the environmental simulation chamber at Jülich. Proceedings of the EUROTRAC Symposium '94, Academic Publishing, The Hague, 349 – 353
- Stull, R.B., 1988:** An introduction to boundary layer meteorology. Kluwer Academic Publisher, Dordrecht
- Sunesson, J.A., und A. Apituley, 1991:** RIVM Tropospheric Ozone LIDAR Report II: System description and first results. RIVM report 222201006
- Taylor, G.I., 1938:** The spectrum of turbulence. *Proc. R. Soc. A* 164, 476 – 490
- Thomsen, O., 1990:** Messung des Absorptionsquerschnitts von Schwefeldioxid im Wellenlängenbereich von 265 bis 298 nm. Diplomarbeit, GKSS 90/E/36
- Tiao, G.C., G.C. Reinsel, J.H. Pedrick, G.M. Allenby, C.L. Mateer, A.J. Miller und J.J. DeLuisi, 1986:** A statistical trend analysis of ozonesonde data. *J. Geophys. Res.* 91, 13121 – 13136
- Uchino, O., M. Maeda, J. Khono, T. Shibata, C. Nagasawa und M. Hirono, 1978:** Observation of stratospheric ozone layer by a XeCl laser radar. *Appl. Phys. Lett.* 33, 807 – 809
- Van der Hoven, I., 1957:** Power spectrum of horizontal wind speed in the frequency range from 0.0007 to 900 cycles per hour. *J. Meteor.* 14, 160 – 164

- van Dop, H., R. Guicherit und R.W. Lanting, 1977:** Some measurements of the vertical distribution of ozone in the atmospheric boundary layer. *Atmospheric Environment* 11, 65 – 71
- Vockenhuber, H., 1994:** Zeitbombe Ozon. Humboldt-Taschenbuchverlag, München
- Völger, P., 1993:** Optische Eigenschaften von Aerosolpartikeln und deren Auswirkungen auf Ozonmessungen mit einem LIDAR. Meteorologisches Institut der Universität Hamburg, Diplomarbeit
- Völger, P., J. Bösenberg und I. Schult, 1995:** Aerosol scattering properties at UV-wavelengths: implications for DIAL measurements of tropospheric ozone. Eingereicht bei: *Contr. Atmos. Phys.*
- Webb, E.K., G.I. Pearman und R. Leuning, 1980:** Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapour transfer. *Quart. J. R. Met. Soc.* 106, 85 – 100
- Weitkamp, C., P. Bisling, J. Glauer, U.-B. Goers, S. Köhler, W. Lahmann und W. Michaelis, 1991:** Das mobile, ortsaufösende Schadgasfernmeßsystem ARGOS. Laser in der Umweltmeßtechnik, Vorträge des 10. Internationalen Kongresses, Laser '91, Ed.: C. Werner, V. Klein, K. Weber, Springer Verlag
- Wesely, M.L., J.A. Eastman, D.R. Cook und B.B. Hicks, 1978:** Daytime variations of ozone eddy fluxes to maize. *Boundary-Layer Meteorol.* 15, 361 – 373
- Wetterkarte des DWD, 1993:** Wetterkarte, Amtsblatt des Deutschen Wetterdienstes, Jahrgang 1993, Nummer: 180 – 184, Offenbach
- Willis, G.E., und J.W. Deardorff, 1976:** On the use of Taylor's translation hypothesis for diffusion in the mixed layer. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 102, 817 – 822
- Wyngaard, J.C., 1991:** On the maintenance and measurement of scalar fluxes. in: *Land surface evaporation*, Editoren: André und Schmugge, Springer-Verlag, New-York
- Yang, Y.S., J.M. Skelly, B.I. Chevone und J.B. Birch, 1983:** Effects of long-term ozone exposure on photosynthesis and dark respiration of eastern white pine. *Environ. Sci. Technol.* 17, 371 – 373
- Zaromb, S., 1969:** Remote sensing of invisible air pollutants by lidar spectroscopy. *Proc. Electro-Optical Systems Design Conference*, New-York, 609 – 624

## Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. H. Graßl für die Anregung zu dieser Arbeit, deren sorgfältige Durchsicht und seinen konstruktiven Verbesserungsvorschlägen. Besonders bedanke ich mich bei Herrn Dr. J. Bösenberg für die intensive Betreuung beim Aufbau des DIAL-Systems und seine Hilfe bei der Auswertung und Interpretation der Ergebnisse. Sehr herzlich bedanke ich mich bei Herrn Dr. C. Senff für die ausgiebigen Diskussionen, die maßgeblich zur Entstehung dieser Arbeit beigetragen haben, für die Hilfe bei der Entwicklung der Auswerteprogramme sowie seinen vielfältigen und konstruktiven Verbesserungsvorschlägen. Herrn Dr. G. Peters und Herrn Dipl.-Phys. M. Bauer danke ich für die Ratschläge zur Auswertung der Radar-RASS-Daten.

Für die umfangreiche Mithilfe bei der Durchführung der Feldexperimente danke ich Herrn Dipl.-Met. G. Grabbe, Frau M. Pfeiffer und Frau M. Scheller. Mein stiller Dank gehört Herrn Dipl.-Ing. K. Heinsohn für die Durchführung der Radar-RASS-Messungen. Ferner danke ich den Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt für ihre Hilfe beim Aufbau des Systems. Ich danke Herrn H. Linné für die Rechner- und Programmbetreuung. Den anderen Mitarbeitern der 'Lidar'-Gruppe und Herrn Dipl.-Phys. C. Krupp danke ich für die vielen Diskussionen und Anregungen.

Dem meteorologischen Beratungsdienst der Bundeswehr danke ich für die Bereitstellung der Radiosondendaten. Last but not least danke ich hiermit auch insbesondere meinen Eltern für ihre Unterstützung gänzlich anderer Art.

Teile dieser Arbeit wurden vom Bundesminister für Forschung und Technologie unter dem Zeichen EU701A/7 und von der Deutschen Forschungsgemeinschaft im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 318 gefördert.